ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第2期

Vol.39 No.2

2018

中国科学院生态环境研究中心 主办

科学出版社 出版

环境科学
(HUANJING KEXUE)
ENVIRONMENTAL SCIENCE
第39卷 第2期
2018年2月15日

目 次

生物滴滤塔净化甲基叔丁基醚废气的研究

褚其英[1], 姚露露[1], 吕雄标[2], 叶杰旭[1], 叶虹霓[1], 潘梁柱[1], 陈建孟[1], 陈东之[1*]

(1. 浙江工业大学环境学院, 杭州 310032; 2. 浙江菲尔特环保工程有限公司, 杭州 310014)

摘要: 应用生物滴滤塔处理甲基叔丁基醚废气, 研究其挂膜启动及稳定运行阶段的降解性能, 并考察了稳定期该系统的生物群落结构. 结果表明, 生物滴滤塔在停留时间为 60 s, 进气质量浓度为 100 $mg·m^{-3}$ 的条件下, 运行 23 d 后完成挂膜, 填料上的生物量明显增加, 去除率可维持在 70% 以上. 反应器稳定运行时, 去除负荷可达 13.47 $g·(m^3·h)^{-1}$, 矿化率可达 68%; 用 Haldane 模型拟合生物滴滤塔中去除负荷的变化趋势, 获得理论 EC_{max} 为 21.03 $g·(m^3·h)^{-1}$, K_S 为 0.16 $g·m^{-3}$, K_I 为 0.99 $g·m^{-3}$. 运用高通量测序技术分析生物膜中的微生物群落结构, 发现其中优势菌属为 *Methylibium* sp. 和 *Blastocatella* sp., 分别占 11.33% 和 9.95%.

关键词: 生物滴滤塔; 甲基叔丁基醚; 去除负荷; 动力学

中图分类号: X701 **文献标识码**: A **文章编号**: 0250-3301(2018)02-0633-07 **DOI**: 10.13227/j.hjkx.201703066

Treatment of the Waste Gas Containing Methyl *tert*-Butyl Ether via a Biotrickling Filter

CHU Qi-ying[1], YAO Lu-lu[1], LÜ Xiong-biao[2], YE Jie-xu[1], YE Hong-ni[1], PAN Liang-zhu[1], CHEN Jian-meng[1], CHEN Dong-zhi[1*]

(1. College of Environment, Zhejiang University of Technology, Hangzhou 310032, China; 2. Feierte Environmental Engineering Company Limited of Zhejiang Province, Hangzhou 310014, China)

Abstract: The performance and microbial communities of methyl *tert*-butyl ether (MTBE) treatment using a biotrickling filter (BTF) that was inoculated with activated sewage sludge were investigated. The BTF successfully started up within 23 days when the inlet concentration of MTBE was 100 $mg·m^{-3}$ and empty bed retention time was 60 s, with 70% removal efficiency (RE). Under steady-state conditions, an elimination capacity (EC) and a mineralization ratio of 13.47 $g·(m^3·h)^{-1}$ and 68% were achieved, respectively. The EC_{max} was 21.03 $g·(m^3·h)^{-1}$ according to the Haldane model, and a K_S of 0.16 $g·m^{-3}$ and K_I of 0.99 $g·m^{-3}$ were obtained. High-throughput sequencing was used to identify the community structure of the mixed microbial consortium in the BTF. The results indicated that *Methylibium* sp. (11.33%) and *Blastocatella* sp. (9.95%) were the dominant bacteria.

Key words: biotrickling filter; methyl *tert*-butyl ether(MTBE); elimination capacity; kinetic

甲基叔丁基醚(MTBE)是一种无色、透明、高辛烷值的液体, 作为无铅汽油的添加剂, 已经在世界各地广泛使用[1,2]. MTBE 具有水溶性高、又能与其他有机污染物共溶的特性, 使其他污染物在水中的溶解度提高 1 个数量级, 造成更严重的化学污染. 大量毒理学研究则表明[3,4], MTBE 是一种动物致癌物质, 同时也会影响人体的中枢神经, 且是一种人体可疑致癌物质. 美国国家环保署(USEPA)已将其列在环境优先污染物的名单当中[5].

相关研究发现[6,7], 化学方法处理 MTBE 具有较好的效果. 但因为 MTBE 正辛醇-水分配系数小, 与土壤的结合能力弱, 限制了吹脱、高级氧化、活性炭吸附等物理化学处理工艺的应用[2]. 相比上述物理化学方法, 生物法可利用微生物的代谢活动将有机污染物转化为 CO_2、H_2O 以及生物质能, 因此适用于大气量、低浓度的有机废气的净化, 是一种经济、安全、高效的处理技术[8]. 然而由于 MTBE 的碳链较短, 使得微生物对碳源的利用受到抑制, 生物量积累期长, 从而造成 MTBE 的生物降解速率比一般有机物的降解要慢[9]. 不同研究报道的 MTBE 生物降解周期差异很大, 有些能在几天内完成对 MTBE 的降解[2,10], 但有些需要十几天甚至几十天[11,12], 并且根据环境条件的不同, MTBE 的最终降解率差别很大[13,14]. 因此, 探索 MTBE 废气的生物净化工艺具有重大的理论和实践意义.

