

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2020

Vol.41 No.1

第41卷 第1期

目次

近20年来中国PM _{2.5} 污染演变的时空过程	时燕, 刘瑞梅, 罗毅, 杨昆 (1)
2007~2016年上海颗粒物浓度特征与气候背景异同分析	郑庆峰, 史军, 谈建国, 段玉森, 林燕芬, 徐卫忠 (14)
夏季大气PM _{2.5} 中元素特征及源解析:以华中地区平顶山-随州-武汉为例	刘威杰, 石明明, 程敏, 黎莹, 朱戈昊, 邢新丽, 孔少飞, 张家泉, 祁士华 (23)
呼包鄂地区冬季、夏季PM _{2.5} 污染特征	李伊明, 刘佳媛, 史国良, 皇甫延琦, 张昕, 杨奕, 冯银厂 (31)
2019年元旦前后石家庄市重污染过程PM _{2.5} 污染特征及来源解析	周静博, 段青春, 王建国, 杨鹏, 刘煥武, 李梅, 靳伟 (39)
基于模型模拟的成都市PM _{2.5} 污染来源解析	许艳玲, 易爱华, 薛文博 (50)
北京市PM _{2.5} 中砷污染特征	石绍萱, 杨艳蓉, 秦娟娟, 周雪明, 段青春, 谭吉华, 陈荣志 (57)
夏秋季宁波市气态元素汞(GEM)污染特征及潜在源区贡献分析	易辉, 林佳梅, 蔡秋亮, 王克强, 陈进生, 佟磊, 李建荣, 肖航 (65)
安阳市大气PM _{2.5} 中水溶性离子季节特征及来源解析	孙有昌, 姜楠, 王申博, 段时光, 张瑞芹 (75)
新乡市夏冬季节PM _{2.5} 稳定碳同位素特征分析	闫广轩, 宋鑫, 张靖雯, 张朴真, 王力鹏, 张佳羽, 杨争, 曹治国, 樊静, 王跃思, 刘子锐 (82)
基于颗粒物化学组分粒径分布特征的源解析方法构建与评估	梁永莉, 田瑛泽, 刘童, 冯银厂 (90)
超低排放改造后燃煤电厂细颗粒物排放特征	王润芳, 马大卫, 姜少毅, 朱仁斌, 何军, 张本耀 (98)
京津冀地区城市臭氧污染趋势及原因探讨	余益军, 孟晓艳, 王振, 周崑, 于红霞 (106)
安阳市近地面臭氧污染特征及气象影响因素分析	杨健, 尹沙沙, 于世杰, 王丽娟, 张瑞芹, 郝建尤, 苏方成, 齐艳杰 (115)
长江三角洲2017年机动车IVOCs排放清单构建及其对SOA的生成影响	王倩, 黄凌, 王杨君, 殷司佳, 张琪, 易鑫, 李莉 (125)
华东典型城市非道路移动机械排气烟度	鲁君, 胡馨遥, 杨强, 唐伟, 夏阳, 井宝莉, 陈昀, 黄成 (133)
国内外储油库VOCs排放现状与标准分析	胡玮, 任碧琪, 黄玉虎, 秦建平, 卞吉玮, 吴清柱 (139)
四乙基愈创木酚液相·OH氧化SOA产率及特征分析:初始浓度的影响	庄雨, 陈彦彤, 李旭东, 马帅帅, 赵竹子, 叶招莲, 盖鑫磊 (146)
乌鞘岭南、北坡降水稳定同位素特征及水汽来源对比	徐秀婷, 贾文雄, 朱国锋, 马兴刚, 张显, 袁瑞丰, 张志远, 石阳 (155)
长江源多年冻土区地下水氢氧稳定同位素特征及其影响因素	汪少勇, 何晓波, 丁永建, 常福宣, 吴锦奎, 胡召富, 王利辉, 杨贵森, 邓明珊 (166)
巴尔喀什湖流域水化学和同位素空间分布及环境特征	沈贝贝, 吴敬禄, 吉力力·阿不都外力, A. S. Saparov, Gulnura Isanova (173)
城市湖泊水环境整治对改善水质的影响:以蠡湖近30年水质变化为例	田伟, 杨周生, 邵克强, 潘辉, 胡洋, 白承荣, 姜星宇, 高光, 汤祥明 (183)
典型药物及个人护理品在黄东海海域水体中的检测、分布规律及其风险评估	陈贤, 张彩杰, 杨桂朋, 张婧, 刘梦 (194)
长江南京段水源水中有机磷酸酯的污染特征与风险评估	李栋, 张圣虎, 张芹, 王博, 卜元卿, 赵欣, 李辉, 宋宁慧, 郭瑞昕 (205)
雄安新区-白洋淀冬季冰封期水体溶解性有机物的空间分布、光谱特征及来源解析	周石磊, 孙悦, 张艺冉, 蒋永丰, 尹璐, 黄廷林, 李再兴, 罗晓, 战江, 王函 (213)
白洋淀表层沉积物元素的空间特征、风险评价及来源分析	汪敬忠, 刘卓, 魏浩, 吴玉会, 占水娥, 朱迟, 张益森 (224)
松花江表层沉积物PAEs分布特征及生态风险评价	王欢, 杨永哲, 王海燕, 董伟丰, 闫国凯, 常洋, 李泽文, 赵远哲, 凌宇 (232)
鄱阳湖湖口-长江段沉积物中微塑料与重金属污染物的赋存关系	李文华, 简敏菲, 刘淑丽, 江玉梅, 邓艳彬, 朱琳 (242)
臭氧对生物活性炭中微生物及出水消毒副产物的影响	刘宝明, 王夕希, 张晓夏, 顾艳芳, 李雨平, 阮文权, 缪恒峰, 潘杨 (253)
兰州市西固区儿童饮水重金属暴露与健康风险精细化评估	陈月芳, 孙善伟, 段小丽, 许锦荣, 王娟, 康艺瑾, 梁为纲, 曹素珍 (262)
镁铁层状双金属氢氧化物对磷酸盐的吸附作用及对内源磷释放的控制效果及机制	吴俊麟, 林建伟, 詹艳慧, 程永前, 柏晓云, 辛慧敏, 常明玥 (273)
一硫代磷酸盐在介质上的吸附特征及机制	廖丹雪, 单慧媚, 彭三曦, 潘敖然, 黄健, 陈辉, 赵超然 (284)
酸碱复合改性海泡石亚结构特征及其对Cd(II)吸附性能	谢厦, 徐应明, 闫翠侠, 罗文文, 孙约兵 (293)
脱氮菌剂在低溶解性黑臭水体中氮代谢特征	赵志瑞, 刘硕, 李铎, 李海萍, 李方红, 张佳瑶, 白志辉 (304)
宏基因组方法分析医药化工废水厂中抗生素耐药菌及耐药基因	陈红玲, 张兴桃, 王晴, 姚沛琳 (313)
淀粉废水处理系统中活性污泥的微生物群落结构及多样性分析	赵婷婷, 乔凯, 王蕾, 张伟, 竺建荣, 唐一, 胡滨, 王香莲, 杨静, 景在涛 (321)
基于SBR-ABR实现PN-SAD耦合工艺的运行与优化调控	陈重军, 张敏, 姜滢, 郭萌蕾, 谢嘉玮, 谢军祥, 沈耀良 (330)
基于间歇饥饿的SNAD工艺运行	李冬, 刘志诚, 徐贵达, 王玉颖, 张杰 (337)
反硝化-高效部分亚硝化-厌氧氨氧化工艺处理老龄垃圾渗滤液	陈小珍, 汪晓军, Karasuta Chayangkun, 周松伟, 钟中, 陈振国, 陈晓坤 (345)
硝化微颗粒污泥快速培养及其亚硝化功能快速实现	刘文如, 宋家俊, 王建芳, 沈耀良 (353)
高频曝停下曝时间对亚硝化颗粒污泥性能的影响	张杰, 劳会妹, 李冬, 魏子清 (360)
中国东北沈抚地区土壤中PBDEs的残留、来源及风险评价	向鑫鑫, 鲁垠涛, 阮起扬, 赖偲, 孙绍斌, 姚宏, 张战胜 (368)
某焦化场地非均质包气带中多环芳烃(PAHs)来源及垂向分布特征	孟祥帅, 吴萌萌, 陈鸿汉, 岳希, 陶抒远 (377)
北京蔬菜地土壤中抗生素抗性基因与可移动元件的分布特征	张汝凤, 宋渊, 高浩泽, 程首涛, 孙艳梅, 王旭明 (385)
长期施肥和耕作下紫色土坡耕地土壤C、N、P和K化学计量特征	杜映妮, 李天阳, 何丙辉, 贺小容, 付适 (394)
亚热带稻田土壤碳氮磷生态化学计量学特征	宋佳龄, 盛浩, 周萍, 段良霞, 周清, 张杨珠 (403)
宛山荡农田土壤氮迁移过程反硝化与厌氧氨氧化	陈志浩, 覃云斌, 丁帮琛, 胡优优, 陈湜, 李正魁 (412)
秸秆炭化还田对滴灌棉田土壤微生物代谢功能及细菌群落组成的影响	王晶, 马丽娟, 刘泽华, 陆伟, 侯振安 (420)
基于PMF模型的九龙江流域农田土壤重金属来源解析	黄华斌, 林承奇, 胡恭任, 于瑞莲, 郝春莉, 陈枫桦 (430)
塔里木盆地东南缘绿洲区土壤砷空间分布及农作物砷富集特征	陈云飞, 周金龙, 曾妍妍, 王松涛, 杜江岩, 孙英, 顾思博 (438)
广西典型碳酸盐岩区农田土壤-作物系统重金属生物有效性及迁移富集特征	马宏宏, 彭敏, 刘飞, 郭飞, 唐世琪, 刘秀金, 周亚龙, 杨柯, 李括, 杨峥, 成杭新 (449)
不同钝化剂对微碱性土壤镉、镍形态及小麦吸收的影响	张静静, 朱爽阁, 朱利楠, 柳海涛, 杨金康, 化党领 (460)
不同钝化剂对鸡粪堆肥重金属钝化效果及其腐熟度指标的影响	栾润宇, 高珊, 徐应明, 纪艺凝, 闫翠侠, 孙约兵 (469)
黄土丘陵区退耕草地土壤呼吸及其组分对氮磷添加的响应	周俊杰, 陈志飞, 杨全, 赖帅彬, 王智, 徐炳成 (479)
炉渣与生物炭施加对福州平原水稻田温室气体排放的后续影响	蓝兴福, 王晓彤, 周雅心, 金强, 许旭萍, 王维奇 (489)
《环境科学》征订启事(89)	
《环境科学》征稿简则(97)	
信息(303, 329, 344)	

