

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

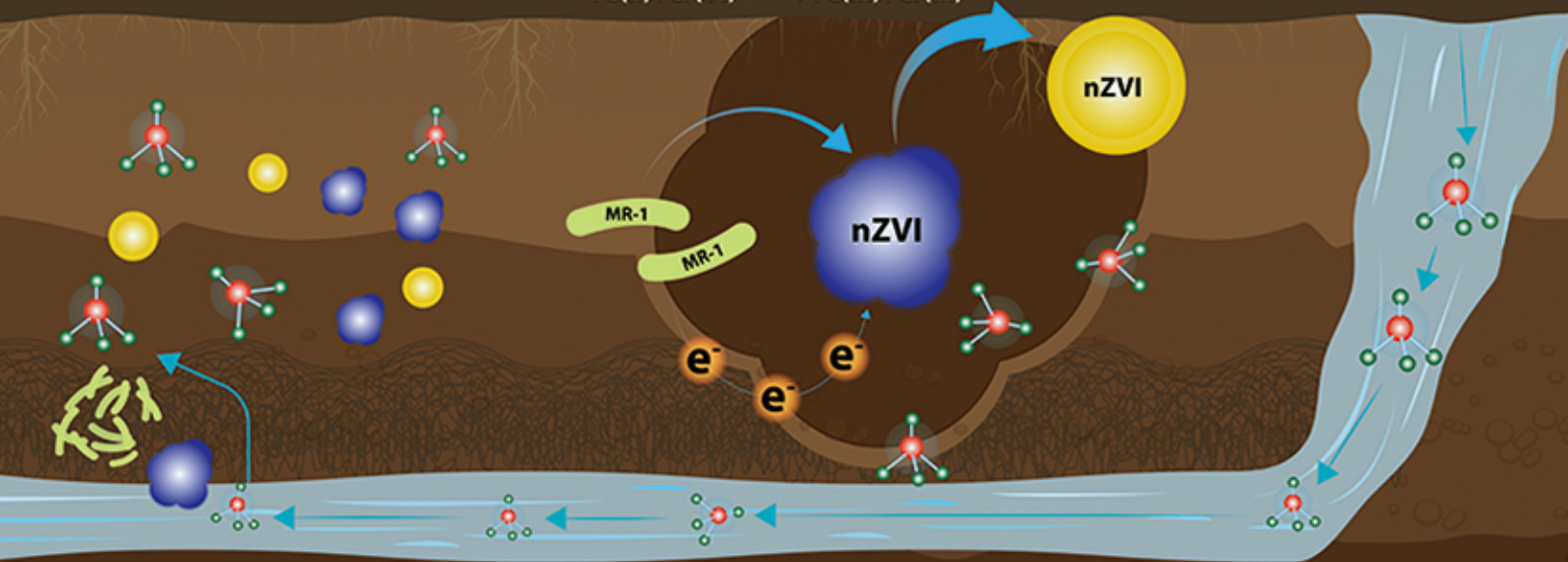
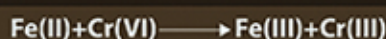
环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV
HUANJING KEXUE

电活性微生物激活生物质炭/零价铁协同钝化Cr(VI)及机制

廖聪坚, 赵晓蕾, 刘凯, 钟松雄, 李芳柏, 方利平, 叶挺进, 石虎砚



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2021年9月

第42卷 第9期
Vol.42 No.9

目次

北京市 2014~2020 年 PM _{2.5} 和 O ₃ 时空分布与健康效应评估	陈菁, 彭金龙, 徐彦森 (4071)
京津冀地区高分辨率 PM _{2.5} 浓度时空变化模拟与分析	杨晓辉, 宋春杰, 范丽行, 张凌云, 魏强, 李夫星, 王丽艳, 王卫 (4083)
京津冀典型城市冬季人为源减排与气象条件对 PM _{2.5} 污染影响	邵玄逸, 王晓琦, 钟巍盛, 王瑞鹏 (4095)
太行山两侧污染物传输对横谷城市气溶胶的影响分析	王雁, 郭伟, 闫世明, 裴坤宁, 李明明, 陈二萍 (4104)
嘉善冬季碳质气溶胶变化特征及其来源解析	张颖龙, 李莉, 吴伟超, 吕升, 秦阳, 祝新明, 高晋徽, 唐倩, 夏峰 (4116)
基于机器学习算法的新冠疫情管控对河南省空气质量影响的模拟分析	魏煜, 徐起翔, 赵金帅, 张瑞芹 (4126)
新乡市大气 PM _{2.5} 载带金属元素季节分布、来源特征与健康风险	刘恒嘉, 贾梦珂, 刘永丽, 赵艺洁, 郑爱华, 刘恒志, 徐肃阳, 肖晴晴, 苏晓燕, 任言 (4140)
黄渤海气溶胶中砷的分布特征和季节变化	袁帅, 王艳, 刘汝海, 种习习, 刘晓雨, 邵龙 (4151)
天津市 2020 年冬季重污染过程气溶胶消光特性及其来源	李立伟, 肖致美, 杨宁, 蔡子颖, 闫斌峰, 元洁, 白宇, 郑乃源, 唐邈 (4158)
中国暖季近地面臭氧浓度空间格局演变及主要气象驱动因素	何超, 慕航, 杨璐, 王丹璐, 邱彦峰, 叶志祥, 易嘉慧, 柯碧钦, 田雅, 洪松 (4168)
乌海市夏季臭氧污染特征及基于过程分析的成因探究	张瑞欣, 陈强, 夏佳琦, 刘晓, 郭文凯, 李光耀, 陈梅 (4180)
珠江三角洲海岸背景区大气 VOCs 污染特征与来源	云龙, 李成柳, 张明棣, 何龙, 郭键锋 (4191)
永定河上游地表水-地下水水化学特征及其成因分析	孔晓乐, 杨永辉, 曹博, 王艺璇, 裴宏伟, 沈彦军 (4202)
汉江中下游水质时空变异与驱动因素识别	程兵芬, 张远, 夏瑞, 张楠, 张新飞 (4211)
环境持久性药物在江苏省地表水中的污染水平、分布特征及生态风险评估	赵美美, 范德玲, 古文, 汪贞, 梁梦园, 刘济宁, 张志 (4222)
柳江流域河流溶解态重金属时空分布及污染评价	张婉军, 辛存林, 于爽, 刘齐, 曾鹏 (4234)
雷州半岛地下水重金属来源解析及健康风险评价	师环环, 潘羽杰, 曾敏, 黄长生, 侯清芹, 皮鹏程, 彭红霞 (4246)
龙子祠泉域地下水金属元素分布特征及健康风险评价	谢浩, 梁永平, 李军, 邹胜章, 申豪勇, 赵春红, 王志恒 (4257)
硫氧同位素解析典型岩溶地下河流域硫酸盐季节变化特征和来源	任坤, 潘晓东, 兰干江, 彭聪, 梁嘉鹏, 曾洁 (4267)
包头南海湿地磷形态及污染源定量识别	拜亚红, 钱晨歌, 袁思静, 谢子嫣, 来凌子, 张敏, 刘颖, 苗春林 (4275)
城市新城区公园沟塘沉积物磷释放风险及影响因素分析	李如忠, 宋敏, 杨继伟 (4287)
水力停留时间对潜流湿地净化效果影响及脱氮途径解析	齐冉, 张灵, 杨帆, 颜昌宙 (4296)
锰砂人工湿地对污染物的强化去除	马权, 王东麟, 林慧, 柏耀辉 (4304)
4 种典型沉水植物对去除磷污染底泥的应用效果	陶理, 王沛芳, 袁秋生, 王洵, 胡斌 (4311)
输水情景下白洋淀好氧反硝化菌群落对溶解性有机物的响应	周石磊, 张甜娜, 陈召莹, 张紫薇, 于明会, 姚波, 崔建升, 罗晓 (4319)
木屑生物炭在雨水径流中的氮磷淋出和吸附特性	孟依柯, 王媛, 汪传跃 (4332)
海州湾潮间带沙蚕对沉积物微塑料的指示作用	王嘉旋, 宋可心, 孙一鑫, 方涛, 李瑾祯, 张涛, 冯志华 (4341)
纳米二氧化钛与镉对斜生栅藻 (<i>Scenedesmus obliquus</i>) 生长的拮抗效应及其作用机制	王璞, 赵丽红, 朱小山 (4350)
螺旋霉素废水处理过程中菌群结构、水质特征及抗性基因之间关系分析	武彩云, 李慧莉, 覃彩霞, 佟娟, 魏源送 (4358)
整合铁对厌氧铁氨氧化脱氮效能及微生物群落的影响	廖宏燕, 宋诚, 万柳杨, 时绍鹏, 王兴祖 (4366)
溶解氧对低碳源城市污水处理系统脱氮性能与微生物群落的影响	池玉蕾, 石炬, 任童, 王晓昌, 金鹏康 (4374)
间歇梯度曝气下缩短 SRT 强化短程 SNEDPR 系统脱氮除磷	张玉君, 李冬, 王歆鑫, 张杰 (4383)
生物膜系统中部分反硝化实现特性	于莉芳, 张兴秀, 张琼, 王晓玉, 彭党聪, 张日霞 (4390)
厌氧推流进水对反硝化除磷好氧颗粒污泥系统的影响	李冬, 曹思雨, 王琪, 张杰 (4399)
不同好氧/缺氧时长联合分区排泥优化生活污水短程硝化反硝化除磷颗粒系统运行	王文琪, 李冬, 高鑫, 张杰 (4406)
中国西南地区金属矿开采对矿区土壤重金属影响的 Meta 分析	张健琳, 瞿明凯, 陈剑, 杨兰芳, 赵永存, 黄标 (4414)
青藏高原典型流域土壤重金属分布特征及其生态风险评价	杜昊霖, 王莺, 王劲松, 姚玉璧, 周悦, 刘晓云, 芦亚玲 (4422)
电子垃圾拆解区土壤-农作物系统中镉元素的空间分布特征及其风险评价	张璐瑶, 赵科理, 傅伟军 (4432)
改性生物炭特性表征及对冶炼厂周边农田土壤铜镉形态的影响	王鑫宇, 孟海波, 沈玉君, 王佳锐, 张曦, 丁京涛, 周海宾, 李春燕, 程琼仪 (4441)
组配改良剂联合锌肥对土壤-水稻系统镉迁移转运的影响	周坤华, 周航, 王子钰, 刘雅, 刘佳伟, 辜娇峰, 曾鹏, 廖柏寒 (4452)
不同结构改良剂对铜镉污染土壤水稻生长和重金属吸收的影响	魏玮, 李平, 郎漫 (4462)
1 株草螺属植物内生菌 R-13 的分离鉴定及对龙葵吸收土壤镉的影响	鹿杰, 刘月敏, 黄永春, 王常荣, 刘斌, 刘仲齐, 黄益宗, 黄雁飞, 张长波 (4471)
不同地区土壤古菌群落对重金属污染响应	李雨桐, 杨杉, 张艺, 范例, 刘坤, 张晟 (4481)
高通量测序分析黄土高原退耕还林区土壤细菌群落特征	刘晓华, 魏天兴 (4489)
餐厨垃圾生物发酵液对黄土丘陵区土壤质量的影响试验	邵立明, 任俊达, 吕凡, 章骅, 何晶晶 (4500)
秦岭不同海拔土壤团聚体稳定性及其与土壤酶活性的耦合关系	马震菲, 胡汗, 李益, 郭鑫鑫, 任成杰, 赵发珠 (4510)
电活性微生物激活生物炭/零价铁协同钝化 Cr(VI) 及机制	廖聪坚, 赵晓蕾, 刘凯, 钟松雄, 李芳柏, 方利平, 叶挺进, 石虎砚 (4520)
降水变化对荒漠草原土壤呼吸的影响	蒿廉伊, 张丽华, 谢忠奎, 赵锐锋, 王军锋, 郭亚飞, 高江平 (4527)
氮肥分施次数及硝化抑制剂对盆栽玉米 N ₂ O 排放的影响	符佩娇, 吉恒宽, 何秋香, 汤水荣, 王鸿浩, 伍延正, 孟磊 (4538)
负载 NH ₄ ⁺ -N 生物炭对土壤 N ₂ O-N 排放和 NH ₃ -N 挥发的影响	马晓刚, 何建桥, 陈玉蓝, 李德天, 刘川, 董建新, 郑学博 (4548)
微塑料添加对橘园土壤有机碳矿化的影响	张秀玲, 鄢紫薇, 王峰, 王玺, 徐晗, 胡荣桂, 严昶, 林杉 (4558)
1985~2019 年中国全氟辛酸磺酰基化合物的动态物质流分析	王佳钰, 陈景文, 唐伟豪, 崔蕴晗, 王中钰, 宋国宝, 陈伟强 (4566)
《环境科学》征订启事 (4201) 《环境科学》征稿简则 (4340) 信息 (4382, 4537, 4565)	

