

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

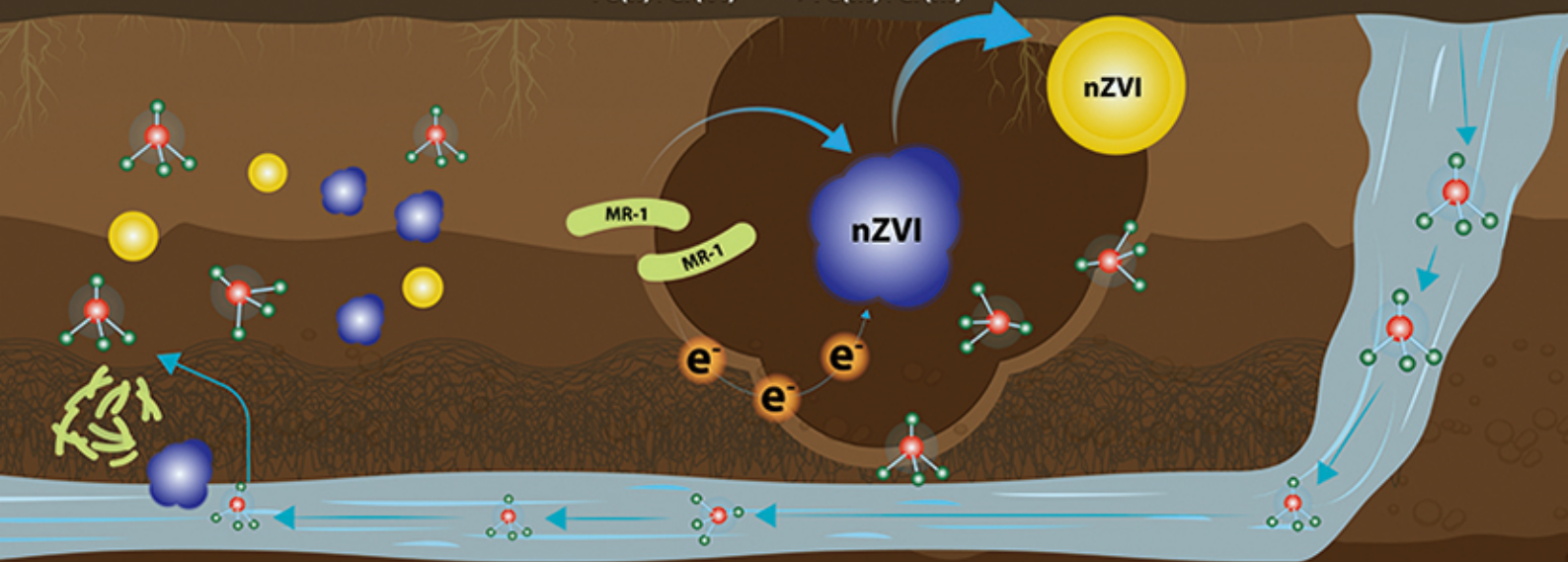
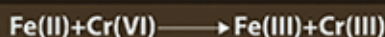
环境科学

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	蒿康伊, 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 年中国全氟辛酸酯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)	

生物膜系统中部分反硝化实现特性

于莉芳^{1,2}, 张兴秀¹, 张琼¹, 王晓玉¹, 彭党聪¹, 张日霞³

(1. 西安建筑科技大学环境与市政工程学院, 西安 710055; 2. 西安建筑科技大学西北水资源与环境生态教育部重点实验室, 西安 710055; 3. 西安市政设计研究院有限公司, 西安 710068)

