

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用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)
脱氮菌剂在低溶解氧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, 陈叔桦 (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)	

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^{1,2}, 汪晓军^{1,2*}, Karasuta Chayangkun^{1,2}, 周松伟^{1,2}, 钟中^{1,2}, 陈振国^{3,4}, 陈晓坤^{1,2}

(1. 华南理工大学环境与能源学院, 广州 510006; 2. 工业聚集区污染控制与生态修复教育部重点实验室, 广州 510006; 3. 华南理工大学化学与化工学院, 广州 510665; 4. 佛山市化尔铵生物科技有限公司, 佛山 528300)

摘要: 采用反硝化-沸石曝气生物滤池(ZBAF)部分亚硝化-厌氧氨氧化组合工艺处理老龄垃圾渗滤液, 探究ZBAF部分亚硝化特性以及组合工艺的脱氮除碳性能。结果表明, 通过游离氨(FA)对亚硝酸盐氧化菌(NO_B)的选择性抑制, ZBAF可以实现老龄垃圾渗滤液稳定高效部分亚硝化, 平均亚硝氮积累率(NAR)为93.8%, 亚硝氮产率(NPR)最高达1.659 kg·(m³·d)⁻¹; 在进水中投加葡萄糖700 mg·L⁻¹后, 当回流比为2.0, HRT为2.2 d时, 由于反硝化与厌氧氨氧化的协同作用, 组合工艺脱氮效果最佳, 平均氨氮去除率(ARE)、总氮去除率(NRE)和总氮去除负荷(NRR)分别达97.2%、90.0%和0.585 kg·(m³·d)⁻¹, 平均COD去除率为45.3%, 其中厌氧氨氧化平均NRR_{ANA}为1.060 kg·(m³·d)⁻¹, 最高达1.268 kg·(m³·d)⁻¹。利用高通量测序技术分析各装置中的微生物群落结构。结果显示, 反硝化细菌(*Paracoccus*和*Comamonas*)、氨氧化细菌(AOB)(*Nitrosomonas*)和厌氧氨氧化菌(*Candidatus Kuenenia*和*Candidatus Anammoxoglobus*)分别为反硝化、ZBAF和厌氧氨氧化装置中的优势菌, 这与组合工艺稳定的脱氮性能相吻合。

关键词: 老龄垃圾渗滤液; 前置反硝化; 部分亚硝化; 厌氧氨氧化(ANAMMOX); 沸石曝气生物滤池

中图分类号: X703.1 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2020)01-0345-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.201906165

Nitrogen Removal from Mature Landfill Leachate via Denitrification-Partial Nitritation-ANAMMOX Based on a Zeolite Biological Aerated Filter

CHEN Xiao-zhen^{1,2}, WANG Xiao-jun^{1,2*}, Karasuta Chayangkun^{1,2}, ZHOU Song-wei^{1,2}, ZHONG Zhong^{1,2}, CHEN Zhen-guo^{3,4}, CHEN Xiao-kun^{1,2}

(1. School of Environment and Energy, South China University of Technology, Guangzhou 510006, China; 2. Key Laboratory of Pollution Control and Ecosystem Restoration in Industry Cluster, Ministry of Education, Guangzhou 510006, China; 3. School of Chemistry and Chemical Engineering, South China University of Technology, Guangzhou 510665, China; 4. Hua An Biotech Co., Ltd., Foshan 528300, China)

Abstract: A combined process of denitrification-partial nitritation-ANAMMOX based on a zeolite biological aerated filter (ZBAF) was applied to treat mature landfill leachate. We investigate the partial nitritation characteristics of the ZBAF and the nitrogen removal performance as well as the carbon removal performance of the combined process. Results showed that, based on the selective inhibition of nitrite oxidizing bacteria (NO_B) by free ammonia (FA), the ZBAF could successfully achieve stable and efficient partial nitrification of mature landfill leachate, with an average nitrite accumulation rate (NAR) of 93.8% and a maximum nitrite production rate (NPR) of 1.659 kg·(m³·d)⁻¹. After adding 700 mg·L⁻¹ glucose to the influent, due to the synergistic effect of denitrification and anammoxidation, the combined process achieved its best nitrogen removal performance at a reflux ratio of 2.0 and hydraulic retention time (HRT) of 2.2 days. The average ammonia removal efficiency (ARE), total nitrogen removal efficiency (NRE), total nitrogen removal loading rate (NRR), and average chemical oxygen demand (COD) removal efficiency were 97.2%, 90.0%, 0.585 kg·(m³·d)⁻¹, and 45.3%, respectively. Furthermore, the NRR of the anaerobic ammonium oxidation (ANAMMOX) process (NRR_{ANA}) reached 1.268 kg·(m³·d)⁻¹. High-throughput sequencing technology was used to analyze the microbial community structure in each device. Results showed that denitrifiers (*Paracoccus* and *Comamonas*), ammonia-oxidizing bacteria (AOB) (*Nitrosomonas*), and ANAMMOX bacteria (*Candidatus Kuenenia* and *Candidatus Anammoxoglobus*) were the dominant bacteria in the UASB, ZBAF, and ANAMMOX reactor, respectively, which corresponded to the stable nitrogen removal performance of the combined process.

Key words: mature landfill leachate; pre-denitrification; partial nitritation; anaerobic ammonium oxidation (ANAMMOX); zeolite biological aerated filter

老龄垃圾渗滤液是一种典型的高氨氮、低碳氮比废水^[1], 处理难点在于经济高效地脱除氨氮和总氮。生物法是较为经济有效的脱氮方法。目前, 完全硝化-反硝化是最常见的生物脱氮方法^[2], 但其曝气能耗高、碳源投加量大且污泥产量大, 工艺运营成

收稿日期: 2019-06-21; 修订日期: 2019-08-19

基金项目: 2017年广东省应用型科技研发及重大科技成果转化专项(2017B020236004)

作者简介: 陈小珍(1993~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为废水生物脱氮理论与技术, E-mail: 1061211355@qq.com

* 通信作者, E-mail: cexjwang@scut.edu.cn

本高^[3]. 与完全硝化-反硝化工艺相比,厌氧氨氧化工艺具有无需碳源、曝气能耗低且污泥产量低等优势^[4],而稳定的部分亚硝化是实现厌氧氨氧化脱氮的前提^[5],且出水 NO_2^- -N/ NH_4^+ -N应控制在1.0~1.3^[6].