脱氮菌剂在低溶解氧黑臭水体中氮代谢特征

赵志瑞^{1,2,3,4}, 刘硕¹, 李铎¹, 李海萍⁵, 李方红¹, 张佳瑶², 白志辉^{2*}

(1. 河北地质大学水资源与环境学院, 石家庄 050031; 2. 中国科学院生态环境研究中心, 北京 100085; 3. 河北省水资源可持续利用与开发重点实验室, 石家庄 050031; 4. 河北省高校生态环境地质应用技术研发中心, 石家庄 050031; 5. 河北科技大学理学院, 石家庄 050018)

摘要: 研究在低溶解氧浓度下氨化细菌、硝化细菌、反硝化细菌氮代谢能力, 明确不同菌剂脱氮效率和氮转化关系, 为大湾区黑臭水体治理提供理论依据。通过不同菌剂浓度和不同底物浓度, 检测筛选出的氨化细菌 (*Staphylococcus* sp. Ay)、硝化细菌 (*Microbacterium* sp. Xw) 和反硝化细菌 (*Arthrobacter* sp. Fy) 制成的菌剂在污水处理厂排放的水中的氮代谢特征; 然后在低溶解氧条件下, 研究不同 Ay、Xw 和 Fy 菌剂浓度在同浓度黑臭水体中氮代谢变化情况、以及相同菌剂浓度在不同浓度黑臭水体中的氮代谢特征。结果表明: Ay 菌剂细菌浓度增加 3 倍, 氨化效率没有成倍增加, 说明增加氨化细菌浓度不是增加氨化速率的最佳方法; Xw 菌剂对硝态氮浓度变化影响显著, 低菌剂浓度条件下 60 h 硝态氮浓度增加 180%, 高菌剂浓度为 231%, Fy 反硝化效率较高, 在较低浓度下能很快去除硝态氮。总氮浓度的适当提高可以增加 Ay 菌剂的氨化效率, 过高会抑制 Ay 菌剂的氮代谢效率。Xw 菌剂硝态氮的生成率在总氮浓度 25 mg·L⁻¹ 条件下达到最好效果, 浓度提高 3736%; Fy 菌剂对氨氮去除效果不明显。总氮浓度为 25 mg·L⁻¹ 时, Fy 菌剂对硝态氮的去除达到最好效果。得出: 氨化细菌和反硝化细菌原菌剂直接投加, 氮代谢速率较高, 硝化细菌菌剂浓度增加, 可以提高硝态氮生成速率。在一定范围内, 增加底物浓度可以增加菌剂氮代谢效率, 浓度过高将抑制氮代谢效果, 可为大湾区黑臭水体问题的解决提供数据支持。

关键词: 低溶解氧; 黑臭水体; 脱氮菌剂; 氮代谢; 底物浓度

中图分类号: X172 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2020)01-0304-09 DOI: 10.13227/j.hjxx.201906227

Characteristics of Nitrogen Metabolism by Denitrifying Bacterial Agents in Low Dissolved Oxygen Black Odor Water

ZHAO Zhi-rui^{1,2,3,4}, LIU Shuo¹, LI Duo¹, LI Hai-ping⁵, LI Fang-hong¹, ZHANG Jia-yao², BAI Zhi-hui^{2*}

(1. College of Water Resources and Environment, Hebei GEO University, Shijiazhuang 050031, China; 2. Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100085, China; 3. Hebei Province Key Laboratory of Sustainable Use and Development of Water Resources, Shijiazhuang 050031, China; 4. Hebei Ecological and Environmental Geology Research Center, Shijiazhuang 050031, China; 5. School of Sciences, Hebei University of Science and Technology, Shijiazhuang 050018, China)

Abstract: In order to deal with low dissolved oxygen black odor water body of Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area, the nitrogen metabolic capacity of ammoniated bacteria, nitrifying bacteria and denitrifying bacteria under low dissolved oxygen concentration was studied, and the relationship between denitrification efficiency and nitrogen conversion of different bacteria was clarified, which provided theoretical basis for the treatment of black odor water of Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area. Nitrogen conversion characteristics of ammoniated bacteria (*Staphylococcus* sp. Ay), nitrifying bacteria (*Microbacterium* sp. Xw), and denitrifying bacteria (*Arthrobacter* sp. Fy) in simulated wastewater were detected by different concentration of bacteria and different concentration of substrates. The nitrogen metabolism of Ay, Xw and Fy in black odor water at the same concentration under low dissolved oxygen condition and the characteristics of nitrogen metabolism in different concentrations of black odor water were studied. The results showed that the bacterial concentration of Ay bacterium agent increased three times, but the ammoniation efficiency did not multiply. It indicated that increasing the concentration of ammoniated bacterium was not the best way to increase the ammoniation rate. Xw bacteria have a significant effect on the change of nitrate concentration. At 60 h, the nitrate concentration was increased 180% at low bacterial concentration, was 231% at a high bacterial concentration. Fy denitrification efficiency was high, that nitrate nitrogen can be removed quickly at lower concentration. Appropriate increase of total nitrogen concentration can increase the ammoniation efficiency of Ay microbial agent, but too high would inhibit the nitrogen metabolism efficiency of Ay microbial agent. The concentration of nitrate nitrogen of Xw bacterium reagent was increased (3736%) when the total nitrogen was 25 mg·L⁻¹. The Fy microbial agent has no obvious effect on ammonia nitrogen removal. When the total nitrogen concentration was 25 mg·L⁻¹, the removal rate of nitrate by Fy bacterium was the best. Overall, the results showed that the concentration of ammoniated bacteria and denitrifying bacteria could meet the need of nitrogen metabolism, and the nitrifying bacteria could increase the nitrate nitrogen synthesis rate with the increase of the concentration of nitrifying bacteria. In a certain range, increasing the concentration of substrate could increase the efficiency of nitrogen metabolism of bacterial agents, and excessive concentration would inhibit the effect of nitrogen metabolism. The study provides data

收稿日期: 2019-06-30; 修订日期: 2019-08-16

基金项目: 国家水体污染控制与治理科技重大专项(2014ZX07204005); 河北省重点研发计划项目(18273615D); 河北省创新能力提升计划项目(19454209D)

作者简介: 赵志瑞(1975~), 女, 博士后, 副教授, 主要研究方向为水处理及环境微生物, E-mail: zhiruizh@163.com

* 通信作者, E-mail: zhbai@cees.ac.cn

support for the problem of black odor water in Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area.

Key words: low dissolved oxygen; black odorous water body; denitrifying agent; nitrogen metabolism; substrate concentration

2019年2月粤港澳大湾区宣布成立,并明确提出建设粤港澳大湾区要牢固树立和践行绿水青山就是金山银山的理念,实行最严格的生态环境保护制度^[1].随着大湾区部分城市航运业、养殖业的高速发展,区域水质环境污染问题日益严重,水质状况不容乐观^[2].

水体黑臭是水体在有机污染情况下^[3],产生氨气、硫化氢和有机酸等恶臭物质以及铁、锰和硫化物等黑色物质所致^[4,5].黑臭水体由于严重缺氧,水体中大量生物无法生存,水体生态系统遭到破坏,失去自净功能^[6,7].黑臭水体治理方法有物理法、化学法和生物法,生物法中的微生物在生物修复中发挥重要作用^[8].罗家海^[9]在研究珠江广州河段局部水体黑臭时也提出,珠江广州河段溶解氧低,局部水体黑臭的主要原因是水体中氨氮太多,大量消耗水中的溶解氧所致,降低氨氮的含量对提高河水的溶解氧至关重要.其他学者也提出影响水体污染的因素中氮类物质占据重要地位,特别是 NH_4^+-N ,许多水体恶化都和其关系密切^[10,11].2018年李骏飞等^[12]监测广州市石井河监控断面显示,氨氮最高达到 $30.4\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,溶解氧仅为 $0.12\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,其它监控断面显示溶解氧浓度多数小于 $1\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,氨氮浓度大于 $10\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 水体黑臭现象严重.除去黑臭水体中的氮素,需要曝气增加水体中的溶解氧,大功率的曝气补充溶解氧增加了治理费用,如何较少运行费用是黑臭水体长期治理亟需解决的问题^[13].

对于黑臭水体的治理,与物理化学法比较,微生物法因投资少、运行费用低和无二次污染等优点而被广泛用于黑臭水体治理工程中^[14].Sheng等^[15]利用光合微生物菌剂治理山东昌邑的堤河,结果显示在5个月的治理周期中,取得了较好效果, S^{2-} 浓度从 $2.9\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 降为 $0.2\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$.沙昊雷等^[16]在常州市白荡浜黑臭水体生态治理工程中添加微生物底质改良剂以促进底泥中无机硫的矿化进程,在项目运行过程中,水体透明度由 15 cm 提升至 $30\sim 40\text{ cm}$.肖羽堂等^[17]修复广东南海某黑臭河涌,通过向底泥和上覆水体里投加培养、驯化的优势菌种,辅以光合细菌、硝化细菌,上覆水体的水质显著好转,水体黑臭完全消除.张丽等^[18]均匀投加生物促生剂改善河道水质,氮、磷类营养物质得到降解,水体修复效果明显,水体黑臭消除.