摘要: 以移动床生物膜反应器(moving-bed biofilm reactor, MBBR)为例, 考察生物膜系统中部分反硝化 NO_2^- -N积累特性, 并通过耦合厌氧氨氧化验证生物膜系统中部分反硝化耦合厌氧氨氧化(partial denitrification with anaerobic ammonium oxidation, PD + ANAMMOX)工艺的可行性. 结果表明, 在 C/N 为 3.0, 填充率为 20% 的条件下, 经过 40 d 的富集培养, 实现部分反硝化, NO_2^- -N 积累率达 $(69.38 \pm 3.53)\%$; 接种生物膜 NO_3^- -N 还原酶(nitrate reductase, NAR)活性为 $0.03 \mu\text{mol} \cdot (\text{min} \cdot \text{mg})^{-1}$, NO_2^- -N 还原酶(nitrite reductase, NIR)活性为 $0.18 \mu\text{mol} \cdot (\text{min} \cdot \text{mg})^{-1}$, 富集培养后生物膜 NAR 活性增至 $0.45 \mu\text{mol} \cdot (\text{min} \cdot \text{mg})^{-1}$, NIR 活性降至 $0.02 \mu\text{mol} \cdot (\text{min} \cdot \text{mg})^{-1}$, 从酶学角度验证了部分反硝化实现; 高通量测序结果显示, *Thauera* 属从 0.3% 增加至 37.27%, 在微生物群落中占主导地位, 该菌属被认为是部分反硝化过程的主要功能菌. 随后与厌氧氨氧化耦合, 出水总氮达 $(6.41 \pm 1.50) \text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 总氮去除率达 $(88.16 \pm 2.71)\%$, 证明了生物膜系统中 PD + ANAMMOX 的可行性及稳定性.

关键词: 移动床生物膜反应器(MBBR); 部分反硝化; NO_2^- -N 积累; C/N; 酶活性

中图分类号: X703.1 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2021)09-4390-09 DOI: 10.13227/j.hjxx.202102063

Characteristics of Partial Denitrification in Biofilm System

YU Li-fang^{1,2}, ZHANG Xing-xiu¹, ZHANG Qiong¹, WANG Xiao-yu¹, PENG Dang-cong¹, ZHANG Ri-xia³

(1. School of Environmental and Municipal Engineering, Xi'an University of Architecture and Technology, Xi'an 710055, China; 2. Key Laboratory of Northwest Water Resource, Ecology and Environment, Ministry of Education, Xi'an University of Architecture and Technology, Xi'an 710055, China; 3. Xi'an Municipal Engineering Design and Research Institute Co., Ltd., Xi'an 710068, China)

Abstract: As an intermediate form of microbial denitrification, nitrite serves as a key substrate for anaerobic ammonium oxidation (ANAMMOX). This study investigated the partial denitrification (PD) characteristics and the coupling feasibility of PD + ANAMMOX in the biofilm system, using a moving bed biofilm reactor which was operated for 120 days. After 40 days of operation with a C/N ratio of 3.0 and filling fraction of 20%, the nitrate-to-nitrite transformation ratio (NTR) reached $(69.38 \pm 3.53)\%$, and enzymatic assays indicated that the activities of nitrate reductase (NAR) had increased from 0.03 to $0.45 \mu\text{mol} \cdot (\text{min} \cdot \text{mg})^{-1}$ while the activities of nitrite reductase (NIR) had decreased from 0.18 to $0.02 \mu\text{mol} \cdot (\text{min} \cdot \text{mg})^{-1}$. Illumina high-throughput sequencing analysis revealed that the proportion of genus of *Thauera* bacteria to total microorganism increased from 0.3% (d1) to 37.27% (d64). Finally, the effluent had a total nitrogen (TN) concentration of $(6.41 \pm 1.50) \text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$, indicating a total nitrogen removal ratio of $(88.16 \pm 2.71)\%$ and confirming the feasibility of PD + ANAMMOX in the biofilm system.

Key words: moving-bed biofilm reactor(MBBR); partial denitrification; nitrite accumulation; C/N; enzymatic activity

传统生物脱氮技术一般采用硝化-反硝化途径, 该工艺操作复杂, 污泥产量大, 运行能耗高, 特别是总氮去除效果不理想, 难以满足现有标准对总氮的要求. 以厌氧氨氧化(anaerobic ammonium oxidation, ANAMMOX)为核心的新型生物脱氮工艺凭借其成本低和负荷高等优点发展迅速, 在总氮总量控制和污水厂提标升级改造等方面具有巨大的应用前景. 然而 NO_2^- -N作为新型生物脱氮工艺的重要电子受体之一, 是限制这些工艺广泛应用的瓶颈所在^[1,2]. 常见 NO_2^- -N来源有两种途径: 短程硝化和部分反硝化(partial denitrification, PD). 主流系统中, 往往由于温度、氨氮浓度较低, NOB 难以抑制, 从而导致短程硝化难以稳定实现. 而 PD 可将硝化作用产生的 NO_3^- -N及化肥制造、肉类和电子加工等行业产生的 NO_3^- -N(如西安市高新区污水处理厂进水 NO_3^- -N为

$30 \sim 40 \text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$)还原为 NO_2^- -N^[3]. 相比于传统脱氮工艺, PD 能够节省 60% 的碳源消耗^[4], 显著降低污泥产量和 N_2O 排放^[5], 且能够在低含氮废水中稳定实现^[6], 从而为 ANAMMOX 工艺提供良好的基础.