目前主要的生物处理 VOCs 的工艺有: 生物过滤法[12], 生物洗涤法[15], 生物滴滤法[11]等. 其中的生物滴滤法具有处理能力大、适用范围广、运

收稿日期: 2017-03-08; **修订日期**: 2017-06-03
基金项目: 国家自然科学基金项目(21477116); 浙江省自然科学基金项目(LY17E080019)
作者简介: 褚其英(1992~), 女, 硕士, 主要研究方向为环境生物技术, E-mail: cqy@zjut.edu.cn
* 通信作者, E-mail: cdz@zjut.edu.cn

行工况易于调节、填料不易堵塞等优点，有利于生物净化法的工程推广，因此备受研究者的关注[16~18]. 本研究利用生物滴滤塔净化 MTBE 废气，考察生物滴滤塔对 MTBE 的去除能力，并用宏观动力学模拟其去除负荷随进口浓度的变化趋势，为工程化生物滴滤塔处理 MTBE 废气奠定理论基础；同时考察反应器运行阶段生物量的变化情况，并利用高通量测序解析复杂的生物群落结构，以期为进一步利用生物滴滤塔处理 MTBE 废气奠定基础.

1 材料与方法

1.1 实验装置及流程

本实验生物滴滤塔主要由设有废气进口的塔底、设有生物填料层、取样口和水浴保温夹套的塔身、安装有尾气出口、气体采样口和营养液喷淋系统的塔顶、空气泵、吹脱瓶、混合瓶组成；营养液喷淋系统由安装在塔顶的喷洒器，设在生物滴滤塔外部的循环营养液储存瓶、营养液输入管、pH 控制仪、蠕动泵、碱液瓶连接组成；pH控制系统由pH控制仪分别与循环营养液储存瓶和碱液瓶连接. 实验采用逆流式操作，空气经空气泵、质量流量计后进入装有液态 MTBE 的吹脱瓶中，将 MTBE 废气吹出，废气经胶管到达气体混合瓶与空气充分混合，混合气体经流量计调节流量后，模拟废气从塔底进入生物滴滤塔，被生物滴滤塔中附着在填料上的生物膜净化. 实验装置如图 1 所示.

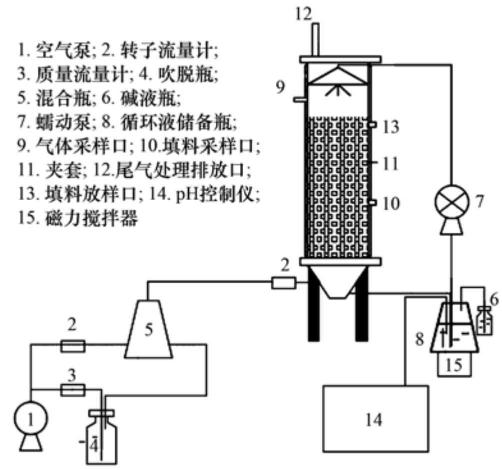

图1 生物滴滤塔工艺流程示意

Fig. 1 Schematic diagram of the biotrickling filter

生物滴滤塔由总高 620 mm、内径 130 mm 的有机玻璃制成，填料层高度为 300 mm，沿塔高方向设置 2 个气体采样口(1 个进气口，1 个出气口)，1 个填料取样口，1 个填料放样口. 实验采用气液逆流操作，气体由塔底进入，由下而上，营养液经蠕动泵从循环液储备瓶提升至塔顶向下喷淋，储液瓶容积为 1.5 L，喷淋速率为 180 $mL\cdot min^{-1}$. 挂膜完成后，装置设有 pH 自动控制系统，pH 维持在 6.9 ~ 7.2，每 1 d 更换 0.5 L 营养液，稳定运行阶段每日更换的营养液中 MTBE 的含量具体如表 1 所示.

表1 不同进气质量浓度下每日更换的营养液中 MTBE 的含量

Table 1 Content of MTBE for the cycle solution with the different inlet concentrations

序号	MTBE 进气质量浓度 /$mg\cdot m^{-3}$	流经生物滴滤塔 MTBE 总量 /$mg\cdot d^{-1}$	更换的营养液中 MTBE 含量 /$mg\cdot d^{-1}$
1	103	593.3	1.1
2	179	1 031.0	2.5
3	511	2 943.4	5.2

1.2 填料与营养液

聚氨酯小球具有比表面积大、空隙率较大、压降小、抗老化力强等特征，因此采用聚氨酯小球作为生物滴滤塔中的填料，具体参数见文献[8].

采用连续喷淋的方式向生物滴滤塔中提供营养液，其组分如下：$CaCl_2$ 0.03 $g\cdot L^{-1}$，$MgSO_4\cdot H_2O$ 0.46 $g\cdot L^{-1}$，$(NH_4)_2SO_4$ 1.23 $g\cdot L^{-1}$，KH_2PO_4 0.7 $g\cdot L^{-1}$，K_2HPO_4 0.85 $g\cdot L^{-1}$，$FeSO_4\cdot 7H_2O$ 0.001 $g\cdot L^{-1}$，微量元素母液 1 $mL\cdot L^{-1}$；溶剂为水，pH 7.0 ~ 7.5；

微量元素母液：$FeSO_4\cdot 7H_2O$ 1.0 $g\cdot L^{-1}$，$CuSO_4\cdot 5H_2O$ 0.02 $g\cdot L^{-1}$，H_3BO_3 0.014 $g\cdot L^{-1}$，$MnSO_4\cdot 4H_2O$ 0.10 $g\cdot L^{-1}$，$ZnSO_4\cdot 7H_2O$ 0.10 $g\cdot L^{-1}$，$Na_2MoO_4\cdot 2H_2O$ 0.02 $g\cdot L^{-1}$，$CoCl_2\cdot 6H_2O$ 0.02 $g\cdot L^{-1}$.