通过调查发现,广州市白云区水质污染严重,呈现黑臭现象,其中溶解氧处于 $0.15\sim 2\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 之间,氨氮在 $8\sim 30\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,总氮 $12\sim 35\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,COD $29\sim 373\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ^[12].同样研究珠海市斗门区五福涌等8条河涌黑臭水体呈现同样特点,溶解氧(DO)多数处于 $0.2\sim 2\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,氨氮高于 $15\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ^[19].由此可见,该区域黑臭水体普遍溶解氧浓度较低,氨氮浓度较高.为保证反应正常进行,通过曝气提高溶解氧浓度,溶解氧浓度过低影响硝化速率,溶解氧浓度过高引起资源浪费,研究通过调节曝气泵阀门控制曝气量,溶解氧浓度控制在 $0.8\sim 2\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ^[20].

氨化细菌可将污染水体中的有机氮转化为铵态氮,有氧条件下,硝化细菌将氨氮氧化为亚硝酸盐氮和硝酸盐氮;缺氧条件下,硝酸盐氮或亚硝酸盐在反硝化细菌作用下还原为氮气,实现水体中氮的生物地球化学循环^[21].本研究在低溶解氧黑臭水体中添加实验室筛选的高效氨化细菌、硝化细菌和反硝化细菌制成的菌剂,考察脱氮微生物菌剂在低溶解氧黑臭水体中的脱氮效率,以期为大湾区珠三角地区黑臭水体的治理提供技术支持.

1 材料与方法

1.1 实验材料

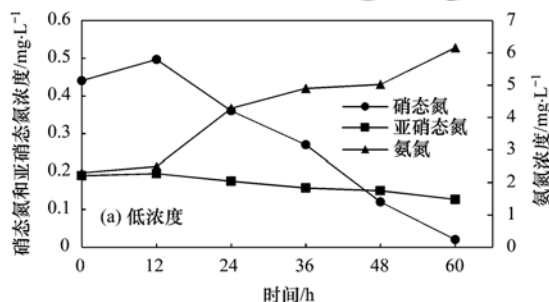
紫外可见分光光度计(WFZ UV-2802),龙尼柯(上海)仪器有限公司;化学需氧量(COD)快速测定仪(5B-3C),兰州连华环保科技有限公司;Hydrolab多参数水质检测仪型号(DS 5X,DS 5);可见分光光度计(22PC06119),上海棱光技术有限公司;人工气候箱(LRH-250-GS)广东省医疗器械厂

测试菌剂添加量实验用水为污水处理厂排放的尾水,氨氮浓度 $2.31\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、硝态氮浓度 $0.44\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、亚硝态氮浓度 $0.189\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$.测试不同总氮浓度下的氨化、硝化菌剂实验用黑臭水取自浔河三环桥下游 100 m ;该河流收纳城市污水处理厂尾水以及沿途一些处理未达标污水,河道内水流速度缓慢,由于季节变化温度升高,水体黑臭严重,总氮浓度实验通过在取回的黑臭水样中加入一定量硫酸铵和蒸馏水调整总氮浓度,设置总氮(TN)分别为 15 、 25 和 $35\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 3个浓度梯度.反硝化用黑臭水体取自桥东污水处理厂上游 200 m 处,该处未接纳城市尾水,水体流速极度缓慢,水体黑臭更加严重,同上方法设置3个浓度梯度,实验温度 $30\sim 35^\circ\text{C}$,与大湾区夏季温度相似,该温

度在水体氮磷及有机物过量条件下,水体易发生富营养化导致黑臭。

实验室采集黑臭水体水样通过富集、筛选获得实验菌株:黄色菌落氨化细菌(*Staphylococcus* sp. Ay)、白色菌落硝化细菌(*Microbacterium* sp. Xw)和黄色菌落反硝化细菌(*Arthrobacter* sp. Fy)的16S rDNA序列可通过NCBI网站上的GenBank数据库查阅,登录号分别为:MN649208、MN649209和MN649210。氨化细菌、硝化细菌和反硝化3种细菌制成的3种菌剂(菌活数)浓度分别为 6.5×10^8 、 6×10^8 和 5×10^8 CFU·mL⁻¹。

原菌剂浓度为低浓度和3倍菌剂浓度为高浓度(3 mL菌剂5 000 r·min⁻¹离心5 min,去掉2 mL上清液,得3倍浓度菌剂);菌剂在污水中的添加量为2%,即低浓度时,Ay、Xw、Fy在污水中的活菌数分别为 1.3×10^7 、 1.2×10^7 和 1.0×10^7 CFU·mL⁻¹,高浓度时,细菌活菌数密度提高3倍。黑臭水体溶解氧浓度控制在0.8~2 mg·L⁻¹。



1.2 实验方法

氨氮测定采用奈氏比色法、亚硝酸盐氮测定采用盐酸α-萘胺比色法、硝酸盐氮和总氮测定采用紫外分光光度法。

利用尾水和模拟废水,通过不同菌群浓度和不同底物浓度,检测筛选出的氨化细菌(Ay)、硝化细菌(Xw)和反硝化细菌(Fy)制成菌剂在尾水和模拟废水中的氮转化特征;然后在低溶解氧条件下,研究Ay、Xw和Fy菌剂浓度不同在同浓度黑臭水体中氮代谢变化情况、以及相同菌剂浓度对不同浓度黑臭水体氮代谢特征。

2 结果与分析

2.1 检测优化筛选菌剂不同菌剂浓度氮代谢结果

2.1.1 Ay菌剂氮代谢结果

研究通过优化筛选获得氨化效率最高的氨化细菌菌株Ay,制成菌剂,其不同浓度的氨化效率与硝化、亚硝化特征如图1所示。

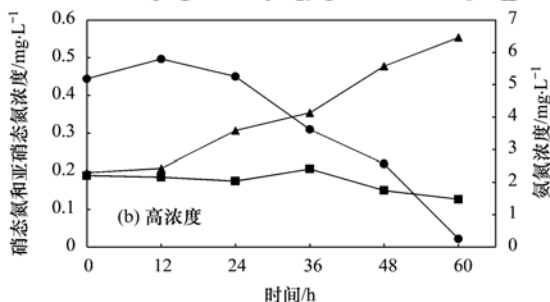


图1 Ay菌剂不同浓度氮代谢

Fig. 1 Ay bacterial agents with different concentrations of nitrogen metabolism

由图1可以看出,Ay菌剂在不同浓度下,对氮代谢趋势基本相同,都是氨氮浓度增加,硝态氮和亚硝态氮浓度降低。图1(a)在含有较低浓度氨化细菌时,其浓度增加168%略低于图1(b)高浓度浓度增加180%,细菌浓度增加3倍,氨氮浓度没有成倍增加,说明在此实验条件下增加氨化细菌浓度不是增加氨化速率的最佳方法。图1显示Ay菌剂对低浓度(0.44 mg·L⁻¹)硝态氮具有较好的去除作用,去除

率达到95%以上,Ay菌剂对亚硝态氮去除效果不明显,增加Ay菌剂浓度去除效率没有明显提高。

2.1.2 Xw菌剂氮代谢结果

高效Xw菌剂不同浓度氮代谢变化特征如图2所示。

由图2可以看出随着时间变化,亚硝态氮和氨氮浓度明显降低,硝态氮浓度明显增加。其中显示低浓度Xw菌剂对氨氮的去除率为54%,高浓度Xw菌

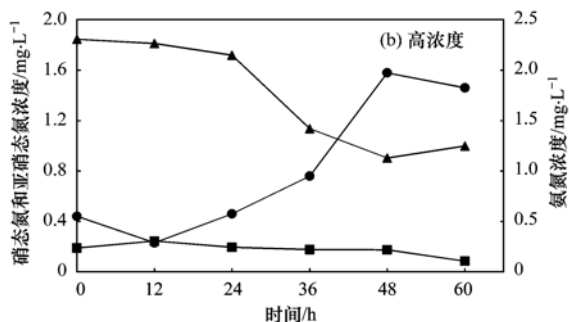
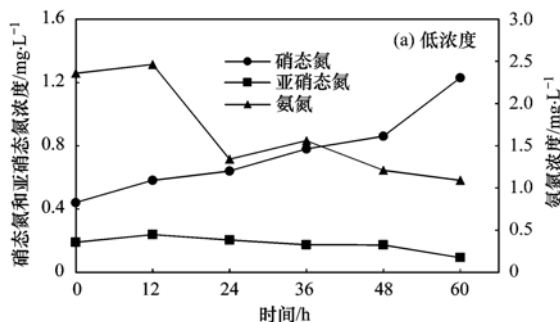


图2 Xw菌剂不同浓度氮代谢

Fig. 2 Xw bacterial agents with different concentrations of nitrogen metabolism

剂氨氮的去除率为 46%, 表明 Xw 菌剂细菌浓度增加降低了氨氮的去除率. 图 2 中亚硝态氮的浓度逐渐降低, 图 2(a) 中低浓度 Xw 菌剂对亚硝态氮的去除率为 51%, 图 2(b) 中高浓度 Xw 菌剂的去除率为 54%, 图 2(a) 与图 2(b) 表明 Xw 菌剂浓度变化对亚硝态氮的去除率变化不明显. 图 2 中显示 Xw 菌剂对硝态氮浓度变化影响显著, 低浓度条件下 60 h 硝态氮浓度增加 180%, 高浓度菌剂为 231%. 在硝化 Xw 菌剂低浓度条件下 60 h 时, 硝态氮浓度呈现上

升趋势, 硝态氮的生成仍然在进行, 在 Xw 高浓度条件下 48 h 后, 浓度变化缓慢. 以上结果表明 Xw 菌剂浓度增加, 开始时可以增加硝态氮的生成速率, 但随着硝态氮浓度的增加, 硝态氮生成速率缓慢.

