

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV
HUANJING KEXUE

PM_{2.5}污染对我国健康负担和经济损失的影响

李勇, 廖琴, 赵秀阁, 白云, 陶燕

PM_{2.5}

• 中风

PM_{2.5}控制目标
健康经济效益

• 冠心病

• 呼吸系统疾病

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2021年4月

第42卷 第4期
Vol.42 No.4

目次

京津冀及周边地区秋冬季大气污染物排放变化因素解析	唐倩, 郑博, 薛文博, 张强, 雷宇, 贺克斌 (1591)
珠江三角洲大气光化学氧化剂(O_3)与 $PM_{2.5}$ 复合超标污染特征及气象影响因素	颜丰华, 陈伟华, 常鸣, 王伟文, 刘永林, 钟部卿, 毛敬英, 杨士士, 王雪梅, 刘焯芳 (1600)
广州市臭氧污染溯源:基于拉格朗日光化学轨迹模型的案例分析	裴成磊, 牟江山, 张英南, 申恒青, 陈玉茹, 黄杰生, 丁浩然, 李成柳 (1615)
运城秋冬季大气细粒子化学组成特征及来源解析	赵清, 李杏茹, 王国选, 张兰, 杨阳, 刘永桥, 孙宁宁, 黄禹, 雷文凯, 刘新罡 (1626)
降雪后24 h内大气中多环芳烃的变化规律	范慧泽, 祝富杰, 胡鹏持, 马万里 (1636)
道路扬尘中 $PM_{2.5}$ 粒度乘数的测定方法及特征	李冬, 陈建华, 张月帆, 高忠阳, 高健, 张凯, 竹双 (1642)
铸造行业挥发性有机物排放成分谱及影响	高爽, 李时蓓, 伯鑫, 李厚宇, 舒木水, 谈默, 屈加豹, 雷团团 (1649)
燃煤电厂和垃圾焚烧电厂燃烧产物中卤代多环芳烃的赋存特征和毒性风险	倪秀峰, 王儒威, 蔡飞旋, 蔡家伟 (1660)
兰州市春季微生物气溶胶浓度、粒径及细菌群落结构分布特性	赵炜, 李杰, 谢慧娜, 张莉红, 王亚娥 (1668)
大气污染排放格局优化方法及案例	李敏辉, 廖程浩, 常树诚, 张永波, 杨柳林, 曾武涛 (1679)
$PM_{2.5}$ 污染对我国健康负担和经济损失的影响	李勇, 廖琴, 赵秀阁, 白云, 陶燕 (1688)
基于多同位素的不同土地利用区域水体硝酸盐源解析	金赞芳, 胡晶, 吴爱静, 李光耀, 张文辽, 李非里 (1696)
新疆叶尔羌河流域地表水水化学特征及控制因素	张杰, 周金龙, 曾妍妍, 涂治, 纪媛媛, 孙英, 雷米 (1706)
漓江流域水体中重金属污染特征及健康风险评价	黄宏伟, 肖河, 王敦球, 席北斗, 孙晓杰, 李洁月, 李向奎 (1714)
近20年来鄱阳湖流域泛滥平原沉积物微量元素含量与污染变化	李括, 杨柯, 彭敏, 刘飞, 杨峥, 赵传冬, 成杭新 (1724)
汾河流域浅层地下水水化学和氢氧稳定同位素特征及其指示意义	刘鑫, 向伟, 司炳成 (1739)
会仙岩溶湿地地下水主要离子特征及成因分析	李军, 邹胜章, 赵一, 赵瑞科, 党志文, 潘民强, 朱丹尼, 周长松 (1750)
贵州威宁草海流域地下水水化学特征及无机碳通量估算	曹星星, 吴攀, 杨诗笛, 刘闪, 廖家豪 (1761)
辽宁典型海域表层海水中在用化学农药浓度水平与潜在生态风险	杜静, 胡超魁, 解怀君, 田甲申, 李爱, 谢晴, 吴金浩, 宋伦 (1772)
辽河流域土壤中微(中)塑料的丰度、特征及潜在来源	韩丽花, 徐笠, 李巧玲, 陆安祥, 殷敬伟, 田佳宇 (1781)
津冀辽地区典型湖库沉积物PAHs污染特征及来源解析	吴鹏, 鲁逸人, 李慧, 郑天娇子, 程云轩, 焦立新 (1791)
环太湖河流及湖体中有机磷酸酯的污染特征和风险评价	张文萍, 张振飞, 郭昌胜, 吕佳佩, 邓洋慧, 张恒, 徐建 (1801)
太湖表层水体典型抗生素时空分布和生态风险评价	丁剑楠, 刘舒娇, 邹杰明, 石溪哲, 邹华, 史红星 (1811)
淮河流域南四湖可挥发性有机物污染特征及风险评价	程云轩, 高秋生, 李捷, 李慧, 吴鹏, 焦立新 (1820)
三亚河沉积物PAHs和PCBs的分布、来源及风险评价	詹咏, 韦婷婷, 叶汇彬, 董滨, 张领军, 黄远东 (1830)
三峡库区非点源污染氮磷负荷时空变化及其来源解析	李明龙, 贾梦丹, 孙天成, 褚琳, 李朝霞 (1839)
反硝化细菌、硝酸钙和锆改性沸石联用对底泥中氮磷迁移转化的影响及硝态氮释放风险评估	辛慧敏, 李建伟, 詹艳慧 (1847)
锁磷剂联合好氧反硝化菌修复富营养化水体	李炳堂, 周志勤, Ravi Naidu, 胡智泉, 郭大滨, 陈嘉鑫 (1861)
太湖蓝藻胞内有机质的微生物降解	张巧颖, 孙伟, 杜瑛珣, 巩小丽 (1870)
青藏高原拉萨河流域附石藻类群落结构特征及其驱动因子分析	魏俊伟, 李鸿然, 汪兴中, 齐文华, 汪洋, 赵彬洁, 谭香, 张全发 (1879)
基于EEMs与UV-vis分析苏州汛期景观河道中DOM光谱特性与来源	何杰, 朱学惠, 魏彬, 李学艳, 汤如涛, 林欣, 周飞, 司壮壮 (1889)
老化前后轮胎磨损微粒与聚氯乙烯微粒对抗生素的吸附-解吸行为	范秀磊, 邹峰峰, 刘加强, 李莹, 刘强, 侯俊 (1901)
磁性铁基改性生物炭去除水中氨氮	王芳君, 桑倩倩, 邓颖, 赵元添, 杨娅, 陈永志, 马娟 (1913)
城市污水处理厂进水氨氧化菌对活性污泥系统的季节性影响	于莉芳, 汪宇, 滑思思, 李韧, 张兴秀, 惠晓飞 (1923)
基于粒径分化的厌氧氨氧化污泥性能与微生物多样性分析	王晓瞳, 杨宏 (1930)
ClO_2 消毒工艺对污水处理厂出水超级耐药基因的影响	程春燕, 李海北, 梁永兵, 师丹阳, 陈郑珊, 杨栋, 焦巧瑞, 邵一帆, 李君文, 金敏 (1939)
微塑料PES与2,4-DCP复合污染对厌氧污泥胞外聚合物与微生物群落的影响	林旭萌, 宿程远, 吴淑敏, 黄嫒, 邓雪, 林香凤, 黄尊, 魏佳林 (1946)
城镇污水处理厂污泥泥质监测及资源化风险评价	李娟, 李金香, 杨妍妍 (1956)
气候变暖对冻结期黑土碳氮循环关键过程及指标的影响	王子龙, 刘传兴, 姜秋香, 李世强, 柴迅 (1967)
沼液秸秆联用对滨海围垦田土壤重金属迁移及形态变化的影响	王伟, 周珺楠, 汤逸帆, 申建华, 韩建刚 (1979)
地块尺度城市土地质量地球化学调查方法:以雄安新区起步区为例	周亚龙, 郭志娟, 刘飞, 韩伟, 孔牧, 赵传冬, 刘爱涛, 彭敏, 王乔林, 王成文 (1989)
雄安新区农田土壤-农作物系统重金属潜在生态风险评估及其源解析	周亚龙, 杨志斌, 王乔林, 王成文, 刘飞, 宋云涛, 郭志娟 (2003)
地质背景农田土壤下不同水稻品种对Cd的累积特征及影响因素	代子雯, 方成, 孙斌, 魏志敏, 胡锋, 李辉信, 徐莉 (2016)
不同外源硒对镉污染土壤中小白菜生长及镉吸收的影响	刘杨, 齐明星, 王敏, 刘娜娜, Pornpimol Kleawsampanjai, 周菲, 翟辉, 王梦柯, 任蕊, 梁东丽 (2024)
影响不同农作物镉富集系数的土壤因素	陈洁, 王娟, 王怡雯, 姚启星, 苏德纯 (2031)
Cd胁迫下不同外源植物激素对水稻幼苗抗氧化系统及Cd吸收积累的影响	张盛楠, 黄益宗, 李颜, 保琼莉, 黄永春 (2040)
不同有机物料对水稻根表铁膜及砷镉吸收转运的影响	李开叶, 赵婷婷, 陈佳, 赵秀兰 (2047)
铜尾矿坝及其周边土壤真菌群落结构与功能多样性	陈建文, 张红, 李君剑, 刘勇 (2056)
微生物群落驱动AM真菌、生物炭及联合改良沙化土壤作用潜力	张哲超, 杨久扬, 郝百惠, 郝利君, 罗俊清, 李雪, 刁风伟, 张璟霞, 郭伟 (2066)
动物粪便施肥措施促进耐药基因在粪便-土壤-蔬菜之间的散播	张红娜, 董梦洁, 周玉法, 孙佳欣, 常美洁, 翟真真 (2080)
区域水生态文明建设绩效评价及障碍诊断模型的建立与应用	万炳彤, 鲍学英, 赵建昌, 李爱春 (2089)
《环境科学》征订启事(1738) 《环境科学》征稿简则(1790) 信息(1860, 1878, 1900)	

