

# 环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第3期

Vol.39 No.3

**2018**

中国科学院生态环境研究中心 主办  
科学出版社 出版



目次

|                                                         |                                                                        |
|---------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------|
| 长三角典型站点冬季大气 $PM_{2.5}$ 中 OC、EC 污染特征 .....               | 康晖, 朱彬, 王红磊, 施双双 (961)                                                 |
| 南京北郊能见度变化中二次无机盐消光的重要作用 .....                            | 于超, 于兴娜, 赵天良, 张蕾, 马国煦, 王咏薇 (972)                                       |
| 常州夏冬季 $PM_{2.5}$ 中无机组分昼夜变化特征与来源解析 .....                 | 刘佳澍, 顾远, 马帅帅, 苏亚兰, 叶招莲 (980)                                           |
| 天津市春季道路降尘 $PM_{2.5}$ 和 $PM_{10}$ 中的元素特征 .....           | 王士宝, 姬亚芹, 李树立, 张伟, 张蕾 (990)                                            |
| 北京、新乡夏季大气颗粒物中重金属的粒径分布及人体健康风险评价 .....                    | 张鑫, 赵小曼, 孟雪洁, 王小颖, 杨帅, 许晓鹏, 王书亭, 谷超, 王梦蕾, 任浩, 张子洋, 闫广轩, 曹治国, 王跃思 (997) |
| 山西省武乡县城大气 $PM_{2.5}$ 痕量重金属的生态和健康风险分析 .....              | 郭墨霞, 耿红, 张晋宏, 周欢, 彭妍, 翟帅莹, 李金磊, 陈雨杉 (1004)                             |
| 隧道中机动车排放颗粒物及无机元素特征 .....                                | 李凤华, 张衍杰, 张静, 袁远, 吴琳, 毛洪钧 (1014)                                       |
| 河南省 2013 年大气氨排放清单建立及分布特征 .....                          | 王琛, 尹沙沙, 于世杰, 卫军华, 谷幸珂, 官密秘, 张瑞芹 (1023)                                |
| 城市道路行道树池裸地扬尘排放特征 .....                                  | 李贝贝, 秦建平, 祁丽荣, 杨涛, 曲松, 石爱军, 黄玉虎 (1031)                                 |
| DOC 和 CDPF 对柴油公交车颗粒物组分影响 .....                          | 楼狄明, 耿小雨, 宋博, 谭丕强, 胡志远, 刘继跃 (1040)                                     |
| 南水北调中线工程总干渠河南段原水中消毒副产物前体物变化规律 .....                     | 黄飘逸, 徐斌, 郭东良 (1046)                                                    |
| 广州市流溪河水体中 6 种内分泌干扰素时空分布特征与环境风险 .....                    | 樊静静, 王赛, 唐金鹏, 戴玉女, 王林, 龙胜兴, 何文祥, 刘帅磊, 王佳希, 杨扬 (1053)                   |
| 西藏拉萨河流域河水主要离子化学特征及来源 .....                              | 张清华, 孙平安, 何师意, 文化, 刘明隆, 于爽 (1065)                                      |
| 太子河下游河流硝酸盐来源及其迁移转化过程 .....                              | 李艳利, 杨梓睿, 尹希杰, 孙伟 (1076)                                               |
| 海南岛北部海湾沉积物重金属来源、分布主控因素及生态风险评价 .....                     | 曾维特, 杨永鹏, 张东强, 刘兵, 张航飞, 吴多誉, 王晓林 (1085)                                |
| 天津农田重金属污染特征分析及降雨沥浸影响 .....                              | 许萌萌, 刘爱凤, 师荣光, 蓝靖, 田永, 赵宗山 (1095)                                      |
| 太湖出入湖河道与湖体水质季节差异分析 .....                                | 查慧铭, 朱梦圆, 朱广伟, 杨周生, 许海, 沈睿杰, 钟春妮 (1102)                                |
| 春季敏感时期三峡水库典型支流沉积物-水界面氮释放特性 .....                        | 李欣, 宋林旭, 纪道斌, 刘德富, 苏青青, 吕林鹏, 王雄, 黄亚男, 吴庆 (1113)                        |
| 不同湖泊入湖河流沉积物可转化态氮的空间分布及其影响因素 .....                       | 周睿, 袁旭音, Marip Ja Bawk, 于辉辉, 章琪, 唐豆豆 (1122)                            |
| 水文气象因素对东南山区水库硅藻异常增殖的影响 .....                            | 孙祥, 朱广伟, 笄文怡, 余茂蕾, 杨文斌, 朱梦圆, 许海, 国超旋, 余丽 (1129)                        |
| 深水型水库热分层诱导水质及真菌种群结构垂向演替 .....                           | 商潘路, 陈胜男, 黄廷林, 张海涵, 康鹏亮, 王跃, 刘珍芳, 刘彤彤 (1141)                           |
| 太湖竺山湾春季浮游细菌群落结构及影响因素 .....                              | 薛银刚, 刘菲, 孙萌, 江晓栋, 耿金菊, 滕加泉, 谢文理, 张皓, 陈心一 (1151)                        |
| 分层型水源水库沉积物需氧量特性 .....                                   | 苏露, 黄廷林, 李楠, 张海涵, 文刚, 李扬, 陈家炜, 王晓江 (1159)                              |
| 污水氮浓度和 $NH_4^+ / NO_3^-$ 比对粉绿狐尾藻去氮能力和植物体氮组分的影响 .....    | 马永飞, 杨小珍, 赵小虎, 胡承孝, 谭启玲, 孙学成, 吴金水 (1167)                               |
| 水体氮磷营养负荷对苦草净化能力和光合荧光特性的影响 .....                         | 周裔文, 许晓光, 韩睿明, 周晓红, 冯德友, 李致春, 王国祥 (1180)                               |
| 化学预氧化耦合生物锰氧化对水中有机物的去除 .....                             | 菅之奥, 常洋洋, 王立新, 梁金松, 柏耀辉 (1188)                                         |
| 铜铁氧体法处理模拟染料废水 .....                                     | 韩志勇, 韩昆, 郝昊天, 于建伟, 石宝友, 庄媛, 孔岩 (1195)                                  |
| 草酸根对 $\alpha$ -FeOOH 多相 UV-Fenton 催化能力的增效实验 .....       | 苗笑增, 戴慧旺, 陈建新, 蒋柏泉, 龚炯 (1202)                                          |
| 生物质基纳米 HZO 杂化材料的研制及其除磷特性 .....                          | 邱慧, 秦智峰, 刘凤玲, 梁晨, 宋明霞, 许正文, 管益东 (1212)                                 |
| 铁锰氧化物/生物炭复合材料对水中硝酸根的吸附特性 .....                          | 郑晓青, 韦安磊, 张一璇, 史良干, 张潇 (1220)                                          |
| PAAm/HACC 半互穿网络水凝胶的制备及其对水中腐殖酸的吸附性能 .....                | 刘泽琨, 周少奇, 马福臻 (1233)                                                   |
| 二氧化钛对地下水砷的吸附及再生回用 .....                                 | 马文静, 阎莉, 张建锋 (1241)                                                    |
| 一体式絮体-超滤工艺去除腐殖酸效能与机制 .....                              | 李文江, 于莉芳, 苗瑞, 马百文 (1248)                                               |
| 中国城镇污水处理厂温室气体排放时空分布特征 .....                             | 闫旭, 邱德志, 郭东丽, 齐星昊, 郑仕侃, 程轲, 孙剑辉, 刘建伟 (1256)                            |
| 硝化耦合 CANON 的铁锰氮生物净化工艺启动与运行 .....                        | 李冬, 曹瑞华, 杨航, 王艳菊, 吕赛赛, 张杰 (1264)                                       |
| 纤维载体的生物膜 CANON 反应器的启动特性 .....                           | 顾澄伟, 陈方敏, 李祥, 黄勇, 尤星怡, 金润, 张文静, 董石语 (1272)                             |
| $DO/NH_4^+ - N$ 实现短程硝化过程中生物膜特性 .....                    | 赵青, 卞伟, 李军, 王文啸, 孙艺齐, 梁东博, 张舒燕 (1278)                                  |
| AUSB 中置曝气对 CANON 颗粒污泥工艺的影响 .....                        | 成朔, 李冬, 张杰, 李帅, 曹瑞华, 吕赛赛 (1286)                                        |
| 有机碳源对启动及运行 CANON 颗粒污泥工艺的影响 .....                        | 李冬, 王艳菊, 吕育锋, 曹瑞华, 李帅, 张杰 (1294)                                       |
| 中试一体式部分亚硝化-厌氧氨氧化反应器的启动与区域特性 .....                       | 周正, 王凡, 林兴, 董石语, 朱强, 李祥, 黄勇 (1301)                                     |
| 硝化液回流比对 ABR-MBR 工艺反硝化除磷效能的影响 .....                      | 吕亮, 尤雯, 张敏, 吴鹏, 沈耀良 (1309)                                             |
| 磁性纳米铁对厌氧颗粒污泥特性及其微生物群落的影响 .....                          | 宿程远, 郑鹏, 卢宇翔, 袁秋红, 赵力剑, 廖黎明, 黄智 (1316)                                 |
| 好氧颗粒污泥系统中溶解性微生物代谢产物的特征及主要组分 .....                       | 杨丹, 刘东方, 杜丽琼, 黄文力 (1325)                                               |
| 环丙沙星对膜生物反应器中微生物群落及抗性基因的影响 .....                         | 戴琦, 刘锐, 梁玉婷, 舒小铭, 徐灿灿, 陈吕军 (1333)                                      |
| CEM-UF 组合膜-硝化/反硝化系统处理低 C/N 废水及种群结构分析 .....              | 邢金良, 张岩, 陈昌明, 张博康, 郭威, 马翔山 (1342)                                      |
| 磷对混养反硝化污泥活性和微生物群落结构的影响 .....                            | 王佩琦, 周伟丽, 何圣兵, 黄荣振 (1350)                                              |
| 甲烷厌氧氧化协同硝酸盐还原菌群驯化及其群落特征 .....                           | 薛松, 张梦竹, 李琳, 刘俊新 (1357)                                                |
| 城市尾水排海过程中微生物及主要致病菌扩散规律 .....                            | 徐爱玲, 牛成洁, 宋志文, 郎秀臻, 郭明月 (1365)                                         |
| 氧四环素的微生物燃料电池处理及微生物群落 .....                              | 严伟富, 肖勇, 王淑华, 丁蕊, 赵峰 (1379)                                            |
| 近 30 年干县耕地土壤碳氮比时空变异特征及其影响因素 .....                       | 江叶枫, 钟珊, 李婕, 王澜珂, 卞荣禧 (1386)                                           |
| 中宁枸杞土壤碳组分分布特征及其空间异质性 .....                              | 王幼奇, 赵云鹏, 白一茹, 张兴 (1396)                                               |
| 滨海滩涂围垦区不同围垦年限土壤酶活性变化及其与理化性质关系 .....                     | 解雪峰, 濮励杰, 王琪琪, 朱明, 王小涵 (1404)                                          |
| 青藏高原中东部表层土壤中多环芳烃的分布特征、来源及生态风险评价 .....                   | 周雯雯, 李军, 胡健, 李兆洲 (1413)                                                |
| 基于 UNMIX 模型的矿区周边农田土壤金属源解析 .....                         | 卢鑫, 胡文友, 黄标, 李元, 祖艳群, 湛方栋, 卞荣禧 (1421)                                  |
| 铁锰双金属材料在不同 pH 条件下对土壤 As 和重金属的稳定化作用 .....                | 费群, 阎秀兰, 李永华 (1430)                                                    |
| 我国 3 个城市人体血清中新型溴代阻燃剂水平趋势及分布特征 .....                     | 王庆华, 袁浩东, 金军, 李鹏, 马玉龙, 王英 (1438)                                       |
| 《环境科学》征订启事 (979) 《环境科学》征稿简则 (996) 信息 (1022, 1064, 1293) |                                                                        |