螯合铁对厌氧铁氨氧化脱氮效能及微生物群落的影响

廖宏燕^{1,2}, 宋诚¹, 万柳杨^{1,2}, 时绍鹏^{1,2}, 王兴祖^{1*}

(1. 中国科学院重庆绿色智能技术研究院, 水污染过程与防治研究中心, 重庆 400714; 2. 中国科学院大学, 北京 100049)

摘要: 为深入了解厌氧铁氨氧化反应微生物群落组成特征, 本实验选取螯合铁对厌氧铁氨氧化脱氮效果进行了研究, 并分析了微生物群落结构、功能及共现网络关系. 厌氧反应器经过 77 d 运行, 腐殖酸铁组、柠檬酸铁组、乙二胺四乙酸铁钠组和氨三乙酸铁组总氮去除率分别为 83.32%、43.67%、55.07% 和 12.65%, 腐殖酸铁是厌氧铁氨氧化更有效的电子受体. 反应结束后, 腐殖酸铁组中的脱氮菌群 Comamonadaceae 丰度约为 17.57%, 柠檬酸铁组中铁还原菌群 *Clostridium* 丰度为 47.70%, 乙二胺四乙酸铁钠组中脱氮菌群 *Thermomonas* 丰度为 20.11%. 微生物功能预测结果表明, 铁循环、硫循环和氮循环关系密切, 铁代谢和硫代谢对于脱氮有重要作用; 在腐殖酸铁组中, 铁呼吸和氮循环相关功能强度较其它组高. 通过共现网络推测出 *Tessaracoccus* 是螯合铁厌氧铁氨氧化体系的关键物种.

关键词: 厌氧铁氨氧化 (FEAMMOX); 脱氮; 群落结构; 功能预测; 共现网络; 关键物种

中图分类号: X172; X703 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2021)09-4366-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.202012216

Effect of Chelated Iron on Nitrogen Removal Efficiency and Microbial Community Structure in the Anaerobic Ferric Ammonium Oxidation

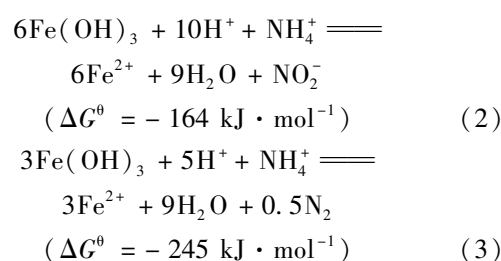
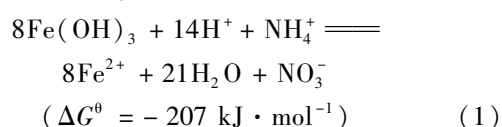
LIAO Hong-yan^{1,2}, SONG Cheng¹, WAN Liu-yang^{1,2}, SHI Shao-peng^{1,2}, WANG Xing-zu^{1*}

(1. Research Center for Process and Prevention of Water Pollution, Chongqing Institute of Green and Intelligent Technology, Chinese Academy of Sciences, Chongqing 400714, China; 2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: In order to understand the characteristics and interactions of the microbial community during the anaerobic ferric ammonium oxidation (FEAMMOX) process, this study investigated the effects of various forms of chelated iron on nitrogen removal efficiency and microbial community structure. After 77 days of reactor operation, the removal efficiency of total nitrogen was 83.32% for the ferric humate group, 43.67% for the ferric citrate group, 55.07% for the ferric sodium ethylene diamine tetraacetate group, and 12.65% for the ferric ammonium triacetate group. After the experiment, the abundance of denitrifying bacteria Comamonadaceae in ferric humate group was 17.57%, the abundance of *Clostridium* in ferric citrate group was 47.70%; and the abundance of denitrifying bacteria *Thermomonas* in the ferric sodium ethylene diamine tetraacetate group was 20.11%. This indicates that ferric humate is a more effective electron acceptor for the FEAMMOX process. The result of function prediction shows that the iron, sulfur, and nitrogen cycles are all closely related, with iron and sulfur metabolism playing an important role in nitrogen removal. In the humate group, iron respiration and the nitrogen cycle are more strongly correlated than other groups. Co-occurrence network analysis showed that the keystone species in the FEAMMOX process is *Tessaracoccus*.