基于粒径分化的厌氧氨氧化污泥性能与微生物多样性分析

王晓瞳, 杨宏*

(北京工业大学建筑工程学院, 北京市水质科学与水环境恢复工程重点实验室, 北京 100124)

摘要: 为明确基于粒径分化的厌氧氨氧化 (ANAMMOX) 污泥特性与菌群演替规律, 研究了高氨氮生物滤池反应体系中 ANAMMOX 絮体污泥形成颗粒过程中的性能变化和微生物群落结构。结果表明, 粒径增加显著提高了厌氧氨氧化颗粒污泥 (AnGS) 比活性 (SAA) 和耐受性, R4 (>4.75 mm) 的 SAA 最高为 $426.8 \text{ mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$, 但也给传质带来不利影响。高通量测序结果显示, 菌属间动态变化普遍存在。<4.75 mm 时, 粒径增加强化了菌群结构稳定性, 絮体中含量较多的氨氧化细菌 (AOB) 被淘汰, 脱氮比例逐渐稳定。R3 (2.8~4.75 mm) 具有最专一的菌群组成, 功能菌 *Candidatus Kuenenia* 占比达到 52.7%, 而 R4 群落复杂度升高, 功能菌占比下降, 异养菌丰度增加, 对颗粒结构产生负作用。此外, R3 微生物的基因功能表达水平最佳, 在基因复制修复和能量转化等方面明显优于小颗粒。最后通过样本间 OTU 矩阵分析了 AnGS 的进化过程。这些结果对 AnGS 系统的优化具有一定指导意义, 将有助于 ANAMMOX 工艺的应用。

关键词: 厌氧氨氧化 (ANAMMOX); 粒径; 比活性; 微生物群落结构; 基因功能预测

中图分类号: X703 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2021)04-1930-09 DOI: 10.13227/j.hjxx.202009248

Analysis of Performance and Microbial Diversity of ANAMMOX Sludge Based on Particle Size Differentiation

WANG Xiao-tong, YANG Hong*

(Key Laboratory of Beijing for Water Quality Science and Water Environmental Recovery Engineering, College of Architectural Engineering, Beijing University of Technology, Beijing 100124, China)

Abstract: Abstract: In order to clarify the characteristics of anaerobic ammonia oxidizing (ANAMMOX) sludge and the succession rule of bacteria based on particle size differentiation, the performance change and microbial community structure of ANAMMOX floc sludge during the formation of particles in the reaction system of a high ammonia-nitrogen biofilter were studied. The results indicated that the specific activity (SAA) and tolerance of the ANAMMOX granular sludge (AnGS) were significantly improved by increasing the particle size, and the SAA of R4 (>4.75 mm) was up to $426.8 \text{ mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$, but it also had adverse effects on mass transfer. The results of the high-throughput sequencing showed that dynamic changes between bacterial genera were common. When the particle size was less than 4.75 mm, the increase in particle size strengthened the stability of the bacterial flora, the ammonia oxidizing bacteria (AOB) with more flocs were eliminated, and the nitrogen removal ratio gradually stabilized. R3 (2.8~4.75 mm) exhibited the most specific flora composition, and the functional bacteria *Candidatus Kuenenia* accounted for 52.7%, while the R4 community complexity increased. Furthermore, the proportion of functional bacteria decreased, and the abundance of heterotrophic bacteria increased, which negatively affected the particle structure. In addition, the R3 microorganism has the best gene function expression level, which is significantly better than small particles in gene replication repair and energy conversion. Finally, the evolution of AnGS was analyzed through the OTU matrix between the samples. These results have some guiding significance for the optimization of the AnGS system and will be helpful for the application of the ANAMMOX process.

Key words: anaerobic ammonium oxidation (ANAMMOX); particle size; specific activity; microbial community structure; gene function prediction

厌氧氨氧化 (anaerobic ammonium oxidation, ANAMMOX) 是一种通过厌氧氨氧化菌 (AAOB) 实现的以 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 为电子供体, $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 为电子受体的生物反应^[1]。因其脱氮负荷高、生物反应器占地面积小及无需有机碳源等优点, 被认为是当前最具可持续发展潜力的污水生物脱氮技术^[2,3]。AAOB 及其伴生菌主要以颗粒污泥的形式存在^[4]。厌氧氨氧化颗粒污泥 (AnGS) 的形成不仅能减少菌体流失还提高了反应速率。粒径是影响颗粒污泥结构和系统稳定性的重要参数^[5]。粒径差异使 AnGS 产生了不同的

物质组分和微生物多样性^[6], 决定了其主导功能。有研究指出, 大颗粒显著提高了 ANAMMOX 工艺的性能, 因其能够形成 AAOB 的高丰度^[7,8]。然而, 小颗粒可以克服大颗粒因 N_2 产量增多上浮, 对反应器性能的不良影响。Chen 等^[9,10] 的研究认为, 粒径过大时, 由于传质受阻颗粒中会形成死区, 导致 AnGS

收稿日期: 2020-09-26; 修订日期: 2020-10-06

基金项目: 中央引导地方科技发展专项 (Z161100004516015)

作者简介: 王晓瞳 (1994~), 女, 博士研究生, 主要研究方向为水处理微生物技术, E-mail: 913826141@qq.com

* 通信作者, E-mail: yhong@bjut.edu.cn

崩解。

培养条件的不同导致了 ANAMMOX 系统的最佳粒径存在着从微米到毫米的不一致性^[11,12], 然而 AnGS 系统高效脱氮的本质是微生物群落的协同作用, 通过群落优化, 调控污水处理系统的性能^[13]。因此, 全面了解 AnGS 形成过程中微生物群落特征、演变规律及菌群间的相互作用, 对阐明颗粒污泥高效脱氮的生物学机制更为重要。

此外, 目前研究多集中于 AnGS 处理低强度污水的性能, 对高氨氮系统中形成的更大尺寸颗粒的认识有限。特别是基于粒径分化的菌群变化特点及其性能的联系认识较少, 这阻碍了 AnGS 系统在多种处理条件下的广泛应用。

因此, 本研究在 ANAMMOX 絮体污泥形成颗粒过程中, 选取广泛的粒径范围 (R0: <0.6 mm、R1: 0.6 ~ 1.18 mm、R2: 1.18 ~ 2.8 mm、R3: 2.8 ~ 4.75 mm 和 R4: >4.75 mm), 研究其形态和活性变化。采用高通量 16S rRNA 基因测序, 在分类学和代谢功能水平上阐明粒径分化带来的差异, 建立污泥特性与微生物组成之间的关系, 以期为高负荷 AnGS 废水处理系统的优化和基于粒径的反应机制提供有价值的信息。

1 材料与方法

1.1 污泥来源

本研究 ANAMMOX 污泥收集自实验室稳定运行 1 a 的上流式生物滤池反应器^[14]。反应器有效容积 10.89 L, 内径 17 cm, 液体上升流速 $2.65 \text{ m} \cdot \text{h}^{-1}$, 总氮去除负荷 (NRR) 为 $(5.64 \pm 0.2) \text{ kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$ 。体系温度控制在 $25 \sim 28^\circ\text{C}$, 进水不进行除氧, pH 值为 7.6 ± 0.2 。

1.2 污泥的分组

ANAMMOX 污泥的分组采用湿式筛选法。收集反应器内污泥, 将它们经过目数为 4、7、14 和 28 的筛网, 得到 4 组不同粒径 (R1: 0.6 ~ 1.18 mm、R2: 1.18 ~ 2.8 mm、R3: 2.8 ~ 4.75 mm、R4: >4.75 mm) 的颗粒污泥和絮状污泥 (R0: <0.6 mm)。收集 5 组污泥样本分别进行各项性能的实验研究。

1.3 检测项目及方法

1.3.1 水质指标测定

水质测定采用国家标准方法^[15]: NH_4^+ -N 采用纳氏试剂分光光度法, NO_2^- -N 采用 *N*-(1-萘基)-乙二胺光度法, NO_3^- -N 采用紫外分光光度法。数码相机拍照观察颗粒形态。