# 好氧颗粒污泥系统中溶解性微生物代谢产物的特征及主要组分

杨丹, 刘东方, 杜丽琼, 黄文力\*

(南开大学环境科学与工程学院, 天津 300350)

**摘要:** 采用 SBR 反应器以絮状活性污泥为接种污泥培养好氧颗粒污泥, 主要考察好氧颗粒污泥系统中溶解性微生物代谢产物(SMP)的产生、相对分子质量分布以及主要组成物质。结果表明 SMP 是出水 COD 的主要组分, 浓度为  $71 \sim 85 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ , SMP 的产生与微生物对基质的利用、微生物衰亡和胞外聚合物(EPS)的水解有关。相对分子质量分布表明大部分 SMP 相对分子质量小于  $3 \times 10^3$ , 所占比例为  $54.8\% \sim 71.7\%$ , 而相对分子质量大于  $100 \times 10^3$  的组分只占总 SMP 的一小部分, 所占比例为  $9.3\% \sim 14.5\%$ 。三维荧光光谱分析表明, 出水 SMP 具有 4 个峰, 分别属于类芳香蛋白质、类色氨酸蛋白质、类腐殖酸物质和类富里酸物质。气质联用(GC-MS)分析表明 SMP 主要成分为酯类、短链烷烃、烯烃和醇类, 所占质量分数分别为  $39.0\%$ 、 $14.9\%$ 、 $11.7\%$  和  $7.6\%$ 。其中邻苯二甲酸二酯是出水 SMP 中主要组成物质, 所占质量分数为  $32.0\%$ 。

**关键词:** 溶解性微生物代谢产物; 好氧颗粒污泥; 相对分子质量分布; 邻苯二甲酸二酯; 气质联用

中图分类号: X172; X703 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)03-1325-08 DOI: 10.13227/j.hjks.201707046

## Characterization Composition of Soluble Microbial Products in an Aerobic Granular Sludge System

YANG Dan, LIU Dong-fang, DU Li-qiong, HUANG Wen-li\*

(College of Environmental Science and Engineering, Nankai University, Tianjin 300350, China)

**Abstract:** Using flocculent activated sludge as seed sludge to cultivate aerobic granular sludge in a SBR, the main objective of this study was focused on the accumulation, relative molecular mass distribution, and composition of soluble microbial products (SMP) in an aerobic granular sludge (AGS) system. SMP were predominant ( $71\text{--}85 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ) in the effluent of the AGS system. The formation of SMP was related to substrate utilization, biomass decay, and EPS hydrolysis. A relative molecular mass distribution analysis indicated that the majority of SMP, accounting for about  $54.8\% \sim 71.7\%$ , had  $M_r < 3 \times 10^3$ ; whereas, the  $M_r > 100 \times 10^3$  formed a small fraction, constituting only  $9.3\% \sim 14.5\%$ . Three-dimensional excitation emission matrix fluorescence spectra (3D-EEM) identified four peaks in SMP, belonging to aromatic protein-like, tryptophan protein-like, humic acid-like, and fulvic acid-like substances. Gas chromatography-mass spectrometry (GC-MS) analysis revealed that esters ( $39.0\%$ ), short chain alkanes ( $14.9\%$ ), alkenes ( $11.7\%$ ), and alcohols ( $7.6\%$ ) were the main compounds in SMP. Most notably, bis(2-ethylhexyl) phthalate, as one kind of ester, accounted for  $32\%$  of the identified SMP.

**Key words:** soluble microbial products (SMP); aerobic granular sludge (AGS); relative molecular mass distribution; bis(2-ethylhexyl) phthalate; gas chromatography-mass spectrometry

好氧颗粒污泥是一种特殊的生物膜结构, 通过细胞间的自固定而逐渐颗粒化, 形成球形或椭球形的结构<sup>[1, 2]</sup>。与传统的活性污泥相比, 它具有良好的沉降性能、紧密的内部结构、耐冲击负荷和抗毒性等优点<sup>[3, 4]</sup>。因此, 好氧颗粒污泥技术在废水处理中具有广泛应用前景<sup>[5]</sup>。

溶解性微生物代谢产物(SMP)是微生物在生长代谢和衰亡过程中分泌出来的一种可溶于水的有机物<sup>[6]</sup>, 其组成成分的相对分子质量分布较为广泛且呈双峰分布<sup>[7]</sup>。有研究表明生物反应器中产生的 SMP 多以蛋白质、多糖、腐殖酸和富里酸为主要成分, 且 SMP 通常是构成污水生物处理系统出水 COD 的主要组成部分<sup>[8, 9]</sup>, 因此, 减少 SMP 的产生

对污水生物处理出水达标排放和提高有机物去除效率具有重要的意义<sup>[10, 11]</sup>。然而, 到目前为止, 大部分研究者都致力于活性污泥系统和膜生物反应器(MBR)出水 SMP 的研究, Xie 等<sup>[11]</sup>通过批实验和建模方法研究了活性污泥处理实际废水中 SMP 的产生情况, Liang 等<sup>[12]</sup>研究了 SMP 在 MBR 中不同污泥停留时间(SRTs)的特征以及对膜的污染状况。而目前关于好氧颗粒污泥系统出水 SMP 的产生以及特征的研究很少, 仅有 Li 等<sup>[13]</sup>研究了 2,6-

收稿日期: 2017-07-07; 修订日期: 2017-09-06

基金项目: 国家自然科学基金项目(51608279)

作者简介: 杨丹(1993~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为水污染控制, E-mail: Sunflowerfordan@163.com

\* 通信作者, E-mail: huangwenli@nankai.edu.cn

二氯酚对好氧颗粒污泥系统中 SMP 和 EPS 的影响。

因此,本文主要研究好氧颗粒污泥系统出水 SMP 的形成、产生机制、相对分子质量分布以及主要组成物质,以期为好氧颗粒污泥系统出水 SMP 的控制和去除提供思路。

## 1 材料与方法

### 1.1 反应器的建立与运行

#### 1.1.1 实验装置

实验装置采用序批式反应器(SBR),高100 cm,内径6 cm,总容积2.8 L,有效容积2 L.在反应器的底部正中央安装有一个微孔曝气头,排水口设置在反应器高30 cm处,反应装置示意图1。

反应器运行的每个周期分为:进水、厌氧、曝气、静置沉降、排水5个阶段,每个阶段的运行和衔接由时间继电器控制,各阶段的运行时间见表1,其中曝气阶段的空气流速为 $3\text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ 。