1.3 分析方法

1.3.1 气相色谱法(GC)

MTBE 检测分析方法：采用 Agilent 6890 气相色谱仪(Agilent，美国)，色谱柱为 HP-Innowax 硅胶毛细管柱(30 m × 0.32 mm × 0.5 μm). 气相色谱条件：进样口、检测器温度(FID)和柱温分别为 250℃、80℃和 300℃，柱流量为 1 $mL\cdot min^{-1}$，分流比为 5∶1，进样体积为 400 μL.

CO_2 定量检测：采用 Agilent 6890 气相色谱仪

(Agilent，美国)，色谱柱为 HP-Plot-Q 毛细管柱(30 m×0.32 mm×20 μm). 气相色谱条件：进样口、检测器温度(TCD)和柱温分别为90、100 和40℃，柱流量为5 mL·min⁻¹，进样体积为1 000 μL，尾吹气：氦气.

1.3.2 生物量的测定

蛋白质含量测定：从填料采样口取 1 枚聚氨酯小球，放入 50 mL 离心管中，加入 15 mL 无菌水漩涡振荡 10 min；取一定的菌悬液超声破碎，离心后获得的上清液即为所需检测的蛋白质；采用考马斯亮蓝染色法测定其中蛋白质浓度.

高通量测序：由生工生物工程(上海)股份有限公司完成. 测序区域选择 V3-V4 区，测序片段为 465 bp，测序引物为 341F(CCTACGGGNGGCWGCAG)-805R(GACTACHVGG-GTATCTAATCC)，并选择细菌为研究对象.

2 结果与讨论

2.1 BTF 的挂膜启动

活性污泥取自浙江某制药厂的曝气池，于实验室条件，通入一定量的 MTBE 曝气培养 15 d. 测试得 SV 值为53%，MLSS 为3590 mg·L^{-1}，SVI 为148 mL·g^{-1}.

为避免不必要的实验误差，反应器在接种活性污泥进行挂膜前，预先通入质量浓度为 100 mg·m^{-3}的 MTBE 模拟废气，待反应器进出口的 MTBE 质量浓度基本一致，即填料吸附饱和，后按活性污泥：营养液体积比 1:2的接种方式，通过喷淋循环系统进行喷淋挂膜. 挂膜期，生物滴滤塔的停留时间控制为 60 s，MTBE 进气质量浓度维持在 100 mg·m^{-3}.

目标污染物的去除能力是衡量生物滴滤塔启动效果的重要指标. 启动阶段，生物滴滤塔对 MTBE 的去除情况如图2 所示. 挂膜 23 d 后，MTBE 的去除率达到 70% 以上，并能保持稳定的去除能力，该结果表明生物滴滤塔完成挂膜. Sercu 等[19]用生物滴滤塔治理甲硫醚废气，分别以单一的活性污泥，活性污泥 + 高效菌进行接种挂膜，两者都在运行的 10 d 后完成挂膜，挂膜所需时间较短，可能与反应器挂膜时，进气底物浓度较低有关. 本实验只用活性污泥挂膜处理 MTBE 废气，挂膜完成时间较长，对 MTBE 去除能力较弱，也可能与底物性质有关. 相关研究表明[20,21]，MTBE 的碳链较短，影响微生物对碳源物质的利用能力，导致生物降解速率比一般有机物慢.

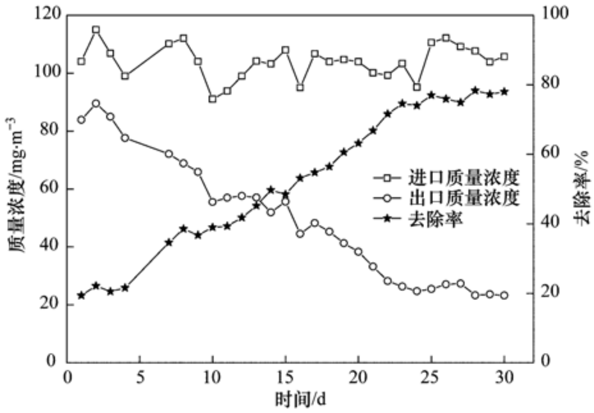

图2　生物滴滤塔挂膜阶段 MTBE 进出口浓度和去除率

Fig. 2　Concentration and removal efficiency of MTBE during the start-up phase of the BTF

2.2 进气质量浓度对去除率和去除负荷影响

进气质量浓度影响生物滴滤塔的降解性能. 因此，考察停留时间(EBRT)为 60 s 时，不同进气质量浓度的 MTBE 对去除率及去除负荷的影响，结果如图3 所示. 随着 MTBE 进口浓度从100 mg·m^{-3}升高到560 mg·m^{-3}，去除率从 75% 下降到 30%；随着进口负荷的增大，去除负荷从 5.11 g·(m^3·h)⁻¹逐步升高到13.47 g·(m^3·h)⁻¹，当进气负荷进一步增大到 33.56 g·(m^3·h)⁻¹时，去除负荷下降到 11.06 g·(m^3·h)⁻¹. 结果表明，随着进气质量浓度的增加，生物滴滤塔对 MTBE 的去除率下降. 而去除负荷先升高后下降的现象，则是因为在相对较高的进气负荷条件下，单位生物量产生的单位酶结合底物能力趋向饱和，而进一步增加进气负荷，可能抑制了反应器体系内的生物活性，从而使生物滴滤塔的去除能力下降[8]. Eweis 等[22]报道的生物过滤器在 EBRT 为 60 s 时，对 MTBE 的去除负荷也仅为 8 g·(m^3·h)⁻¹，比本实验去除负荷能力差. Nikpey 等[23]报道的生物滴滤塔对 MTBE 的去除负荷能达到 25 g·(m^3·h)⁻¹，该文中也明确表示当仅向生物