1.3.2 厌氧氨氧化活性测定

比厌氧氨氧化活性 (SAA) 根据混合液样品中

NH_4^+ -N 和 NO_2^- -N 随时间的消耗率进行分批测定。实验前用磷酸盐缓冲溶液清洗污泥样本 2 ~ 3 遍, 去除残留基质。将 R0 ~ R4 分别加入 120 mL 的血清瓶中, 调节瓶内 MLVSS 为 1.5 g。分别在高和低底物浓度下进行活性测定, 反应液的 NH_4^+ -N 和 NO_2^- -N 初始浓度分别为 $200 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $250 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 及 $100 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $132 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 配合合成废水的组成^[14]以及微量元素溶液 I 和 II^[16]各 $1.25 \text{ mL} \cdot \text{L}^{-1}$ 。加入稀硫酸溶液调节初始 pH 至 7.5。通过取样管充氮 5 min, 保证体系处于厌氧状态, 然后在 $(32 \pm 1)^\circ\text{C}$ 恒温摇床 (ZHWY-2102C, China) 中进行生化实验, 摇床转速为 $80 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$ 。每隔 2 h (高底物浓度) 或 1 h (低底物浓度) 测定反应液中氮素含量, 绘制底物的降解曲线, 斜率除以生物量浓度得到 SAA。实验进行 3 次, 结果取平均值。

1.3.3 高通量测序及分析

采用高通量 Illumina MiSeq 测序平台 (Illumina, San Diego, USA) 分析 ANAMMOX 污泥的微生物多样性及相互联系。

样本 (R0 ~ R4) 用磷酸盐缓冲液洗涤 3 次, 经过液氮碾磨预处理后, 利用土壤 DNA 快速提取试剂盒 (Bio101, Vista, CA) 从样本中提取 DNA。采用 NanoDrop 2000 分光光度计测量 DNA 浓度。对细菌 16S rRNA 基因 V3-V4 区进行扩增, 引物分别为 341F (CCTACGGGNGGCWGCAG) 和 805R (GACTACHVGGGTATCTAATCC)。采用 Illumina HiSeq 2500 PE250 进行测序, 测序数据使用 MEGAN 软件进行微生物的 16S 分析, 按照 97% 的识别阈值分组为序列聚类操作分类单元 (OTUs)。得到的结果使用 R 软件的工具包进行分类学分析, 主要包括 α 多样性分析、物种多样性分析、功能预测分析和基于主坐标分析 (Principal co-ordinates analysis, PCoA) 的 β 多样性分析和菌群差异分析。利用 Hemi 软件获得样本中微生物各个水平上的物种组成和功能基因热图, 使结果可视化。

2 结果与讨论

2.1 污泥性质

2.1.1 污泥形态

图 1 反映了 ANAMMOX 污泥样本的形态特征。可见, ANAMMOX 絮体污泥及颗粒污泥均表现出 AAOB 典型的红褐色, 这说明 AAOB 富集程度较高。颗粒污泥结构密实, 轮廓清晰, 呈“铁红花椰菜”状。小颗粒较光滑, 质地较软, 大颗粒表面有菌簇形成。这意味着 AAOB 在胞外聚合物 (EPS) 创建的凝胶网络下聚集成团, 使粒径不断增加, 同时, 颗粒结构的

稳定性得到增强^[17,18]. 并且, 未成熟的小颗粒颜色较浅, 而较大的颗粒颜色加深. 分析由于大颗粒受底物供应限制, 饥饿状态下 SO_4^{2-} 可以作为电子受体促进 *Limnobacter* 生长^[19], 并产生 FeS 化合物所致, 这将在 2.3.2 节进一步解释.



图1 厌氧氨氧化絮体污泥和颗粒污泥

Fig. 1 Anaerobic ammonium oxide floc sludge and granular sludge

2.1.2 厌氧氨氧化活性

样本 SAA 的变化如图 2 所示 (分别以 NH_4^+-N 、 NO_2^--N 和 TN 表示). 总体来说, SAA 随着 AnGS 的形成和粒径的增大而逐步提高. 由图 2(a) 可知, R0 和 R1 的活性处于一个较低的水平, 仅为 $117.2 \text{ mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$ (以下均以 TN 计) 和 $131.2 \text{ mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$. R2~R3 显著升高, 并且 R3 的 SAA 是 R0 的 3 倍. R4 的 SAA 最高达到 $426.8 \text{ mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$, 但增长趋势略有下降. 分析原因, 较大颗粒聚集了更多的 AAOB, 其“密度效应”得以发挥, 代谢旺盛, 因此获得了更高的脱氮效能.

然而, 此前研究认为^[20], 厌氧氨氧化活性主要发生于颗粒污泥表面 1 mm 厚度的范围内, 当粒径过大时, 由于反应深度有限, 抑制了 AAOB 的活

性^[21]. 本研究 AnGS 的最大尺寸超过 4.75 mm, SAA 能持续提高或许是由于随着颗粒聚集, AAOB 产气量增多, 颗粒内部形成的气穴孔隙的双重作用^[10,11]. 这些孔隙可以作为底物运输的通道, 有利于基质进入颗粒污泥内部, 在一定程度上缓解了传质作用的不利影响. 但 SAA 增长趋势的减缓也预示着颗粒污泥结构的变化, 由此推测, 极大颗粒 R4 内部的底物分布是不均匀的: 靠近孔隙地带传质较好, 而颗粒深处的 AAOB 面临底物不足的危机, 限制了其活性的表达.

此外, 杨明明等^[22]的研究指出, EPS 的含量与厌氧氨氧化颗粒污泥的粒径大小呈正相关关系, 这表明较大的颗粒污泥会分泌更多的 EPS. 较多的 EPS 含量有利于 AAOB 细胞间的互相聚集及细胞交流^[23,24], 继而增强细胞的代谢和活性. 据此推测, 伴随着 R2~R3 的 ANAMMOX 活性迅速提高, 黏性较强的 EPS 大量积累, 增加了基质向颗粒内部的传递阻力^[25], 使 SAA 增长出现缓坡. 这种限制更显著地反映在低浓度底物作用下 SAA 的变化 [图 2(b)]. 对比高浓度底物, 大颗粒 (R3 和 R4) 在低浓度下的优势减弱. 除了长期培养 AnGS 对高基质浓度环境的适应性外, EPS 对底物运输的限制作用也值得考虑, 这使得颗粒污泥的基质亲和常数相对较高^[26], 即需要较高的基质浓度来实现高效 ANAMMOX 反应速率. 这也意味着, 粒径较大的 AnGS 拥有更强的抵抗负荷冲击的能力. 综上, SAA 随着 AnGS 粒径增加和结构的完善而提高, 但增长率不是一个定值. 由

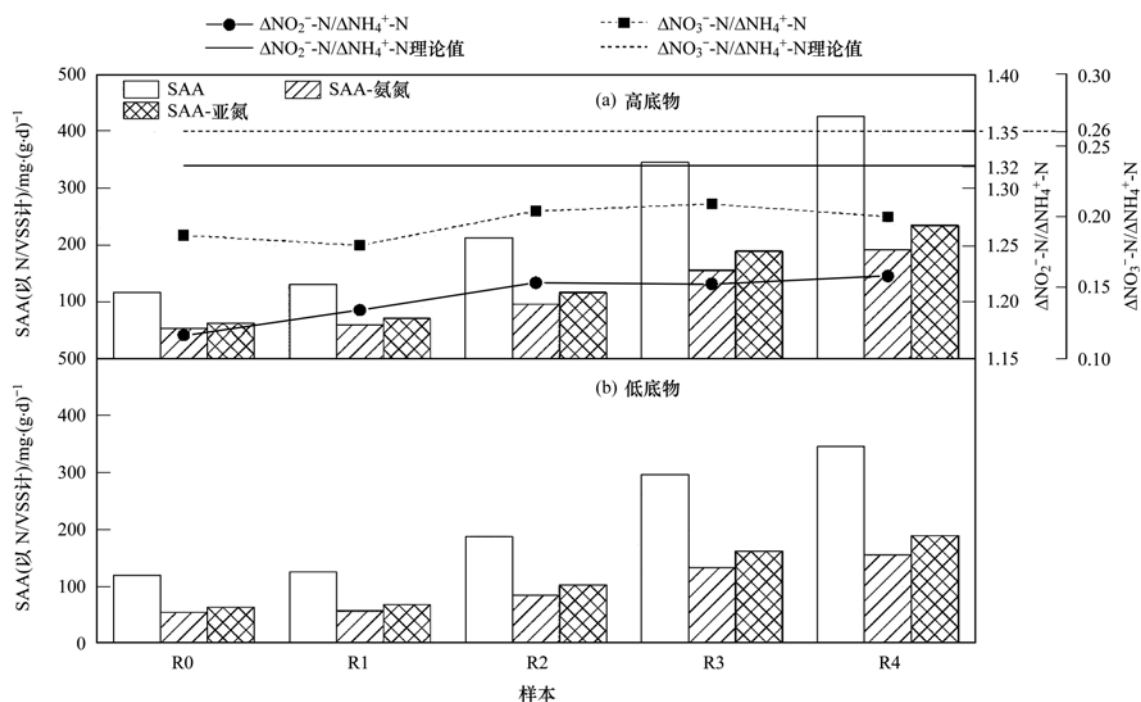


图2 比厌氧氨氧化活性与氮元素化学计量比

Fig. 2 SAA and stoichiometric ratio of nitrogen element

于尺寸对传质的限制,本研究中 R4 的增长率开始减缓.