现有 PD 研究主要针对活性污泥体系^[7~10], 然而采用活性污泥法实现 PD 也存在一些问题^[11], 相较于活性污泥法, 生物膜法有抗冲击负荷能力强, 排泥量少, 不存在污泥膨胀等优点. 此外, 由于厌氧氨氧化菌世代时间长^[12,13], 生长缓慢, 很容易在活性污泥系统中淘汰, 而生物膜可以大大延长其在系统中的存留

收稿日期: 2021-02-07; 修订日期: 2021-03-02

基金项目: 陕西省重点研发计划项目(2019ZDLSF0605); 陕西省自然科学基金基础研究基金项目(2020JM-474); 碑林区科技计划项目(GX2013)

作者简介: 于莉芳(1981~), 女, 博士, 副教授, 主要研究方向为废水生物处理, E-mail: yulifang@xauat.edu.cn

时间,因此采用生物膜法实现部分反硝化有利于一体式部分反硝化耦合厌氧氨氧化工艺 (partial denitrification with anaerobic ammonium oxidation, PD + ANAMMOX) 的稳定运行. 然而生物膜系统中的 NO_2^- -N 积累可能会由于其独特的浓度梯度、微生物分层及相互作用^[14] 与活性污泥系统存在较大差异,从而影响生物膜系统中部分反硝化实际应用.

基于此,本研究通过批式实验确定生物膜系统 PD 实现的最佳条件,在移动床生物膜反应器 (moving-bed biofilm reactor, MBBR) 中考察 PD 长期运行特性,进一步分析 PD 实现前后酶活性及微生物群落的变化,并通过耦合厌氧氨氧化验证生物膜系统中 PD + ANAMMOX 的可行性及稳定性,以期为其在实际工程的应用提供理论依据.

1 材料与方法

1.1 实验装置及运行

MBBR 反应器采用有机玻璃材料,内径 15 cm,高 30 cm,有效容积为 5 L. 本实验共运行 120 d,其中 1~71 d 为 PD 启动阶段(阶段一),72~120 d 为 PD + ANAMMOX 阶段(阶段二). 每个周期运行时间如表 1 所示.

表 1 MBBR 运行阶段

Table 1 Operation stages of the MBBR system

项目	天数/d	进水/min	搅拌/min	出水/min
阶段一	1~71	10	225	5
阶段二	72~120	10	465	5

1.2 接种生物膜及进水水质

PD 启动阶段所用接种填料取自西安市第四污水处理厂的缺氧池,填料比表面积为 $500\text{ m}^2\cdot\text{m}^{-3}$,填充率为 20%; PD + ANAMMOX 阶段接种的 PD 填料取自上阶段末期,ANAMMOX 填料取自实验室稳定运行 2 a 的固定床生物膜反应器,其厌氧氨氧化活性为 $1\,743.84\text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$; PD 与 ANAMMOX 生物膜数量比为 1:1.5,总填充率为 25%.

本实验用水采用人工模拟废水,水质主要组分如表 2 所示,其他组分及微量元素分别见文献[15, 16].

表 2 合成废水水质组分

Table 2 Composition of synthetic wastewater

项目	COD /mg·L ⁻¹	NO ₃ ⁻ -N /mg·L ⁻¹	NH ₄ ⁺ -N /mg·L ⁻¹	C/N
阶段一	90	30	0	3.0
阶段二	90	30	25	1.6

1.3 批式实验

为探究生物膜系统 PD 实现的最佳条件,设计 3

组批式实验,依次为 C/N、填充率及 pH. 实验开始前,对生物膜进行冲洗以去除基质;所有批式实验均在 500 mL 广口瓶中进行,初始 NO_3^- -N 浓度为 $30\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,实验过程中通入氮气以保证缺氧环境及充分搅拌. 反应共进行 240 min,每隔 10~30 min 取样,并测定 NO_3^- -N 和 NO_2^- -N 浓度.