在高氨氮废水处理中,可以通过游离氨(FA)对亚硝酸盐氧化菌(NO_B)的选择性抑制来实现部分亚硝化^[7, 8]. 然而,随着氨氮被氧化成 NO_x^- -N,FA浓度不断下降,难以实现稳定部分亚硝化^[9]. Yang等^[10]发现在沸石曝气生物滤池(ZBAF)中可通过调控FA对NO_B的抑制来实现高氨氮废水稳定高效的部分亚硝化. 与传统生物滤池不同,在ZBAF中,沸石填料不仅作为生物膜载体,还充当 NH_4^+ -N的吸附材料. 高氨氮废水进入ZBAF后, NH_4^+ -N很快被沸石吸附,部分被吸附的 NH_4^+ -N又被微生物转化成 NO_x^- -N,氨氮的吸附-解吸平衡使ZBAF中沸石表面 NH_4^+ -N浓度基本保持稳定,从而维持FA基本不变. Feng等^[11]的研究也证实,氧化铁红厂的高氨氮废水经两级ZBAF处理后,可获得良好的部分亚硝化效果. 然而,基于ZBAF部分亚硝化耦合厌氧氨氧化工艺处理老龄垃圾渗滤液的研究鲜见报道. 本研究采用ZBAF部分亚硝化-厌氧氨氧化工艺(PN-ANAMMOX)处理老龄垃圾渗滤液,通过调整回流比、曝气量以及水力停留时间(HRT),探究ZBAF处理垃圾渗滤液的部分亚硝化性能以及ANAMMOX的脱氮效果. 此外,为了避免渗滤液中的有机物对PN-ANAMMOX的影响,采用前置反硝化去除渗滤液中可生化COD. 最后通过分析各反应器中的微生物群落结构,进一步验证污染物的去除机制,以期为组合工艺的工程化应用提供理论依据.

1 材料与方法

1.1 实验装置

本实验装置流程如图1所示,各反应器材质均为机玻璃,内径均为10.0 cm. 反硝化反应器为上流式厌氧污泥床(UASB),高径比为15,总体积11.78 L,工作容积8.6 L,装填组合式纤维填料;部分亚硝

化反应器为ZBAF,高径比为15,总体积11.8 L,填料为天然沸石(体积3.9~6.5 L,平均粒径1.0~2.0 mm,密度 $2.64\text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$),DO控制在 $2.0\sim8.0\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,水温为 $(25.0\pm1.0)\text{ }^\circ\text{C}$;厌氧氨氧化反应器高径比为5,总体积4.0 L,装填组合填料,使用带温控加热棒维持反应器内水温为 $(30.0\pm1.0)\text{ }^\circ\text{C}$. 进水泵及回流泵均为蠕动泵.

经过蠕动泵的抽吸,垃圾渗滤液进入UASB底部,UASB出水进入ZBAF后,ZBAF中的AOB将部分 NH_4^+ -N转化为 NO_2^- -N. 此时将ZBAF部分出水回流至UASB,为UASB提供反硝化电子受体,通过反硝化作用去除原液中可生化COD;ZBAF的另一部分出水进入厌氧氨氧化反应器,通过厌氧氨氧化作用实现 NH_4^+ -N和TN同步去除.

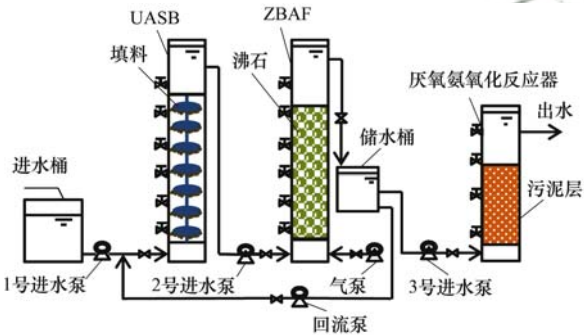


图1 反硝化-ZBAF部分亚硝化-厌氧氨氧化工艺流程示意
Fig. 1 Schematic diagram of the denitrification-
PN-ANAMMOX process

1.2 接种污泥与废水水质

UASB和ZBAF所接种的污泥均为本课题组培养成熟的好氧硝化污泥,MLVSS为 $3\,500\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$. 厌氧氨氧化反应器接种污泥取自本课题组长期稳定运行的厌氧氨氧化反应器,其总氮去除负荷为 $0.7\text{ kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$,污泥呈现砖红色.

启动阶段,各反应器进水为模拟废水, NH_4^+ -N由 NH_4Cl 提供, NO_2^- -N由 NaNO_2 提供,碳源由葡萄糖提供. 本实验阶段所用老龄垃圾渗滤液取自广州市某生活垃圾填埋场. 该填埋场已运营超过20 a,渗滤液产量约 $400\text{ m}^3\cdot\text{d}^{-1}$. 渗滤液水质特征如表1所示.

表1 垃圾渗滤液原水水质

Table 1 Characteristics of the mature landfill leachate

项目	NH_4^+ -N/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	NO_2^- -N/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	NO_3^- -N/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	COD/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	碱度/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	pH
范围	1 000~1 500	0.1~1.0	10.0~30.0	1 600~2 900	6 000~10 000	8.20~8.80

1.3 分析项目及方法

各项指标监测方法参照文献[12]. NH_4^+ -N: 纳氏试剂分光光度法; NO_2^- -N: N-(1-萘基)-乙二胺分光光度法; NO_3^- -N: 紫外分光光度法; 总氮(TN): TN

计为 NH_4^+ -N、 NO_2^- -N与 NO_3^- -N的总和; MLVSS: 重量法; COD: 重铬酸钾滴定法; 碱度: 电位滴定法; pH 测量采用雷磁 pHs-25 型酸度计; DO、温度的测定采用 HACH-HQ30d 主机以及对应探头. 微生物群落结构

分析采用高通量基因测序技术.