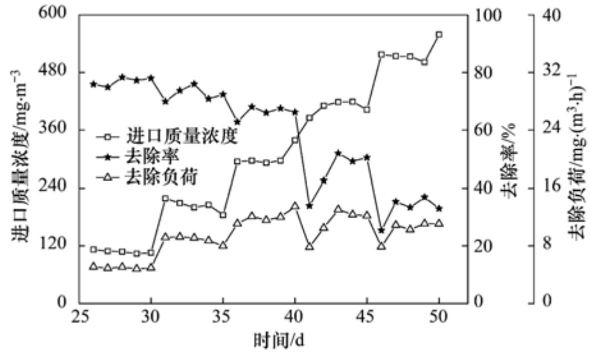

图3　进气质量浓度对 MTBE 去除率的影响

Fig. 3　Effects of inlet concentration on removal rate

滴滤塔中接种土著微生物时，运行 13 个月都未能实现对 MTBE 的净化，可见后期接种的具有 MTBE 降解性能的微生物组起到了明显净化 MTBE 的作用. 不同研究报道的 MTBE 生物降解周期以及降解能力差异很大[2,10~14]. 由此可见，MTBE 降解微生物的种类以及单位体积该微生物的含量都会影响 MTBE 的降解能力.

2.3 二氧化碳生成量分析

在生物降解过程中，有机污染物能够被转化为 H_2O、CO_2 和生物质能. 因此，二氧化碳生成量是衡量生物滴滤塔的去除性能的一个重要指标. 一些研究中还经常涉及二氧化碳理论生成量这个概念[24,25]，即有机污染物中的碳源完全转化为二氧化碳. 而二氧化碳实际生成量和理论生产量的比值——矿化率，也是一个衡量或比较生物滴滤塔性能的重要参数.

本实验中，MTBE 的进气质量浓度从 100 $mg\cdot m^{-3}$ 逐步升高到 560 $mg\cdot m^{-3}$，二氧化碳生成量从 8.92 $g\cdot(m^3\cdot h)^{-1}$ 升高到 23.17 $g\cdot(m^3\cdot h)^{-1}$，后又下降到 18.46 $g\cdot(m^3\cdot h)^{-1}$，二氧化碳生产量随去除负荷的变化情况如图 4 所示. 结果显示，二氧化碳生产量和去除负荷线性相关，其比值为 1.7；而 MTBE 的理论二氧化碳生成量与去除负荷的比值为 2.5. 因此，MTBE 在生物滴滤塔中的矿化率为 68%. Zhou 等[25]利用生物滴滤塔处理氯苯废气时的矿化率可达到 82% 和 92%，前者为活性污泥挂膜，后者是添加高效菌加活性污泥挂膜. 两者的矿化率均较高，但都比实际理论值低，这是因为生物滴滤塔中的微生物降解有机污染物过程中碳源不可能全部转化为 CO_2，除了被微生物利用后转化为生物质能，还有一部分碳源会以无机碳的形式存在于水相中，同时降解过程中也可能生成难降解含碳中间产物. 正是由于这些原因，可能导致本研究中矿化率较低.

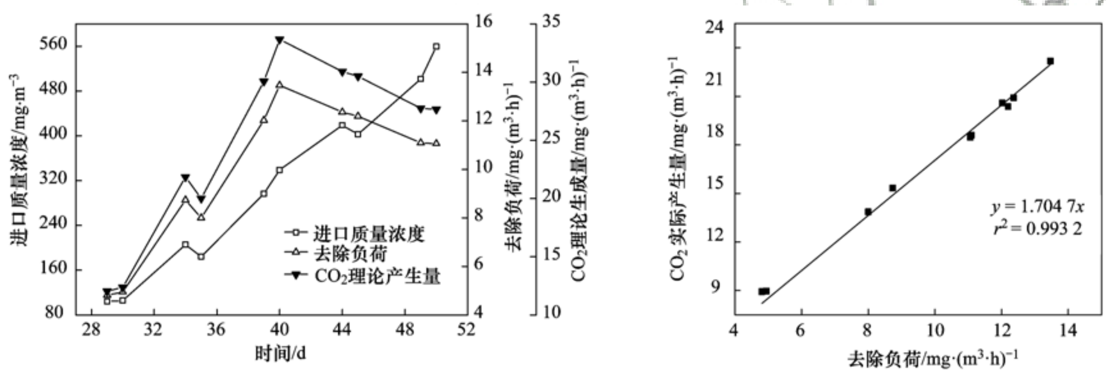

图 4 CO_2 生成量随去除负荷的变化关系

Fig. 4 Relationship between CO_2 production rate and elimination capacity

2.4 生物滴滤塔动力学分析

生物滴滤塔中去除负荷的变化趋势，可以用宏观动力学方程来描述. Michaelis-Menten 模型[24]是一种常用的描述反应器动力学过程的方程，其表达式如下：

$$EC = \frac{EC_{max} C_{ln}}{K_S + C_{ln}}$$

式中，EC 为去除负荷，$g\cdot(m^3\cdot h)^{-1}$；C_{ln} 为进、出口浓度的对数平均值，$g\cdot m^{-3}$；EC_{max} 为最大去除负荷，$g\cdot(m^3\cdot h)^{-1}$；K_S 为饱和常数，$g\cdot m^{-3}$.