2.1.3 Fy 菌剂氮代谢结果

研究 Fy 菌剂不同浓度对不同形态氮代谢特征, 结果如图 3 所示.

由图 3 看出随着时间的进行, 硝态氮浓度明显下降, 图 3(a) 中硝态氮去除率为 66%, 图 3(b) 中去

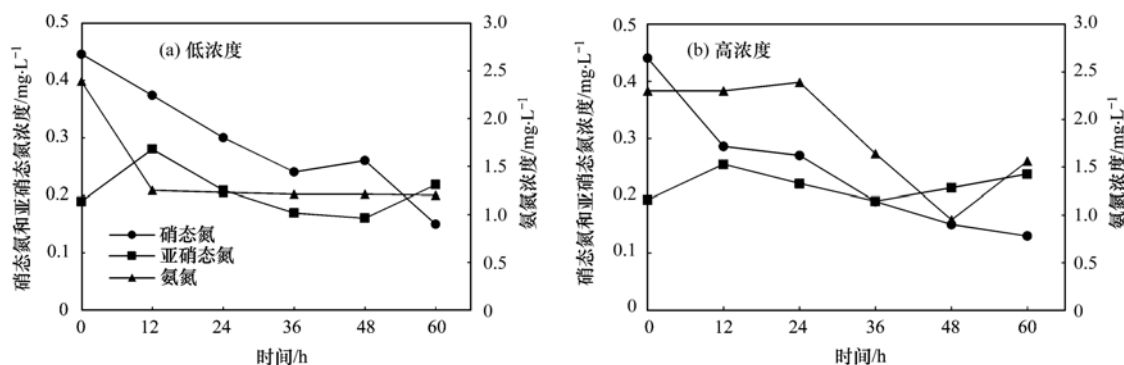


图 3 Fy 菌剂不同浓度氮代谢变化

Fig. 3 Fy bacterial agents with different concentrations of nitrogen metabolism

除率为 70%, Fy 浓度的增加对硝态氮的影响不明显, 表明 Fy 反硝化效率较高, 在较低浓度下能很快去除硝态氮. 图 3 显示亚硝态氮浓度变化不大. 不同 Fy 浓度条件下氨氮去除率不同, 在低浓度条件下去除率为 49%, 在高浓度下为 32%, 其变化趋势随着 Fy 菌剂浓度增加而降低. 由以上结果比较得出, Fy 菌剂亚硝态氮的生成效率较慢, 由此得出在水处理脱氮过程中, 亚硝化过程是脱氮工艺的限速步骤.

以上实验结果得出, 氨化细菌菌剂和反硝化细菌菌剂浓度增加, 对氨化速率和反硝化速率影响不明显, 硝化细菌菌剂浓度变化对硝态氮的生成速率有明显影响, 但提高效率的菌剂浓度增加量过大, 经济性较低. 因此实验采用添加 2% 原菌剂处理黑臭水体, 研究 3 种不同菌剂对不同浓度黑臭水体的氮代谢特征.

2.2 不同菌剂对黑臭水体不同总氮浓度氮代谢结果

2.2.1 Ay 菌剂对黑臭水体不同总氮浓度氮代谢分析

研究 Ay 菌剂对黑臭水体不同总氮浓度氮代谢情况, 结果如图 4, COD 变化如图 5 所示.

由图 4 可以看出, 加入 Ay 菌剂的样品中, 氨氮浓度都呈现上升趋势, 60 h 后, 图 4(a) 中氨氮浓度 $10.1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 浓度增加 62.9%, 低于图 4(b) 中氨氮浓度 $18.4 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 浓度增加 86.4%, 但高于图 4(c) 中浓度增加 40.3%, 表明 Ay 菌剂在总氮浓度为 $25 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时氨化效率最高, 能把水体中的大分子氮高效转化为氨氮, 可以加快后续硝化反应和反硝化反

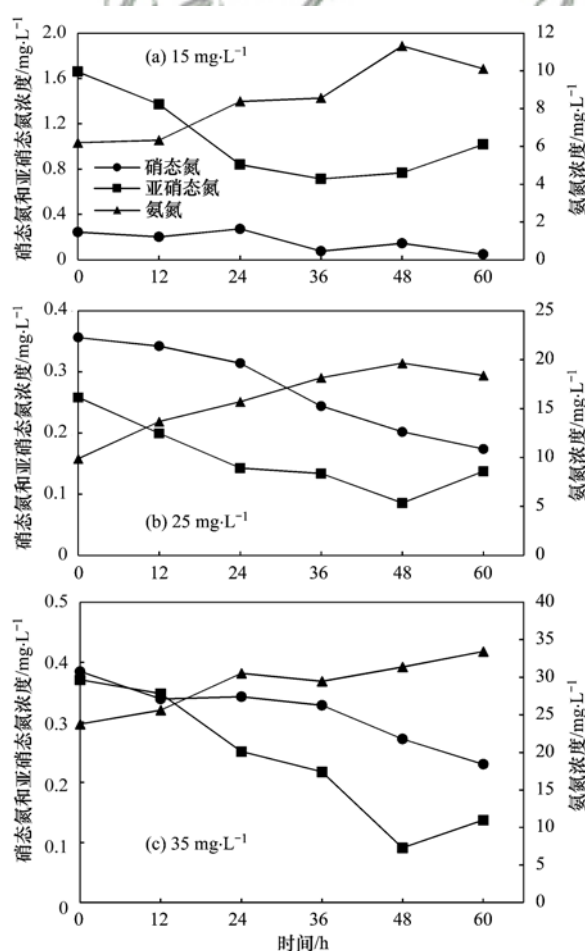


图 4 Ay 菌剂对不同浓度黑臭水体氮代谢变化

Fig. 4 Changes of nitrogen metabolism in different agents by Ay microbial concentrations of black odor water

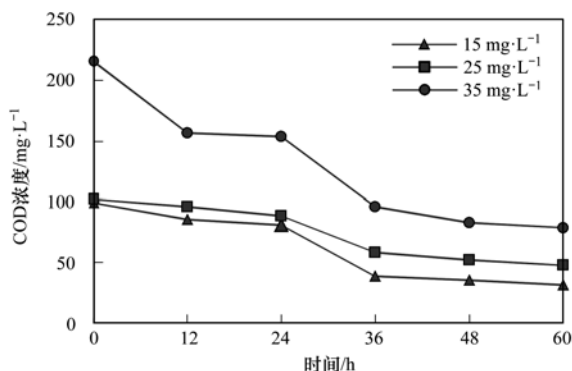


图5 Ay 菌剂对不同浓度黑臭水体 COD 代谢变化

Fig. 5 Changes of COD metabolism in different agents by Ay microbial concentrations of black odor water

应的进行,底物浓度过高抑制了 Ay 菌剂效率.图4显示,在不同底物浓度下,亚硝态氮浓度都呈下降趋势,其中去除率分别为 38.7%、46.9% 和 63%,表明 Ay 菌剂对亚硝态氮去除率随着浓度增加而增加,增加速度缓慢.图4中硝态氮都表现下降趋势,图4(a)中下降趋势最明显,去除率达到 80.5%,随着总氮浓度增加,去除率逐渐降低,图4(b)硝态氮去除率 51.2%、图4(c)硝态氮去除率 40.1%.图5显示总氮浓度不同时 COD 浓度随时间变化都呈现下降趋势,36 h 后下降趋势变缓,仍然呈现下降趋势,总氮浓度不同 COD 去除率变化不大,15、25 和 35 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 这 3 个总氮浓度, COD 去除率分别为 67.7%、52.8% 和 63.2%.以上结果表明在一定浓度范围内,总氮浓度的提高可以增加 Ay 菌剂的氨化效率,总氮浓度过高会抑制 Ay 菌剂的氮氮代谢效率.因此水体发生富营养化情况下不加以控制,持续污染增加总氮浓度,会导致系统中菌群失衡,降低氮转化能力.

2.2.2 Xw 菌剂对不同浓度黑臭水体氮代谢分析

Xw 菌剂对黑臭水体不同总氮浓度氮代谢特征如图6, COD 变化如图7所示.