Key words: anaerobic ferric ammonium oxidation (FEAMMOX); denitrification; community structure; function prediction; co-occurrence network; keystone species

近年来,发现了一种新的微生物氨氧化过程,即厌氧铁氨氧化. 在 2006 年,日本学者 Sawayama^[1] 的研究发现,在厌氧条件下,微生物能利用 Fe(III) 做电子受体将 NH_4^+ -N 氧化成 NO_2^- -N、 N_2 和 NO_3^- -N,并将此过程称为厌氧铁氨氧化反应. 已有研究发现在水稻土、湿地沉积物和湿地土壤中均有厌氧铁氨氧化现象发生^[2-4],厌氧铁氨氧化广泛发生在各种不同生态环境中,在自然界氮循环中起着重要作用. 同时,厌氧铁氨氧化过程无需有机碳源和曝气等优点给生物脱氮带来了新思路,也为氮铁循环的研究提供了新方向^[5]. 然而厌氧铁氨氧化反应过程复杂,如下列方程所示^[6]:



反应产物有 NO_2^- 、 NO_3^- 和 N_2 ,对 FEAMMOX 反应产物尚缺少调控的策略和方法^[7]. 这些过程都是由微生物进行,然而目前只分离纯化得到一株有铁

收稿日期: 2020-12-23; 修订日期: 2021-02-08

基金项目: 国家自然科学基金项目(52070179); 重庆市技术创新与应用发展专项重点项目(cstc2019jcsx-gksb0161)

作者简介: 廖宏燕(1996~),女,硕士研究生,主要研究方向为废水微生物脱氮处理, E-mail: liaohongyan18@mails.ucas.ac.cn

* 通信作者, E-mail: wangxingzu@cigit.ac.cn

还原和氨氧化功能的酸微菌 A6^[8],对相关微生物群落结构、功能及相互作用等认识不深,这些都是探究厌氧铁氨氧化微生物作用过程的主要阻碍.因此,了解厌氧铁氨氧化过程微生物群落特征、相关功能及微生物间的相互作用关系,对阐明厌氧铁氨氧化过程的生物学机制至关重要.

在微生物参与的铁循环过程中,铁化合物固体-溶解状态的转换,对微生物群落非常重要. Fe(Ⅲ)作为厌氧铁呼吸的末端电子受体, Fe(Ⅲ)矿物的溶解性能影响微生物对 Fe(Ⅲ)的利用^[9].一般情况下,微生物最易利用络合态 Fe(Ⅲ),其次是弱晶体 Fe(Ⅲ)氧化物,最难利用的是晶体 Fe(Ⅲ)氧化物,有些铁还原微生物比如 *Geothrix fermentans* 及 *Shewanella algae*,可分泌螯合物及电子穿梭体来增加 Fe(Ⅲ)的利用率^[10].因此对螯合铁的研究,可以解决 Fe(Ⅲ)的生物可利用性问题.厌氧铁氨氧化过程机制可通过富集培养相关菌种或驯化污泥的方式进行研究,刘志文^[11]将铁氨氧化菌制成磁性壳聚糖凝胶体,吴悦溪等^[12]将铁氨氧化污泥接种到厌氧反应器,进行厌氧铁氨氧化脱氮研究.原核生物分类群的功能注释 (FAPROTAX) 方法能分析微生物群落中功能^[13],为阐明和预测生物地球化学过程提供重要的信息,可以了解污泥中氮铁循环的联系及其相关功能注释强度^[14].微生物之间相互作用是影响群落功能的重要因素,微生物共现网络分析通过数学模型分析微生物互作关系^[15],可获得厌氧铁氨氧化过程群落的关键节点及规律.

本研究选取腐殖酸铁、柠檬酸铁、乙二胺四乙酸铁钠和氨三乙酸铁这 4 种类型螯合铁来研究螯合铁介导的厌氧铁氨氧化过程,分析反应器水质变化,并探讨污泥中微生物群落组成、功能及互作关系,以期对厌氧铁氨氧化过程的微生物群落特征提供理论基础.

1 材料与方法

1.1 实验材料

本实验所用模拟废水为: NH_4Cl $1.0 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 NaHCO_3 $1.0 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 KH_2PO_4 $0.20 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 MgSO_4 $0.25 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 、维生素 $1.0 \text{ mL}\cdot\text{L}^{-1}$ 和微量元素溶液 $1.0 \text{ mL}\cdot\text{L}^{-1}$,试剂均为分析纯(成都市科隆化学有限公司).本实验所用微量元素包含: $\text{MnCl}_2\cdot 4\text{H}_2\text{O}$ $0.10 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 H_3BO_3 $0.10 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $\text{FeSO}_4\cdot 7\text{H}_2\text{O}$ $0.20 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $\text{CoCl}_2\cdot 6\text{H}_2\text{O}$ $0.10 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $\text{CuCl}_2\cdot 2\text{H}_2\text{O}$ $0.01 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 ZnCl_2 $0.01 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $\text{Na}_2\text{MoO}_4\cdot 2\text{H}_2\text{O}$ $0.02 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $\text{NiCl}_2\cdot 6\text{H}_2\text{O}$ $0.02 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$.本实验所用维生素为:维生素 B_1 $0.05 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 、维生素 B_{12} 0.05

$\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 、烟酸 $0.05 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 、对氨基苯甲酸 $0.03 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 、吡哆酸 $0.01 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 、生物素 $0.05 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 、肌酸 $0.01 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 、叶酸 $0.01 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 、抗坏血酸 $0.01 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 和柠檬酸 $0.01 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$.铁源: Fe(Ⅲ) ($30 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$) 分别由 4 种螯合铁提供,乙二胺四乙酸铁钠 $30 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ 、柠檬酸铁 $30 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ 、氨三乙酸铁 $45 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ 和腐殖酸铁 $45 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$.

本实验在 1000 mL 广口瓶反应器中进行,每个反应器中加入 800 mL 营养液和 15 g 稻田土,通入氮气约 15 min 进行除氧操作,最后用胶塞密封,使装置保持在厌氧状态.置于 33°C 摇床 ($90 \text{ r}\cdot\text{min}^{-1}$) 中放置 77 d ,运行期间考察废水中氮的变化,污泥微生物群落结构、功能及相互作用关系.

1.2 水质分析方法

分析方法均采用国家水质检测标准测定^[16]. NH_4^+ -N 采用纳氏试剂分光光度法测定, NO_2^- -N 采用 N -(1-萘基)-乙二胺比色法测定, NO_3^- -N 采用紫外分光光度法测定.测定时,将样品溶液根据各指标的标准曲线稀释适宜的倍数,使用紫外分光光度计 (UV-1800, 岛津) 测定.

1.3 微生物多样性分析

16S rRNA 高通量测序:反应初始时,将要加入的污泥混匀取样并立即放入 -80°C 冰箱保存,在反应结束后取污泥样品,最后将样品送至上海美吉生物医药科技有限公司完成测序,PCR 反应所用引物为 515F/907R.

共现网络分析:基于微生物高通量测序结果,在美国俄克拉荷马大学环境基因组学研究所网站 (<http://ieg2.ou.edu/MENA>) 进行网络构建,通过 MENA (molecular ecological network analysis) 构建微生物共现网络并计算相关特征参数,然后利用 Cytoscape 软件 (3.6.1 版) 对网络进行可视化分析.

微生物功能预测分析:下载 FAPROTAX (functional annotation of prokaryotic taxa) 软件及其 Python 脚本^[13],在 Python 2.7 版本下运行软件,结果使用 R3.5.3 进行分析绘图.

2 结果与讨论

2.1 反应过程水中氮素变化分析

从图 1(a) 可知,经过 77 d 的厌氧反应过程,不同螯合铁类型脱氮效果有显著差别.其中腐殖酸铁组的氨氮去除效果最好,达到 83.68% 左右,总氮去除率约 83.32% ;乙二胺四乙酸铁钠组对氨氮的去除率达到 55.59% ,总氮去除率约 55.07% ;柠檬酸铁组氨氮去除率达到 51.43% ,总氮去除率约 43.67% ;氨三乙酸铁组在这个反应体系中对氨氮去除效果较差,去除率

约 12.93%,总氮去除率约 12.65%。4 种螯合铁类型中,腐殖酸铁脱氮效果最好。

图 1(b) 是各组氨氮浓度曲线,反应的初始阶段(0 ~ 7 d),腐殖酸铁组的氨氮去除量约为 42 mg·L⁻¹,高于其它实验,可知在初始阶段腐殖酸铁组氨氮去除速度更快。在反应的 8 ~ 77 d,腐殖酸铁组、柠檬酸铁组、乙二胺四乙酸铁钠组中氨氮浓度均

持续稳定下降。其中腐殖酸铁组氨氮去除效果略高于其它组,并且各组亚硝态氮浓度[图 1(c)]都稳定保持在 30 mg·L⁻¹ 以内,各组硝态氮浓度[图 1(d)]都处于较低水平(<6 mg·L⁻¹)。由于各实验组均处于厌氧状态,且 Fe(Ⅲ) 作为唯一的电子受体,因此可认为反应过程中 NO₂⁻ 和 NO₃⁻ 是由微生物利用 Fe(Ⅲ) 将氨氮氧化所生成^[17]。