进一步分析 $\Delta\text{NO}_2^- \text{-N}/\Delta\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 和 $\Delta\text{NO}_3^- \text{-N}/\Delta\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 的比值发现,各样本的比值都略小于 ANAMMOX 反应化学计量比的理论值,但 R2 ~ R4 更为接近,稳定在 1.22 和 0.2 左右.氮转化途径决定着化学计量比的差异,这表明在以 ANAMMOX 为

主反应的前提下,还同时存在着硝化和反硝化作用等多种脱氮途径^[27],对氮转化过程产生影响,这将在 2.2.2 节中进一步分析.

2.2 微生物群落结构变化

2.2.1 微生物多样性和丰富度

对 5 个样本进行高通量测序,共产生 251 607 个序列,表 1 列出了各样本 OTUs 的数量及多样性指数.

表 1 ANAMMOX 污泥菌群的多样性指数变化

Table 1 Diversity index changes in the ANAMMOX sludge microbial community					
样本	Seq 数	OTU 数	ACE 指数	Chao1 指数	Simpson 指数
R0	90 625	3 300	55 971. 51	25 081. 30	0. 11
R1	63 248	2 469	94 666. 10	31 588. 51	0. 13
R2	33 625	3 396	317 935. 72	79 740. 32	0. 17
R3	27 967	3 016	211 874. 71	57 853. 25	0. 25
R4	36 142	3 597	198 069. 85	69 657. 43	0. 21

R0 ~ R3 的 Simpson 指数(反映样本中微生物多样性的指数)逐渐增加,表明随着颗粒污泥形成,群落多样性降低,R3 形成了功能专一的群落结构.而代表物种丰富度的 ACE 指数和 Chao1 指数先增加后减少,这说明不同菌属经历了对环境的适应和被环境淘汰的过程,完成了菌群的建立和统一.值得关注的是,R4 菌群的复杂度升高.这表明颗粒内微环境的变化,为其他菌株的繁殖提供了条件.

Venn 图更直观地统计了各样本共有和独有的 OTU 数目(图 3),以了解它们的组成相似性及重叠情况.5 个样本共有的 OTU 仅为 111 个,说明在 AnGS 形成过程中,菌群结构发生了显著变化.其中 R0、R1、R2、R3 和 R4 的特有 OTU 呈现大幅降低→大幅升高→小幅降低→小幅升高的变化趋势.可见,随着颗粒污泥形成,絮体污泥中许多微生物被淘汰,之后短暂出现了一些与 AnGS 相关的菌群,在微环境的选择与调节下,颗粒结构不断优化.而 R4 特有 OTU 的增加预示着专一的颗粒结构面临失稳.

2.2.2 微生物种群结构

样本门和属水平的微生物群落多样性如图 4 所示.从门水平看[图 4(a)],浮霉菌门(Planctomycetes)、变形菌门(Proteobacteria)、拟杆菌门(Bacteroidetes)、绿菌门(Ignavibacteriae)、绿弯菌门(Chloroflexi)和芽单胞菌门(Gemmatimonadetes)等相对丰度≥1%的 8 个优势菌门占比达到菌群总数的 94% 以上,即属于典型 ANAMMOX 系统^[28,29].R0 和 R1 的组成较相似,变形菌门丰度均略高于浮霉菌门,并且拥有菌群种类较丰富.而 R2 ~ R4 的菌群结构更加单一,杂菌门占比减小,AAOB 所属的浮霉菌门成为绝对优势菌,在 R3 中占比最高达到

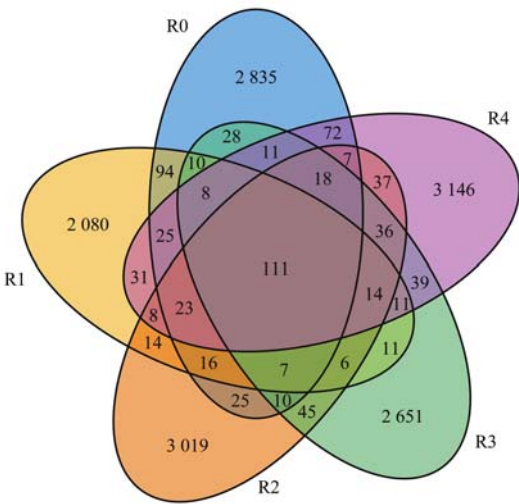


图 3 微生物群落 Venn 图

Fig. 3 Venn diagram of microbial community

53.27%.这表明,与悬浮污泥相比,AnGS 进一步提高了群落的专一性,同时随着粒径增大,实现了菌种的筛选富集,与 ANAMMOX 脱氮无关的菌群被淘汰.这与污泥 SAA 的增长趋势相符,体现了其功能和结构的统一.然而,R4 中浮霉菌门的相对丰度稍有下降,为 48.02%,同时绿弯菌门增加.这与上文分析吻合,绿弯菌门在自养脱氮系统中较为常见,可以清除 ANAMMOX 产生的代谢产物并降解胞外蛋白^[30,31],颗粒内部分功能菌的凋亡和 EPS 的积累解释了其升高原因.

属水平的 Heatmap 聚类分析更清晰地显示出 ANAMMOX 污泥由絮体到成熟颗粒的过程中,菌群组成由复杂变为简单.值得关注的是,R0 中存在 *Candidatus Kuenenia* 和 *Candidatus Brocadia* 两种 AAOB,而 R1 ~ R4 中 *Candidatus Brocadia* 的比例极

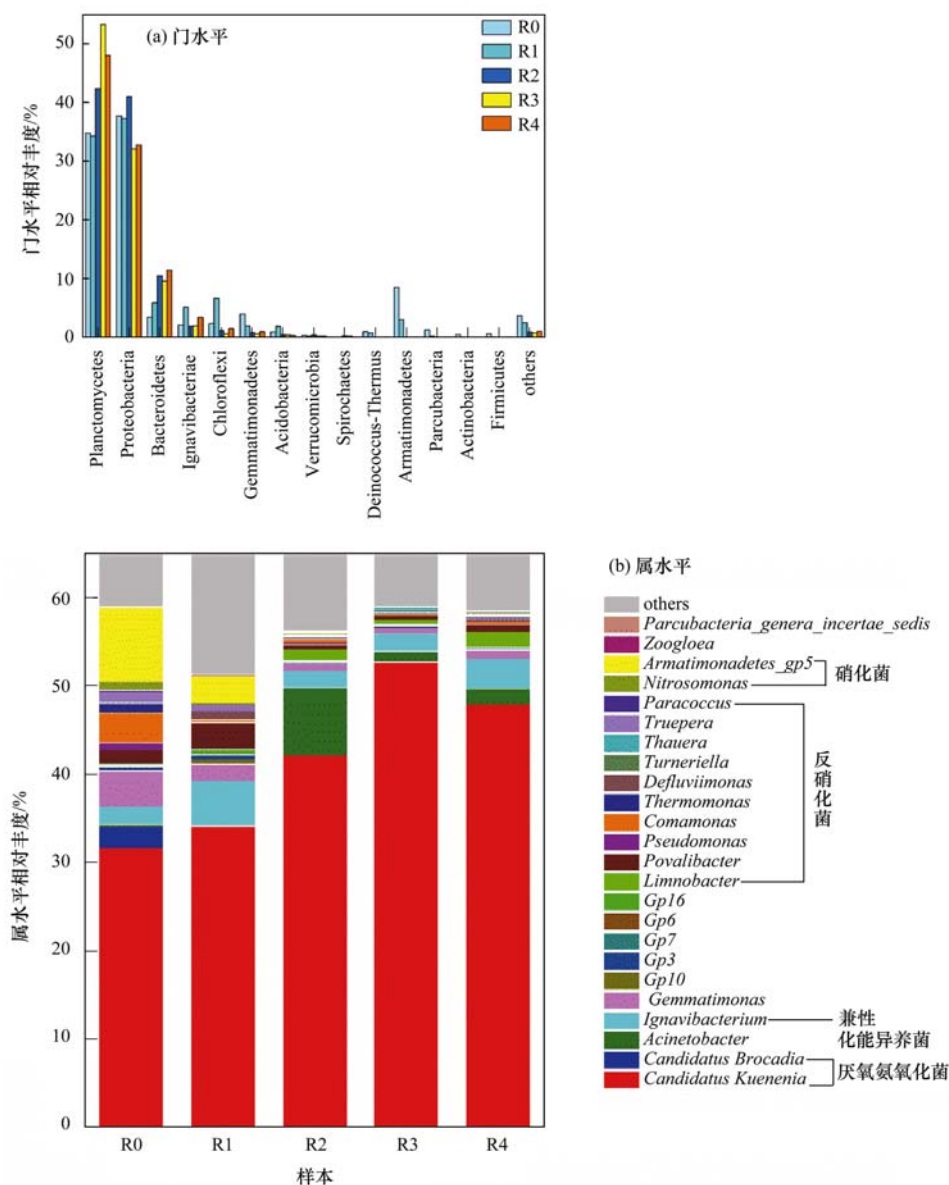


图 4 门和属水平微生物群落的多样性

Fig. 4 Microbial community diversity at phylum and genus levels

低($\leq 0.06\%$). 这表明 *Candidatus Brocadia* 在絮体污泥中更为丰富, 而 *Candidatus Kuenenia* 聚集在颗粒中. 这与 Zheng 等^[32]的研究结果并不一致, 反应条件可能是造成差异的原因. 研究表明, *Candidatus Kuenenia* 可以耐受亚硝态氮浓度至少 $180 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 而 *Candidatus Brocadia*^[33]则是在 $70 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$. 本实验进水负荷较高, 由 2.1.2 节结果可知, 颗粒污泥对高负荷更耐受, 因此颗粒中也富集了更能够适应高浓度的进水 NO_2^- -N 浓度的 *Candidatus Kuenenia*. 随着粒径增大, *Candidatus Kuenenia* 占比由 31.63% 上涨为 52.7%. 据报道, AAOB 偏爱相对较大的粒子^[7], 因此更大的颗粒也导致了 AAOB 的高丰度, 这与本研究结果基本一致. R4 中 AAOB 相对丰度的下降则归因于粒径过大对颗粒结构的负面影响. 可以发现, R4 中异养菌增多, 这从微生物角度验证了过大尺寸