C/N: 填充率为 20% 的条件下,投加一定量的 CH_3COONa 浓溶液,使初始 C/N 分别为 1.0、2.5、2.8、3.0、3.5 和 4.0.

填充率: C/N 分别为 2.5 和 3.0 的条件下,投加一定量的生物膜,使不同 C/N 的填充率依次为 10%、20% 和 30%.

pH: C/N = 3.0, 填充率 = 20% 的条件下,调节进水 pH,使初始 pH 分别为 5.0、7.0 和 9.0.

1.4 分析项目及方法

1.4.1 常规水质

NH_4^+ -N、 NO_2^- -N 和 NO_3^- -N 采用标准分析方法^[17] 测定;溶解氧 (DO) 和 pH 分别采用 Seven2Go S9 型溶氧仪 (Mettler Toledo, 瑞士) 及雷磁 PHS-3C pH 计进行测定;COD 采用 COD 快速分析仪测定.

1.4.2 反硝化活性

比 NO_3^- -N 还原速率 $\mu(\text{NO}_3^- \text{-N})$ 和比 NO_2^- -N 积累速率 $\mu(\text{NO}_2^- \text{-N})_{\text{Accu}}$ 的测定方法如下:加入一定量的 NaNO_3 和 CH_3COONa ,使 NO_3^- -N 和 COD 初始浓度分别保持在 $30\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $90\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,充入氮气使反应器保持缺氧并定时测定 NO_3^- -N 及 NO_2^- -N 浓度.

比 NO_2^- -N 还原速率 $\mu(\text{NO}_2^- \text{-N})$ 根据公式 (1) 计算^[15]:

$$\mu(\text{NO}_2^- \text{-N}) = \mu(\text{NO}_3^- \text{-N}) - \mu(\text{NO}_2^- \text{-N})_{\text{Accu}} \quad (1)$$

1.4.3 酶活性

NO_3^- -N 还原酶 (nitrate reductase, NAR) 和 NO_2^- -N 还原酶 (nitrite reductase, NIR) 采用超声破碎法提取^[18]. 所得酶液以甲基紫精为电子供体,在 2 mL 体系中测定. 其中 NAR 测定体系中包含: $0.01\text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ PBS (pH = 7.4), $5.4\text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ NaNO_3 , $200\text{ }\mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$ 甲基紫精, $5\text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$, $750\text{ }\mu\text{L}$ 粗酶; NIR 测定体系中包含 $0.01\text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ PBS (pH = 7.4), $1\text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ NaNO_2 , $1\text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ 甲基紫精, $5\text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$, $750\text{ }\mu\text{L}$ 粗酶. 酶活性单位为 $\mu\text{mol}\cdot(\text{min}\cdot\text{mg})^{-1}$. 具体测定方法见文献[18].

1.4.4 指标计算方法

(1) PD 阶段长期运行的 NO_3^- -N $\rightarrow$ NO_2^- -N 转化率 (nitrate-to-nitrite transformation ratio, NTR) 和 NO_3^- -N 去除率 (nitrate removal ratio, NRR) 计算方法

见公式(2)^[15]和公式(3):

$$\text{NTR} = \frac{(\text{NO}_2^- - \text{N})_{\text{eff}} - (\text{NO}_2^- - \text{N})_{\text{inf}}}{(\text{NO}_3^- - \text{N})_{\text{inf}} - (\text{NO}_3^- - \text{N})_{\text{eff}}} \times 100\% \quad (2)$$

$$\text{NRR} = \frac{(\text{NO}_3^- - \text{N})_{\text{inf}} - (\text{NO}_3^- - \text{N})_{\text{eff}}}{(\text{NO}_3^- - \text{N})_{\text{inf}}} \times 100\% \quad (3)$$

式中, $(\text{NO}_2^- - \text{N})_{\text{eff}}$ 表示出水 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 浓度, $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$; $(\text{NO}_2^- - \text{N})_{\text{inf}}$ 表示进水 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 浓度, $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$; $(\text{NO}_3^- - \text{N})_{\text{eff}}$ 表示出水 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 浓度, $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$; $(\text{NO}_3^- - \text{N})_{\text{inf}}$ 表示进水 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 浓度, $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$.