氨氮去除率(ARE)、总氮去除率(NRE)、总氮去除负荷(NRR)、亚硝氮积累率(NAR)、亚硝氮产率(NPR)和COD去除率等指标的计算参考文献[13];FA($\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$)和FNA($\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$)的计算参照Anthonisen等^[14]提出的公式.

$$\text{FA} = \frac{17}{14} \times \frac{[\text{NH}_4^+-\text{N}] \times 10^{\text{pH}}}{\exp\left[\frac{6\,334}{273+T}\right] + 10^{\text{pH}}}$$

(1)

$$\text{FNA} = \frac{46}{14} \times \frac{[\text{NO}_2^--\text{N}]}{\exp\left[-\frac{2\,300}{273+T}\right] + 10^{\text{pH}}}$$

(2)

1.4 实验方法

本实验开始前,组合工艺各单元已启动完成并稳定运行,ZBAF的NPR为 $0.622\text{ kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$,UASB和厌氧氨氧化反应器的NRR分别为 $0.907\text{ kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$ 和 $0.371\text{ kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$.

本实验分为3个阶段,如表2所示.阶段I,在无外加碳源的情况下,探究回流比对组合工艺脱氮性能的影响.阶段II保持UASB和ZBAF装置串联运行,投加葡萄糖后通过调试确定最佳投加量($700\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$);厌氧氨氧化反应器则用模拟废水进行恢复.阶段III重新将UASB、ZBAF和厌氧氨氧化反应器串联运行,并向原液中投加葡萄糖 $700\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,然后提升进水流量以提升进水总氮容积负荷,探究组合工艺运行的稳定性和脱氮效能.

表2 组合工艺在不同运行阶段下的运行条件

Table 2 Detailed operational conditions during different phases of the combined process

阶段	天数/d	HRT/h	回流比	葡萄糖投加量/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$
I	1~23	91.0	2.0	0
	24~45	91.0	3.0	0
	46~66	91.0	1.0	0
II	67~74	—	—	0~1 000
III	75~95	85.2	2.0	700
	96~104	78.6	2.0	700
	105~119	63.5	2.0	700
	120~134	53.2	2.0	700

2 结果与讨论

2.1 ZBAF实现老龄垃圾渗滤液部分亚硝化的性能及其机制

在本实验中,既要实现ZBAF稳定高效部分亚硝化,又要控制其出水 $\text{NO}_2^--\text{N}/\text{NH}_4^+-\text{N}$ 值在 $1.0\sim 1.3$ ^[6],以满足厌氧氨氧化的进水要求.如图2(a)所示,在第1~12 d,ZBAF出水 NO_2^--N 浓度稳定于 $348.2\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 左右,出水 $\text{NO}_2^--\text{N}/\text{NH}_4^+-\text{N}$ 保持在 1.0

~ 1.2 .在第13~45 d,出水 NO_2^--N 浓度缓慢升高至 $460.0\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 并保持稳定,是由于ZBAF进水中 NO_2^--N 浓度持续上升,而AOB又不断将进水中的 NH_4^+-N 转化成 NO_2^--N ,因此出水 NO_2^--N 不断累积而升高.第46~66 d,ZBAF进水TN浓度升高,HRT从 7.7 h 升至 21.0 h 后,出水 NO_2^--N 浓度升至 $596.7\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 并保持稳定,可能是因为进水 NH_4^+-N 浓度的增加,AOB的氨氧化速率不断接近其最大比基质消耗速率,使ZBAF亚硝化作用进一步增强^[15].同时,HRT的延长使微生物与基质接触的时间增加,也会使出水 NO_2^--N 浓度升高.此外,图2(a)显示,ZBAF尽管能实现老龄垃圾渗滤液稳定地部分亚硝化作用,但其出水 NO_2^--N 太高, $\text{NO}_2^--\text{N}/\text{NH}_4^+-\text{N}$ 值大于 1.32 ,不利于后续厌氧氨氧化的进行.

杨永愿等指出^[16]:ZBAF出水 NO_2^--N 浓度与HRT呈良好的线性关系.为了控制ZBAF出水 NO_2^--N ,从第67 d开始,将沸石填料体积由 6.5 L 减少至 5.3 L ,以缩短HRT.此时,ZBAF出水 NO_2^--N 浓度明显下降,第75 d时降至 $363.6\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$.但第85~95 d,ZBAF出水 NO_2^--N 浓度回升至约 $400.0\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$.为了控制出水浓度,在第96 d后继续减少沸石填料体积至 3.9 L 后,出水 NO_2^--N 下降至 $365.9\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 并基本保持稳定, $\text{NO}_2^--\text{N}/\text{NH}_4^+-\text{N}\approx 1.0$,基本符合厌氧氨氧化的进水水质要求.从图2(b)中还可发现,在第75~134 d,由于ZBAF的HRT缩短,NLR从 $(2.2\pm 0.4)\text{ kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$ 上升至 $(4.5\pm 0.5)\text{ kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$,NPR也随之缓慢升高并达到最高值 $1.659\text{ kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$,表明ZBAF内AOB具备了一定的抗负荷冲击能力.另外,整个实验阶段,ZBAF出水 NO_3^--N 始终低于 $40.0\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,NAR平均值为 93.8% 、最高值为 99.8% ,表明在ZBAF中NOB活性受到抑制,而AOB则不断富集,从而实现了老龄垃圾渗滤液稳定高效部分亚硝化.

有研究表明,通过控制温度、DO、FA或FNA等因素,均可实现亚硝化^[17].在本实验中,ZBAF内水温控制为 $(25.0\pm 1.0)^\circ\text{C}$,AOB和NOB的比增长速率在此温度条件下无明显差异;有研究表明,AOB和NOB的氧饱和常数分别为 $0.3\sim 0.5\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $0.7\sim 1.8\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ^[18],即AOB和NOB的生长竞争优势只有在低DO条件下才有差别,而本实验ZBAF的DO始终高于 $2.0\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,故DO不是实现部分亚硝化的关键因素. Anthonisen等指出^[14],FA对AOB和NOB的抑制范围分别为 $10.0\sim 150.0\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $0.1\sim 1.0\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,FNA在 $0.42\sim 1.72\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 范围通常会抑制AOB活性,而更低浓度的