AnGS 内部存在底物供应不足区域, 引起 AAOB 衰亡, 凋亡的 AAOB 细胞作为营养物质加速了异养菌繁殖.

除 AAOB 外, AnGS 中与氮转化有关的细菌还包括硝化细菌中的氨氧化菌 (AOB) 和反硝化细菌 (DNB), 它们共同对脱氮过程产生影响. 例如, AOB 在 R0 和 R1 中含量较多, R2 开始含量骤减, 可见 AOB 多以絮体形式存在, 也说明 R2 尺寸限制了氧传质^[34]. AOB 包含的亚硝化单胞菌 *Nitrosomonas* 将 NH_4^+ -N 转化为 NO_2^- -N, 这是使 R0 和 R1 中 ΔNO_2^- -N/ ΔNH_4^+ -N 低于理论值的主要原因. 此外, 短程反硝化菌 *Thauera* ($0.01\% \sim 0.3\%$) 在厌氧条件下还原 NO_3^- -N 为 NO_2^- -N, 亚氮积累也造成 ΔNO_2^- -N/ ΔNH_4^+ -N 普遍偏小. 出水 NO_3^- -N 偏低则归因于具有部分反硝化作用的 *Pseudomonas*, 其在 R0 中含量较

高,导致 $R0$ 的 $\Delta NO_3^- - N / \Delta NH_4^+ - N$ 偏离理论值最多(图 2)。

同时,各样本富含多种 DNB,并存在菌属的迁移与转化。 $R0$ 和 $R1$ 中含量极低的 *Limnobacter* 在 $R2$ 和 $R4$ 中增多,即其在 AAOB 快速增长期和极大颗粒中出现。*Limnobacter* 与硫相关,饥饿状态下利用 SO_4^{2-} 为电子受体生长^[19],由此,在没有外部碳源的情况下,*Limnobacter* 的富集一是源于 AAOB 代谢水平提高,产物增多;二是衰亡细菌产生的有机物,二者作为内部碳源促进了异养菌生长。另一反硝化菌 *Ignavibacterium* 在 $R2$ 和 $R3$ 中占比减少, $R4$ 中增加。*Ignavibacterium* 在 ANAMMOX 反应器普遍存在,具有在好氧和厌氧环境中分解有机物的能力^[35]。这也为 $R4$ 内部存在衰亡菌体提供了证据。另一方面,这些潜在的 DNB 能生活在自养生物分泌的可溶性微生物产物上,将有助于总氮的去除^[36]。菌属的广谱性提高了系统的稳定性,专一性保证了脱氮效果,二者在 AnGS 形成过程中实现了良好的平衡。此外,AAOB、AOB 和 DNB 共存说明颗粒内部和表面微环境不同,进而筛选出不同菌群。因此,控制反应条件对调节颗粒污泥菌群结构十分重要。

2.2.3 微生物基因功能注释

Wang 等^[34]的研究表明,自养脱氮颗粒污泥床系统中,小颗粒具有较大的功能基因转录水平。然而,AnGS 形成过程中,基于粒径分化的细菌群落如何影响其基因功能表达还知之甚少,因此本研究进行了 COG 代谢功能分析,并通过 t 检验找出典型样本具有显著差异的基因功能。COG 代谢功能主要包括:细胞结构和能动性、转运和代谢、信号传导和防御机制等相关细胞生化过程。

图 5(a)显示了 5 组样品基于 COG 的功能结构分布及丰度, $R3$ 总体功能优于其他 4 组,特别是在: [C] 能源生产和转换; [F] 核苷酸运输和代谢; [G] 碳水化合物的运输和代谢; [H] 辅酶的运输和代谢; [L] 复制、重组和修复; [J] 翻译、核糖体结构与生物发生等方面。 $R4$ 次之,而 $R0$ 和 $R1$ 的功能基因丰度相对最弱。这说明在多种酶的调控下, $R3$ 中 AAOB 各功能体的联系更密切,调节其更快地进行着基因构建与能量转换等生化反应,进一步促进细菌细胞的增殖,使其活性得到提高。此外,核糖体是蛋白质产生的场所,由此推断 $R3$ 分泌大量蛋白进行细胞合成,完成了良好的代谢和信号传输。 $R4$ 由于尺寸过大,传输受阻,造成部分功能菌损失,进而导致功能基因转录水平的下调,影响了细菌细胞活动。 $R0$ 和 $R1$ 则因为完整的颗粒结构尚未建立,因

此微生物间协调和信息表达功能不佳。

进一步进行样本间差异对比发现[图 5(b)和 5(c)], $R3$ 在基因复制、重组和修复、能源生产转化和细胞壁和膜生物产生方面显著优于 $R0$,而在脂质、碳水化合物和氨基酸的转运代谢方面低于 $R0$ 。分析由于粒径增加实现了功能菌积累,进而抵抗性和细胞活性都得到增强,但也限制了部分有机质的运输转化。 $R3$ 和 $R4$ 在信号转导、细胞运动、基因复制重组、能源生产转化、细胞内运输和碳水化合物以及离子的运输方面具有显著差异。这得益于 $R4$ 内部的孔隙的双重作用,部分缓解了底物的传输限制,或者说这是以部分功能菌衰亡来平衡剩余菌体的运输代谢水平提高的一种调节机制,应作为预警。

综上,不同尺寸 AnGS 基于不同菌群分化,会产生不同的基因功能表达水平,粒径增加在提高能量转换水平的同时也限制了运输。总的来说, $R3$ 在二者间达到了良好平衡,积极作用占主导而呈现出最佳的功能表达, $R4$ 则有超越平衡失稳趋势。由此,保持合理的微生物群落组合模式至关重要。

2.2.4 组间差异分析和进化矩阵

为了考察群落差异,将样本进行基于 OTU 的 PCA 分析(图 6)。根据样本在主坐标轴的投影和位置分布,将它们分为 3 个递进组:颗粒污泥(G)和絮体污泥(S);较成熟颗粒污泥($R2 \sim R4$);成熟颗粒污泥($R3$ 和 $R4$)。3 组范围区域不断缩小,最终在图像左上方聚集,代表组间样本相关性提高。 $R4$ 的进化方向并未延续 $R3$ 而是偏向 $R2$,即其与 PCA1 的相关性减弱,也表明粒径过大对 AnGS 结构的负作用。

不同种类细菌的相对丰度对于描述群落变化至关重要,进一步对 OTU 分类,通过加权 UniFrac 算法,根据丰度信息对分支进行权重,以检测每个谱系中存在的生物体的变化。计算样本间的距离矩阵,如表 2 所示。间距较短的样本代表相似序列较多,例如 $R0$ 和 $R1$, $R2$ 和 $R3$,这说明粒径接近的 AnGS 具有相似的菌群丰度。但 $R1$ 与 $R2$ 距离较远,预示着群落结构发生了明显变化。通过上文分析, $R2$ 中 AAOB 开始积累,活性迅速提高,即 $1.18 \sim 2.8$ mm 意味着颗粒结构初步建立,产生明显区别于絮体污泥的性能。与图 6 结果一致,距离最短的是 $R3$ 和 $R4$,它们谱系之间的相似性最高,表现为完整 AnGS 功能结构形成。最长的是 $R0$ 和 $R3$, $R3$ 具有最专一的菌群组成,相反絮体污泥菌群组成较复杂,这种差异代表了由 ANAMMOX 污泥形态由絮体向颗粒演化的过程。综上,絮体污泥形成颗粒污