#### 1.1.2 接种污泥

接种污泥取自天津某污水处理厂,其接种污泥的特征见表2。

#### 1.1.3 进水水质

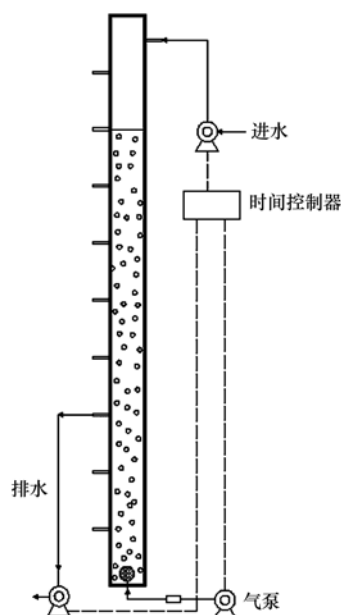


图1 反应装置示意

Fig. 1 Diagram of the SBR

反应器进水采用人工配水,以乙酸钠为唯一碳源,以氯化铵为氮源,磷酸二氢钾为磷源,投加碳酸氢钠将反应器 pH 维持在 $7.8\sim 8.4$ ,同时投加适量微量元素<sup>[14]</sup>。人工模拟废水的组分详见表3。

表1 周期运行时间

Table 1 Operation time for one cycle

| 天数/d  | 进水/min | 缺氧/min | 曝气/min  | 沉降/min | 排水/min |
|-------|--------|--------|---------|--------|--------|
| 1~7   | 2      | 28     | 185~200 | 15~5   | 2      |
| 7~120 | 2      | 28     | 202     | 3      | 2      |

表2 接种污泥的特征

Table 2 Characteristics of seed sludge

| 项目 | MLSS/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ | MLVSS/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ | MLVSS/MLSS | SV30/% | SVI/ $\text{mL}\cdot\text{g}^{-1}$ |
|----|-------------------------------------|--------------------------------------|------------|--------|------------------------------------|
| 数值 | 6 622                               | 3 284                                | 0.49       | 28     | 42.3                               |

表3 人工模拟废水的组分

Table 3 Components of synthetic wastewater

| 项目                                | COD | $\text{NH}_4\text{Cl}$ (N) | $\text{KH}_2\text{PO}_4$ (P) | $\text{CaCl}_2$ (Ca) | $\text{MgCl}_2\cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (Mg) | $\text{FeSO}_4\cdot 7\text{H}_2\text{O}$ (Fe) |
|-----------------------------------|-----|----------------------------|------------------------------|----------------------|-----------------------------------------------|-----------------------------------------------|
| 数值/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ | 600 | 50                         | 10                           | 5                    | 5                                             | 5                                             |

### 1.2 SMP 的测量和相对分子质量分布

样品首先在 $12\,000\text{ r}\cdot\text{min}^{-1}$ 离心15 min,然后上清液过 $0.45\text{ }\mu\text{m}$ 滤膜得到SMP,SMP的含量以COD值进行表征。采用超滤膜法对SMP的相对分子质量分布进行测定,即滤液分别过 $3\times 10^3$ 、 $10\times 10^3$ 、 $50\times 10^3$ 和 $100\times 10^3$ 的超滤管(Bedford, MA, USA)。分别收集每个超滤管的滤液,测定量COD和乙酸钠的浓度,其相对应的相对分子质量分布区

间用差减法求得<sup>[15, 16]</sup>。根据Aquino等<sup>[17]</sup>的研究,可以通过以下公式来计算SMP的浓度。

$$\text{SMP} = \text{COD} - 1.07 \times (\text{乙酸钠})$$

### 1.3 分析方法

MLSS、MLVSS、 $\text{SVI}_{30}$ 、 $\text{NH}_4^+$ -N和COD均采用标准方法。EPS采用加热法提取,预处理后的20 mL颗粒污泥混合液在80水浴加热60 min后,在 $4^\circ\text{C}$   $12\,000\text{ r}\cdot\text{min}^{-1}$ 条件下离心20 min,上清液通过

0.22  $\mu\text{m}$  滤膜, 滤液即为 EPS 提取液<sup>[18]</sup>, 以测量 COD 的浓度来表征. 采用 SDPTOP CX40 光学显微镜和配套的 CANON 数码相机对颗粒污泥的形态和粒径进行采集, 乙酸钠的浓度采用高效液相色谱法 (HPLC) 测定, 具体色谱分离条件如下. 色谱柱: Agilent C18 柱, 4.6 mm  $\times$  250 mm, 5  $\mu\text{m}$ ; 流动相: 水(用磷酸调 pH 至 2.10); 流速: 1 mL  $\cdot$  min<sup>-1</sup>; 进样量: 20  $\mu\text{L}$ ; 波长: 210 nm.

#### 1.4 三维荧光

采用三维荧光光谱对出水 SMP 进行分析. 样品采用 Hitachi 公司的 F-7000 荧光分光光度计扫描. 激发波长设置为 200 ~ 400 nm, 间隔为 5 nm, 发射波长设置为 200 ~ 550 nm, 间隔为 5 nm. 激发光和发射光的狭缝均为 10 nm, 扫描速度为 1200 nm  $\cdot$  min<sup>-1</sup>.

#### 1.5 气质联用分析(GC-MS)

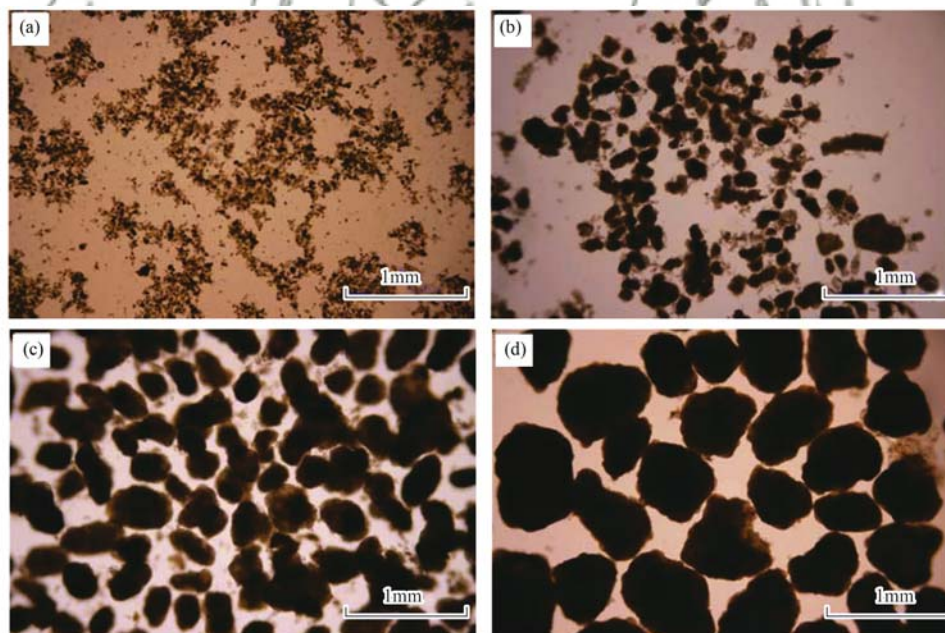
为了获得 SMP 的准确组成物质, 采用气质联用(GC-MS)对出水 SMP 进行分析. 首先采用液液萃取方法预处理制备样品, 分别在中性、酸性和碱性条件下各萃取两次, 然后将萃取样品混合,

通过无水硫酸钠脱水至 5 mL, 采用高纯氮气将溶液吹至 0.5 mL, 于 4 $^{\circ}\text{C}$  的条件下保存待测. GC-MS 分析条件: 7890B-5977A GC-MS 分析仪(美国 Agilent), HP-5MS 石英毛细管柱(30 m  $\times$  0.25 mm  $\times$  0.25  $\mu\text{m}$ ). 升温程序如下: 初始柱温 30 $^{\circ}\text{C}$ , 保持 3 min, 8 $^{\circ}\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$  升温至 280 $^{\circ}\text{C}$ , 保持 25 min. 进样口温度 280 $^{\circ}\text{C}$ , 进样量 2  $\mu\text{L}$ , 不分流进样模式, 载气高纯氦气 He, 流量 1.0 mL  $\cdot$  min<sup>-1</sup>, 容积延迟时间 2.5 min. 质谱标准库为 NIST11. L (National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD, USA, <http://www.nist.gov/srd/mslist.htm>).

## 2 结果与讨论

### 2.1 好氧颗粒污泥的形成

在颗粒污泥形成过程中, 用光学显微镜对颗粒污泥的形态进行观察, 其变化如图 2 所示. 随着培养时间的增长, 分散的絮状污泥逐渐生长为不规则的小颗粒, 最终在 90 d 形成边界清晰的深褐色成熟好氧颗粒污泥.



(a) 接种污泥; (b) 40 d; (c) 60 d; (d) 90 d

图2 好氧颗粒污泥的形态变化

Fig. 2 Images of sludge in the granulation process

好氧颗粒污泥培养过程反应器中颗粒变化特征见表 4, 随着沉降时间从 20 min 降低到 3 min, 反应器中的 MLSS 从接种的 6.6 g  $\cdot$  L<sup>-1</sup> 降低到 4.5 g  $\cdot$  L<sup>-1</sup>, 随着反应器中污泥的颗粒化, MLSS 开始呈现上升趋势. 运行到 90 d, 反应器中的好氧颗粒污

泥基本趋于成熟, 颗粒粒径达到 0.92 mm 左右, 此时反应器中的污泥浓度在 10.7 g  $\cdot$  L<sup>-1</sup>.