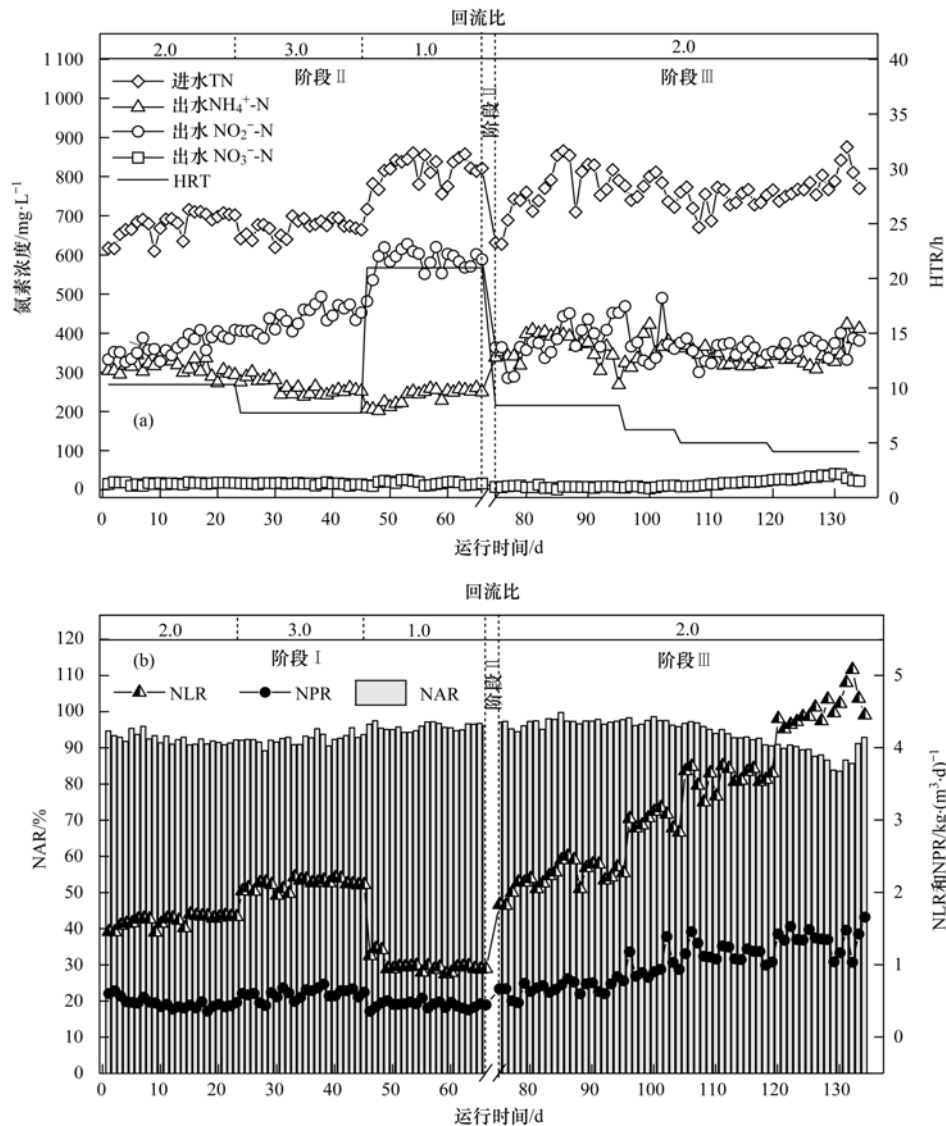


图2 ZBAF在不同阶段处理垃圾渗滤液的部分亚硝化效果

Fig. 2 Partial nitritation performance of ZBAF under different phases

FNA($0.011 \sim 0.07 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$)即可抑制 NOB. 由图3可知,出水 FNA 始终小于 $0.001 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,不处于抑制 AOB 与 NOB 的浓度范围内;而阶段 I 和阶段 III 的 FA 分别处于 $0.2 \sim 29.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $3.2 \sim 104.2 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 范围内,高于其抑制 NOB 的浓度范围,实现了对 NOB 的抑制. 综上所述,在 ZBAF 中,FA 对 NOB 的选择性抑制是实现稳定部分亚硝化的关键因素.

2.2 组合工艺运行效果

2.2.1 组合工艺脱氮性能

组合工艺脱氮效果如图4所示. 回流比为2.0时,出水 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 和 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 在1~11 d内稳定低于 $35.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $70.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,平均 ARE、NRE 以及 NRR 分别为 97.8%、89.5% 和 $0.282 \text{ kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$,组合工艺脱氮效果良好. 从12 d开始,出水 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 浓度开始上升,回流比调至3.0后迅

速升至 $196.3 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 并保持稳定,NRE 和 NRR 分别降至 70.0% 和 $0.212 \text{ kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$. 出水 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 浓度升高是由于老龄垃圾渗滤液中可生化 COD 不足,回流至 UASB 的 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 不能通过反硝化作用完全去除而出现剩余和累积,使 ZBAF 出水 $\text{NO}_2^- - \text{N} / \text{NH}_4^+ - \text{N} > 1.32$, $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 过量影响了后续厌氧氨氧化脱氮效果,最终导致系统 NRR 下降. 为避免 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 的持续积累,将回流比下调至1.0. 另外,为了控制进入厌氧氨氧化反应器的 $\text{NO}_2^- - \text{N} / \text{NH}_4^+ - \text{N}$ 于1.0左右,将 UASB 出水与 ZBAF 出水按1:3混合作为厌氧氨氧化反应器的进水,可以发现出水 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 迅速降至 $40.6 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$. 但第51 d后出水 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 和 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 均持续上升,第66 d时分别达 $295.1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $260.1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,ARE、NRE 和 NRR 分别下降至 71.9%、45.7% 和 $0.129 \text{ kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$. 原因可能是此时厌氧氨氧化进水氨氮和亚硝氮浓度均较高