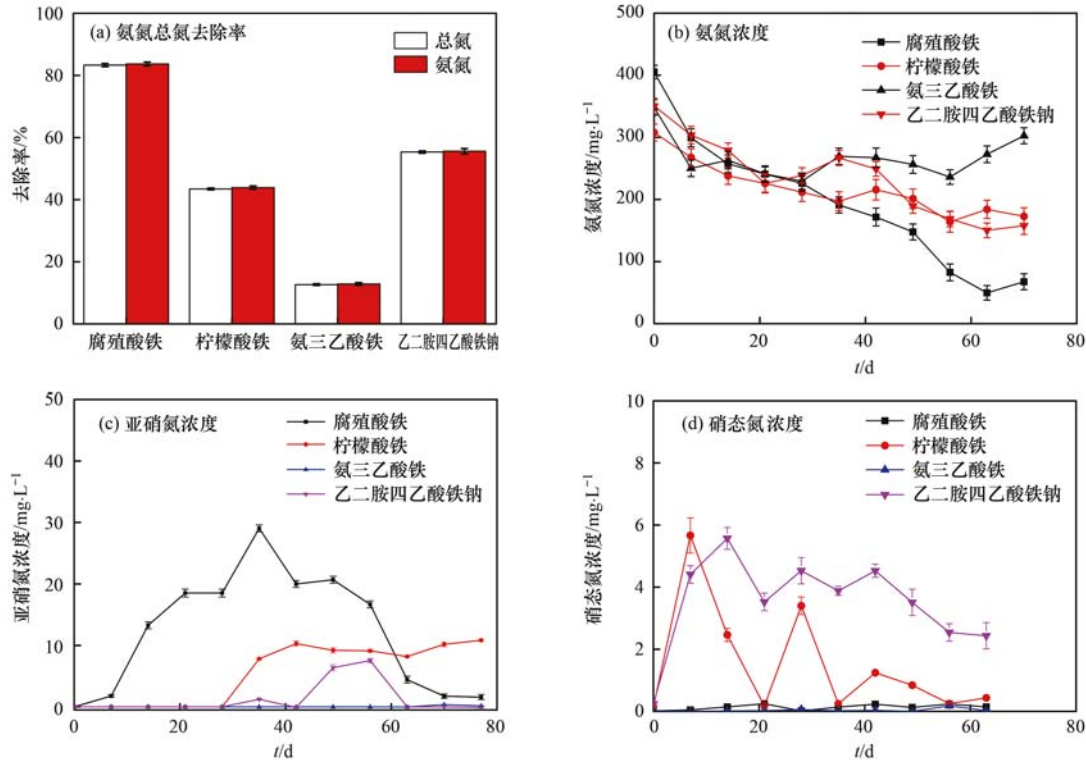


图 1 反应过程中水质变化曲线

Fig. 1 Curve of change in water quality during the experiment

本实验中,由于 NO₂⁻ 和 NO₃⁻ 浓度远低于氨氮去除量,氨氮去除率与总氮去除率接近,因此推测反应过程中大部分氮素转化为气体。在能量方面上,FEAMMOX 反应更容易产生 N₂^[18],从而推测本实验 NH₄⁺ 转化的产物主要为 N₂。表 1 是铁氨氧化在污水脱氮方面的研究,在已有报道的厌氧铁氨氧化研究中,大部分以铁氧化物进行实验,产物以 NO₃⁻ 和 NO₂⁻ 为主,总氮去除率在 11.30% ~

71.80%^[11,12,19~22],同时反应 pH 值处于 4 ~ 5 之间,这是因为在中性条件下,Fe(OH)₃ 溶解度比较低,会阻碍微生物对 Fe(Ⅲ) 的利用^[23];由于螯合铁在中性条件下能保持络合状态,可促进微生物对 Fe(Ⅲ) 的利用,因此螯合铁能在中性条件下有较好的脱氮效果,这些可推断出铁形态会对厌氧铁氨氧化产物有一定的影响。本实验结果表明,腐殖酸铁对于厌氧铁氨氧化的作用效果最好,腐殖酸铁中有醌

表 1 厌氧铁氨氧化污水脱氮

Table 1 Denitrification of wastewater by FEAMMOX

铁源	氨氮/mg·L ⁻¹	产物	氨氮去除/%	总氮去除/%	时间/d	pH	文献
Fe(OH) ₃	60	NO ₃ ⁻	40.71	— ¹⁾	8	4.5	[11]
FeCl ₃	50	NO ₃ ⁻	31.04	—	4	7.5	[12]
FeCl ₃	100	NO ₃ ⁻	80.00	71.80	160	4.5	[19]
Fe(OH) ₃	75	NO ₃ ⁻	33.78	22.60	10	4.6	[20]
铁氧化物	36	NO ₂ ⁻ 和 N ₂	12.90	6.10	10	7.1	[21]
Fe(OH) ₃	400	NO ₃ ⁻	—	20.10	40	—	[22]
Fe ₂ O ₃	400	NO ₂ ⁻	—	11.30	40	—	[22]
腐殖酸铁	400	N ₂	83.68	83.32	77	7.0	本研究

1) “—”表示文章中没有相关数据

类结构,目前含有醌类结构物质已被证明可以充当电子中介体,能提高铁还原细菌对Fe(Ⅲ)的利用,从而促进厌氧铁氨氧化反应的进行^[24].

2.2 微生物α多样性分析

首先对微生物群落进行α多样性分析,主要是分析每个样本中微生物群落本身的多样性,Chao指数和Ace指数体现样品中微生物群落物种丰富度,在样品中,这两个指数数值越高,则代表该样品群落物种丰富度越高;Shannon指数和Simpson指数能体现样品中微生物群落多样性,Shannon指数越高,样品中微生物群落多样性越高,Simpson指数是优势度指数,其值越低,则说明该样品微生物多样性越高.表2是Chao指数、Ace指数、Shannon

指数、Simpson指数以及群落覆盖度,从中可知,氨三乙酸铁组中OTU数、Ace指数、Chao指数和Shannon指数均低于其它组,并且Simpson指数最高,这些说明氨三乙酸铁组中物种丰富度和群落多样性都低于其它实验组;乙二胺四乙酸铁钠组中Ace指数和Chao指数均高于其它实验组,表明该组中微生物群落中物种丰富度较其它实验组高;腐殖酸铁组中Shannon指数高于其它实验组,同时其Simpson指数最小,这些表明腐殖酸铁组中微生物群落多样性较其它实验组高.本次测序的覆盖度均在99.15%以上,说明此次测序结果能较好地代表污泥样品中微生物群落组成的真实情况.

表2 污泥微生物α多样性指数

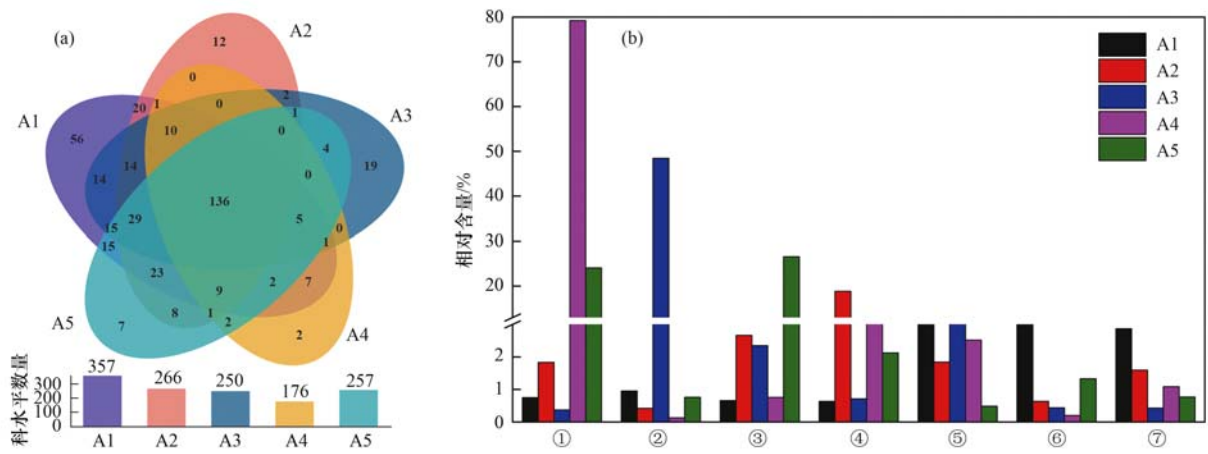
Table 2 The α diversity index table of microbial communities						
样品	OTU 数	Ace 指数	Simpson 指数	Shannon 指数	Chao 指数	覆盖度/%
腐殖酸铁组	788	990	0.055 5	4.19	963	99.30
柠檬酸铁组	765	1 005	0.240 9	3.10	1 017	99.24
氨三乙酸铁组	452	666	0.416 0	1.81	640	99.47
乙二胺四乙酸铁钠组	770	1 208	0.072 3	3.94	1 076	99.15

2.3 微生物群落组成分析

对污泥样品微生物进行科水平上分析,图2(a)是各污泥样品群落在科水平上的韦恩图,可以清晰了解各样品微生物群落之间的异同情况,初始污泥微生物中有56个特有的科,在经过厌氧铁氨氧化过程后,污泥中特有科逐渐减少,说明有些微生物类群不适合该反应体系,整合铁氨氧化体系中的微生物表现出趋简性^[25].由图2(b)可知,在反应结束后,各实验组污泥中Steroidobacteraceae和Rhodocyclaceae含量较初始污泥低,Clostridiaceae、

Comamonadaceae和Anaerolineaceae含量增加,Anaerolineaceae是厌氧消化核心微生物种群^[26].因此可以推断出,在反应过程中,污泥中有特定功能菌群成为优势菌群,相对丰度提高,有些菌群则被淘汰,体系中形成了相对单一稳定的微生物群落.