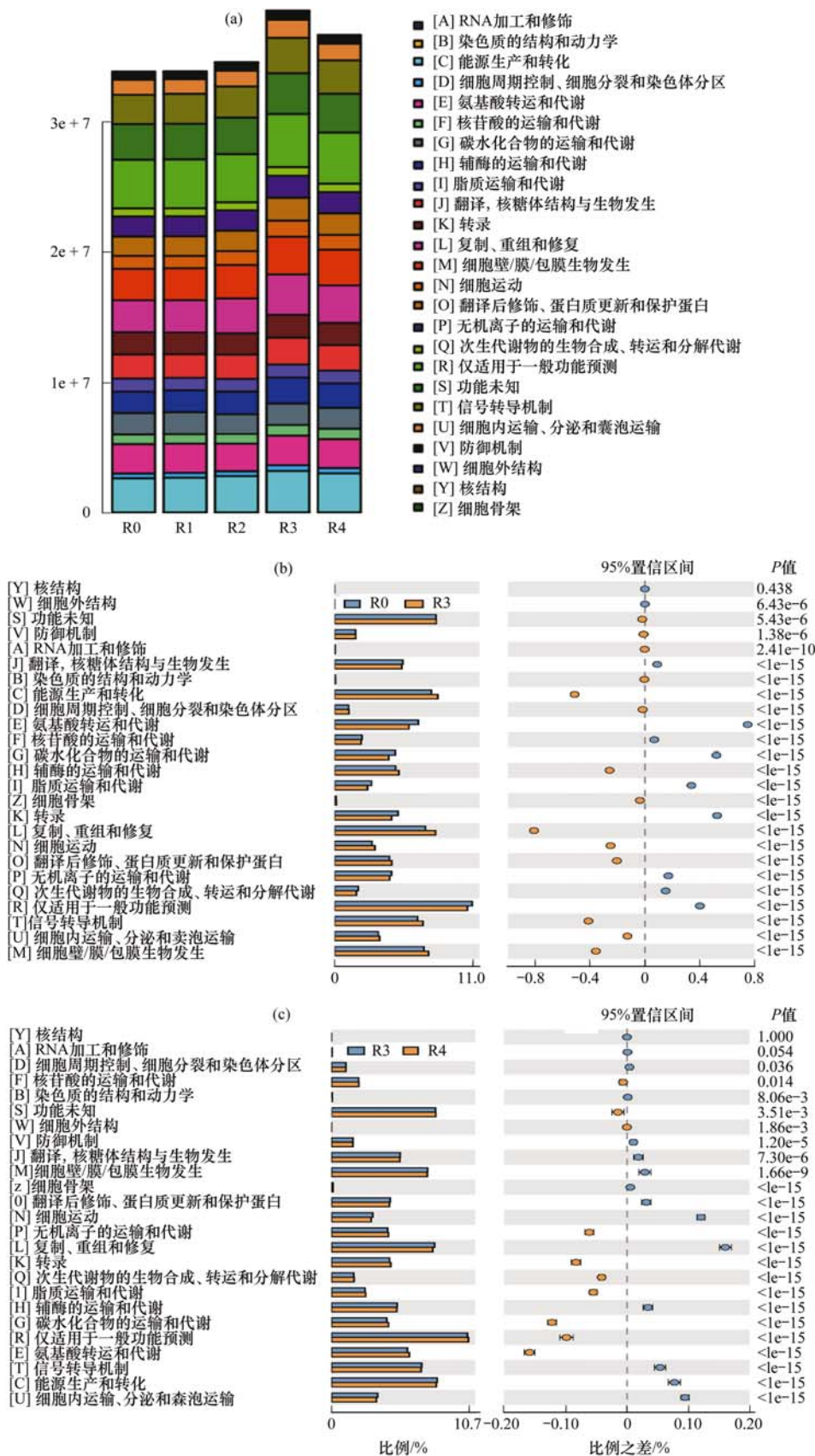


图 5 COG 代谢功能分析

Fig. 5 Metabolic function analysis of COG

泥是 OTU 逐级进化的过程,伴随着粒径的增加,实现了功能菌富集和杂菌淘汰,菌群组成趋于专一。

R3 已具备完整颗粒功能结构,尺寸的进一步增加会破坏这种稳定。

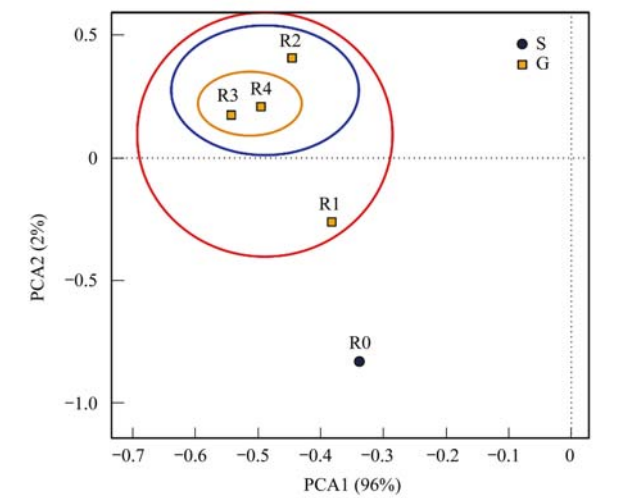


图6 基于 OTU 的 PCA 图

Fig. 6 PCA diagram based on OTU

表2 样本间的距离矩阵

Table 2 Distance matrix between samples					
	R0	R1	R2	R3	R4
R0	0.00	0.17	0.30	0.35	0.27
R1	0.17	0.00	0.26	0.32	0.24
R2	0.30	0.26	0.00	0.15	0.16
R3	0.35	0.32	0.15	0.00	0.13
R4	0.27	0.24	0.16	0.13	0.00

3 结论

(1)ANAMMOX 活性与粒径成正相关,R4(> 4.75 mm)的 SAA 最高达到 426.8 mg·(g·d)⁻¹,是絮体污泥的近 4 倍.粒径增长增强了 AnGS 对负荷冲击的抵抗性,但也阻碍了传质.

(2)不同尺寸颗粒内部微环境不同,引起微生物分化,絮体富含 AOB,而 AAOB 在颗粒中富集. R3 (2.8 ~ 4.75 mm)功能菌 *Candidatus Kuenenia* 占比达到 52.7%,但 R4 粒径过大,有限的传质导致功能菌减少,异养菌增多.

(3)颗粒污泥形成过程中,群落组成趋于专一,但菌属间迁移转化普遍存在. 菌群差异对 ANAMMOX 脱氮的化学计量比产生影响. 亚硝化单胞菌(*Nitrosomonas*)和短程反硝化菌(*Thauera*)的存在导致 AnGS 脱氮比偏小.

(4)稳定的菌群结构是促进 AnGS 性能提高的关键因素. R3 具有最高的功能菌占比和群落专一性,有利于上调微生物的功能基因表达水平,使其在能源生产和转换、物质运输和代谢基因重组修复等方面显著优于小颗粒.

(5)絮体污泥形成颗粒污泥是 OTU 逐级进化的过程,随着粒径的增加,实现了功能菌富集和杂菌淘汰. R2 (1.18 ~ 2.8 mm)颗粒结构初步建立,产生明显区别于絮体污泥的性能. R3 已具备完整功能颗粒

结构,尺寸的进一步增加会对 AnGS 产生负作用.

参考文献:

[1] Kuenen J G. Anammox bacteria: from discovery to application [J]. Nature Reviews Microbiology, 2008, 6(4): 320-326.

[2] Lackner S, Gilbert E M, Vlaeminck S E, et al. Full-scale partial nitrification/anammox experiences-an application survey [J]. Water Research, 2014, 55(10): 292-303.

[3] 郝晓地, 仇付国, Van der Star W R L, 等. 厌氧氨氧化技术工程化的全球现状及展望[J]. 中国给水排水, 2007, 23(18): 15-19.

Hao X D, Qiu F G, Van der Star W R L, et al. Global situation of developing ANAMMOX technology towards engineering application[J]. China Water (Wastewater), 2007, 23(18): 15-19.

[4] Tang C J, Zheng P, Zhang L, et al. Enrichment features of anammox consortia from methanogenic granules loaded with high organic and methanol contents [J]. Chemosphere, 2010, 79(6): 613-619.

[5] Lin X M, Wang Y Y. Microstructure of anammox granules and mechanisms endowing their intensity revealed by microscopic inspection and rheometry[J]. Water Research, 2017, 120: 22-31.

[6] Zhu G B, Wang S Y, Ma B, et al. Anammox granular sludge in low-ammonium sewage treatment: not bigger size driving better performance[J]. Water Research, 2018, 142: 147-158.

[7] Volcke E I P, Picoreanu C, De Baets B, et al. The granule size distribution in an anammox-based granular sludge reactor affects the conversion-implications for modeling[J]. Biotechnology and Bioengineering, 2012, 109(7): 1629-1636.

[8] Wu Y, Wang Y X, De Costa Y G, et al. The co-existence of anammox genera in an expanded granular sludge bed reactor with biomass carriers for nitrogen removal[J]. Applied Microbiology and Biotechnology, 2019, 103(3): 1231-1242.

[9] Chen R, Ji J Y, Chen Y J, et al. Successful operation performance and syntrophic micro-granule in partial nitrification and anammox reactor treating low-strength ammonia wastewater [J]. Water Research, 2019, 155: 288-299.