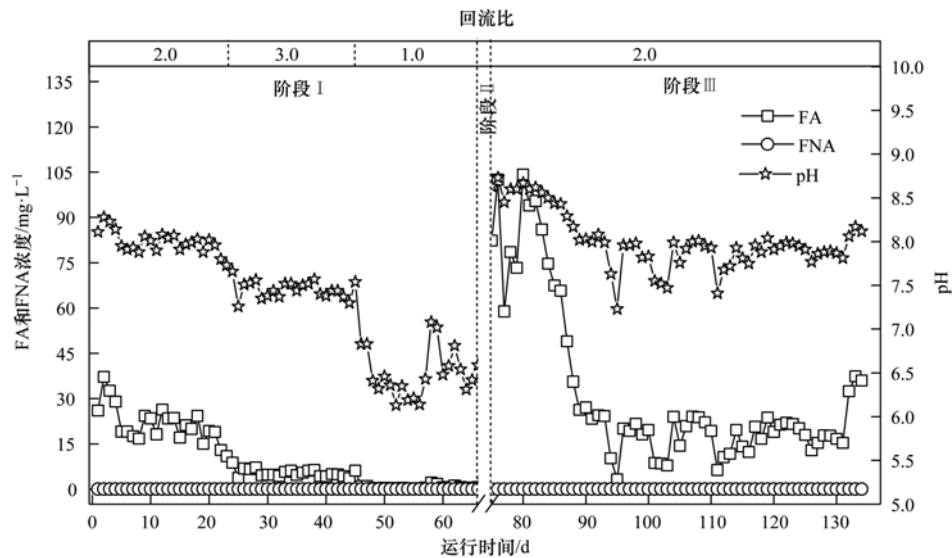


图3 不同阶段下 ZBAF 出水 pH 值、FA 和 FNA 浓度

Fig. 3 Effluent FA, FNA concentrations, and pH value of ZBAF under different phases

($\text{TN} > 800.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, $\text{NO}_2^- \text{-N} > 400 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$), 部分抑制了厌氧氨氧化菌的活性^[19, 20].

由阶段I运行数据可知,在低碳氮比的情况下,由于渗滤液中可生化有机物含量低,反硝化对总氮的去除贡献小,组合工艺的脱氮效果较差.在阶段III,向原液中投加了葡萄糖 $700 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,以提升渗滤液的可生化性.如图4所示,投加葡萄糖后,厌氧氨氧化反应器进水 $\text{NO}_2^- \text{-N}/\text{NH}_4^+ \text{-N} \approx 1.0$,组合工艺脱氮效果明显提升,运行稳定后出水 $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 和 $\text{NO}_2^- \text{-N}$ 分别稳定在 $60.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $30.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 以内,平均 AER 和 NRE 可达 96.7%和 89.3%.此外,提升系统的 NLR 后,组合工艺脱氮效果未遭受显著影响,出水 $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 和

$\text{NO}_2^- \text{-N}$ 基本保持稳定,且 NRR 随着 NLR 的提升而增加. HRT 缩短至 2.2 d 时,平均 NLR 为 $0.638 \text{ kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$,此时平均 NRR 和 NRR_{ANA} 分别为 $0.585 \text{ kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$ 和 $1.060 \text{ kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$,最高分别达 $0.617 \text{ kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$ 和 $1.268 \text{ kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$,获得了较高的氮去除速率,表明投加少量碳源来提高渗滤液的可生化性,可以显著提升组合工艺的脱氮效果.在目前的同类研究中(表3),普遍存在的不足是难以同时获得较高的 NRE 和 NRR.本研究通过将 UASB、ZBAF 和 ANAMMOX 反应器串联,通过投加少量葡萄糖提高渗滤液的可生化性,实现了垃圾渗滤液的高效、深度脱氮处理.

表3 近年同类研究成果对比

Table 3 Comparison of similar research results in recent years

工艺类型	进水类型	进水 TN / $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$	NRR_{ANA} / $\text{kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$	NRR / $\text{kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$	NRE /%	文献
SPNAD	老龄垃圾渗滤液	1 375	0.19	0.23	98.7	[21]
SNAD	老龄垃圾渗滤液	2 325	0.114	0.153	99.3	[3]
SNAD	老龄垃圾渗滤液	1 949	0.167	0.218	82.3	[22]
DN-PN-ANAMMOX	老龄垃圾渗滤液	2 200	0.76	—	90	[23]
DN-PN-ANAMMOX	老龄垃圾渗滤液	1 530	1.268	0.585	90	本研究

为了明晰厌氧氨氧化的脱氮过程,对其反应化学计量比进行了分析.图5显示,当进水 $\text{NO}_2^- \text{-N}/\text{NH}_4^+ \text{-N} > 1.32$ 时,实际 $\Delta\text{NO}_2^- \text{-N}/\Delta\text{NH}_4^+ \text{-N}$ (消耗的 $\text{NO}_2^- \text{-N}$ 量与 $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 量的比)略高于理论值 1.32,而 $\Delta\text{NO}_3^- \text{-N}/\Delta\text{NH}_4^+ \text{-N}$ (产生的 $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 量与消耗的 $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 量的比)则与理论值 0.26 相当,可能是少量 $\text{NO}_2^- \text{-N}$ 通过反硝化作用被去除,这与安芳娇等^[24]的研究结果相一致.当 $\text{NO}_2^- \text{-N}/\text{NH}_4^+ \text{-N} < 1.32$ 时,实际 $\Delta\text{NO}_2^- \text{-N}/\Delta\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 和 $\Delta\text{NO}_3^- \text{-N}/\Delta\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 均小于理论

值,与 Zhu 等^[25]关于厌氧氨氧化的研究结果一致.