### 2.2 碳源的降解和 SMP 的产生

由图 3 可知, 在反应器运行过程中, 出水 COD 和 NH<sub>4</sub>-N 的去除率分别达到 86% 和 99%. 出水

表 4 反应器运行 120 天颗粒污泥特征的变化

Table 4 Characteristics of granules in the reactors during 120 days of operation

| 运行天数/d | MLSS/g·L <sup>-1</sup> | MLVSS/MLSS | SVI <sub>30</sub> /mL·g <sup>-1</sup> | 平均粒径/mm |
|--------|------------------------|------------|---------------------------------------|---------|
| 0      | 6.6                    | 0.49       | 42                                    | 0.11    |
| 30     | 4.5                    | 0.73       | 32                                    | 0.24    |
| 60     | 6.6                    | 0.93       | 27                                    | 0.51    |
| 90     | 10.7                   | 0.89       | 11                                    | 0.92    |
| 120    | 10.3                   | 0.91       | 15                                    | 1.13    |

COD 浓度维持在 78 ~ 90 mg·L<sup>-1</sup>，其中 SMP 的浓度维持在 71 ~ 85 mg·L<sup>-1</sup>。可见 SMP 是构成反应器出水 COD 的主要组分。

为了研究好氧颗粒污泥系统中 SMP 的产生机制，考察了污泥完全颗粒化后反应器一个周期中乙酸钠、EPS、COD 和 SMP 的变化情况，最终得到图 4 结果。随着乙酸钠的降解，反应器中的 SMP 浓度呈现不断上升的趋势，当乙酸钠消耗殆尽，SMP 呈现缓慢增长。在周期运行初期，底物基质充足，这一阶段 SMP 的产生源于微生物对底物基质的新陈代谢过程。而在周期运行后期，底物基质的浓度很低，微生物进入内源呼吸阶段，这一阶段反应器中的 SMP 主要来源于细胞的水解和微生物的衰亡。同时注意到，周期运行后期 EPS 的含量呈现下降趋势，这说明了内源呼吸过程加速了 EPS 的水解，使其从微生物表面释放至溶液中形成 SMP 的一部分<sup>[19, 20]</sup>。Ni 等<sup>[21]</sup>的研究表明细胞可以利用底物基质中的部分电子产生新的生物量，同时利用其他基质电子产生 bound EPS 和基质利用相关型产物(UAP)，其中 bound EPS 可以在微生物处于衰亡期时水解形成生物生长相关性产物(BAP)。这进一步证明反应器中 SMP 的产生与微生物对基质的利用，微生物衰亡和 EPS 的水解有关。另外，反应器中

COD 浓度在 90 min 降低到最低点(42 mg·L<sup>-1</sup>)，随后又呈现持续上升的趋势，反应后期 COD 浓度的上升可能是由 EPS 的水解和 SMP 的积累所引起。

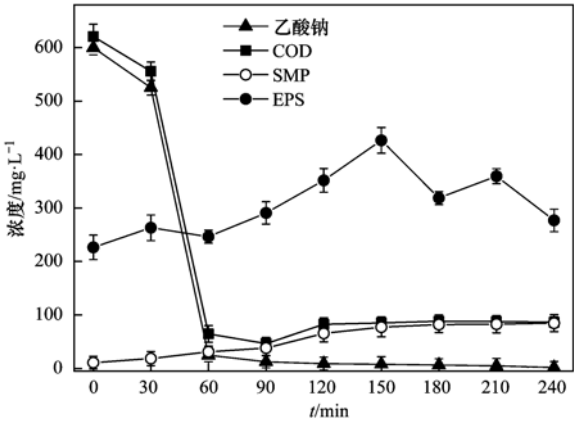


图 4 反应器中一个典型周期中的 SMP、EPS、乙酸钠和 COD 的变化情况

Fig. 4 Variation of SMP, EPS, acetate, and COD in the SBR in a typical batch experiment

2.3 SMP 的相对分子质量分布

为了进一步考察好氧颗粒污泥系统出水 SMP 的特征，分析测定反应器运行 40 d 和 100 d 的出水 SMP 相对分子质量分布，结果如图 5 所示。SMP 具有广泛的相对分子质量分布范围，相对分子质量小于  $3 \times 10^3$  是 SMP 的主要组成部分，所占质量分数为 54.8% ~ 71.7%，而相对分子质量大于  $100 \times 10^3$  占总 SMP 的 9.3% ~ 14.5%。另外，SMP 在  $3 \times 10^3 \sim 10 \times 10^3$  和  $10 \times 10^3 \sim 50 \times 10^3$  两个范围分别占 6.5% ~ 8.6% 和 8.6% ~ 17.2%。而中间相对分子质量物质( $50 \times 10^3 \sim 100 \times 10^3$ )是 SMP 中最小的组成部分，仅占总 SMP 的 3.7% ~ 5.0%。这与 Liang 等<sup>[12]</sup>研究 MBR 反应器出水 SMP 的相对分子质量分布结果相似。

另一方面，反应器运行 40 d 和 100 d 出水 SMP 的相对分子质量分布特征很相似，但是各个相对分子质量范围的相对浓度和所占比例是有区别的。与 40 d 相比，100 d 出水 SMP 中相对分子质量小于  $3 \times 10^3$  的组分从 52.8 mg·L<sup>-1</sup> 增加到 66.7 mg·L<sup>-1</sup>。

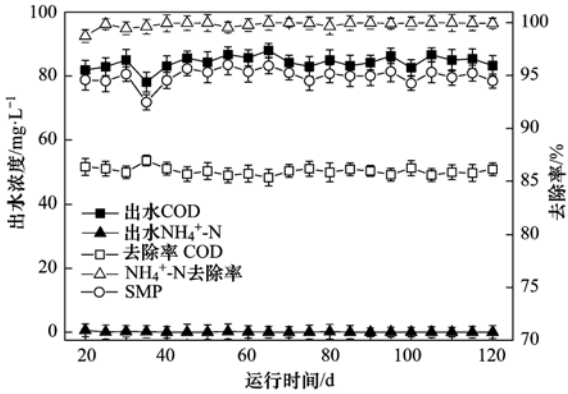


图 3 SBR 反应器运行过程中出水 COD 和 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 的浓度和去除率以及 SMP 的浓度

Fig. 3 Effluent concentration and removal efficiencies of COD, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N, and SMP in the SBR

而 SMP 中相对分子质量分布范围为  $>100 \times 10^3$ 、 $50 \times 10^3 \sim 100 \times 10^3$ 、 $10 \times 10^3 \sim 50 \times 10^3$  和  $3 \times 10^3 \sim 10 \times 10^3$  的组分浓度分别从  $13.9 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  降低到  $8.7 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ,  $4.8 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  降低到  $3.5 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ,  $16.5 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  降低到  $8.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  和  $8.3 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  降低到  $6.1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。很明显, 反应器从 40 d 运行到 100 d, 出水中的一些大分子的 SMP 转化为小分子 SMP, 这可能与反应器的 SRT 增加有关。由表 4 可知, 从 40 d 到 100 d 的运行, 反应器中污泥浓度在不断增加, SRT 也从 10 d 增长到 21 d。有研究表明在较长 SRT 下积累的微生物可以将反应器中积累的大分子 SMP 降解为小分子 SMP<sup>[22, 23]</sup>, 这进一步解释了本实验结果。

## 2.4 SMP 的三维荧光光谱分析

为了进一步确定 SMP 的主要组成成分, 采用三维荧光光谱对反应器 40 d 和 100 d 出水 SMP 进行分析测定。结果如图 6 和表 5, 可以看到 40 d 和 100 d 出水 SMP 主要有 4 个峰, 分别是 Peak A:  $E_x/E_m = 230/340 \sim 345 \text{ nm}$ , Peak B:  $E_x/E_m = 270 \sim 280/340 \sim 350 \text{ nm}$ , Peak C:  $E_x/E_m = 340 \sim 345/420 \sim 425 \text{ nm}$  和 Peak D:  $E_x/E_m = 245/380 \sim 395 \text{ nm}$ 。根据 Chen 等<sup>[24]</sup>对三维荧光光谱划分, 这 4 个峰分别属于类芳香蛋白质(Peak A)、类色氨酸蛋白质(Peak B)、类腐殖酸物质(Peak C)和类富里酸物质(Peak D)。尽管 40 d 和 100 d 出水 SMP 的三维荧光光谱图的 4 个峰的位置相似, 但是各个峰的强度是有区别的。反应器从 40 d 运行到 100 d, 出水 SMP 的 4 个荧光峰强度均呈下降趋势, 故荧光峰总强度也呈下降趋势。这进一步说明反应器 100 d 出水 SMP 的浓度低于 40 d 出水 SMP 浓度, 这与 2.3 节结果相符。