图3是在属水平上进行微生物群落结构分析,初始污泥中的优势菌主要有norank_f_Steroidobacteraceae、norank_f_Caldilineaceae和Candidatus_Competibacter属,丰度分别为7.26%、7.56%和4.76%,其中Candidatus_Competibacter属



(a)基于科水平微生物群落韦恩图,(b)污泥中优势菌的科水平对比; A1:初始污泥, A2:腐殖酸铁组, A3:柠檬酸铁组, A4:氨三乙酸铁组, A5:乙二胺四乙酸铁钠组,下同; ①Rhizobiaceae, ②Clostridiaceae, ③Xanthomonadaceae, ④Comamonadaceae, ⑤Anaerolineaceae, ⑥Steroidobacteraceae, ⑦Rhodocyclaceae

图2 反应结束后污泥在科水平上微生物群落
Fig. 2 Microbial community analysis of sludge at the family level

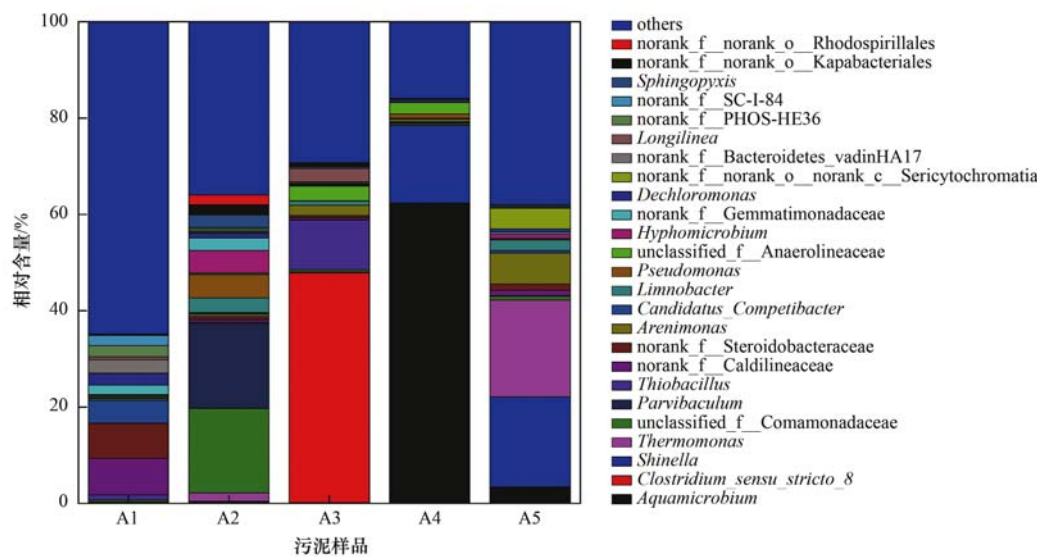


图3 反应结束后污泥在属水平上微生物群落

Fig. 3 Microbial community analysis of sludge at the genus level

对于脱氮除磷均有一定的作用^[27]. 初始污泥中还存在极少量的 unclassified_f_Comamonadaceae, 含量约为 0.40%. 腐殖酸铁组微生物群落组成主要有 unclassified_f_Comamonadaceae, 丰度由初始污泥中 0.40% 增加到 17.57%, *Thermomonas* 含量约占 1.76%; 目前有研究报道 Comamonadaceae 能够进行反硝化作用^[28] 并参与氨氧化为亚硝酸盐的过程^[29], *Thermomonas* 可以利用硝酸盐作为电子受体进行硝酸盐还原^[30], 这表明腐殖酸铁组具有一定的脱氮能力, 并且添加腐殖酸铁可促进污泥中脱氮功能菌群的生长, 增强该体系的脱氮能力. 柠檬酸铁组中优势菌群主要有 *Clostridium* 和 *Thiobacillus*, 含量分别为 47.70% 和 10.37%; 已经有相关文献报道 *Clostridium* 为铁还原菌^[31], 因此, 柠檬酸铁组微生物能够进行铁代谢相关活动, 添加柠檬酸铁能促进相关铁还原菌的生长, 并有研究表明铁还原菌在厌氧铁氨氧化过程中起着重要作用, 其含量增加可能会促进厌氧铁氨氧化作用^[32], 氨三乙酸铁组优势菌有 *Aquamicrobium*, 丰度为 62.33%, 该组中 unclassified_f_Comamonadaceae 的丰度只占 0.08%, 这表明该组参与氮循环作用的菌群较少. 乙二胺四乙酸铁钠组优势菌属主要是 *Thermomonas*, 含量约 20.11%, *Shinella* 含量占 18.71%, unclassified_f_Comamonadaceae 丰度约 0.81%, 其中 *Thermomonas* 能进行硝酸盐还原作用, 是参与脱氮作用的菌群^[30]. 对各实验组污泥中微生物群落的变化分析可知, 在各组实验污泥中参与氮循环的微生物菌群丰度高于初始污泥, 其中腐殖酸铁组中氨氧化菌群 Comamonadaceae 显著增加^[28,29], 并远高于其它实验组, 这表明腐殖酸铁可能比其它螯合铁更适合厌氧

铁氨氧化过程.

2.4 FAPROTAX 功能预测分析

FAPROTAX 是基于微生物测序结果对微生物群落功能表型进行预测的方法, 该方法适合于对环境样品进行生物地球化学循环功能预测分析, 特别是碳、氢、氮、磷和硫的循环的功能注释和预测. 图 4 是 FAPROTAX 分析, 主要有 14 个与氮循环相关的

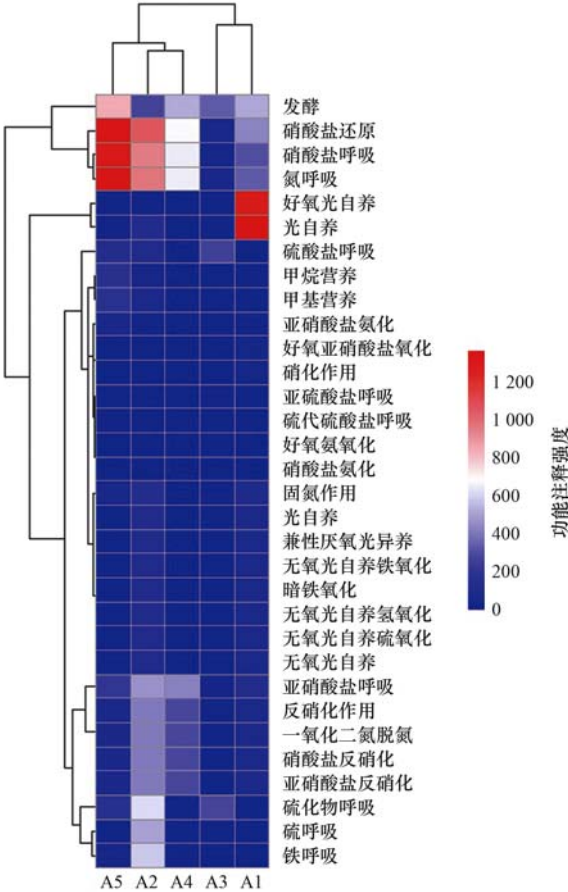


图4 反应结束后污泥微生物功能预测图

Fig. 4 Function prediction of microbial at the end of experiment

功能注释,包括硝酸盐还原、硝酸盐反硝化和亚硝酸盐反硝化等.各实验组功能预测中好氧氨氧化作用均为 0,这说明反应体系中没有发生好氧氨氧化过程,进而可推断此体系中氨氧化是以Fe(Ⅲ)为电子受体进行的,也表明该体系中存在厌氧铁氨氧化过程.根据聚类分析关系可知,铁呼吸、硫呼吸、硫化物呼吸、硝酸盐反硝化及亚硝酸盐反硝化联系紧密,也说明了氮循环、铁循环和硫循环关系密切,铁硫代谢对脱氮有重要作用.目前也有报道硫铁反硝化脱氮方面的研究^[33],根据微生物群落组成进行分析.根据图 4 中各功能注释强度可知,腐殖酸铁组中铁呼吸强度达到 578,初始污泥中铁呼吸强度为 40,柠檬

酸铁组中铁呼吸强度为 12,氨三乙酸铁组中铁呼吸强度为 27,乙二胺四乙酸铁钠组中铁呼吸为 2,腐殖酸铁组中铁呼吸强度远高于其它实验组,表明在腐殖酸铁组中,微生物发生铁代谢强度更高,更易利用腐殖酸铁中Fe(Ⅲ).