2.2.2 组合工艺对有机物去除效果

老龄垃圾渗滤液中的有机物多为难生物降解,但少量存在的可生化 COD 也会影响部分亚硝化和厌氧氨氧化系统^[26].为了避免可生化 COD 对 PN-ANAMMOX 的影响,同时充分利用原液中少量可生化 COD 提高总氮的去除率,设置了前置反硝化 UASB 装置.组合工艺去除 COD 效果如图6所示,系统 COD 去除率约为 40.0%~50.0%.值得注意的是

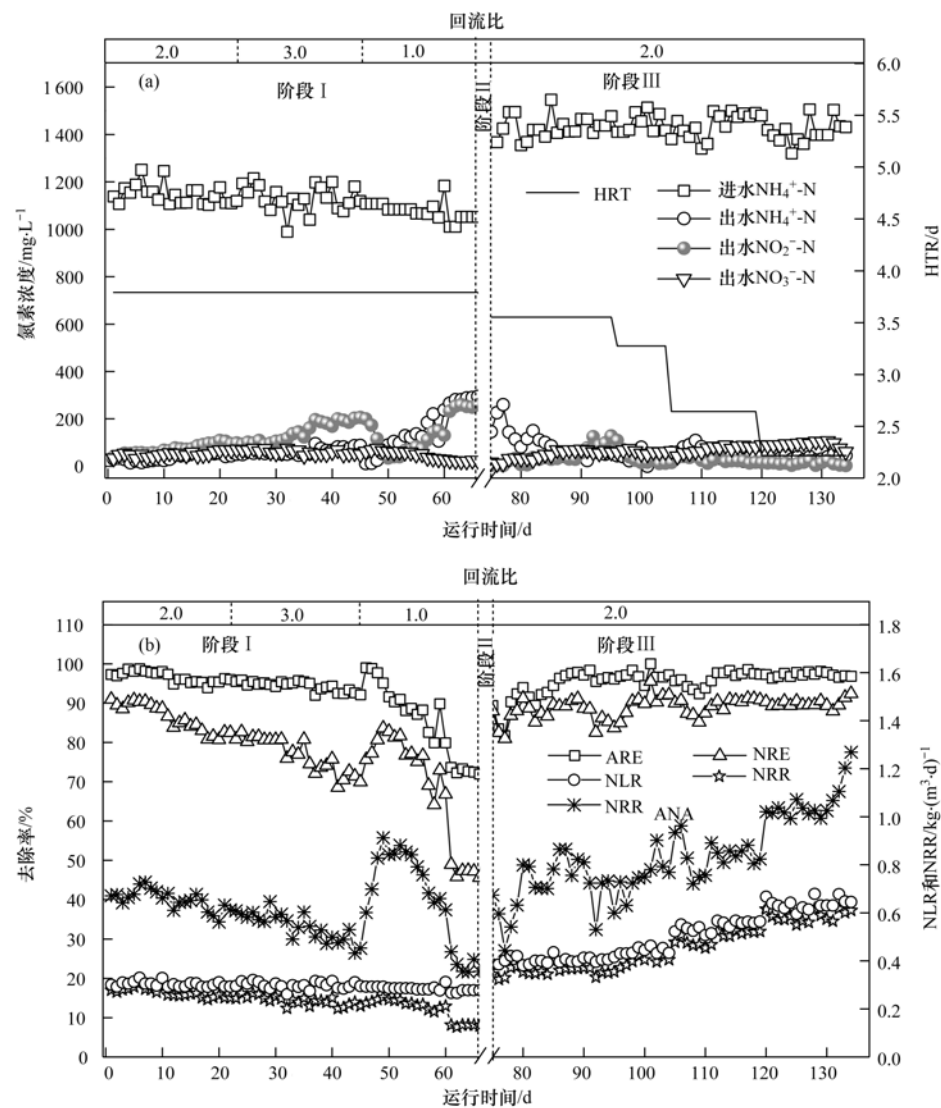


图 4 组合工艺处理老龄垃圾渗滤液的脱氮效果

Fig. 4 Nitrogen removal performance of the denitrification-PN-ANAMMOX process for mature leachate

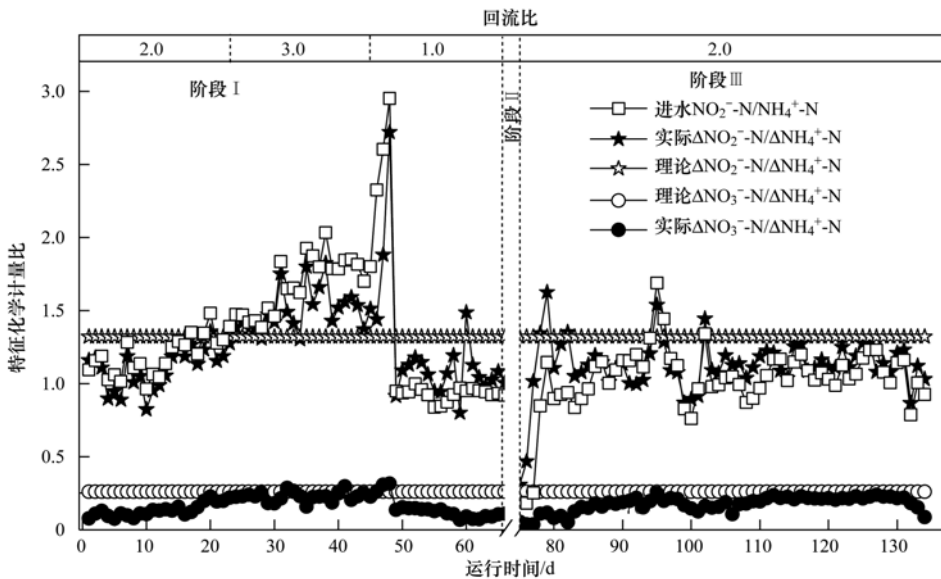


图 5 厌氧氨氧化反应器中厌氧氨氧化反应化学计量特征

Fig. 5 Stoichiometric characteristics of ANAMMOX process

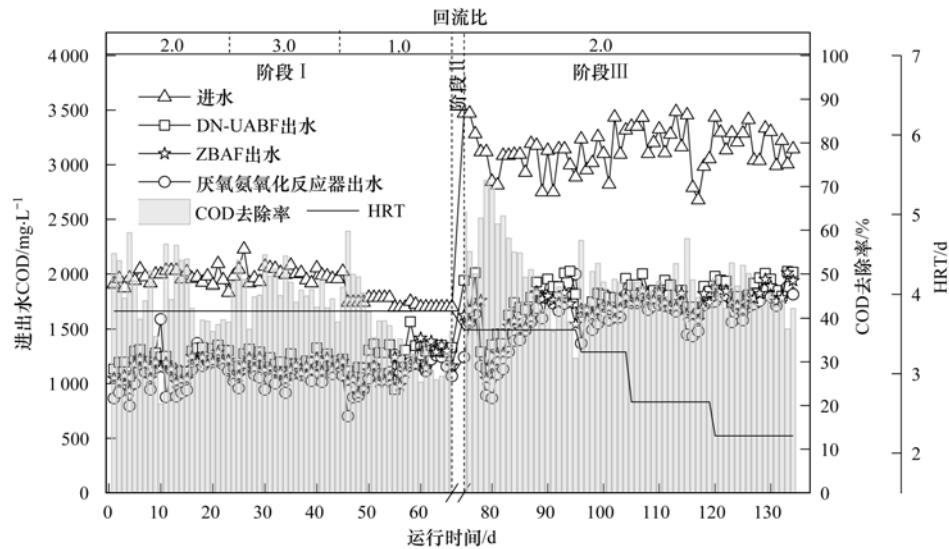


图 6 组合工艺处理老龄垃圾渗滤液去除有机物效果

Fig. 6 COD removal performance of the denitrification-PN-ANAMMOX process for mature leachate