当进气质量浓度超过一定值后，去除负荷受到抑制时，常用 Haldane 模型[26]对实验数据进行拟合，其表达式如下：

$$EC = \frac{EC_{max1} C_{ln}}{K_{S1} + C_{ln}\left(1 + \frac{C_{ln}}{K_I}\right)}$$

式中，EC_{max1} 为不存在底物抑制时的最大去除负荷，$g\cdot(m^3\cdot h)^{-1}$；K_{S1} 为饱和常数，$g\cdot m^{-3}$；K_I 为抑制常数，$g\cdot m^{-3}$.

分别用 Michaelis-Menten 和 Haldane 模型拟合去除负荷随 C_{ln} 从 0.037 ~ 0.537 $g\cdot m^{-3}$ 的变化趋势，结果如图 5 所示. 当 C_{ln} 大于 0.3 $g\cdot m^{-3}$ 时，去除负荷下降，同时对比图 5，显然拟合结果 r^2 为 0.91 的 Haldane 模型拟合数据的效果更好. Haldane 模型拟合获得的 EC_{max} 为 21.03 $g\cdot(m^3\cdot h)^{-1}$，K_S 为 0.16 $g\cdot m^{-3}$，K_I 为 0.99 $g\cdot m^{-3}$，该结果显示当 C_{ln} 大于 0.99 $g\cdot m^{-3}$ 时，存在底物抑制现象. 由图 3 也可发现，当进口浓度大于 300 $mg\cdot m^{-3}$ 后，MTBE 的去除率和去除负荷随着 MTBE 的浓度升高而下降. 该现象同多数的序批式纯培养实验，即高底物浓度抑制微生物的活性[2,27]. 而 Lin 等[28]在生物滴滤塔处理

MTBE 废气实验中，用 Michaelis-Menten 模拟获得的 EC_{max} 为 22.7 $g\cdot(m^3\cdot h)^{-1}$，K_S 为 0.10 $g\cdot m^{-3}$. Gallastegui 等[24]在生物滴滤塔净化甲苯废气实验中，发现当 C_{ln} 大于 3 $g\cdot m^{-3}$ 时，存在底物抑制现象，因此认为 Haldane 模型比 Michaelis-Menten 模型拟合性更好. 由于反应器尺寸大小、活性污泥特性及底物性质不同，底物抑制浓度各不相同[25,26,29]，造成底物的降解机制不同，同时也促使生物滴滤塔适用的模型各有差异.

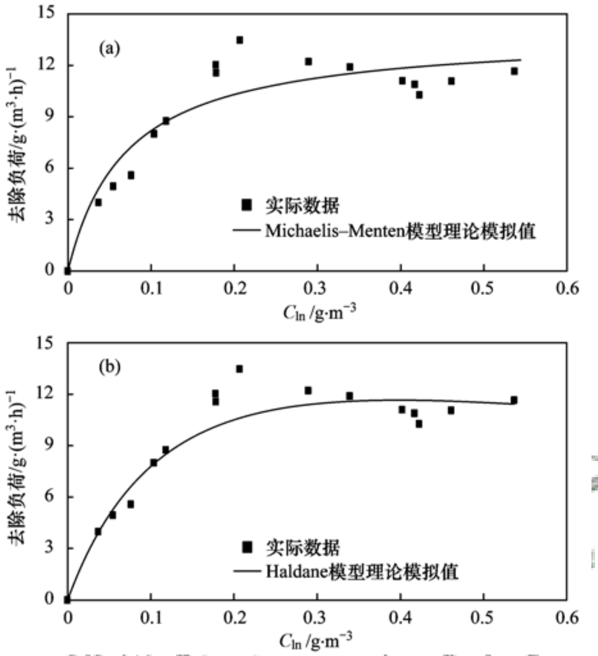

图 5　模型拟合去除负荷

Fig. 5　EC curve fitting with different models

2.5　微生物相分析

生物滴滤塔中的生物量是评价反应器性能的一个重要指标[8]，一般研究采用蛋白质含量来表征并定量生物滴滤塔中的生物量. 在生物滴滤塔运行过程中，选取不同时间段的填料样品，采用考马斯亮蓝染色法测定其中的蛋白质含量，结果如图 6 所示. 反应器启动挂膜 5、10、20、30 d 后，测定蛋白质含量分别为 0.19、0.55、0.83、0.97 $mg\cdot g^{-1}$. 蛋白质含量逐渐趋于稳定，说明生物滴滤塔完成挂膜. 而在生物滴滤塔稳定运行阶段，蛋白质含量稳定维持在 1.0 $mg\cdot g^{-1}$左右，则说明生物膜的脱落和更新速度达到动态平衡，也说明该阶段微生物具有良好的降解能力.