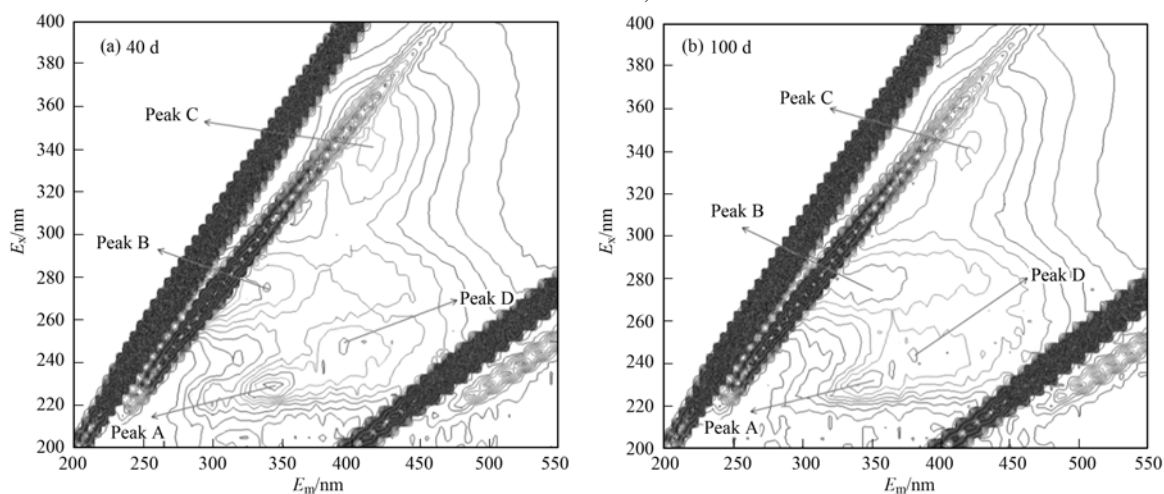


图 6 反应器不同运行天数出水 SMP 的三维荧光光谱图

Fig. 6 3D-EEM fluorescence spectra of SMP on different operation days

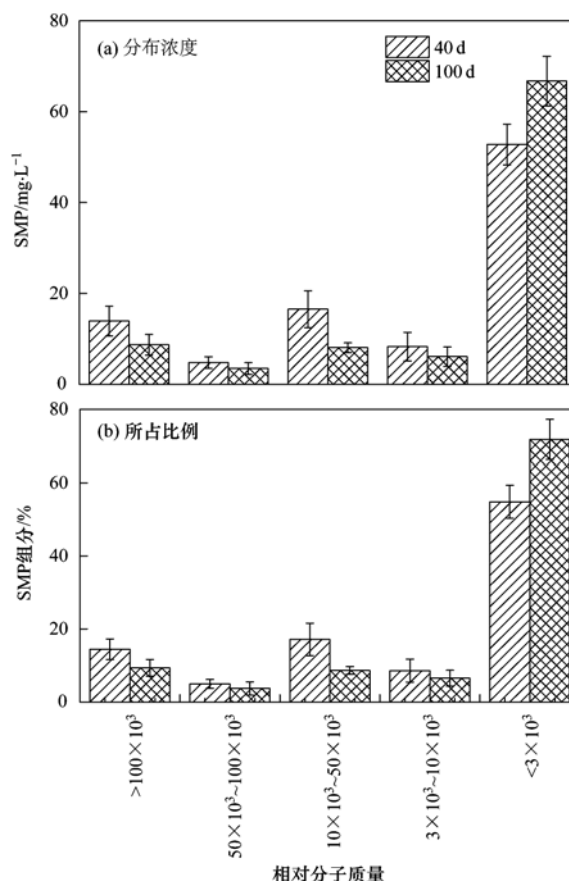


图 5 不同运行时间反应器出水 SMP 的相对分子质量分布浓度和所占比例

Fig. 5 The  $M_r$  distributions and fraction of SMP in the effluent on different operation days

## 2.5 气相色谱-质谱联用(GC-MS)分析 SMP 的成分

为了进一步准确分析好氧颗粒污泥系统出水 SMP 的主要组成物质, 对出水 SMP 进行 GC-MS 分析, 检测出 SMP 中匹配率在 80% 以上的物质有 46 种, 表 6 列出相对含量大于 1% 的物质。由图 7 可

表 5 R1 和 R2 出水 SMP 的三维荧光峰的强度  
Table 5 Detailed fluorescence spectra parameters  
of SMPs samples on day 40 and 100

| 天数/d | 峰 | $E_x/E_m/\text{nm}$ | 强度    | 物质      |
|------|---|---------------------|-------|---------|
| 40   | A | 230/340 ~ 345       | 214   | 类芳香蛋白质  |
|      | B | 270 ~ 280/340 ~ 350 | 167   | 类色氨酸蛋白质 |
|      | C | 340 ~ 345/420 ~ 425 | 147.4 | 类腐殖酸    |
|      | D | 245/380 ~ 395       | 165.4 | 类富里酸    |
| 100  | A | 230/340             | 184.8 | 类芳香蛋白质  |
|      | B | 280/350             | 158.1 | 类色氨酸蛋白质 |
|      | C | 345/425             | 125.5 | 类腐殖酸    |
|      | D | 245/380             | 150.6 | 类富里酸    |

知,检测出的主要有机物质类别为酯类、短链烷烃类、烯烃类和醇类,还有少量的酮类、醛类和醚类.其中含量最多的种类是酯类,所占比例为39%,其次是短链烷烃类(14.9%)、烯烃类(11.7%)和醇类(7.6%). Zhang 等<sup>[25]</sup>利用 GC-MS 分析了 MBR 反应器出水 SMP 的成分,结果表明烷烃类(尤其是长链烷烃)、芳香化合物、酯类和醇类是主要的组分,分别占38%、17%、15%和15%.而在本实验的出水 SMP 中只检测到少量的长链烷烃类和芳香类物质,这可能和好氧颗粒污泥系统和MRR系统中微生物的新陈代谢不同有关.

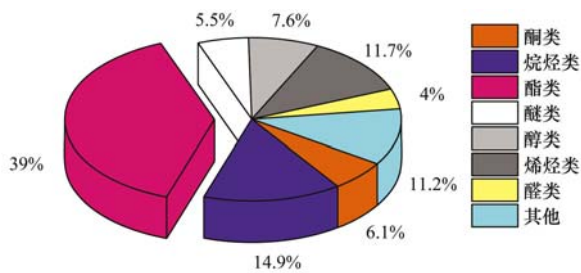


图 7 好氧颗粒污泥系统出水 SMP 组分的 GC-MS 分析  
Fig. 7 GC-MS analysis for the SMP composition in the effluent of the AGS system

从表 6 可知,邻苯二甲酸二酯、庚烷、1,2,3,4,5-五甲基-环戊烯和 3-戊烯-2-醇是出水 SMP 中酯类、短链烷烃、烯烃和醇类的主要物质,所占质量分数分别为32.03%、5.60%、7.21%和2.93%.其中邻苯二甲酸二酯的含量远高于其他几种物质. 先前研究表明邻苯二甲酸二酯具有抗菌活性,可以从链霉菌、褐藻马尾藻属和海洋生物中分离出来<sup>[26]</sup>. 故推断好氧颗粒污泥中某些微生物在新陈代谢过程中可能会产生邻苯二甲酸二酯,虽然目前没有研究可以证实这个推论. 此外,有研究表明邻苯二甲酸二酯可以被生物炭和黏土矿物进行生物降解或吸附<sup>[27,28]</sup>,这对出水中 SMP 的去除具有很重要的意义.

表 6 GC-MS 检测出反应器出水 SMP 中的主要物质  
Table 6 Compounds detected by GC-MS in SMP in the effluent in the SBR

| 保留时间/min | 有机物名称                 | 相对分子质量 | 化学分子式                                          | 相对含量/% | 匹配率/% |
|----------|-----------------------|--------|------------------------------------------------|--------|-------|
| 2.973    | 3-甲基-2-丁酮             | 86.1   | C <sub>5</sub> H <sub>10</sub> O               | 5.43   | 84.23 |
| 2.997    | 2-氯-2-甲基-丁烷           | 106.1  | C <sub>5</sub> H <sub>11</sub> Cl              | 2.6    | 95.98 |
| 3.222    | 3-戊烯-2-醇              | 86.1   | C <sub>5</sub> H <sub>10</sub> O               | 2.93   | 95.17 |
| 3.299    | 庚烷                    | 100.1  | C <sub>7</sub> H <sub>16</sub>                 | 5.6    | 86.71 |
| 4.552    | N,N-二乙基乙酰胺            | 115.1  | C <sub>6</sub> H <sub>13</sub> NO              | 1.21   | 82.32 |
| 4.914    | 反-3-己烯醇               | 100.1  | C <sub>6</sub> H <sub>12</sub> O               | 1.06   | 93.45 |
| 6.528    | 2-乙基-3-甲基-戊烯          | 140.2  | C <sub>10</sub> H <sub>20</sub>                | 1.49   | 89.33 |
| 6.849    | 1,2,3,4,5-五甲基-环戊烯     | 138.1  | C <sub>10</sub> H <sub>18</sub>                | 7.21   | 95.11 |
| 7.276    | 1,2,3,4,5-五甲基-环戊烷     | 140.2  | C <sub>10</sub> H <sub>20</sub>                | 3.2    | 87.96 |
| 7.864    | 2,4,4-三甲基-己烯          | 126.1  | C <sub>9</sub> H <sub>18</sub>                 | 1.42   | 80.6  |
| 7.923    | 1-甲基-3-丙基-环己烷         | 140.2  | C <sub>10</sub> H <sub>20</sub>                | 2.52   | 90.6  |
| 16.042   | 2,4a,8,8-四甲基十氢环丙萘烯    | 206.2  | C <sub>15</sub> H <sub>26</sub>                | 1.14   | 82.37 |
| 29.088   | 溴代十八醛                 | 346.2  | C <sub>18</sub> H <sub>35</sub> BrO            | 3.76   | 80.47 |
| 31.219   | 1,3,12-十九碳三烯-5,14-二醇  | 294.3  | C <sub>19</sub> H <sub>34</sub> O <sub>2</sub> | 1.7    | 80.74 |
| 31.7     | 邻苯二甲酸酯类               | 390.3  | C <sub>24</sub> H <sub>38</sub> O <sub>4</sub> | 4.62   | 84.14 |
| 31.824   | 邻苯二甲酸二酯               | 390.3  | C <sub>24</sub> H <sub>38</sub> O <sub>4</sub> | 32.03  | 95.62 |
| 33.813   | 三环[20.8.0.0(7,16)]蜂花烷 | 444.4  | C <sub>30</sub> H <sub>52</sub> O <sub>2</sub> | 2.27   | 81.48 |
| 42.781   | 十二烯基丁二酸酐              | 266.2  | C <sub>16</sub> H <sub>26</sub> O <sub>3</sub> | 7.02   | 81.31 |
| 46.734   | 2,5-呋喃二酮酸酐            | 266.2  | C <sub>16</sub> H <sub>26</sub> O <sub>3</sub> | 1.01   | 82.31 |