各单元出水 COD 相差不大,说明原液中大部分可生化 COD 及额外投加的葡萄糖在 UASB 内已通过反硝化去除.相应地,由图 2 及图 4 可知,经 UASB 处理后渗滤液中剩余的难生物降解有机物未对 ZBAF 的部分亚硝化性能以及厌氧氨氧化脱氮性能产生不良影响.综上,组合工艺虽未能实现对 COD 的高效脱除,但能将原液中的可生物降解部分有机物充分利用,不但避免了可生化 COD 对后续工艺的影响,还提高了系统的 NRE 和 NRR.

2.3 微生物群落结构分析

为进一步分析各反应器的功能原理,采用高通量测序技术分别对接种污泥 (sludge) 以及运行了 130 d 的 UASB、ZBAF 和厌氧氨氧化反应器中的微生物样品进行分析.表 4 从属水平展示了各样品不

同微生物的相对丰度. UASB 中属于反硝化菌的副球菌属 *Paracoccus* 和丛毛单胞菌属 *Comamonas*^[27] 的相对丰度分别达 9.7% 和 12.0%,反硝化菌属占据了优势,从而使 UASB 具有高效的反硝化作用. ZBAF 中 AOB(亚硝化单胞菌属 *Nitrosomonas*) 的相对丰度最高,为 26.5%,而 NOB 的相对丰度只有 0.1%,表明 AOB 的富集以及 NOB 的淘洗使 ZBAF 实现稳定的部分亚硝化.厌氧氨氧化反应器中的厌氧氨氧化菌 *Candidatus Kuenenia* 和 *Candidatus Anammoxoglobus* 的相对丰度分别为 4.2% 和 6.9%,进一步证明了高效的厌氧氨氧化效果.以上微生物分析结果表明各装置中的功能微生物存在明显的差异,使各装置起到了不同的功能和作用,进一步印证了系统稳定且高效的协同脱氮性能.

表 4 接种污泥与 UASB、ZBAF 和厌氧氨氧化反应器样品在属水平上的功能微生物分析¹⁾/%

Table 4 Functional bacteria at genus level for seed sludge and samples of UASB, ZBAF and ANAMMOX/%

功能微生物		接种污泥	UASB	ZBAF	厌氧氨氧化反应器
AOB	<i>Nitrosomonas</i>	0.8	ND	26.5	0.3
NOB	<i>Nitrobacter</i>	ND	ND	0.1	ND
反硝化菌	<i>Paracoccus</i>	2.3	9.7	0.2	0.1
	<i>Comamonas</i>	0.8	12.0	0.7	0.4
厌氧氨氧化菌	<i>Candidatus Kuenenia</i>	ND	ND	ND	4.2
	<i>Candidatus Anammoxoglobus</i>	ND	ND	ND	6.9

1) ND 为未检测出

3 结论

(1)通过 FA 对 NOB 的选择性抑制,ZBAF 可以实现老龄垃圾渗滤液高效稳定部分亚硝化,平均 NAR 为 93.8%,NPR 随 NLR 的提升而升高,最高达 1.659 kg·(m³·d)⁻¹.

(2)投加少量碳源可以显著提升系统的脱氮效果.向原液中添加葡萄糖 700 mg·L⁻¹后,回流比为

2.0,HRT 为 2.2 d 时,组合工艺脱氮效果最佳,平均 ARE、NRE 和 NRR 分别达 97.2%、90.0% 和 0.585 kg·(m³·d)⁻¹,其中厌氧氨氧化平均 NRR_{ANA} 为 1.060 kg·(m³·d)⁻¹,最高达 1.268 kg·(m³·d)⁻¹.

(3)前置反硝化工艺对有机物的去除效率足以保障系统的正常运行.整个实验运行阶段系统平均 COD 去除率为 45.5%.

(4)高通量测序结果表明,组合工艺中不同的

装置内的主要功能微生物不同. UASB 中优势功能菌属为 *Paracoccus* 和 *Comamonas*; ZBAF 中优势菌属为 *Nitrosomonas*; 厌氧氨氧化反应器中优势菌属为 *Candidatus Kuenenia* 和 *Candidatus Anammoxoglobus*.

参考文献:

- [1] Liu J, Zuo J E, Yang Y, *et al.* An autotrophic nitrogen removal process: Short-cut nitrification combined with ANAMMOX for treating diluted effluent from an UASB reactor fed by landfill leachate[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2010, **22**(5): 777-783.
- [2] Wu L N, Li Z, Zhao C, *et al.* A novel partial-denitrification strategy for post-anammox to effectively remove nitrogen from landfill leachate[J]. *Science of the Total Environment*, 2018, **633**: 745-751.
- [3] Zhang F Z, Peng Y Z, Miao L, *et al.* A novel simultaneous partial nitrification Anammox and denitrification (SNAD) with intermittent aeration for cost-effective nitrogen removal from mature landfill leachate [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2017, **313**: 619-628.
- [4] Chen J, Wang R X, Wang X J, *et al.* Response of nitrification performance and microbial community structure in sequencing biofilm batch reactors filled with different zeolite and alkalinity ratio[J]. *Bioresource Technology*, 2019, **273**: 487-495.
- [5] Wang Z, Peng Y Z, Miao L, *et al.* Continuous-flow combined process of nitrification and ANAMMOX for treatment of landfill leachate[J]. *Bioresource Technology*, 2016, **214**: 514-519.
- [6] Li Y, Wang Z Z, Li J, *et al.* Inhibition kinetics of nitrification and half-nitrification of old landfill leachate in a membrane bioreactor [J]. *Journal of Bioscience and Bioengineering*, 2017, **123**(4): 482-488.
- [7] Ding S Z, Bao P, Wang B, *et al.* Long-term stable simultaneous partial nitrification, anammox and denitrification (SNAD) process treating real domestic sewage using suspended activated sludge[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2018, **339**: 180-188.
- [8] Wei D, Ngo H H, Guo W S, *et al.* Partial nitrification granular sludge reactor as a pretreatment for anaerobic ammonium oxidation (Anammox): achievement, performance and microbial community[J]. *Bioresource Technology*, 2018, **269**: 25-31.
- [9] 孙洪伟, 彭永臻, 时晓宁, 等. 两级 UASB-SBR 处理高氨氮垃圾渗滤液快速启动及稳定运行[J]. *环境科学*, 2009, **30**(6): 1681-1688.
Sun H W, Peng Y Z, Shi X N, *et al.* Start-up and steady operation of two stage UASB-SBR new process for treatment of real landfill leachate of high strength ammonia-nitrogen [J]. *Environmental Science*, 2009, **30**(6): 1681-1688.
- [10] Yang Y Y, Chen Z G, Wang X J, *et al.* Partial nitrification performance and mechanism of zeolite biological aerated filter for ammonium wastewater treatment [J]. *Bioresource Technology*, 2017, **241**: 473-481.
- [11] Feng X H, Wang X J, Chen Z G, *et al.* Nitrogen removal from iron oxide red wastewater via partial nitrification-Anammox based on two-stage zeolite biological aerated filter [J]. *Bioresource Technology*, 2019, **279**: 17-24.
- [12] 国家环境保护总局. 水和废水监测分析方法[M]. (第四版). 北京: 中国环境科学出版社, 2002.
- [13] Chen X Z, Wang X J, Chen X K, *et al.* Salt inhibition on partial nitrification performance of ammonium-rich saline wastewater in the zeolite biological aerated filter [J]. *Bioresource Technology*, 2019, **280**: 287-294.
- [14] Anthonisen A C, Loehr R C, Prakasam T B S, *et al.* Inhibition of nitrification by ammonia and nitrous acid[J]. *Water Pollution Control Federation*, 1976, **48**(5): 835-852.
- [15] Park S, Bae W, Rittmann B E. Operational Boundaries for nitrite accumulation in nitrification based on minimum/maximum substrate concentrations that include effects of oxygen limitation, pH, and free ammonia and free nitrous acid inhibition [J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, **44**(1): 335-342.
- [16] 杨永愿, 汪晓军, 赵爽, 等. 沸石曝气生物滤池短程硝化特性及其机制[J]. *中国环境科学*, 2017, **37**(12): 4518-4525.
Yang Y Y, Wang X J, Zhao S, *et al.* Partial nitrification performance and mechanism of zeolite biological aerated filter for ammonium wastewater treatment [J]. *China Environmental Science*, 2017, **37**(12): 4518-4525.
- [17] Chen Z G, Wang X J, Chen X Z, *et al.* Nitrogen removal via nitrification pathway for low-strength ammonium wastewater by adsorption, biological desorption and denitrification [J]. *Bioresource Technology*, 2018, **267**: 541-549.
- [18] Chen Z G, Wang X J, Chen X Z, *et al.* Rapid start-up and performance of denitrifying granular sludge in an upflow sludge blanket (USB) reactor treating high concentration nitrite wastewater[J]. *Biodegradation*, 2018, **29**(6): 543-555.
- [19] Jin R C, Yang G F, Yu J J, *et al.* The inhibition of the anammox process: a review[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2012, **197**: 67-79.
- [20] Li G B, Carvajal-Arroyo J M, Sierra-Alvarez R, *et al.* Mechanisms and control of NO_2^- inhibition of anaerobic ammonium oxidation (anammox) [J]. *Water Environment Research*, 2017, **89**(4): 330-336.
- [21] Zhang F Z, Peng Y Z, Wang S Y, *et al.* Efficient step-feed partial nitrification, simultaneous Anammox and denitrification (SPNAD) equipped with real-time control parameters treating raw mature landfill leachate[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2019, **364**: 163-172.
- [22] Wang Y M, Gong B Z, Lin Z Y, *et al.* Robustness and microbial consortia succession of simultaneous partial nitrification, ANAMMOX and denitrification (SNAD) process for mature landfill leachate treatment under low temperature [J]. *Biochemical Engineering Journal*, 2018, **132**: 112-121.
- [23] Miao L, Wang K, Wang S Y, *et al.* Advanced nitrogen removal from landfill leachate using real-time controlled three-stage sequence batch reactor (SBR) system [J]. *Bioresource Technology*, 2014, **159**: 258-265.
- [24] 安芳娇, 彭永臻, 张永辉, 等. 基质比对厌氧氨氧化脱氮性能的影响[J]. *环境科学学报*, 2018, **38**(3): 1010-1015.
An F J, Peng Y Z, Zhang Y H, *et al.* Effect of substrate ratio on the performance of nitrogen removal through anaerobic ammonia oxidation [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2018, **38**(3): 1010-1015.
- [25] Zhu W Q, Li J, Dong H Y, *et al.* Effect of influent substrate ratio on anammox granular sludge: performance and kinetics[J]. *Biodegradation*, 2017, **28**(5-6): 437-452.
- [26] Li X, Yuan Y, Wang F, *et al.* Highly efficient of nitrogen removal from mature landfill leachate using a combined DN-PN-Anammox process with a dual recycling system[J]. *Bioresource Technology*, 2018, **265**: 357-364.
- [27] 耿淑英, 付伟章, 王静, 等. SBR 系统外加磁场对微生物群落多样性和处理效果的影响[J]. *环境科学*, 2017, **38**(11): 4715-4724.
Geng S Y, Fu W Z, Wang J, *et al.* Treatment efficiency and microbial community diversity in a magnetic field enhanced sequencing batch reactor (SBR) [J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(11): 4715-4724.

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 Wanshangang 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)