生物滴滤塔填料上的生物膜中包括可以直接降解污染物的微生物，以及捕食细菌和吞噬有机颗粒的原生动物、后生动物. 复杂的生物膜群落结构有助于生物滴滤塔系统的物质转化，并能稳定生态系

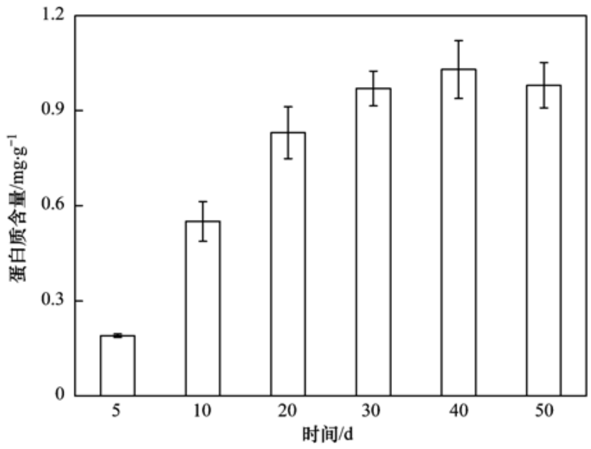

图 6　不同运行时期蛋白质含量的变化

Fig. 6　Protein quantity versus operation time

统，保证稳定废气的去除能力. 为分析生物滴滤塔中生物膜中的微生物群落结构，对其进行了宏基因组微生物分类测序. 取反应器完成挂膜后(30 d)的填料，进行高通量测序，门水平和属水平的优势菌组成鉴定结果如图 7 所示.

由图 7(a)可知，生物滴滤塔中最大的优势细菌门为变形菌门(Proteobacteria)，占总细菌序列的 34%，该结果同 Snaidr 等[30]对常规活性污泥中群落多样性的研究. 变形菌门中包含多种能分解有机物的代谢菌[31,32]，这可能是其大量存在的原因. 由图 7(b)可以看出 *Methylibium* sp. 和 *Blastocatella* sp. 所占比例较高，分别为 11.33% 和 9.95%.

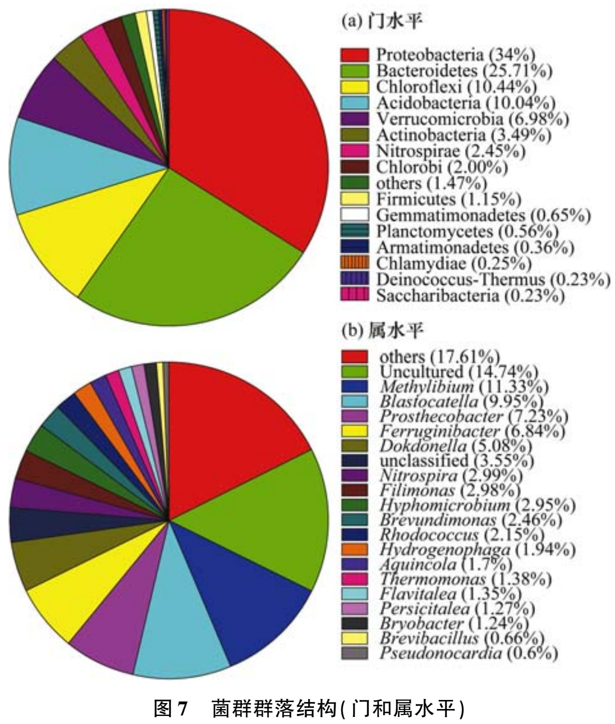

图 7　菌群群落结构(门和属水平)

Fig. 7　Bacterial community structure at the phylum and genus levels

Methylibium 属细菌常具有良好的 MTBE 降解能力，如*M. petroleiphilum* PM1[31]、*Methylibium* sp. strain T29[33]、*Methylibium* sp. R8[34]等. *Blastocatella* 属细菌被发现能够水解有机物[35]. 分别占 2.15% 和 1.7% 的 *Rhodococcus* 属和 *Aquincola* 属细菌，也被发现能够降解 MTBE[36,37]. 因混合菌群中同时存在多种具有 VOCs 污染物降解能力的功能菌，使得生物滴滤塔具有良好及稳定的 MTBE 降解能力.

3 结论

（1）制药厂活性污泥经前期驯化后，接种到生物滴滤塔中用于净化低浓度的 MTBE 废气. 在 EBRT 为 60 s，进气质量浓度为 100 $mg \cdot m^{-3}$的条件下，挂膜所需时间为 23 d，MTBE 的去除率在 70% 以上.

（2）生物滴滤塔稳定运行阶段，随着进气质量浓度的增加去除负荷先上升后下降，MTBE 的最大去除负荷为 13.47 $g \cdot (m^3 \cdot h)^{-1}$，同时 MTBE 的矿化率可达68%. 由于高进气质量浓度造成去除负荷下降，因此存在底物抑制，生物滴滤塔去除 MTBE 废气符合 Haldane 模型. 理论 EC_{max} 为 21.03 $g \cdot (m^3 \cdot h)^{-1}$，$K_S$ 为0.16 $g \cdot m^{-3}$，K_I 为0.99 $g \cdot m^{-3}$.

（3）生物滴滤塔中优势菌属主要为 *Methylibium* sp. 和 *Blastocatella* sp.，所占比例分别为 11.33% 和 9.95%.

参考文献:

[1] Metcalf M J, Stevens G J, Robbins G A. Application of first order kinetics to characterize MTBE natural attenuation in groundwater[J]. Journal of Contaminant Hydrology, 2016, **187**: 47-54.