2.5 共现网络分析

微生物共现网络分析通常用于识别菌群之间的相互作用^[34],MENA 是基于随机矩阵原理(random matrix theory, RMT)的生态网络构建方法.表 3 是网络的属性表,可知网络是由 122 个节点和 505 条边组成,其中节点表示不同菌群,边表示不同菌群之间的连接关系.

表 3 网络的拓扑学指数

Table 3 Topological indices of network

网络属性	节点数	总边数	阈值	模块数	平均连通度	模块性	具有最大中介中心性节点
结果	122	505	0.95	5	0.756	0.433	<i>Tessaracoccus</i>

节点之间的边数量水平称为度,度越强则相互关系越强^[35],因此网络中度较高的节点在网络中非常重要.此次网络节点度为 1~27(图 5),筛选度大于 20 的节点进行微生物门水平分析,发现主要是 Acidimicrobiia 和 Actinobacteria,已有研究在 Acidimicrobiia 分离出厌氧铁氨氧化菌 A6^[8],推测 Acidimicrobiia 和 Actinobacteria 在厌氧铁氨氧化整合铁体系中有重要作用.微生物共现网络还可用于识别关键物种,微生物生态系统中关键物种是高度关联的菌群,它们可以单独或共同对微生物生态系统的结构和功能产生相当大的影响,关键物种对于维持生态系统平衡有重要作用^[36].在共现网络中,通常根据中介中心性来确定关键物种,具有最大中介中心性的菌群可以推断为关键物种^[37,38],此次共现网络表明 *Tessaracoccus* 是整合铁实验中微生物群

落的关键物种, *Tessaracoccus* 属于丙酸杆菌科,能在厌氧条件下生长, Puente-Sánchez 等^[39]在黄铁矿地带分离出 *Tessaracoccus* 菌株,该菌可以在厌氧条件下进行硝酸盐还原,这表明 *Tessaracoccus* 也能参与氮循环过程,并可能在整合铁铁氨氧化体系中起着关键作用.

3 结论

(1)经过 77 d 的厌氧反应,4 种类型的整合铁中,腐殖酸铁组脱氮效果最好,氨氮去除率约 83.68%,总氮去除率约 83.32%,推测整合铁进行厌氧铁氨氧化反应的产物主要是 N₂.

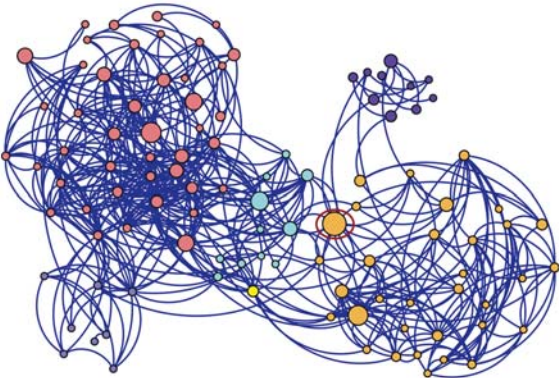
(2)腐殖酸铁组中微生物群落多样性较其它实验组高,腐殖酸铁组微生物脱氮菌群有 unclassified_f_Comamonadaceae 和 *Thermomonas*,菌群丰度分别为 17.57%、1.76%,其含量均高于其它实验组,表明腐殖酸铁有利于脱氮菌群生长.总体上,整合铁氨氧化体系中的微生物表现出趋简性.

(3)FAPROTAX 功能预测结果中,铁循环、硫循环和氮循环关系密切,铁硫代谢对于脱氮有重要作用;腐殖酸铁组中铁呼吸功能注释强度为 578,腐殖酸铁组中微生物参与铁代谢循环较其它组活跃,微生物更易利用腐殖酸铁中的Fe(Ⅲ).

(4)共现网络分析表明, Acidimicrobiia 和 Actinobacteria 在厌氧铁氨氧化整合铁体系中具有重要作用, *Tessaracoccus* 是整合铁进行厌氧铁氨氧化反应的关键物种.

参考文献:

[1] Sawayama S. Possibility of anoxic ferric ammonium oxidation [J]. Journal of Bioscience and Bioengineering, 2006, 101(1):



图中节点代表物种,不同颜色代表模块,节点大小表示度程度,红圈表示关键物种(*Tessaracoccus*)
图 5 反应结束后污泥微生物共现网络分析
Fig. 5 Co-occurrence network analysis of microbial community at the end of the experiment

- 70-72.
- [2] Ding B J, Chen Z H, Li Z K, *et al.* Nitrogen loss through anaerobic ammonium oxidation coupled to iron reduction from ecosystem habitats in the Taihu estuary region[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **662**: 600-606.
- [3] Clement J C, Shrestha J, Ehrenfeld J G, *et al.* Ammonium oxidation coupled to dissimilatory reduction of iron under anaerobic conditions in wetland soils [J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2005, **37**(12): 2323-2328.
- [4] Ding L J, An X L, Li S, *et al.* Nitrogen loss through anaerobic ammonium oxidation coupled to iron reduction from paddy soils in a chronosequence [J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, **48**(18): 10641-10647.
- [5] Ren Y, Ngo H H, Guo W S, *et al.* New perspectives on microbial communities and biological nitrogen removal processes in wastewater treatment systems [J]. *Bioresource Technology*, 2020, **297**, doi: 10.1016/j.biortech.2019.122491.
- [6] 钟小娟, 王亚军, 唐家恒, 等. 铁氨氧化: 新型的厌氧氨氧化过程及其生态意义[J]. 福建农林大学学报(自然科学版), 2018, **47**(1): 1-7.
- Zhong X J, Wang Y J, Tang J H, *et al.* Feammox: a novel anammox process and ecological significance [J]. *Journal of Fujian Agriculture and Forestry University (Natural Science Edition)*, 2018, **47**(1): 1-7.
- [7] 李祥, 林兴, 杨朋兵, 等. 活性污泥厌氧Fe(III)还原氨氧化现象初探[J]. 环境科学, 2016, **37**(8): 3114-3119.
- Li X, Lin X, Yang P B, *et al.* Simultaneous ferric reduction with ammonia oxidation phenomena in activated sludge in anaerobic environment[J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(8): 3114-3119.
- [8] Huang S, Jaffé P R. Characterization of incubation experiments and development of an enrichment culture capable of ammonium oxidation under iron-reducing conditions [J]. *Biogeosciences*, 2015, **12**(3): 769-779.
- [9] 覃海华. 异化铁还原对重金属形态转化及其产氢过程研究[D]. 天津: 天津科技大学, 2018.
- Tan H H. Research on transformation of heavy metals and hydrogen-producing process by dissimilatory Fe(III) reduction [D]. Tianjin: Tianjin University of Science and Technology, 2018.
- [10] 司友斌, 王娟. 异化铁还原对土壤中重金属形态转化及其有效性影响[J]. 环境科学, 2015, **36**(9): 3533-3542.
- Si Y B, Wang J. Influence of dissimilatory iron reduction on the speciation and bioavailability of heavy metals in soil [J]. *Environmental Science*, 2015, **36**(9): 3533-3542.
- [11] 刘志文. 厌氧铁氨氧化菌的固定化及其处理氨氮废水的研究[D]. 广州: 广东工业大学, 2018.
- Liu Z W. Study on the treatment of ammonium in wastewater by immobilized Feammox bacteria [D]. Guangzhou: Guangdong University of Technology, 2018.
- [12] 吴悦溪, 曾薇, 刘宏, 等. Feammox 系统内氮素转化途径的研究[J]. 化工学报, 2020, **71**(5): 2265-2272.
- Wu Y X, Zeng W, Liu H, *et al.* Exploration of nitrogen transformation pathway in Feammox[J]. *CIESC Journal*, 2020, **71**(5): 2265-2272.
- [13] Louca S, Jacques S M S, Pires A P F, *et al.* High taxonomic variability despite stable functional structure across microbial communities[J]. *Nature Ecology & Evolution*, 2017, **1**(1), doi: 10.1038/s41559-016-0015.
- [14] Hochstein R, Zhang Q, Sadowsky M J, *et al.* The deposit feeder *Capitella teleta* has a unique and relatively complex microbiome likely supporting its ability to degrade pollutants[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **670**: 547-554.
- [15] 朱瑞芬, 刘杰淋, 王建丽, 等. 基于分子生态学网络分析松嫩退化草地土壤微生物群落对施氮的响应[J]. 中国农业科学, 2020, **53**(13): 2637-2646.
- Zhu R F, Liu J L, Wang J L, *et al.* Molecular ecological network analyses revealing the effects of nitrogen application on soil microbial community in the degraded grasslands[J]. *Scientia Agricultura Sinica*, 2020, **53**(13): 2637-2646.
- [16] 国家环境保护总局. 水和废水监测分析方法[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 1989.
- [17] Yin S Y, Li J, Dong H Y, *et al.* Enhanced nitrogen removal through marine anammox bacteria (MAB) treating nitrogen-rich saline wastewater with Fe(III) addition: nitrogen shock loading and community structure [J]. *Bioresource Technology*, 2019, **287**, doi: 10.1016/j.biortech.2019.121405.
- [18] Yang W H, Weber K A, Silver W L. Nitrogen loss from soil through anaerobic ammonium oxidation coupled to iron reduction [J]. *Nature Geoscience*, 2012, **5**(8): 538-541.
- [19] Li X, Huang Y, Liu H W, *et al.* Simultaneous Fe(III) reduction and ammonia oxidation process in Anammox sludge [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2018, **64**(2): 42-50.
- [20] 吴胤, 陈琛, 毛小云, 等. 基于 Feammox 的生物膜反应器性能研究[J]. 中国环境科学, 2017, **37**(9): 3353-3362.
- Wu Y, Chen C, Mao X Y, *et al.* Study on performance of the Feammox biofilm-reactor [J]. *China Environmental Science*, 2017, **37**(9): 3353-3362.
- [21] 吴彦成, 顾鑫, 朱继涛, 等. 铁氨氧化污水生物脱氮技术的研究进展[J]. 中国给水排水, 2020, **36**(18): 38-44.
- Wu Y C, Gu X, Zhu J T, *et al.* Research advances of biological nitrogen removal from wastewater via Fe(III) reduction coupled to anaerobic ammonium oxidation (Feammox) process [J]. *China Water & Wastewater*, 2020, **36**(18): 38-44.
- [22] Yang Y F, Zhang Y B, Li Y, *et al.* Nitrogen removal during anaerobic digestion of wasted activated sludge under supplementing Fe(III) compounds [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2018, **332**: 711-716.
- [23] 苏润华, 丁丽丽, 任洪强. 纳米零价铁(NZVI)对厌氧产甲烷活性、污泥特性和微生物群落结构的影响[J]. 环境科学, 2018, **39**(7): 3286-3296.
- Su R H, Ding L L, Ren H Q. Impact of nano zero-valent iron (NZVI) on methanogenic activity, physiological traits, and microbial community structure in anaerobic digestion [J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(7): 3286-3296.
- [24] Dunham-Cheatham S, Mishra B, Myneni S, *et al.* The effect of natural organic matter on the adsorption of mercury to bacterial cells[J]. *Geochimica Et Cosmochimica Acta*, 2015, **150**: 1-10.
- [25] Goldford J E, Lu N X, Bajić D, *et al.* Emergent simplicity in microbial community assembly[J]. *Science*, 2018, **361**(6401): 469-474.
- [26] 宋壮壮, 吕爽, 刘哲, 等. 厌氧氨氧化耦合反硝化工艺的启动及微生物群落变化特征[J]. 环境科学, 2019, **40**(11): 5057-5065.
- Song Z Z, Lv S, Liu Z, *et al.* Start-up of simultaneous ANAMMOX and denitrification process and changes in microbial community characteristics[J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(11): 5057-5065.
- [27] Rubio-Rincón F J, Lopez-Vazquez C M, Welles L, *et al.* Cooperation between *Candidatus* competitor and *Candidatus* accumulibacter clade I, in denitrification and phosphate removal processes[J]. *Water Research*, 2017, **120**: 156-164.