[10] Chen J W, Ji Q X, Zheng P, et al. Floatation and control of granular sludge in a high-rate anammox reactor [J]. Water Research, 2010, 44(11): 3321-3328.

[11] Lu H F, Zheng P, Ji Q X, et al. The structure, density and settlability of anammox granular sludge in high-rate reactors[J]. Bioresource Technology, 2012, 123: 312-317.

[12] 李津青, 韩晓宇, 黄京, 等. CANON 体系中颗粒污泥粒径及 C/N 比对反应器脱氮性能的影响 [J]. 中国科学院大学学报, 2018, 35(6): 845-850.

Li J Q, Han X Y, Huang J, et al. Effects of particle sizes and C/N ratios on the nitrogen removal performance in CANON system [J]. Journal of University of Chinese Academy of Sciences, 2018, 35(6): 845-850.

[13] Yuan Z G, Blackall L L. Sludge population optimisation: a new dimension for the control of biological wastewater treatment systems[J]. Water Research, 2002, 36(2): 482-490.

[14] 王晓瞳, 杨宏, 苏杨, 等. 生物滤池快速启动 ANAMMOX 运行策略及菌群特征[J]. 环境科学, 2020, 41(7): 3345-3355.

Wang X T, Yang H, Su Y, et al. Fast start-up ANAMMOX operation strategy and flora characteristics of a biofilter [J]. Environmental Science, 2020, 41(7): 3345-3355.

[15] 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. 323-334.
- [16] Van de Graaf A A, De Bruijn P, Robertson L A, *et al.* Autotrophic growth of anaerobic ammonium-oxidizing microorganisms in a fluidized bed reactor[J]. *Microbiology*, 1996, **142**(8): 2187-2196.
- [17] Liu Y Q, Liu Y, Tay J H. The effects of extracellular polymeric substances on the formation and stability of biogranules [J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2004, **65**(2): 143-148.
- [18] Xu X L, Liu G H, Zhao D M, *et al.* Enhancement of anammox bacterial activity by sodium glutamate[J]. *Chemosphere*, 2020, **244**, doi: 10.1016/j.chemosphere.2019.125570.
- [19] Wang H B, Hu C, Hu X X, *et al.* Effects of disinfectant and biofilm on the corrosion of cast iron pipes in a reclaimed water distribution system[J]. *Water Research*, 2012, **46**(4): 1070-1078.
- [20] Kindaichi T, Tsushima I, Ogasawara Y, *et al.* In situ activity and spatial organization of anaerobic ammonium-oxidizing (anammox) bacteria in biofilms[J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2007, **73**(15): 4931-4939.
- [21] Lu H F, Ji Q X, Ding S, *et al.* The morphological and settling properties of ANAMMOX granular sludge in high-rate reactors [J]. *Bioresource Technology*, 2013, **143**: 592-597.
- [22] 杨明明, 刘子涵, 周杨, 等. 厌氧氨氧化颗粒污泥 EPS 及其对污泥表面特性的影响[J]. *环境科学*, 2019, **40**(5): 2341-2348.
- Yang M M, Liu Z H, Zhou Y, *et al.* Extracellular polymeric substances of ANAMMOX granular sludge and its effects on sludge surface characteristics[J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(5): 2341-2348.
- [23] Hou X L, Liu S T, Zhang Z T. Role of extracellular polymeric substance in determining the high aggregation ability of anammox sludge[J]. *Water Research*, 2015, **75**: 51-62.
- [24] Kartal B, Maalcke W J, De Almeida N M, *et al.* Molecular mechanism of anaerobic ammonium oxidation[J]. *Nature*, 2011, **479**(7371): 127-130.
- [25] Gonzalez-Gil G, Seghezzi L, Lettinga G, *et al.* Kinetics and mass-transfer phenomena in anaerobic granular sludge [J]. *Biotechnology and Bioengineering*, 2001, **73**(2): 125-134.
- [26] Tang C J, Zheng P, Wang C H, *et al.* Performance of high-loaded ANAMMOX UASB reactors containing granular sludge [J]. *Water Research*, 2011, **45**(1): 135-144.
- [27] 曹雁, 王桐屿, 秦玉洁, 等. 厌氧氨氧化反应器脱氮性能及细菌群落多样性分析[J]. *环境科学*, 2017, **38**(4): 1544-1550.
- Cao Y, Wang T Y, Qin Y J, *et al.* Nitrogen removal characteristics and diversity of microbial community in ANAMMOX reactor[J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(4): 1544-1550.
- [28] Wang X J, Yang R L, Guo Y, *et al.* Investigation of COD and COD/N ratio for the dominance of anammox pathway for nitrogen removal via isotope labelling technique and the relevant bacteria [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2019, **366**: 606-614.
- [29] Yang H, Li D, Zeng H P, *et al.* Long-term operation and autotrophic nitrogen conversion process analysis in a biofilter that simultaneously removes Fe, Mn and ammonia from low-temperature groundwater [J]. *Chemosphere*, 2019, **222**: 407-414.
- [30] Zhao Y P, Liu S F, Jiang B, *et al.* Genome-centered metagenomics analysis reveals the symbiotic organisms possessing ability to cross-feed with anammox bacteria in anammox consortia [J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, **52**(19): 11285-11296.
- [31] Kindaichi T, Yuri S, Ozaki N, *et al.* Ecophysiological role and function of uncultured *Chloroflexi* in an anammox reactor[J]. *Water Science & Technology*, 2012, **66**(12): 2556-2561.
- [32] Zheng B Y, Zhang L, Guo J H, *et al.* Suspended sludge and biofilm shaped different anammox communities in two pilot-scale one-stage anammox reactors[J]. *Bioresource Technology*, 2016, **211**: 273-279.
- [33] 杨洋, 左剑恶, 沈平, 等. 温度、pH 值和有机物对厌氧氨氧化污泥活性的影响[J]. *环境科学*, 2006, **27**(4): 691-695.
- Yang Y, Zuo J E, Shen P, *et al.* Influence of temperature, pH value and organic substance on activity of ANAMMOX Sludge [J]. *Environmental Science*, 2006, **27**(4): 691-695.
- [34] Wang L, Zheng P, Xing Y J, *et al.* Effect of particle size on the performance of autotrophic nitrogen removal in the granular sludge bed reactor and microbiological mechanisms [J]. *Bioresource Technology*, 2014, **157**: 240-246.
- [35] Liu Z F, Frigaard N U, Vogl K, *et al.* Complete genome of *Ignavibacterium album*, a metabolically versatile, flagellated, facultative anaerobe from the phylum Chlorobi[J]. *Frontiers in Microbiology*, 2012, **3**, doi: 10.3389/fmicb.2012.00185.
- [36] Ni B J, Rusalleda M, Smets B F, *et al.* Evaluation on the microbial interactions of anaerobic ammonium oxidizers and heterotrophs in Anammox biofilm[J]. *Water Research*, 2012, **46**(15): 4645-4652.