[2] 张杏青，朱妙军，胡勤海，等. 甲基叔丁基醚(MTBE)降解菌株的分离鉴定及降解动力学研究[J]. 环境科学，2009，**30**(6)：1785-1790.
Zhang X Q, Zhu M J, Hu Q H, *et al*. Isolation, identification of methyl *tert*-butyl ether degradation strain and its degradation kinetics[J]. Environmental Science, 2009, **30**(6): 1785-1790.

[3] Hu D L, Yang J P, Liu Y G, *et al*. Health risk assessment for inhalation exposure to methyl tertiary butyl ether at petrol stations in southern China[J]. International Journal of Environmental Research and Public Health, 2016, **13**(6): 204-212.

[4] 刘爱芬，庄德辉，吴振斌. 甲基叔丁基醚(MTBE)的环境毒理学研究进展[J]. 环境科学与技术，2005，**28**(5)：108-111.
Liu A F, Zhuang D H, Wu Z B. Recent progress in environ-toxicology study of Methyl *tert*-butyl Ether (MTBE)[J]. Environmental Science & Technology, 2005, **28**(5): 108-111.

[5] Zang Y J, Farnood R. Photocatalytic decomposition of methyl *tert*-butyl ether in aqueous slurry of titanium dioxide[J]. Applied Catalysis B: Environmental, 2005, **57**(4): 275-282.

[6] Cater S R, Stefan M I, Bolton J R, *et al*. UV/H_2O_2 Treatment of methyl *tert*-butyl ether in contaminated waters[J]. Environmental Science & Technology, 2000, **34**(4): 659-662.

[7] Burbano A A, Dionysiou D D, Suidan M T, *et al*. Oxidation kinetics and effect of pH on the degradation of MTBE with Fenton reagent[J]. Water Research, 2005, **39**(1): 107-118.

[8] 陈东之，缪孝平，欧阳杜娟，等. 生物滴滤塔净化氯代烃混合废气的研究[J]. 环境科学，2015，**36**(9)：3168-3174.
Chen D Z, Miao X P, Ouyang D J, *et al*. Removal of waste gas containing mixed chlorinated hydrocarbons by the biotrickling filter[J]. Environmental Science, 2015, **36**(9): 3168-3174.

[9] 刘涉江，朱琳，姜斌，等. 甲基叔丁基醚(MTBE)的生物降解特性研究[J]. 农业环境科学学报，2007，**26**(2)：563-567.
Liu S J, Zhu L, Jiang B, *et al*. Biodegradation characteristics of methyl *tert*-butyl ether (MTBE)[J]. Journal of Agro-Environment Science, 2007, **26**(2): 563-567.

[10] Li S S, Li D N, Yan W. Cometabolism of methyl *tert*-butyl ether by a new microbial consortium ERS[J]. Environmental Science and Pollution Research, 2015, **22**(13): 10196-10205.

[11] Fortin N Y, Deshusses M A. Treatment of methyl *tert*-butyl ether vapors in biotrickling filters. 1. Reactor startup, steady-state performance, and culture characteristics[J]. Environmental Science & Technology, 1999, **33**(17): 2980-2986.

[12] Moussavi G, Bahadori M B, Farzadkia M, *et al*. Performance evaluation of a thermophilic biofilter for the removal of MTBE from waste air stream: effects of inlet concentration and EBRT[J]. Biochemical Engineering Journal, 2009, **45**(2): 152-156.

[13] François A, Mathis H, Godefroy D, *et al*. Biodegradation of methyl *tert*-butyl ether and other fuel oxygenates by a new strain, *Mycobacterium austroafricanum* IFP 2012[J]. Applied & Environmental Microbiology, 2002, **68**(6): 2754-2762.

[14] Chen D Z, Chen J M, Zhong W H. Enhancement of methyl *tert*-butyl ether degradation by the addition of readily metabolizable organic substrates[J]. Journal of Hazardous Materials, 2009, **167**(1-3): 860-865.

[15] Moussavi G, Naddafi K, Mesdaghinia A. Developing a biofilm of sulfur oxidizing bacteria, starting-up and operating a bioscrubber treating H_2S[J]. Pakistan Journal of Biological Sciences, 2007, **10**(5): 701-709.

[16] Santos A, Guimerà X, Dorado A D, *et al*. Conversion of chemical scrubbers to biotrickling filters for VOCs and H_2S treatment at low contact times[J]. Applied Microbiology and Biotechnology, 2015, **99**(1): 67-76.

[17] 蒋海涛，龙超，翟建. 基于 Miseq 测序与碳平衡的生物滴滤床降解甲苯研究[J]. 环境工程，2016，**34**(8)：114-119.
Jiang H T, Long C, Zhai J. Biodegradation mechanism of a biotrickling filter treating toluene by Miseq sequencing and carbon equilibrium analysis[J]. Environmental Engineering, 2016, **34**(8): 114-119.

[18] Schiavon M, Ragazzi M, Torretta V, *et al*. Comparison between conventional biofilters and biotrickling filters applied to waste bio-drying in terms of atmospheric dispersion and air quality[J]. Environmental Technology, 2016, **37**(8): 975-982.

[19] Sercu B, Boon N, Beken S V, *et al*. Performance and microbial

analysis of defined and non-defined inocula for the removal of dimethyl sulfide in a biotrickling filter[J]. Biotechnology and Bioengineering, 2007, **96**(4): 661-672.