- [28] Wu Y C, Shukal S, Mukherjee M, *et al.* Involvement in denitrification is beneficial to the biofilm lifestyle of *Comamonas testosteroni*: a mechanistic study and its environmental implications[J]. *Environmental Science & Technology*, 2015, **49**(19): 11551-11559.
- [29] Bao P, Li G. Sulfur-driven iron reduction coupled to anaerobic ammonium oxidation [J]. *Environmental Science and Technology*, 2017, **51**(12): 6691-6698.
- [30] Chen H, Zhao X H, Cheng Y Y, *et al.* Iron robustly stimulates simultaneous nitrification and denitrification under aerobic conditions[J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, **52**(3): 1404-1412.
- [31] Reyes C, Schneider D, Thürmer A, *et al.* Potentially active iron, sulfur, and sulfate reducing bacteria in Skagerrak and Bothnian Bay Sediments[J]. *Geomicrobiology Journal*, 2017, **34**(10): 840-850.
- [32] Peng Q A, Shaaban M, Wu Y P, *et al.* The diversity of iron reducing bacteria communities in subtropical paddy soils of China [J]. *Applied Soil Ecology*, 2016, **101**: 20-27.
- [33] 付炳炳, 潘建新, 马景德, 等. 采用含硫铁化学污泥作为反硝化电子供体进行焦化废水中总氮深度去除[J]. *环境科学*, 2018, **39**(7): 3262-3270.
Fu B B, Pan J X, Ma J D, *et al.* Evaluation of advanced nitrogen removal from coking wastewater using sulfide iron-containing sludge as a denitrification electron donor [J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(7): 3262-3270.
- [34] Berry D, Widder S. Deciphering microbial interactions and detecting keystone species with co-occurrence networks [J]. *Frontiers in Microbiology*, 2014, **5**, doi: 10.3389/fmicb.2014.00219.
- [35] 闫冰, 夏嵩, 桂双林, 等. 厌氧氨氧化菌富集培养过程微生物群落结构及多样性[J]. *环境科学*, 2020, **41**(12): 5535-5543.
Yan B, Xia S, Gui S L, *et al.* Microbial community structure and diversity during the enrichment of anaerobic ammonium oxidation bacteria[J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(12): 5535-5543.
- [36] Banerjee S, Schlaeppi K, Van Der Heijden M G A. Keystone taxa as drivers of microbiome structure and functioning [J]. *Nature Reviews Microbiology*, 2018, **16**(9): 567-576.
- [37] Banerjee S, Kirkby C A, Schmutter D, *et al.* Network analysis reveals functional redundancy and keystone taxa amongst bacterial and fungal communities during organic matter decomposition in an arable soil[J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2016, **97**: 188-198.
- [38] Jiang Y J, Li S Z, Li R P, *et al.* Plant cultivars imprint the rhizosphere bacterial community composition and association networks[J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2017, **109**: 145-155.
- [39] Puente-Sánchez F, Sánchez-Román M, Amils R, *et al.* *Tessaracoccus lapidicaptus* sp. nov., an actinobacterium isolated from the deep subsurface of the Iberian Pyrite Belt [J]. *International Journal of Systematic and Evolutionary Microbiology*, 2014, **64**(10): 3546-3552.