CONTENTS

Contributors to Air Pollutant Emission Changes in Autumn and Winter in Beijing-Tianjin-Hebei and Surrounding Areas	TANG Qian, ZHENG Bo, XUE Wen-bo, <i>et al.</i> (1591)
Characteristics and Meteorological Factors of Complex Nonattainment Pollution of Atmospheric Photochemical Oxidant (O_x) and $PM_{2.5}$ in the Pearl River Delta Region, China	YAN Feng-hua, CHEN Wei-hua, CHANG Ming, <i>et al.</i> (1600)
Source Apportionment of Ozone Pollution in Guangzhou; Case Study with the Application of Lagrangian Photochemical Trajectory Model	PEI Cheng-lei, MU Jiang-shan, ZHANG Ying-nan, <i>et al.</i> (1615)
Chemical Composition and Source Analysis of $PM_{2.5}$ in Yuncheng, Shanxi Province in Autumn and Winter	ZHAO Qing, LI Xing-ru, WANG Guo-xuan, <i>et al.</i> (1626)
Temporal Trend of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Atmosphere Within 24 Hours After Snowfall	FAN Hui-ze, ZHU Fu-jie, HU Peng-tuan, <i>et al.</i> (1636)
Determination Method and Characteristics of Particle Size Multiplier of $PM_{2.5}$ in Road Dust	LI Dong, CHEN Jian-hua, ZHANG Yue-fan, <i>et al.</i> (1642)
Source Profiles and Impact of VOCs Based on Production Processes in Foundry Industries	GAO Shuang, LI Shi-bei, BO Xin, <i>et al.</i> (1649)
Emission Characteristics and Toxicity Effects of Halogenated Polycyclic Aromatic Hydrocarbons from Coal-Fired and Waste Incineration Power Plants	NI Xiu-feng, WANG Ru-wei, CAI Fei-xuan, <i>et al.</i> (1660)
Concentration and Particle Size Distribution Characteristics of Microbial Aerosol and Bacterial Community Structure During Spring in Lanzhou City, China	ZHAO Wei, LI Jie, XIE Hui-na, <i>et al.</i> (1668)
Optimization Method and Case Study of Air Pollution Emission Spatial Pattern	LI Min-hui, LIAO Cheng-hao, CHANG Shu-cheng, <i>et al.</i> (1679)
Influence of $PM_{2.5}$ Pollution on Health Burden and Economic Loss in China	LI Yong, LIAO Qin, ZHAO Xiu-ge, <i>et al.</i> (1688)
Identify the Nitrate Sources in Different Land Use Areas Based on Multiple Isotopes	JIN Zan-fang, HU Jing, WU Ai-jing, <i>et al.</i> (1696)
Hydrochemical Characteristic and Their Controlling Factors in the Yarkant River Basin of Xinjiang	ZHANG Jie, ZHOU Jin-long, ZENG Yan-yan, <i>et al.</i> (1706)
Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of Heavy Metals in the Water of Lijiang River Basin	HUANG Hong-wei, XIAO He, WANG Dun-qiu, <i>et al.</i> (1714)
Changes in Concentrations and Pollution Levels of Trace Elements of Floodplain Sediments of Poyang Lake Basin in Recent Twenty Years	LI Kuo, YANG Ke, PENG Min, <i>et al.</i> (1724)
Hydrochemical and Isotopic Characteristics in the Shallow Groundwater of the Fenhe River Basin and Indicative Significance	LIU Xin, XIANG Wei, SI Bing-cheng (1739)
Major Ionic Characteristics and Factors of Karst Groundwater at Huixian Karst Wetland, China	LI Jun, ZOU Sheng-zhang, ZHAO Yi, <i>et al.</i> (1750)
Hydrochemistry Characteristics and Estimation of the Dissolved Inorganic Carbon Flux in the Caohai Lake Wetland Catchment of Guizhou Province	CAO Xing-xing, WU Pan, YANG Shi-di, <i>et al.</i> (1761)
Concentration Levels and Potential Ecological Risks of Current Use Pesticides in the Surface Seawater of Typical Liaoning Sea Areas	DU Jing, HU Chao-kui, XIE Huai-jun, <i>et al.</i> (1772)
Levels, Characteristics, and Potential Source of Micro(meso)plastic Pollution of Soil in Liaohe River Basin	HAN Li-hua, XU Li, LI Qiao-ling, <i>et al.</i> (1781)
PAHs Pollution Characteristics and Source Analysis of Typical Lake and Reservoir Sediments in Jin-Ji-Liao Area	WU Peng, LU Yi-ren, LI Hui, <i>et al.</i> (1791)
Pollution Characteristics and Risk Assessment of Organophosphate Esters in Rivers and Water Body Around Taihu Lake	ZHANG Wen-ping, ZHANG Zhen-fei, GUO Chang-sheng, <i>et al.</i> (1801)
Spatiotemporal Distributions and Ecological Risk Assessments of Typical Antibiotics in Surface Water of Taihu Lake	DING Jian-nan, LIU Shu-jiao, ZOU Jie-ming, <i>et al.</i> (1811)
Characteristics of Volatile Organic Compounds Pollution and Risk Assessment of Nansi Lake in Huaihe River Basin	CHENG Yun-xuan, GAO Qiu-sheng, LI Jie, <i>et al.</i> (1820)
Distribution, Source, and Ecological Risk Evaluation of the PAHs and PCBs in the Sediments from Sanya River	ZHAN Yong, WEI Ting-ting, YE Hui-bin, <i>et al.</i> (1830)
Spatiotemporal Change and Source Apportionment of Non-point Source Nitrogen and Phosphorus Pollution Loads in the Three Gorges Reservoir Area	LI Ming-long, JIA Meng-dan, SUN Tian-cheng, <i>et al.</i> (1839)
Effect of the Combined Use of Denitrifying Bacteria, Calcium Nitrate, and Zirconium-Modified Zeolite on the Mobilization of Nitrogen and Phosphorus in Sediments and Evaluation of Its Nitrate-Nitrogen Releasing Risk	XIN Hui-min, LIN Jian-wei, ZHAN Yan-hui (1847)
Combined Remediation of Eutrophic Water by Phoslock® and Aerobic Denitrifying Bacteria	LI Bing-tang, ZHOU Zhi-qin, Ravi Naidu, <i>et al.</i> (1861)
Biodegradation of Algae-derived Organic Matter (I-DOM) from Lake Taihu	ZHANG Qiao-ying, SUN Wei, DU Ying-xun, <i>et al.</i> (1870)
Structure Characteristics and Driving Variables of Epilithic Algae Community in Lhasa River Basin of Qinghai-Tibet Plateau	WEI Jun-wei, LI Hong-ran, WANG Xing-zhong, <i>et al.</i> (1879)
Spectral Characteristics and Sources of Dissolved Organic Matter from Landscape River During Flood Season in Suzhou Based on EEMs and UV-vis	HE Jie, ZHU Xue-hui, WEI Bin, <i>et al.</i> (1889)
Adsorption and Desorption Behaviors of Antibiotics on TWP and PVC Particles Before and After Aging	FAN Xiu-lei, ZOU Ye-feng, LIU Jia-qiang, <i>et al.</i> (1901)
Synthesis of Magnetic Iron Modifying Biochar for Ammonia Nitrogen Removal from Water	WANG Fang-jun, SANG Qian-qian, DENG Ying, <i>et al.</i> (1913)
Seasonal Effects of Influent Ammonia Oxidizing Bacteria of Municipal Wastewater Treatment Plants on Activated Sludge System	YU Li-fang, WANG Yu, HUA Si-si, <i>et al.</i> (1923)
Analysis of Performance and Microbial Diversity of ANAMMOX Sludge Based on Particle Size Differentiation	WANG Xiao-tong, YANG Hong (1930)
Effects of Chlorine Dioxide Disinfection on the Profile of the Super Antibiotic Resistance Genes in a Wastewater Treatment Plant	CHENG Chun-yan, LI Hai-bei, LIANG Yong-bing, <i>et al.</i> (1939)
Effects of PES and 2,4-DCP on the Extracellular Polymeric Substances and Microbial Community of Anaerobic Granular Sludge	LIN Xu-meng, SU Cheng-yuan, WU Shu-min, <i>et al.</i> (1946)
Characteristics of Sludge and Associated Risk Assessment of Urban Sewage Treatment Plants	LI Juan, LI Jin-xiang, YANG Yan-yan (1956)
Effects of Climate Warming on the Key Process and Index of Black Soil Carbon and Nitrogen Cycle During Freezing Period	WANG Zi-long, LIU Chuan-xing, JIANG Qiu-xiang, <i>et al.</i> (1967)
Effects of Combined Application of Biogas Slurry and Straw on the Migration and Fractions of Soil Heavy Metals in Rice-wheat Rotation System in Coastal Reclamation Areas	WANG Wei, ZHOU Jun-nan, TANG Yi-fan, <i>et al.</i> (1979)
Geochemical Survey Method of Land Quality in Land Parcel Scale City: A Case Study of the Initial Area of the Xiong'an New District	ZHOU Ya-long, GUO Zhi-juan, LIU Fei, <i>et al.</i> (1989)
Potential Ecological Risk Assessment and Source Analysis of Heavy Metals in Soil-crop System in Xiong'an New District	ZHOU Ya-long, YANG Zhi-bin, WANG Qiao-lin, <i>et al.</i> (2003)
Cadmium Accumulation Characteristics and Impacting Factors of Different Rice Varieties Under Paddy Soils with High Geological Backgrounds	DAI Zi-wen, FANG Cheng, SUN Bin, <i>et al.</i> (2016)
Effects of Different Exogenous Selenium Species Application on Growth and Cadmium Uptake of Pak Choi in Cadmium Contaminated Soil	LIU Yang, QI Ming-xing, WANG Min, <i>et al.</i> (2024)
Influencing Factors of Cadmium Bioaccumulation Factor in Crops	CHEN Jie, WANG Juan, WANG Yi-wen, <i>et al.</i> (2031)
Effects of Different Exogenous Plant Hormones on the Antioxidant System and Cd Absorption and Accumulation of Rice Seedlings Under Cd Stress	ZHANG Sheng-nan, HUANG Yi-zong, LI Yan, <i>et al.</i> (2040)
Effects of Different Organic Materials on Absorption and Translocation of Arsenic and Cadmium in Rice	LI Kai-ye, ZHAO Ting-ting, CHEN Jia, <i>et al.</i> (2047)
Soil Fungal Community Structure and Functional Diversity in a Copper Tailing Dam and Its Surrounding Areas	CHEN Jian-wen, ZHANG Hong, LI Jun-jian, <i>et al.</i> (2056)
Potential of Arbuscular Mycorrhizal Fungi, Biochar, and Combined Amendment on Sandy Soil Improvement Driven by Microbial Community	ZHANG Zhe-chao, YANG Jiu-yang, HAO Bai-hui, <i>et al.</i> (2066)
Animal Manure Fertilization Promotes Antibiotic Resistance Gene Dissemination Among Manure, Soil, and Vegetables	ZHANG Hong-na, DONG Meng-jie, ZHOU Yu-fa, <i>et al.</i> (2080)
Establishment and Application of Performance Evaluation and Obstacle Diagnosis Model for Regional Water Ecological Civilization Construction	WAN Bing-tong, BAO Xue-ying, ZHAO Jian-chang, <i>et al.</i> (2089)