### 3 结论

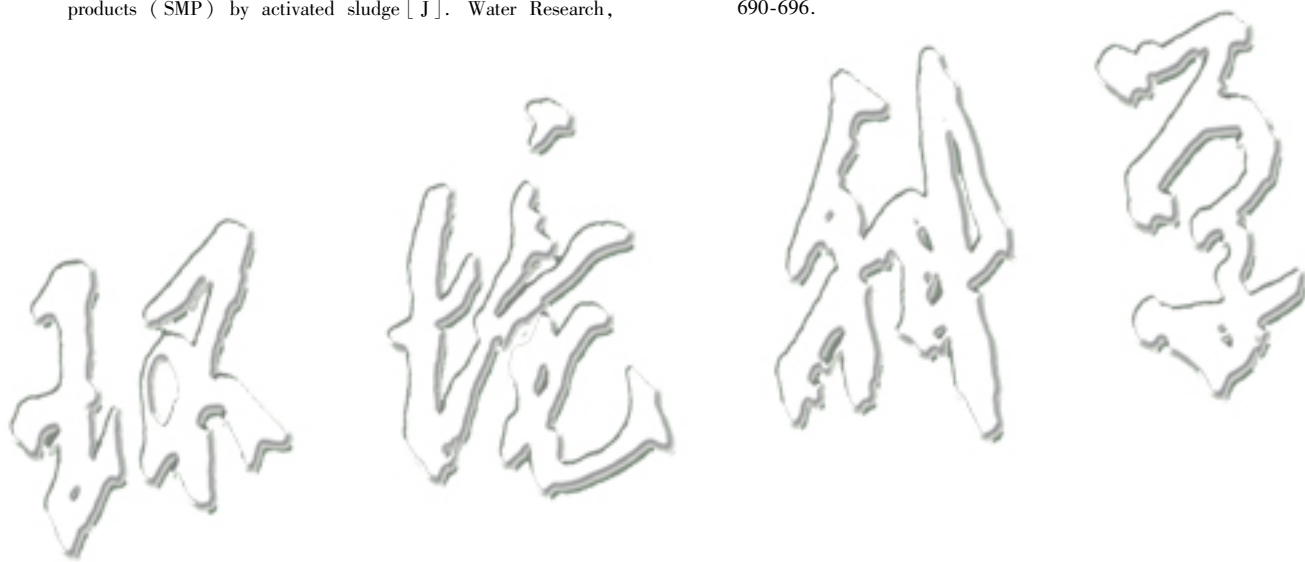
(1)好氧颗粒污泥系统出水 SMP 是反应器出水 COD 的主要组分. 出水 SMP 相对分子质量小于  $3 \times 10^3$  组分占主导地位, 所占质量分数为 54.8% ~ 71.7%, 而大于  $100 \times 10^3$  的组分仅占总 SMP 的 9.3% ~ 14.5%. 这说明好氧颗粒污泥系统产生的 SMP 大部分都是小分子物质, 且反应器从 40 d 运行到 100 d, 出水中的一些大分子的 SMP 转化为小分子 SMP, 这可能与反应器中污泥停留时间 (SRT) 增加有关, 这为 SMP 的去除提供思路.

(2)三维荧光光谱分析表明, 出水 SMP 具有 4 个峰, 分别属于类芳香蛋白质、类色氨酸蛋白质、类腐殖酸物质和类富里酸物质. GC-MS 分析结果表明出水 SMP 主要组分为酯类、短链烷烃、烯烃和醇类, 所占质量分数分别为 39.0%、14.9%、11.7% 和 7.6%. 其中邻苯二甲酸二酯、庚烷、1,2,3,4,5-五甲基-环戊烯和 3-戊烯-2-醇分别是出水 SMP 中酯类、短链烷烃、烯烃和醇类的主要物质, 占比分别为 32.03%、5.60%、7.21% 和 2.93%. 研究结果对好氧颗粒污泥技术在实际工程应用中 SMP 的去除提供有效信息.

#### 参考文献:

- [1] Lee D J, Chen Y Y, Show K Y, *et al.* Advances in aerobic granule formation and granule stability in the course of storage and reactor operation [J]. *Biotechnology Advances*, 2010, **28** (6): 919-934.
- [2] 苏海佳, 王陆玺, 邓爽, 等. 好氧颗粒污泥技术及研究进展 [J]. *化工进展*, 2016, **35** (6): 1914-1922.  
Su H J, Wang L X, Deng S, *et al.* A review on the aerobic granular sludge technology [J]. *Chemical Industry and Engineering Process*, 2016, **35** (6): 1914-1922.
- [3] He Q L, Zhang W, Zhang S L, *et al.* Performance and microbial population dynamics during stable operation and reactivation after extended idle conditions in an aerobic granular sequencing batch reactor [J]. *Bioresource Technology*, 2017, **238**: 116-121.
- [4] 彭永臻, 吴蕾, 马勇, 等. 好氧颗粒污泥的形成机制、特性及应用研究进展 [J]. *环境科学*, 2010, **31** (2): 273-281.  
Peng Y Z, Wu L, Ma Y, *et al.* Advances: granulation mechanism, characteristics and application of aerobic sludge granules [J]. *Environmental Science*, 2010, **31** (2): 273-281.
- [5] 杨淑芳, 张健君, 邹高龙, 等. 实际污水培养好氧颗粒污泥及其特性研究 [J]. *环境科学*, 2014, **35** (5): 1850-1856.  
Yang S F, Zhang J J, Zou G L, *et al.* Formation and characterization of aerobic granules in a pilot-scale reactor for real wastewater treatment [J]. *Environmental Science*, 2014, **35** (5): 1850-1856.
- [6] 李娜, 段亮, 周北海, 等. 不同泥龄 MBR 中溶解性微生物代谢产物对膜污染的影响 [J]. *环境工程学报*, 2015, **9** (6): 2731-2738.  
Li S, Duan L, Zhou B H, *et al.* Effect of soluble microbial products on membrane fouling in MBR at various solids retention times [J]. *Chinese Journal of Environmental Engineering*, 2015, **9** (6): 2731-2738.
- [7] 郭瑾, 张静蓉, 尚会来, 等. SBR 生物反应器出水溶解态有机物性质特点研究 [J]. *环境科学学报*, 2011, **31** (1): 20-25.  
Guo J, Zhang J R, Shang H L, *et al.* Characterization of the dissolved organic matter in the sewage effluent of an SBR [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2011, **31** (1): 20-25.
- [8] 金鹏康, 陈飞, 章佳昕, 等. 活性污泥胞外聚合物的分层组分及溶解性微生物代谢产物的特性 [J]. *环境化学*, 2015, **34** (7): 1323-1328.  
Jin P K, Chen F, Zhang J X, *et al.* Characteristics of the stratification components of extracellular polymeric substances and soluble microbial products in activated sludge [J]. *Environmental Chemistry*, 2015, **34** (7): 1323-1328.
- [9] 梅晓洁, 王志伟, 马金星, 等. 膜-生物反应器污泥缺氧反硝化过程中 SMP 的形成 [J]. *中国环境科学*, 2012, **32** (10): 1784-1791.  
Mei X J, Wang Z W, Ma J X, *et al.* Formation of SMP during denitrification under anoxic conditions in a membrane bioreactor [J]. *China Environmental Science*, 2012, **32** (10): 1784-1791.
- [10] Ni B J, Rittmann B E, Yu H Q. Soluble microbial products and their implications in mixed culture biotechnology [J]. *Trends in Biotechnology*, 2011, **29** (9): 454-463.
- [11] Xie W M, Ni B J, Sheng G P, *et al.* Quantification and kinetic characterization of soluble microbial products from municipal wastewater treatment plants [J]. *Water Research*, 2016, **88**: 703-710.
- [12] Liang S, Liu C, Song L F. Soluble microbial products in membrane bioreactor operation: behaviors, characteristics, and fouling potential [J]. *Water Research*, 2007, **41** (1): 95-101.
- [13] Li K, Wei D, Yan T, *et al.* Responses of soluble microbial products and extracellular polymeric substances to the presence of toxic 2,6-dichlorophenol in aerobic granular sludge system [J]. *Journal of Environmental Management*, 2016, **183**: 594-600.
- [14] Huang W L, Cai W, Huang H, *et al.* Identification of inorganic and organic species of phosphorus and its bio-availability in nitrifying aerobic granular sludge [J]. *Water Research*, 2015, **68**: 423-431.
- [15] Duan L, Jiang W, Song Y H, *et al.* The characteristics of extracellular polymeric substances and soluble microbial products in moving bed biofilm reactor-membrane bioreactor [J]. *Bioresource Technology*, 2013, **148**: 436-442.
- [16] Holakoo L, Nakhla G, Yanful E K, *et al.* Chelating properties and molecular weight distribution of soluble microbial products from an aerobic membrane bioreactor [J]. *Water Research*, 2006, **40** (8): 1531-1538.
- [17] Aquino S F, Stuckey D C. Soluble microbial products formation in anaerobic chemostats in the presence of toxic compounds [J]. *Water Research*, 2004, **38** (2): 255-266.
- [18] Li X Y, Yang S F. Influence of loosely bound extracellular polymeric substances (EPS) on the flocculation, sedimentation and dewaterability of activated sludge [J]. *Water Research*, 2007, **41** (5): 1022-1030.