CONTENTS

Spatiotemporal Distribution and Health Impacts of PM _{2.5} and O ₃ in Beijing, from 2014 to 2020	CHEN Jing, PENG Jin-long, XU Yan-sen (4071)
High-resolution Estimation of Spatio-temporal Variation in PM _{2.5} Concentrations in the Beijing-Tianjin-Hebei Region	YANG Xiao-hui, SONG Chun-jie, FAN Li-hang, <i>et al.</i> (4083)
Impacts of Anthropogenic Emission Reduction and Meteorological Conditions on PM _{2.5} Pollution in Typical Cities of Beijing-Tianjin-Hebei in Winter	SHAO Xuan-yi, WANG Xiao-qi, ZHONG Yi-sheng, <i>et al.</i> (4095)
Influence of Pollutant Transport from Both Sides of the Taihang Mountains on Cross-Valley Urban Aerosols	WANG Yan, GUO Wei, YAN Shi-ming, <i>et al.</i> (4104)
Variation Characteristics and Source Analysis of Carbonaceous Aerosols in Winter in Jiashan	ZHANG Ying-long, LI Li, WU Wei-chao, <i>et al.</i> (4116)
Simulation Analysis of the Impact of COVID-19 Pandemic Control on Air Quality in Henan Province based on Machine Learning Algorithm	WEI Yu, XU Qi-xiang, ZHAO Jin-shuai, <i>et al.</i> (4126)
Seasonal Variation, Source Identification, and Health Risk of PM _{2.5} -bound Metals in Xinxiang	LIU Huan-jia, JIA Meng-ke, LIU Yong-li, <i>et al.</i> (4140)
Distribution Characteristics and Seasonal Variations of Arsenic in Atmospheric Aerosols over the Yellow Sea and Bohai Sea	YUAN Shuai, WANG Yan, LIU Ru-hai, <i>et al.</i> (4151)
Extinction Characteristics of Aerosols and the Contribution of Pollution Sources to Light Extinction During Three Heavy Pollution Episodes in the Winter of 2020 in Tianjin	LI Li-wei, XIAO Zhi-mei, YANG Ning, <i>et al.</i> (4158)
Spatial Variation of Surface Ozone Concentration During the Warm Season and Its Meteorological Driving Factors in China	HE Chao, MU Hang, YANG Lu, <i>et al.</i> (4168)
Exploring Characteristics and Causes of Summer Ozone Pollution Based on Process Analysis in Wuhai	ZHANG Rui-xin, CHEN Qiang, XIA Jia-qi, <i>et al.</i> (4180)
Pollution Characteristics and Source Analysis of Atmospheric VOCs in the Coastal Background of the Pearl River Delta	YUN Long, LI Cheng-liu, ZHANG Ming-di, <i>et al.</i> (4191)
Hydrochemical Characteristics and Factors of Surface Water and Groundwater in the Upper Yongding River Basin	KONG Xiao-le, YANG Yong-hui, CAO Bo, <i>et al.</i> (4202)
Temporal and Spatial Variations in Water Quality of Hanjiang River and Its Influencing Factors in Recent Years	CHENG Bing-fen, ZHANG Yuan, XIA Rui, <i>et al.</i> (4211)
Pollution Level, Distribution Characteristic, and Ecological Risk Assessment of Environmentally Persistent Pharmaceutical Pollutants in Surface Water of Jiangsu Province	ZHAO Mei-mei, FAN De-ling, GU Wen, <i>et al.</i> (4222)
Spatial and Temporal Distribution and Pollution Evaluation of Soluble Heavy Metals in Liujiang River Basin	ZHANG Wan-jun, XIN Cun-lin, YU Shi, <i>et al.</i> (4234)
Source Analysis and Health Risk Assessment of Heavy Metals in Groundwater of Leizhou Peninsula	SHI Huan-huan, PAN Yu-jie, ZENG Min, <i>et al.</i> (4246)
Distribution Characteristics and Health Risk Assessment of Metal Elements in Groundwater of Longzici Spring Area	XIE Hao, LIANG Yong-ping, LI Jun, <i>et al.</i> (4257)
Seasonal Variation and Sources Identification of Dissolved Sulfate in a Typical Karst Subterranean Stream Basin Using Sulfur and Oxygen Isotopes	REN Kun, PAN Xiao-dong, LAN Gan-jiang, <i>et al.</i> (4267)
Phosphorus Fractions and Quantitative Identification of Pollution Sources in Nanhai Wetland, Baotou	BAI Ya-hong, QIAN Chen-ge, YUAN Si-jing, <i>et al.</i> (4275)
Release Risk of Phosphorus by Sediments and Its Influencing Factors in Ponds and Ditches of a New Urban District Park	LI Ru-zhong, SONG Min, YANG Ji-wei (4287)
Effect of Hydraulic Residence Time on Removal Efficiency of Pollutants in Subsurface Flow Constructed Wetlands and Analysis of Denitrification Mechanism	QI Ran, ZHANG Ling, YANG Fan, <i>et al.</i> (4296)
Enhanced Removal of Pollutants in Constructed Wetlands with Manganese Sands	MA Quan, WANG Dong-lin, LIN Hui, <i>et al.</i> (4304)
Application Effect of Four Typical Submerged Macrophytes on Removing Cadmium from Polluted Sediment	TAO Li, WANG Pei-fang, YUAN Qiu-sheng, <i>et al.</i> (4311)
Structure of Aerobic Denitrification Bacterial Community in Response to Dissolved Organic Matter in Baiyangdian Lake During the Water Delivery Period	ZHOU Shi-lei, ZHANG Tian-na, CHEN Zhao-ying, <i>et al.</i> (4319)
Nitrogen and Phosphorus Leaching Characteristics and Adsorption Properties of Hardwood Biochar in Stormwater Runoff	MENG Yi-ke, WANG Yuan, WANG Chuan-yue (4332)
Indicator Function of Ragworm (<i>Nereididae</i>) on Sediment Microplastic in Haizhou Bay Intertidal Zone	WANG Jia-xuan, SONG Ke-xin, SUN Yi-xin, <i>et al.</i> (4341)
Antagonistic Effect and Mechanism of Nano Titanium Dioxide and Cadmium on the Growth of <i>Scenedesmus obliquus</i>	WANG Pu, ZHAO Li-hong, ZHU Xiao-shan (4350)
Mutual Influence Between Microbial Community, Wastewater Characteristics, and Antibiotic Resistance Genes During Spiramycin Production Wastewater Treatment	WU Cai-yun, LI Hui-li, QIN Cai-xia, <i>et al.</i> (4358)
Effect of Chelated Iron on Nitrogen Removal Efficiency and Microbial Community Structure in the Anaerobic Ferric Ammonium Oxidation	LIAO Hong-yan, SONG Cheng, WAN Liu-yang, <i>et al.</i> (4366)
Effects of Dissolved Oxygen on Nutrient Removal Performance and Microbial Community in Low Carbon/Nitrogen Municipal Wastewater Treatment Process	CHI Yu-lei, SHI Xuan, REN Tong, <i>et al.</i> (4374)
Shortening SRT of Intermittent Gradient Aeration to Realize Nitrogen and Phosphorus Removal in Short-range SNEDPR System	ZHANG Yu-jun, LI Dong, WANG Xin-xin, <i>et al.</i> (4383)
Characteristics of Partial Denitrification in Biofilm System	YU Li-fang, ZHANG Xing-xiu, ZHANG Qiong, <i>et al.</i> (4390)
Effect of Anaerobic Plug-flow on Nitrification Denitrifying Phosphorus Removal Aerobic Granular Sludge with Intermittent Aeration	LI Dong, CAO Si-yu, WANG Qi, <i>et al.</i> (4399)
Combining Different Aerobic/Anoxic Durations with Zoned Sludge Discharge to Optimize Short-cut Nitrification Denitrifying Phosphorus Removal Granules in Domestic Sewage	WANG Wen-qi, LI Dong, GAO Xin, <i>et al.</i> (4406)
Meta-analysis of the Effects of Metal Mining on Soil Heavy Metal Concentrations in Southwest China	ZHANG Jian-lin, QU Ming-kai, CHEN Jian, <i>et al.</i> (4414)
Distribution Characteristics and Ecological Risk Assessment of Soil Heavy Metals in Typical Watersheds of the Qinghai-Tibet Plateau	DU Hao-lin, WANG Ying, WANG Jin-song, <i>et al.</i> (4422)
Spatial Distribution Characteristics and Risk Assessment of Cadmium Pollution in Soil-crops system of an E-waste Dismantling Area	ZHANG Lu-yao, ZHAO Ke-li, FU Wei-jun (4432)
Characteristics of Modified Biochars and Their Immobilization Effect on Cu and Cd in Polluted Farmland Soil Around Smelter	WANG Xin-yu, MENG Hai-bo, SHEN Yu-jun, <i>et al.</i> (4441)
Combined Effects of Soil Amendment and Zinc Fertilizer on Accumulation and Transportation of Cadmium in Soil-Rice System	ZHOU Kun-hua, ZHOU Hang, WANG Zi-yu, <i>et al.</i> (4452)
Effects of Different Soil Conditioners on Rice Growth and Heavy Metal Uptake in Soil Contaminated with Copper and Cadmium	WEI Wei, LI Ping, LANG Man (4462)
Isolation and Identification of the Plant Endophyte R-13 and Its Effect on Cadmium Accumulation in <i>Solanum nigrum</i> L.	PANG Jie, LIU Yue-min, HUANG Yong-chun, <i>et al.</i> (4471)
Response of Soil Archaeal Community to Heavy Metal Pollution in Different Typical Regions	LI Yu-tong, YANG Shan, ZHANG Yi, <i>et al.</i> (4481)
High-throughput Sequencing Analysis of Soil Bacterial Community in the Grain for Green Project Areas of the Loess Plateau	LIU Xiao-hua, WEI Tian-xing (4489)
Experimental Influence of Food Waste Fermentation Broth on the Soil Quality in a Loess Hilly Area	SHAO Li-ming, REN Jun-da, LÜ Fan, <i>et al.</i> (4500)
Stability of Soil Aggregates at Different Altitudes in Qinling Mountains and Its Coupling Relationship with Soil Enzyme Activities	MA Huan-fei, HU Han, LI Yi, <i>et al.</i> (4510)
Reactivation of Passivated Biochar/Nanoscale Zero-Valent Iron by an Electroactive Microorganism for Cooperative Hexavalent Chromium Removal and Mechanisms	LIAO Cong-jian, ZHAO Xiao-lei, LIU Kai, <i>et al.</i> (4520)
Influence of Precipitation Change on Soil Respiration in Desert Grassland	HAO Lian-yi, ZHANG Li-hua, XIE Zhong-kui, <i>et al.</i> (4527)
Effects of Nitrogen Fertilizer Application Times and Nitrification Inhibitor on N ₂ O Emission from Potted Maize	FU Pei-jiao, JI Heng-kuan, HE Qiu-xiang, <i>et al.</i> (4538)
Gaseous Nitrogen Emission from Soil After Application of NH ₄ ⁺ -N Loaded Biochar	MA Xiao-gang, HE Jian-qiao, CHEN Yu-lan, <i>et al.</i> (4548)
Effects of Microplastics Addition on Soil Organic Carbon Mineralization in Citrus Orchard	ZHANG Xiu-ling, YAN Zi-wei, WANG Feng, <i>et al.</i> (4558)
Dynamic Material Flow Analysis of Perfluorooctane Sulfonate in China; 1985-2019	WANG Jia-yu, CHEN Jing-wen, TANG Wei-hao, <i>et al.</i> (4566)