由图6可以看出,氨氮和亚硝态氮浓度变化总体呈现下降趋势,硝态氮浓度表现为上升趋势.氨氮图6(a)中 60 h 后浓度为 $3.72 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,氨氮去除率为 39.2%,图6(b)中 60 h 时氨氮浓度为 $6.09 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,其去除率为 36%,图6(c)去除率为 41%,表明 Xw 菌剂随总氮浓度的变化,对氨氮去除率变化影响不明显.亚硝态氮去除率随着浓度的增加而增加,图6中 60 h 后亚硝态氮的去除率在 3 个浓度下分别为 41%、65% 和 72%,因此 Xw 菌剂对亚硝态氮去除效果明显,主要由于该菌剂对氨氮去除效果不显著,氨氮氧化为亚硝态氮速度缓慢,系统中亚硝态氮增加量小于减少量,浓度明显减少,亚硝态去除率呈现上升趋势.图6中 Xw 菌剂的硝态氮生成效率

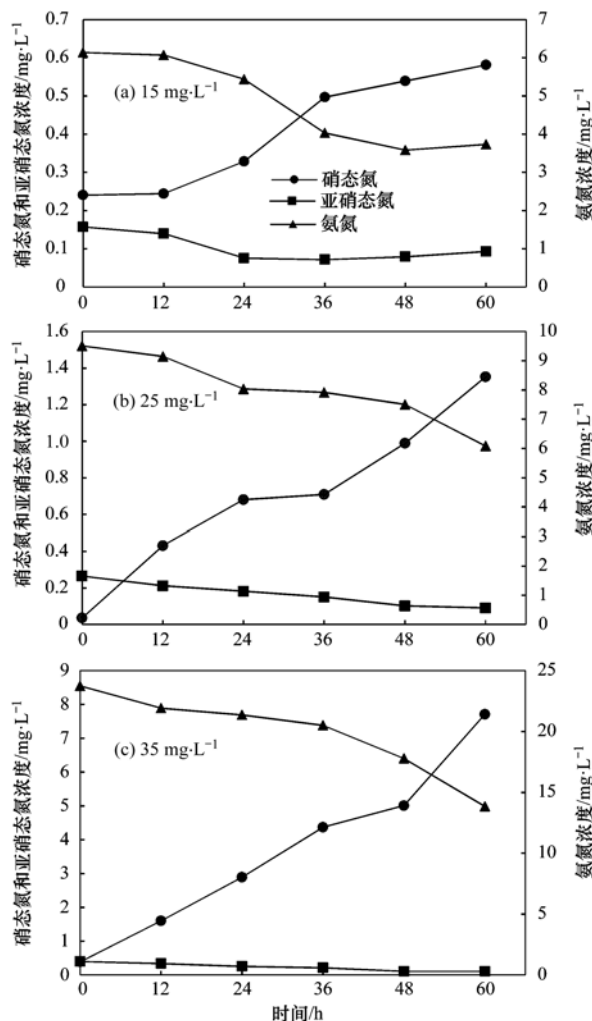


图6 Xw 菌剂对不同浓度黑臭水体氮代谢变化

Fig. 6 Changes of nitrogen metabolism in different agents by Xw microbial concentrations of black odor water

在 3 种样品中效果较明显,60 h 后图6中硝态氮在 3 种实验条件下浓度增加分别为 142%、3 736% 和 1 877%, Xw 菌剂硝态氮的合成率在图6(b)所示条件下达到最好效果,表明 Xw 菌剂的合成效率受底物浓度影响,在一定范围内,增加底物浓度可以增加菌剂效率,浓度过高将抑制氮的代谢效果.如图7所示, COD 去除率和氨化细菌表现出相同特征,浓度整体呈现下降趋势.以上结果表明该菌剂在总氮浓度 $25 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时效果最好.

2.2.3 Fy 菌剂对不同浓度黑臭水体氮代谢分析

Fy 菌剂对不同浓度黑臭水体氮代谢特征如图8, COD 变化如图9所示.

由图8可以看出 Fy 菌剂对氨氮去除效果不明显, Fy 菌剂对亚硝态氮代谢有明显影响,图8中显示亚硝态氮浓度较低,但一直处于累计状态,整体表现出增长趋势,图8中累计浓度增加分别为 461%、397% 和 383%,表明总氮浓度对 Fy 菌剂对亚硝态氮的累计效率有影响,随着浓度的增加,亚硝态氮的累

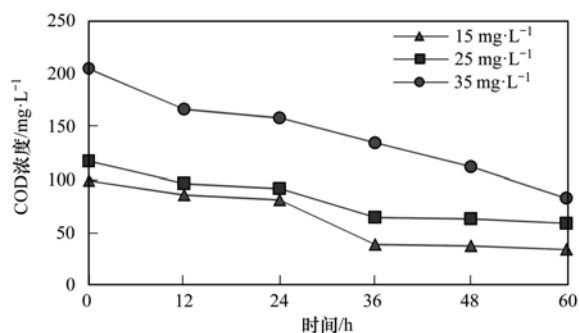


图7 Xw 菌剂对不同浓度黑臭水体 COD 代谢变化

Fig. 7 Changes of COD metabolism in different agents by Xw microbial concentrations of black odor water

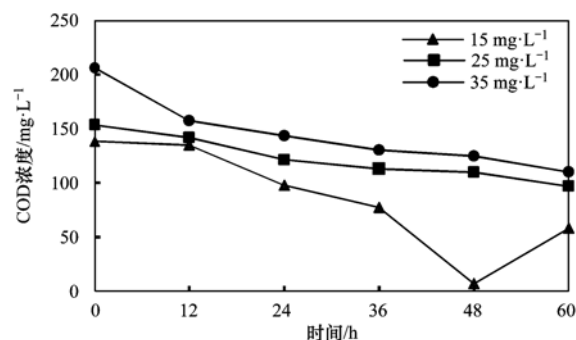


图9 Fy 菌剂对不同浓度黑臭水体 COD 代谢变化

Fig. 9 Changes of COD metabolism in different agents by Fy microbial concentrations of black odor water

计效率逐渐降低。硝态氮浓度下降趋势明显,图8中显示,硝态氮在时间进行到36 h时,去除效率逐渐平缓,去除率在图8中分别为45.6%、64.3%和41.3%,表明在图8(b)条件下,总氮浓度为25 mg·L⁻¹时,Fy 菌剂对硝态氮的去除率达到最好效果。如图9所示,COD 浓度总体呈下降趋势,去除率比氨化细菌和硝化细菌偏低。

3 讨论

微生物菌剂是从自然界筛选高效菌种或利用生物工程处理后的菌株得到具有特殊功能的生物制剂^[22]。王琨等^[23]用微生物和其它生物联合处理模拟黑臭水体,发现微生物菌株能够通过加速黑臭水中有有机物降解,提高溶解氧浓度,大幅度改善水体黑臭状态。何杰财等^[24]修复广东南海某黑臭河涌,通过向水体里投加培养、驯化的优势菌种制成菌剂,水体的水质显著好转,水体黑臭完全消除。用微生物菌剂处理地表黑臭水体,可以加快水体污染物降解和转化,使水体环境质量得到改善^[25,26]。

本研究对 Ay、Xw 和 Fy 菌剂的氮代谢特征进行了探讨,发现对氨氮、硝态氮和亚硝态氮代谢都有明显影响,但每种菌剂的代谢特征不同,其中 Ay 的主要氮代谢方向为有机氮的氨化作用、Xw 主要氮代谢方向为氨氮的硝化作用、Fy 主要硝态氮代谢方向为氮的反硝化作用。早期研究普遍认为,反硝化反应需要在严格厌氧条件下进行。随后人们分离出大量有氧反硝化细菌,主要包括属于产碱杆菌属(*Alcaligenes*)、假单胞菌属(*Pseudomonas*)、芽孢杆菌属(*Bacillus*)和副球菌属(*Paracoccus*)等,得出有氧反硝化细菌是一类以有机碳为能源和电子供体,硝酸盐、亚硝酸盐和氧作为电子受体的好氧或兼性好氧细菌^[27]。如刘晶晶等^[28]筛选的恶臭假单胞菌,能在有氧条件下同时将铵态氮、硝态氮及亚硝态氮转化为气态氮,且在异养反硝化过程中无硝酸盐和亚硝酸积累,可完成生物脱氮全过程。

由于本实验过程中氨氮浓度较高,在硝化过程消耗了碱性物质 NH₄⁺,生成硝酸。浓度较低对系统反应影响不明显,碱度变化不大,pH 维持在6~8之间,不影响反应的进行。同样有研究指出,在同一系统中实现同步硝化反硝化过程,硝化反应的产物可直接成为反硝化反应的底物,避免了硝化过程中

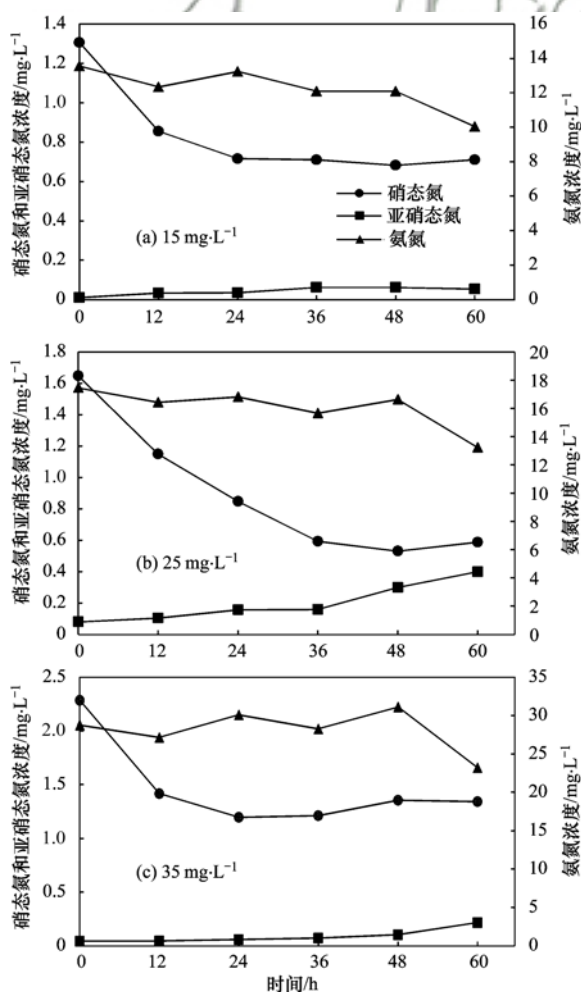


图8 Fy 菌剂对不同浓度黑臭水体氮代谢变化

Fig. 8 Changes of nitrogen metabolism in different agents by Fy microbial concentrations of black odor water