[20] 陈建孟, 蒲凤莲, 陈效, 等. MTBE 的生物降解技术[J]. 环境污染治理技术与设备, 2004, **5**(1): 61-64.
Chen J M, Pu F L, Chen X, *et al*. Biodegradation technology of MTBE [J]. Techniques and Equipment for Environmental Pollution Control, 2004, **5**(1): 61-64.

[21] 胡勤海, 毛柯辉, 陈艳, 等. 两株甲基叔丁基醚(MTBE)降解菌的驯化分离及降解试验[J]. 农业环境科学学报, 2007, **26**(6): 2085-2089.
Hu Q H, Mao K H, Chen Y, et al. Isolating of two pure bacterial cultures for degradation of methyl *tert*-butyl ether (MTBE)[J]. Journal of Agro-Environment Science, 2007, **26**(6): 2085-2089.

[22] Eweis J B, Schroeder E D, Chang D P Y, *et al*. Biodegradation of MTBE in a Pilot scale Biofilter[A]. In: Wickramanayake G B, Hinchee R E (Eds.). Proceedings of the First International Conference on Remediation of Chlorinated and Recalcitrant Compounds[C]. Columbus, Ohio: Battelle Press, 1998. 341-346.

[23] Nikpey A, Nikpey M, Kazemian H. Removal of methyl tertiary butyl ether (MTBE) vapour from contaminated air streams using different bacterial cultures in biotrickling filters[J]. Iranian Journal of Environmental Health Science & Engineering, 2006, **3**(2): 117-122.

[24] Gallastegui G, Ramirez A A, Elías A, *et al*. Performance and macrokinetic analysis of biofiltration of toluene and *p*-xylene mixtures in a conventional biofilter packed with inert material [J]. Bioresource Technology, 2011, **102**(17): 7657-7665.

[25] Zhou Q W, Zhang L L, Chen J M, *et al*. Performance and microbial analysis of two different inocula for the removal of chlorobenzene in biotrickling filters[J]. Chemical Engineering Journal, 2016, **284**: 174-181.

[26] Ramirez A A, Bénard S, Giroir-Fendler A, et al. Kinetics of microbial growth and biodegradation of methanol and toluene in biofilters and an analysis of the energetic indicators[J]. Journal of Biotechnology, 2008, **138**(3-4): 88-95.

[27] Chen D Z, Jin X J, Chen J, *et al*. Intermediates and substrate interaction of 1, 4-dioxane degradation by the effective metabolizer *Xanthobacter flavus* DT8 [J]. International Biodeterioration & Biodegradation, 2016, **106**: 133-140.

[28] Lin C W, Lin N C, Liu M C. Biodegradation kinetics and microbial communities associated with methyl *tert*-butyl ether removal in a biotrickling filter [J]. Chemical Engineering Journal, 2007, **127**(1-3): 143-149.

[29] Zamir S M, Halladj R, Nasernejad B. Removal of toluene vapors using a fungal biofilter under intermittent loading[J]. Process Safety and Environmental Protection, 2011, **89**(1): 8-14.

[30] Snaidr J, Amann R, Huber I, *et al*. Phylogenetic analysis and in situ identification of bacteria in activated sludge[J]. Applied & Environmental Microbiology, 1997, **63**(7): 2884-2896.

[31] Nakatsu C H, Hristova K, Hanada S, *et al*. *Methylibium petroleiphilum* gen. nov., sp. Nov., a novel methyl *tert*-butyl ether-degrading methylotroph of the Betaproteobacteria [J]. International Journal of Systematic and Evolutionary Microbiology, 2006, **56**(Pt 5): 983-989.

[32] Chen D Z, Fang J Y, Shao Q, *et al*. Biodegradation of tetrahydrofuran by *Pseudomonas oleovorans* DT4 immobilized in calcium alginate beads impregnated with activated carbon fiber: mass transfer effect and continuous treatment[J]. Bioresource Technology, 2013, **139**: 87-93.

[33] Szabó Z, Gyula P, Robotka H, *et al*. Draft genome sequence of *Methylibium* sp. strain T29, a novel fuel oxygenate-degrading bacterial isolate from Hungary [J]. Standards in Genomic Sciences, 2015, **10**: 39.

[34] Rosell M, Barceló D, Rohwerder T, *et al*. Variations in $^{13}C/^{12}C$ and D/H enrichment factors of aerobic bacterial fuel oxygenate degradation[J]. Environmental Science & Technology, 2015, **41**(6): 2036-2043.

[35] Foesel B U, Rohde M, Overmann J. *Blastocatella fastidiosa* gen. nov., sp. nov., isolated from semiarid savanna soil-the first described species of *Acidobacteria* subdivision 4[J]. Systematic and Applied Microbiology, 2013, **36**(2): 82-89.

[36] Haase K, Wendlandt K D, Gräber A, *et al*. Cometabolic degradation of MTBE using methane-propane- and butane-utilizing enrichment cultures and *Rhodococcus* sp. BU3 [J]. Engineering in Life Sciences, 2006, **6**(5): 508-513.

[37] Lechner U, Brodkorb D, Geyer R, *et al*. *Aquincola tertiaricarbonis* gen. nov., sp. nov., a *tertiary* butyl moiety-degrading bacterium[J]. International Journal of Systematic and Evolutionary Microbiology, 2007, **57**(Pt 6): 1295-1303.

HUANJING KEXUE Vol. 39 No. 2
Environmental Science (monthly) Feb. 15, 2018

CONTENTS