- [19] 郝丽娟, 吕娜, 张海丰, 等. SMP 形成与降解机制分析及其对 MBR 膜过滤的影响[J]. 化工学报, 2013, **64**(8): 3003-3008.  
Xi L J, Lü N, Zhang H F, *et al.* Analysis of formation and degradation mechanism of soluble microbial product and its effect on membrane filterability for membrane bioreactor[J]. CIESC Journal, 2013, **64**(8): 3003-3008.
- [20] Corsino S F, Capodici M, Torregrossa M, *et al.* Fate of aerobic granular sludge in the long-term; the role of EPSs on the clogging of granular sludge porosity[J]. Journal of Environmental Management, 2016, **183**: 541-550.
- [21] Ni B J, Zeng R J, Fang F, *et al.* Fractionating soluble microbial products in the activated sludge process[J]. Water Research, 2010, **44**(7): 2292-2302.
- [22] Shin H S, Kang S T. Characteristics and fates of soluble microbial products in ceramic membrane bioreactor at various sludge retention times[J]. Water Research, 2003, **37**(1): 121-127.
- [23] Xie W M, Ni B J, Seviour T, *et al.* Evaluating the impact of operational parameters on the formation of soluble microbial products (SMP) by activated sludge[J]. Water Research, 2013, **47**(3): 1073-1079.
- [24] Chen W, Westerhoff P, Leenheer J A, *et al.* Fluorescence excitation-emission matrix regional integration to quantify spectra for dissolved organic matter[J]. Environmental Science & Technology, 2003, **37**(24): 5701-5710.
- [25] Zhang D Q, Trzcinski A P, Kunacheva C, *et al.* Characterization of soluble microbial products (SMPs) in a membrane bioreactor (MBR) treating synthetic wastewater containing pharmaceutical compounds[J]. Water Research, 2016, **102**: 594-606.
- [26] Driche E H, Belghit S, Bijani C, *et al.* A new *Streptomyces* strain isolated from Saharan soil produces di-(2-ethylhexyl) phthalate, a metabolite active against methicillin-resistant *Staphylococcus aureus*[J]. Annals of Microbiology, 2015, **65**(3): 1341-1350.
- [27] Zhang X K, Sarmah A K, Bolan N S, *et al.* Effect of aging process on adsorption of diethyl phthalate in soils amended with bamboo biochar[J]. Chemosphere, 2016, **142**: 28-34.
- [28] Wu Y H, Si Y B, Zhou D M, *et al.* Adsorption of diethyl phthalate ester to clay minerals[J]. Chemosphere, 2015, **119**: 690-696.