NO_3^- 的积累对硝化反应的抑制,加速了硝化反应的速度;而且,反硝化反应中所释放出的碱度可部分补偿硝化反应所消耗的碱,能使系统中的 pH 值相对稳定^[29]. 氨化细菌菌剂和反硝化细菌菌剂浓度增加,对氨化速率和反硝化速率影响不明显,硝化细菌菌剂浓度变化对硝态氮的合成速率有明显影响,也可以得出氨化细菌和反硝化细菌原菌剂浓度可以满足氮代谢需求,硝化细菌菌剂浓度增加,可以提高硝态氮合成速率. 在菌剂 Ay 处理黑臭水体实验过程中,氨氮浓度增加,而硝态氮和亚硝态氮减少,由于在有机氮转化过程中,体系氨氮浓度同时受有机氮的氨化过程和氨氮的硝化过程控制,氨氮随有机氮的转化而累积,随硝化过程的进行而逐渐降低^[30,31]. 实验结果表明 Ay 菌剂在氮转化过程中,氨化、硝化、反硝化同时进行,但主要以氨化作用为主要代谢方向. Ay 菌剂细菌浓度增加 3 倍,氨化效率没有成倍增加,说明增加氨化细菌浓度不是增加氨化速率的最佳方法;Xw 菌剂对硝态氮浓度变化影响显著,低菌剂浓度条件下 60h 硝态氮积累浓度提高 180%,高菌剂浓度为 231%. Xw 菌剂浓度增加,开始时可以增加硝态氮的生成速率,但随着硝态氮浓度的增加,硝态氮生成速率缓慢,但硝态氮整体浓度较低,虽然生成效率较高,但浓度仍然很低. 能去除亚硝酸盐的细菌种类繁多,作用机理复杂,已有研究表明,亚硝酸盐的去除主要是通过微生物的同化作用、酶降解和酸降解完成^[32]. Fy 菌剂反硝化效率在不同底物浓度条件下变化明显,无论在低浓度总氮还是高浓度总氮都能去除硝态氮, Fy 菌剂亚硝态氮的生成效率较慢,系统中的亚硝态氮一部分由氨氮亚硝化所得^[33],另一部分由硝态氮反硝化所得在反硝化阶段^[34]. 产生这些现象的主要原因是硝化-反硝化耦合作用为反硝化反应的主要机制, NO_3^- -N 还原成 NO_2^- -N 是反硝化的限速步骤,它比 NO_2^- -N 反硝化的速率慢 2 倍^[35,36]. 同样有研究指出反硝化细菌 NO_3^- -N 的反硝化速率缺氧与好氧条件相比基本相同^[37],因此在研究中底物浓度不同条件下,反硝化速率变化不大. 得出在水处理脱氮过程中,反硝化过程是脱氮工艺的限速步骤.

现今大湾区面临的水生态环境问题主要是河涌水体污染严重,虽然局部得到了改善,但黑臭水体治理的道路仍然漫长;同时,湾区内受陆域和海洋动力的影响,污染物的扩散和降解较为困难,增加了治理难度^[38],菌剂的投加符合大湾区黑臭水体的区域和水体特征.

4 结论

(1) 每种菌剂在氮代谢过程中有主代谢方向,

同时进行其它氮代谢反应,其代谢特征存在差异.

(2) 氨化菌剂和反硝化菌剂浓度增加,对氨化速率和反硝化速率影响不明显;硝化菌剂浓度变化对硝态氮的生成速率影响明显,硝化细菌菌剂浓度增加,可以提高硝态氮生成速率.

(3) 在一定范围内,增加底物浓度可以增加菌剂效率,浓度过高将抑制氮的代谢效果;3 种菌剂在总氮浓度 $25 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时, Fy 菌剂对硝态氮的去除达到最好效果.

参考文献:

- [1] 中共中央国务院. 粤港澳大湾区发展规划纲要[EB/OL]. http://www.gov.cn/zhengce/2019-02/18/content_5366593.htm#1, 2019-02-18.
- [2] 陈怡, 何成诚, 万哲慧. 基于综合水质标识指数法的广州港深水航道海域水质评价研究[J]. 环境科学与管理, 2018, **43**(5): 175-179.
Chen Y, He C C, Wan Z H. Water quality assessment for deep-water channel area of Guangzhou port based on comprehensive water quality identification index method [J]. Environmental Science and Management, 2018, **43**(5): 175-179.
- [3] 住建部、环保部发布城市黑臭水体整治工作指南[J]. 城市道桥与防洪, 2016, (1): 3.
- [4] 胡洪营, 孙艳, 席劲璞, 等. 城市黑臭水体治理与水质长效改善保持技术分析[J]. 环境保护, 2015, **43**(13): 24-26.
Hu H Y, Sun Y, Xi J Y, et al. Treatment and water quality improvement technology of black-and-malodorous water body in urban area [J]. Environmental Protection, 2015, **43**(13): 24-26.
- [5] 梁益聪, 胡湛波, 涂玮灵, 等. 碳素纤维生态基技术对城市黑臭水体的修复效果[J]. 环境工程学报, 2015, **9**(2): 603-608.
Liang Y C, Hu Z B, Tu W L, et al. Effectiveness of carbon fiber based biofilm carrier remediation technology on urban black-odorous water [J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2015, **9**(2): 603-608.
- [6] 张杰, 韦道领, 应一梅, 等. 厌氧处理原理及其在低浓度有机废水处理中的应用现状[J]. 环境科学与管理, 2006, **31**(9): 84-87.
Zhang J, Wei D L, Ying Y M, et al. Study advances of low strength organic wastewater treatment at anaerobic conditions [J]. Environmental Science and Management, 2006, **31**(9): 84-87.
- [7] Battin T J. Assessment of fluorescein diacetate hydrolysis as a measure of total esterase activity in natural stream sediment biofilms[J]. Science of the Total Environment, 1997, **198**(1): 51-60.
- [8] 徐熊鲲, 谢翼飞, 陈政阳, 等. 曝气强化微生物功能菌修复黑臭水体[J]. 环境工程学报, 2017, **11**(8): 4559-4565.
Xu X K, Xie Y F, Chen Z Y, et al. Remediation of urban black-odorous river by aeration enhancing functional strains [J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2017, **11**(8): 4559-4565.
- [9] 罗家海. 影响珠江广州河段局部水体黑臭的主要原因剖析[J]. 广州环境科学, 2001, **16**(2): 10-13.
Luo J H. The Major Reason Influencing darkening and smelling of partial water in Guangzhou reach of Pearl River [J]. Guangzhou Environmental Sciences, 2001, **16**(2): 10-13.
- [10] 余茂蕾, 洪国喜, 许海, 等. 湖泊蓝藻水华对连通河道水质的影响[J]. 环境科学, 2019, **40**(2): 603-613.