## CONTENTS

|                                                                                                                                                                                                                          |                                                                       |
|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------|
| Characterization and Variation of Organic Carbon (OC) and Elemental Carbon (EC) in PM <sub>2.5</sub> During the Winter in the Yangtze River Delta Region, China .....                                                    | KANG Hui, ZHU Bin, WANG Hong-lei, <i>et al.</i> ( 961 )               |
| Important Effect of Secondary Inorganic Salt Extinction on Visibility Impairment in the Northern Suburb of Nanjing .....                                                                                                 | YU Chao, YU Xing-na, ZHAO Tian-liang, <i>et al.</i> ( 972 )           |
| Day-Night Differences and Source Apportionment of Inorganic Components of PM <sub>2.5</sub> During Summer-Winter in Changzhou City .....                                                                                 | LIU Jia-shu, GU Yuan, MA Shuai-shuai, <i>et al.</i> ( 980 )           |
| Characteristics of Elements in PM <sub>2.5</sub> and PM <sub>10</sub> in Road Dust Fall During Spring in Tianjin .....                                                                                                   | WANG Shi-bao, JI Ya-qin, LI Shu-li, <i>et al.</i> ( 990 )             |
| Particle Size Distribution and Human Health Risk Assessment of Heavy Metals in Atmospheric Particles from Beijing and Xinxiang During Summer .....                                                                       | ZHANG Xin, ZHAO Xiao-man, MENG Xue-jie, <i>et al.</i> ( 997 )         |
| Ecological and Health Risks of Trace Heavy Metals in Atmospheric PM <sub>2.5</sub> Collected in Wuxiang Town, Shanxi Province .....                                                                                      | GUO Zhao-xia, GENG Hong, ZHANG Jin-hong, <i>et al.</i> ( 1004 )       |
| Characteristics of Particulate and Inorganic Elements of Motor Vehicles Based on a Tunnel Environment .....                                                                                                              | LI Feng-hua, ZHANG Yan-jie, ZHANG Jing, <i>et al.</i> ( 1014 )        |
| A 2013-based Atmospheric Ammonia Emission Inventory and Its Characteristic of Spatial Distribution in Henan Province .....                                                                                               | WANG Chen, YIN Sha-sha, YU Shi-jie, <i>et al.</i> ( 1023 )            |
| Emission Characteristics of Wind Erosion Dust from Topsoil of Urban Roadside-Tree Pool .....                                                                                                                             | LI Bei-bei, QIN Jian-ping, QI Li-rong, <i>et al.</i> ( 1031 )         |
| Particulate Component Emission Characteristic from a Diesel Bus with DOC and CDPF .....                                                                                                                                  | LOU Di-ming, GENG Xiao-yu, SONG Bo, <i>et al.</i> ( 1040 )            |
| Water Quality in the Henan Intake Area of the South-to-North Water Diversion Project .....                                                                                                                               | HUANG Piao-yi, XU Bin, GUO Dong-liang ( 1046 )                        |
| Spatio-Temporal Patterns and Environmental Risk of Endocrine Disrupting Chemicals in the Liuxi River .....                                                                                                               | FAN Jing-jing, WANG Sai, TANG Jin-peng, <i>et al.</i> ( 1053 )        |
| Fate and Origin of Major Ions in River Water in the Lhasa River Basin, Tibet .....                                                                                                                                       | ZHANG Qing-hua, SUN Ping-an, HE Shi-yi, <i>et al.</i> ( 1065 )        |
| Identification of Nitrate Sources and the Fate of Nitrate in Downstream Areas: A Case Study in the Taizi River Basin .....                                                                                               | LI Yan-li, YANG Zi-rui, YIN Xi-jie, <i>et al.</i> ( 1076 )            |
| Sources, Distribution of Main Controlling Factors, and Potential Ecological Risk Assessment for Heavy Metals in the Surface Sediment of Hainan Island North Bay, South China .....                                       | ZENG Wei-te, YANG Yong-peng, ZHANG Dong-qiang, <i>et al.</i> ( 1085 ) |
| Characteristics of Heavy Metals Pollution of Farmland and the Leaching Effect of Rainfall in Tianjin .....                                                                                                               | XU Meng-meng, LIU Ai-feng, SHI Rong-guang, <i>et al.</i> ( 1095 )     |
| Seasonal Difference in Water Quality Between Lake and Inflow/Outflow Rivers of Lake Taihu, China .....                                                                                                                   | ZHA Hui-ming, ZHU Meng-yuan, ZHU Guang-wei, <i>et al.</i> ( 1102 )    |
| Characteristics of Nitrogen Release at the Sediment-Water Interface in the Typical Tributaries of the Three Gorges Reservoir During the Sensitive Period in Spring .....                                                 | LI Xin, SONG Lin-xu, JI Dao-bin, <i>et al.</i> ( 1113 )               |
| Spatial Distributions of Transferable Nitrogen Forms and Influencing Factors in Sediments from Inflow Rivers in Different Lake Basins .....                                                                              | ZHOU Rui, YUAN Xu-yin, Marip Ja Bawk, <i>et al.</i> ( 1122 )          |
| Effects of Hydrological and Meteorological Conditions on Diatom Proliferation in Reservoirs .....                                                                                                                        | SUN Xiang, ZHU Guang-wei, DA Wen-yi, <i>et al.</i> ( 1129 )           |
| Vertical Distribution of Fungal Community Composition and Water Quality During the Deep Reservoir Thermal Stratification .....                                                                                           | SHANG Pan-lu, CHEN Sheng-nan, HUANG Ting-lin, <i>et al.</i> ( 1141 )  |
| Community Structure and Influencing Factors of Bacterioplankton in Spring in Zhushan Bay, Lake Taihu .....                                                                                                               | XUE Yin-gang, LIU Fei, SUN Meng, <i>et al.</i> ( 1151 )               |
| Characteristics of Sediment Oxygen Demand in a Drinking Water Reservoir .....                                                                                                                                            | SU Lu, HUANG Ting-lin, LI Nan, <i>et al.</i> ( 1159 )                 |
| Effects of Wastewater Nitrogen Concentrations and NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> /NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> on Nitrogen Removal Ability and the Nitrogen Component of <i>Myriophyllum aquaticum</i> (Vell.) Verde ..... | MA Yong-fei, YANG Xiao-zhen, ZHAO Xiao-hu, <i>et al.</i> ( 1167 )     |
| Effect of Nutrient Loadings on the Regulation of Water Nitrogen and Phosphorus by <i>Vallisneria spiralis</i> and Its Photosynthetic Fluorescence Characteristics .....                                                  | ZHOU Yi-wen, XU Xiao-guang, HAN Rui-ming, <i>et al.</i> ( 1180 )      |
| Removal of Organic Matter from Water by Chemical Preoxidation Coupled with Biogenic Manganese Oxidation .....                                                                                                            | JIAN Zhi-yu, CHANG Yang-yang, WANG Li-xin, <i>et al.</i> ( 1188 )     |
| Treating Simulated Dye Wastewater by an <i>In Situ</i> Copper Ferrite Process .....                                                                                                                                      | HAN Zhi-yong, HAN Kun, HAO Hao-tian, <i>et al.</i> ( 1195 )           |
| Experiment to Enhance Catalytic Activity of $\alpha$ -FeOOH in Heterogeneous UV-Fenton System by Addition of Oxalate .....                                                                                               | MIAO Xiao-zeng, DAI Hui-wang, CHEN Jian-xin, <i>et al.</i> ( 1202 )   |
| Fabrication of a Biomass-Based Hydrous Zirconium Oxide Nanocomposite for Advanced Phosphate Removal .....                                                                                                                | QIU Hui, QIN Zhi-feng, LIU Feng-ling, <i>et al.</i> ( 1212 )          |
| Characteristic of Nitrate Adsorption in Aqueous Solution by Iron and Manganese Oxide/Biochar Composites .....                                                                                                            | ZHENG Xiao-qing, WEI An-lei, ZHANG Yi-xuan, <i>et al.</i> ( 1220 )    |
| Preparation of PAAm/HACC Semi-Interpenetrate Network Hydrogel and Its Adsorption Properties for Humic Acid from Aqueous Solution .....                                                                                   | LIU Ze-jun, ZHOU Shao-qi, MA Fu-zhen ( 1233 )                         |
| Groundwater Arsenic and Silicate Adsorption on TiO <sub>2</sub> and the Regeneration of TiO <sub>2</sub> .....                                                                                                           | MA Wen-jing, YAN Li, ZHANG Jian-feng ( 1241 )                         |
| Removal Efficiency and Mechanism of Removal by Humic Acid of the Integrated Flocculation-ultrafiltration Process .....                                                                                                   | LI Wen-jiang, YU Li-fang, MIAO Rui, <i>et al.</i> ( 1248 )            |
| Emission Inventory of Greenhouse Gas from Urban Wastewater Treatment Plants and Its Temporal and Spatial Distribution in China .....                                                                                     | YAN Xu, QIU De-zhi, GUO Dong-li, <i>et al.</i> ( 1256 )               |
| Start-up and Operation of Biofilter Coupled Nitrification and CANON for the Removal of Iron, Manganese and Ammonia Nitrogen .....                                                                                        | LI Dong, CAO Rui-hua, YANG Hang, <i>et al.</i> ( 1264 )               |
| Analysis of CANON Process Start-up with Fiber Carrier .....                                                                                                                                                              | GU Cheng-wei, CHEN Fang-min, LI Xiang, <i>et al.</i> ( 1272 )         |
| Characteristics of Biofilm During the Transition Process of Complete Nitrification and Partial Nitrification .....                                                                                                       | ZHAO Qing, BIAN Wei, LI Jun, <i>et al.</i> ( 1278 )                   |
| Effect of Intermediate-Setting Aeration on the CANON Granular Sludge Process in the AUSB Reactor .....                                                                                                                   | CHENG Shuo, LI Dong, ZHANG Jie, <i>et al.</i> ( 1286 )                |
| Effect of Organic Carbon Source on Start-up and Operation of the CANON Granular Sludge Process .....                                                                                                                     | LI Dong, WANG Yan-ju, LU Yu-feng, <i>et al.</i> ( 1294 )              |
| Start-Up and Regional Characteristics of a Pilot-scale Integrated PN-ANAMMOX Reactor .....                                                                                                                               | ZHOU Zheng, WANG Fan, LIN Xing, <i>et al.</i> ( 1301 )                |
| Effect of NO <sub>x</sub> <sup>-</sup> -N Recycling Ratio on Denitrifying Phosphorus Removal Efficiency in the ABR-MBR Combined Process .....                                                                            | LÜ Liang, YOU Wen, ZHANG Min, <i>et al.</i> ( 1309 )                  |
| Effects of Magnetic Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> Nanoparticles on the Characteristics of Anaerobic Granular Sludge and Its Interior Microbial Community .....                                                          | SU Cheng-yuan, ZHENG Peng, LU Yu-xiang, <i>et al.</i> ( 1316 )        |
| Characterization Composition of Soluble Microbial Products in an Aerobic Granular Sludge System .....                                                                                                                    | YANG Dan, LIU Dong-fang, DU Li-qiong, <i>et al.</i> ( 1325 )          |
| Influence of Ciprofloxacin on the Microbial Community and Antibiotics Resistance Genes in a Membrane Bioreactor .....                                                                                                    | DAI Qi, LIU Rui, LIANG Yu-ting, <i>et al.</i> ( 1333 )                |
| Analysis of Low C/N Wastewater Treatment and Structure by the CEM-UF Combined Membrane-Nitrification/Denitrification System .....                                                                                        | XING Jin-liang, ZHANG Yan, CHEN Chang-ming, <i>et al.</i> ( 1342 )    |
| Effects of Phosphorus on the Activity and Bacterial Community in Mixotrophic Denitrification Sludge .....                                                                                                                | WANG Pei-qi, ZHOU Wei-li, HE Sheng-bing, <i>et al.</i> ( 1350 )       |
| Acclimatization and Community Structure Analysis of the Microbial Consortium in Nitrate-Dependent Anaerobic Methane Oxidation .....                                                                                      | XUE Song, ZHANG Meng-zhu, LI Lin, <i>et al.</i> ( 1357 )              |
| Diffusion of Microorganism and Main Pathogenic Bacteria During Municipal Treated Wastewater Discharged into Sea .....                                                                                                    | XU Ai-ling, NIU Cheng-jie, SONG Zhi-wen, <i>et al.</i> ( 1365 )       |
| Oxytetracycline Wastewater Treatment in Microbial Fuel Cells and the Analysis of Microbial Communities .....                                                                                                             | YAN Wei-fu, XIAO Yong, WANG Shu-hua, <i>et al.</i> ( 1379 )           |
| Spatial and Temporal Variability of Soil C-to-N Ratio of Yugan County and Its Influencing Factors in the Past 30 Years .....                                                                                             | JIANG Ye-feng, ZHONG Shan, LI Jie, <i>et al.</i> ( 1386 )             |
| Spatial Heterogeneity of Soil Carbon and its Fractions in the Wolfberry Field of Zhongning County .....                                                                                                                  | WANG You-qi, ZHAO Yun-peng, BAI Yi-ru, <i>et al.</i> ( 1396 )         |
| Response of Soil Enzyme Activities and Their Relationships with Physicochemical Properties to Different Aged Coastal Reclamation Areas, Eastern China .....                                                              | XIE Xue-feng, PU Li-jie, WANG Qi-qi, <i>et al.</i> ( 1404 )           |
| Distribution, Sources, and Ecological Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Soils of the Central and Eastern Areas of the Qinghai-Tibetan Plateau .....                                          | ZHOU Wen-wen, LI Jun, HU Jian, <i>et al.</i> ( 1413 )                 |
| Source Apportionment of Heavy Metals in Farmland Soils Around Mining Area Based on UNMIX Model .....                                                                                                                     | LU Xin, HU Wen-you, HUANG Biao, <i>et al.</i> ( 1421 )                |
| Stabilization Effects of Fe-Mn Binary Oxide on Arsenic and Heavy Metal Co-contaminated Soils Under Different pH Conditions .....                                                                                         | FEI Yang, YAN Xiu-lan, LI Yong-hua ( 1430 )                           |
| Concentration and Distribution of Novel Brominated Flame Retardants in Human Serum from Three Chinese Cities .....                                                                                                       | WANG Qing-hua, YUAN Hao-dong, JIN Jun, <i>et al.</i> ( 1438 )         |