- Yu M L, Hong G X, Xu H, *et al.* Effects of cyanobacterial blooms in eutrophic lakes on water quality of connected rivers [J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(2): 603-613.
- [11] Townsend D W, McGillicuddy Jr D J, Thomas M A, *et al.* Nutrients and water masses in the Gulf of Maine - Georges Bank region: Variability and importance to blooms of the toxic dinoflagellate *Alexandrium fundyense* [J]. *Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography*, 2014, **103**: 238-263.
- [12] 李骏飞, 周炜峙, 杨磊三. 大型截污渠箱在广州某黑臭水体整治工程中的应用[J]. *中国给水排水*, 2018, **34**(1): 99-102.
- Li J F, Zhou W Z, Yang L S. Application of large sewage interception underdrain in black and stinky water reclamation project [J]. *China Water & Wastewater*, 2018, **34**(1): 99-102.
- [13] 谢飞, 吴俊锋. 城市黑臭河流成因及治理技术研究[J]. *污染防治技术*, 2016, **29**(1): 1-3, 15.
- Xie F, Wu J F. Causes of malodorous black rivers in cities and the study on treatment technologies [J]. *Pollution Control Technology*, 2016, **29**(1): 1-3, 15.
- [14] 宋晓兰, 张洁, 陈渊, 等. 微生物修复技术在苏南某黑臭河道的应用[J]. *环境科学与技术*, 2014, **37**(6N): 166-168.
- Song X L, Zhang J, Chen Y, *et al.* Application of comprehensive techniques of bio-remediation in a black-odor river of a small town, South Jiangsu Province [J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, **37**(6N): 166-168.
- [15] Sheng Y Q, Qu Y X, Ding C F, *et al.* A combined application of different engineering and biological techniques to remediate a heavily polluted river [J]. *Ecological Engineering*, 2013, **57**: 1-7.
- [16] 沙昊雷, 章黎笋, 陈金媛. 常州市白荡浜黑臭水体生态治理与景观修复[J]. *中国给水排水*, 2012, **28**(14): 74-78.
- Sha H L, Zhang L S, Chen J Y. Ecological treatment and landscape restoration of malodorous water in Changzhou Baidangbang [J]. *China Water & Wastewater*, 2012, **28**(14): 74-78.
- [17] 肖羽堂, 王艳杰, 吴玉丽, 等. 好氧-富氧曝气生物处理在黑臭河涌原位修复中的应用[J]. *环境工程学报*, 2017, **11**(5): 2780-2784.
- Xiao Y T, Wang Y J, Wu Y L, *et al.* Application of black-odor river of aerobic-oxygen-enriched aeration biological treatment in-situ remediation [J]. *Chinese Journal of Environmental Engineering*, 2017, **11**(5): 2780-2784.
- [18] 张丽, 李勇. 底泥对投加生物促生剂改善河道水质效果的影响研究[J]. *江苏环境科技*, 2008, **21**(2): 4-7.
- Zhang L, Li Y. Study on sediment impact of the river water quality improvement by injecting bio-energizer [J]. *Jiangsu Environmental Science and Technology*, 2008, **21**(2): 4-7.
- [19] 赵伟雄. 基于现状分析的沿海非建成区黑臭河涌的系统治理对策——以珠海市斗门区为例[J]. *化工管理*, 2018, (23): 246-247.
- [20] 张鹏, 周琪. 低氧条件下同时硝化和反硝化机理初探[J]. *环境污染与防治*, 2004, **26**(1): 11-13.
- Zhang P, Zhou Q. Study on simultaneous nitrification and denitrification under low oxygen concentration [J]. *Environmental Pollution & Control*, 2004, **26**(1): 11-13.
- [21] De Lorenzo V. Systems biology approaches to bioremediation [J]. *Current Opinion in Biotechnology*, 2008, **19**(6): 579-589.
- [22] 肖晶晶, 牛雯娜, 刘洋, 等. 生物强化技术优势及环保菌剂研究应用现状[J]. *环境科学导刊*, 2013, **32**(S1): 1-4.
- Xiao J J, Niu Y N, Liu Y, *et al.* Advantage of bio-augmentation technology and current research and application of microbes for environmental protection [J]. *Environmental Science Survey*, 2013, **32**(S1): 1-4.
- [23] 王琨, 王慧玲, 孙小磊, 等. 微生物与植物在河道模型中的黑臭水治理效果[J]. *环境科学与技术*, 2012, **35**(6): 126-129.
- Wang K, Wang H L, Sun X L, *et al.* Effect of microorganism and plant on cleaning a simulated malodorous river [J]. *Environmental Science & Technology*, 2012, **35**(6): 126-129.
- [24] 何杰财, 黄瑞敏, 张祥明. 应用生物制剂修复黑臭河涌试验研究[J]. *环境保护科学*, 2013, **39**(6): 30-33.
- He J C, Huang R M, Zhang X M. Study on bioremediation of black-odor river with biological preparations [J]. *Environmental Protection Science*, 2013, **39**(6): 30-33.
- [25] 汪明, 武晓飞, 李大鹏, 等. 太湖梅梁湾不同形态磷周年变化规律及藻类响应研究[J]. *环境科学*, 2015, **36**(1): 80-86.
- Wang M, Wu X F, Li D P, *et al.* Annual variation of different phosphorus forms and response of algae growth in Meiliang Bay of Taihu Lake [J]. *Environmental Science*, 2015, **36**(1): 80-86.
- [26] 徐垚, 李大鹏, 韩菲尔, 等. CaO_2 不同投加方式对黑臭河道底泥内源磷释放抑制作用[J]. *环境科学*, 2017, **38**(7): 2836-2842.
- Xu Y, Li D P, Han F E, *et al.* Inhibition of internal phosphorus release in the black-odor channel under different adding methods of CaO_2 [J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(7): 2836-2842.
- [27] 肖晶晶, 郭萍, 霍炜洁, 等. 反硝化微生物在污水脱氮中的研究及应用进展[J]. *环境科学与技术*, 2009, **32**(12): 97-102.
- Xiao J J, Guo P, Huo W J, *et al.* Application of denitrifying microbes to wastewater denitrification [J]. *Environmental Science & Technology*, 2009, **32**(12): 97-102.
- [28] 刘晶晶, 汪苹, 王欢. 一株异养硝化-好氧反硝化菌的脱氮性能研究[J]. *环境科学研究*, 2008, **21**(3): 121-125.
- Liu J J, Wang P, Wang H. Study on denitrification characteristics of a heterotrophic nitrification-aerobic denitrifier [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2008, **21**(3): 121-125.
- [29] 杨麒, 李小明, 曾光明, 等. 同步硝化反硝化机理的研究进展[J]. *微生物学通报*, 2003, **30**(4): 88-91.
- Yang Q, Li X M, Zeng G M, *et al.* Study progress on mechanism for simultaneous nitrification and denitrification [J]. *Microbiology*, 2003, **30**(4): 88-91.
- [30] 张学青, 夏星辉, 杨志峰. 水体颗粒物对有机氮转化的影响[J]. *环境科学*, 2007, **28**(9): 1954-1959.
- Zhang X Q, Xia X H, Yang Z F. Effect of suspended sediment on the transformation of organic nitrogen [J]. *Environmental Science*, 2007, **28**(9): 1954-1959.
- [31] 张学青, 杨志峰, 夏星辉. 黄河水体硝化过程的模拟实验研究[J]. *环境化学*, 2005, **24**(3): 245-249.
- Zhang X Q, Yang Z F, Xia X H. An experimental study on nitrification in natural water of the Yellow River, China [J]. *Environmental Chemistry*, 2005, **24**(3): 245-249.
- [32] Guo L Y, Chen Q K, Fang F, *et al.* Application potential of a newly isolated indigenous aerobic denitrifier for nitrate and ammonium removal of eutrophic lake water [J]. *Bioresource Technology*, 2013, **142**: 45-51.
- [33] 周晓黎, 孙迎雪, 石娜, 等. 反硝化生物滤池生物膜胞外聚合物空间分布特征[J]. *环境工程学报*, 2017, **11**(5): 2836-2844.

- Zhou X L, Sun Y X, Shi N, *et al.* Spatial distribution characteristics of extracellular polymeric substances in a denitrification biological filter [J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2017, **11**(5): 2836-2844.
- [34] 何腾霞, 倪九派, 李振轮, 等. 1 株 *Arthrobacter arilaitensis* 菌的耐冷异养硝化和好氧反硝化作用[J]. 环境科学, 2016, **37**(3): 1082-1088.
- He T X, Ni J P, Li Z L, *et al.* Heterotrophic nitrification and aerobic denitrification of the hypothermia aerobic denitrification bacterium: *Arthrobacter arilaitensis*[J]. Environmental Science, 2016, **37**(3): 1082-1088.
- [35] 杨丽标, 雷坤, 孟伟. 夏季大辽河河口区水体反硝化及其影响因素[J]. 环境科学, 2015, **36**(3): 905-913.
- Yang L B, Lei K, Meng W. Denitrification in water of Daliao River estuary in summer and the effect of environmental factors [J]. Environmental Science, 2015, **36**(3): 905-913.
- [36] 马红波, 宋金明, 吕晓霞, 等. 渤海沉积物中氮的形态及其在循环中的作用[J]. 地球化学, 2003, **32**(1): 48-54.
- Ma H B, Song J M, Lü X X, *et al.* Nitrogen forms and their functions in recycling of the Bohai Sea sediments [J]. Geochimica, 2003, **32**(1): 48-54.
- [37] 牟东阳, 靳鹏飞, 彭永臻, 等. 1 株异养硝化-好氧反硝化细菌 DK1 的分离鉴定及其脱氮特性[J]. 环境科学, 2017, **38**(11): 4763-4773.
- Mu D Y, Jin P F, Peng Y Z, *et al.* Identification and nitrogen removal characteristics of the heterotrophic nitrification and aerobic denitrification bacterial strain DK1 [J]. Environmental Science, 2017, **38**(11): 4763-4773.
- [38] 吴小明, 王凌河, 贺新春, 等. 粤港澳大湾区融合前景下的水利思考[J]. 华北水利水电大学学报(自然科学版), 2018, **39**(4): 11-15.
- Wu X M, Wang L H, He X C, *et al.* Strategic research on water conservancy with fusion prospect of Guangdong-Hong Kong-Macau greater bay area[J]. Journal of North China University of Water Resources and Electric Power (Natural Science Edition), 2018, **39**(4): 11-15.



CONTENTS

Spatiotemporal Variations of PM _{2.5} Pollution Evolution in China in Recent 20 Years	SHI Yan, LIU Rui-mei, LUO Yi, <i>et al.</i> (1)
Characteristics of Aerosol Particulate Concentrations and Their Climate Background in Shanghai During 2007-2016	ZHENG Qing-feng, SHI Jun, TAN Jian-guo, <i>et al.</i> (14)
Characteristics and Sources of Elements in PM _{2.5} During Summer for Three Typical Cities in Pingdingshan-Suizhou-Wuhan, Central China	LIU Wei-jie, SHI Ming-ming, CHENG Cheng, <i>et al.</i> (23)
PM _{2.5} Pollution Characteristics During Winter and Summer in the Hohhot-Baotou-Ordos Region, China	LI Yi-ming, LIU Jia-yuan, SHI Guo-liang, <i>et al.</i> (31)
Analysis of Pollution Characteristics and Sources of PM _{2.5} During Heavy Pollution in Shijiazhuang City Around New Year's Day 2019	ZHOU Jing-bo, DUAN Jing-chun, WANG Jian-guo, <i>et al.</i> (39)
Modeling Studies of Source Contributions to PM _{2.5} in Chengdu, China	XU Yan-ling, YI Ai-hua, XUE Wen-bo (50)
Chemical Characteristics of Arsenic in PM _{2.5} in Beijing	SHI Shao-xuan, YANG Yan-rong, QIN Juan-juan, <i>et al.</i> (57)
Pollution Characteristics and Potential Source Contributions of Gaseous Elemental Mercury (GEM) During Summer and Autumn in Ningbo City	YI Hui, LIN Jia-mei, CAI Qiu-liang, <i>et al.</i> (65)
Seasonal Characteristics and Source Analysis of Water-Soluble Ions in PM _{2.5} of Anyang City	SUN You-chang, JIANG Nan, WANG Shen-bo, <i>et al.</i> (75)
Analysis of Stable Carbon Isotope Characteristics of PM _{2.5} in Summer and Winter Season in Xinxiang City	YAN Guang-xuan, SONG Xin, ZHANG Jing-wen, <i>et al.</i> (82)
Construction and Evaluation on Size Resolved Source Apportionment Methods Based on Particle Size Distribution of Chemical Species	LIANG Yong-li, TIAN Ying-ze, LIU Tong, <i>et al.</i> (90)
Fine Particulate Emission Characteristics of an Ultra-Low Emission Coal-Fired Power Plant	WANG Run-fang, MA Da-wei, JIANG Shao-yi, <i>et al.</i> (98)
Driving Factors of the Significant Increase in Surface Ozone in the Beijing-Tianjin-Hebei Region, China, During 2013-2018	YU Yi-jun, MENG Xiao-yan, WANG Zhen, <i>et al.</i> (106)
Characteristic of Surface Ozone and Meteorological Parameters Analysis in Anyang City	YANG Jian, YIN Sha-sha, YU Shi-jie, <i>et al.</i> (115)
Emission Inventory of Intermediate Volatility Organic Compounds from Vehicles in the Yangtze River Delta in 2017 and the Impact on the Formation Potential of Secondary Organic Aerosols	WANG Qian, HUANG Ling, WANG Yang-jun, <i>et al.</i> (125)
Exhaust Smoke of Non-Road Vehicles in Typical Cities of Eastern China	LU Jun, HU Qing-yao, YANG Qiang, <i>et al.</i> (133)
Emission Status and Standards of Volatile Organic Compounds from Chinese and Foreign Bulk Petroleum Terminals	HU Wei, REN Bi-qi, HUANG Yu-hu, <i>et al.</i> (139)
Secondary Organic Aerosol Mass Yield and Characteristics from 4-ethylguaiaacol Aqueous ·OH Oxidation: Effects of Initial Concentration	ZHUANG Yu, CHEN Yan-tong, LI Xu-dong, <i>et al.</i> (146)
Stable Isotope Characteristics and Vapor Source of Precipitation in the South and North Slopes of Wushaoling Mountain	XU Xiu-ting, JIA Wen-xiong, ZHU Guo-feng, <i>et al.</i> (155)
Characteristics and Influencing Factors of Stable Hydrogen and Oxygen Isotopes in Groundwater in the Permafrost Region of the Source Region of the Yangtze River	WANG Shao-yong, HE Xiao-bo, DING Yong-jian, <i>et al.</i> (166)
Hydrochemical and Isotopic Characteristics of the Lake Balkhash Catchment, Kazakhstan	SHEN Bei-bei, WU Jing-lu, JILILI Abuduwali, <i>et al.</i> (173)
Effect of a Comprehensive Improvement Project on Water Quality in Urban Lakes: A Case Study of Water Quality Variation in Lihu Lake Over the Past 30 Years	TIAN Wei, YANG Zhou-sheng, SHAO Ke-qiang, <i>et al.</i> (183)
Detection Method, Distribution, and Risk Assessment of Pharmaceuticals and Personal Care Products in the Yellow Sea and the East China Sea	CHEN Xian, ZHANG Cai-jie, YANG Gui-peng, <i>et al.</i> (194)
Occurrence and Risk Assessment of Organophosphate Esters in Source Water of the Nanjing Section of the Yangtze River	LI Dong, ZHANG Sheng-hu, ZHANG Qin, <i>et al.</i> (205)
Spatial Distribution, Spectral Characteristics, and Sources Analysis of Dissolved Organic Matter from Baiyangdian Lake in Xiong'an New District During the Winter Freezing Period	ZHOU Shi-lei, SUN Yue, ZHANG Yi-ran, <i>et al.</i> (213)
Spatial Characteristics, Risk Assessment, and Source Analysis of Elements in Surface Sediments from the Baiyangdian Lake	WANG Jing-zhong, LIU Zhao, WEI Hao, <i>et al.</i> (224)
Distribution Characteristics and Ecological Risk Assessment of Phthalate Esters in Surface Sediments of the Songhua River	WANG Huan, YANG Yong-zhe, WANG Hai-yan, <i>et al.</i> (232)
Occurrence Relationship Between Microplastics and Heavy Metals Pollutants in the Estuarine Sediments of Poyang Lake and the Yangtze River	LI Wen-hua, JIAN Min-fei, LIU Shu-li, <i>et al.</i> (242)
Effect of Ozonation on Microorganism in the Biological Activated Carbon and Disinfection By-Products in the Effluent	LIU Bao-ming, WANG Xi-xi, ZHANG Xiao-xia, <i>et al.</i> (253)
Refined Assessment of Exposure and Health Risks of Heavy Metals in Water for the Children in Xigu District, Lanzhou	CHEN Yue-fang, SUN Shan-wei, DUAN Xiao-li, <i>et al.</i> (262)
Adsorption of Phosphate on Mg/Fe Layered Double Hydroxides (Mg/Fe-LDH) and Use of Mg/Fe-LDH as an Amendment for Controlling Phosphorus Release from Sediments	WU Jun-lin, LIN Jian-wei, ZHAN Yan-hui, <i>et al.</i> (273)
Characteristics and Mechanism of Monothioarsenate Adsorption on Sand, Sediment, and Goethite	LIAO Dan-xue, SHAN Hui-mei, PENG San-xi, <i>et al.</i> (284)
Substructure Characteristics of Combined Acid-Base Modified Sepiolite and Its Adsorption for Cd(II)	XIE Sha, XU Ying-ming, YAN Cui-xia, <i>et al.</i> (293)
Characteristics of Nitrogen Metabolism by Denitrifying Bacterial Agents in Low Dissolved Oxygen Black Odor Water	ZHAO Zhi-rui, LIU Shuo, LI Duo, <i>et al.</i> (304)
Metagenomic Analysis of Antibiotic Resistant Bacteria and Resistance Genes in a Pharmaceutical and Chemical Wastewater Treatment Plant	CHEN Hong-ling, ZHANG Xing-tao, WANG Qing, <i>et al.</i> (313)
Measurements of Bacterial Community and Biodiversity from Activated Sludge for a Wastewater Treatment Containing Starch	ZHAO Ting-ting, QIAO Kai, WANG Lei, <i>et al.</i> (321)
Process Control and Operation Optimization of PN-SAD Coupling Process Based on SBR-ABR	CHEN Chong-jun, ZHANG Min, JIANG Ying, <i>et al.</i> (330)
Effects of Intermittent Starvation on the Operation of the SNAD Process	LI Dong, LIU Zhi-cheng, XU Gui-da, <i>et al.</i> (337)
Nitrogen Removal from Mature Landfill Leachate via Denitrification-Partial Nitrification-ANAMMOX Based on a Zeolite Biological Aerated Filter	CHEN Xiao-zhen, WANG Xiao-jun, Karasuta Chayangkun, <i>et al.</i> (345)
Rapid Achievement of Nitrifying Micro-granular Sludge and Its Nitrification Function	LIU Wen-ru, SONG Jia-jun, WANG Jian-fang, <i>et al.</i> (353)
Effect of On/Off Aeration Time Ratio Under High Frequency On/Off Aeration on Performance of Nitrosated Granular Sludge	ZHANG Jie, LAO Hui-mei, LI Dong, <i>et al.</i> (360)
Occurrence, Distribution, Source, and Health Risk Assessment of Polybrominated Diphenyl Ethers in Surface Soil from the Shen-Fu Region, Northeast China	XIANG Xin-xin, LU Yin-tao, RUAN Qi-yang, <i>et al.</i> (368)
Vertical Pollution Characteristics and Sources of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in a Heterogeneous Unsaturated Zone Under a Coking Plant	MENG Xiang-shuai, WU Meng-meng, CHEN Hong-han, <i>et al.</i> (377)
Distribution Characteristics of Antibiotic Resistance Genes and Mobile Genetic Elements in Beijing Vegetable Base Soils	ZHANG Ru-feng, SONG Yuan, GAO Hao-ze, <i>et al.</i> (385)
Stoichiometric Characteristics of Purple Sloping Cropland Under Long-term Fertilization and Cultivation	DU Ying-ni, LI Tian-yang, HE Tian-hui, <i>et al.</i> (394)
Ecological Stoichiometry of Carbon, Nitrogen, and Phosphorus in Subtropical Paddy Soils	SONG Jia-ling, SHENG Hao, ZHOU Ping, <i>et al.</i> (403)
Denitrification and Anaerobic Ammonium Oxidation in Soil Nitrogen Migration Process in a Farmland of Wanshang Lake	CHEN Zhi-hao, QIN Yun-bin, DING Bang-jing, <i>et al.</i> (412)
Effects of Straw Biochar on Soil Microbial Metabolism and Bacterial Community Composition in Drip-irrigated Cotton Field	WANG Jing, MA Li-juan, LONG Ze-hua, <i>et al.</i> (420)
Source Appointment of Heavy Metals in Agricultural Soils of the Jiulong River Basin Based on Positive Matrix Factorization	HUANG Hua-bin, LIN Cheng-qi, HU Gong-ren, <i>et al.</i> (430)
Spatial Distribution of Soil Arsenic and Arsenic Enrichment in Crops in the Oasis Region of the Southeastern Tarim Basin	CHEN Yun-fei, ZHOU Jin-long, ZENG Yan-yan, <i>et al.</i> (438)
Bioavailability, Translocation, and Accumulation Characteristic of Heavy Metals in a Soil-Crop System from a Typical Carbonate Rock Area in Guangxi, China	MA Hong-hong, PENG Min, LIU Fei, <i>et al.</i> (449)
Effects of Different Amendments on Fractions and Uptake by Winter Wheat in Slightly Alkaline Soil Contaminated by Cadmium and Nickel	ZHANG Jing-jing, ZHU Shuang-ge, ZHU Li-nan, <i>et al.</i> (460)
Effect of Different Passivating Agents on the Stabilization of Heavy Metals in Chicken Manure Compost and Its Maturity Evaluating Indexes	LUAN Run-yu, GAO Shan, XU Ying-ming, <i>et al.</i> (469)
Response of Soil Respiration and Its Components to Nitrogen and Phosphorus Addition in Farming-Withdrawn Grassland in the Semiarid Loess Hilly-Gully Region	ZHOU Jun-jie, CHEN Zhi-fei, YANG Quan, <i>et al.</i> (479)
Subsequent Effects of Slag and Biochar Application on Greenhouse Gas Emissions from Paddy Fields in the Fuzhou Plain	LAN Xing-fu, WANG Xiao-tong, ZHOU Ya-xin, <i>et al.</i> (489)