(2) 异位批次实验及典型周期 NTR 计算方法见公式(4):

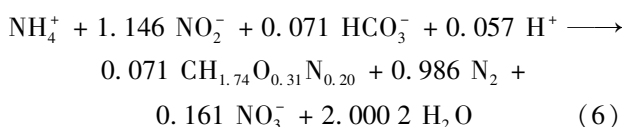
$$\text{NTR} = \frac{(\text{NO}_2^- - \text{N})_t - (\text{NO}_2^- - \text{N})_0}{(\text{NO}_3^- - \text{N})_0 - (\text{NO}_3^- - \text{N})_t} \times 100\% \quad (4)$$

式中, $(\text{NO}_2^- - \text{N})_t$ 表示 t 时刻的 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 浓度, $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$; $(\text{NO}_2^- - \text{N})_0$ 表示初始时刻的 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 浓度, $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$; $(\text{NO}_3^- - \text{N})_t$ 表示 t 时刻的 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 浓度, $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$; $(\text{NO}_3^- - \text{N})_0$ 表示初始时刻的 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 浓度, $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$.

(3) PD + ANAMMOX 阶段 NTR 计算方法见公式(5):

$$\text{NTR} = \frac{(\text{NO}_2^- - \text{N})_t + (\text{NO}_2^- - \text{N})_{\text{amx},t}}{(\text{NO}_3^- - \text{N})_0 + (\text{NO}_3^- - \text{N})_{\text{amx},t} - (\text{NO}_3^- - \text{N})_t} \times 100\% \quad (5)$$

式中, $(\text{NO}_2^- - \text{N})_t$ 表示 t 时刻的 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 浓度, $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$; $(\text{NO}_2^- - \text{N})_{\text{amx},t}$ 表示 ANAMMOX 反应理论上在 t 时刻消耗的 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 浓度, 根据公式(6)及 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 浓度变化计算, $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$; $(\text{NO}_3^- - \text{N})_0$ 表示初始时刻的 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 浓度, $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$; $(\text{NO}_3^- - \text{N})_{\text{amx},t}$ 表示 ANAMMOX 反应理论上在 t 时刻产生的 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 浓度, 根据公式(6)及 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 浓度变化计算, $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$; $(\text{NO}_3^- - \text{N})_t$ 表示 t 时刻的 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 浓度, $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$.



(4) PD + ANAMMOX 阶段 TN 去除率 (total nitrogen removal ratio, TNRR) 计算方法见公式(7):

$$\text{TNRR} = \frac{[(\text{NO}_3^- - \text{N})_{\text{inf}} + (\text{NH}_4^+ - \text{N})_{\text{inf}} - (\text{NO}_3^- - \text{N})_{\text{eff}} - (\text{NH}_4^+ - \text{N})_{\text{eff}} - (\text{NO}_2^- - \text{N})_{\text{eff}}]}{[(\text{NO}_3^- - \text{N})_{\text{inf}} + (\text{NH}_4^+ - \text{N})_{\text{inf}}]} \times 100\% \quad (7)$$

式中, $(\text{NH}_4^+ - \text{N})_{\text{inf}}$ 表示进水 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 浓度, $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$; $(\text{NH}_4^+ - \text{N})_{\text{eff}}$ 表示出水 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 浓度, $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$.

1.4.5 微生物群落分析

微生物群落结构分析采用 Illumina MiSeq 高通

量测序. 取接种填料及反应器运行第 64 d 的生物膜进行高通量测序分析. 样品由北京奥维森基因科技有限公司提供测序技术支持, 采用引物序列 515a (GTGCCAGCMGCCGCGGTAA) 和 806 (GGACTAC HVGGGTWCTAAT) 对样品 16S V4 区进行扩增. 测序方法见文献[19].

2 结果与讨论

2.1 部分反硝化生物膜的影响因素

2.1.1 C/N

图 1 为填充率 = 20% 时, 不同 C/N 条件下批次实验中氮浓度及 NTR 变化. 结果显示, 随着 C/N 增加, $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 最大积累量逐渐增加, 由 $9.50 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 增加到 $25.21 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 积累率由 50.81% 增加到 75.05%, 这说明该实验条件下, 不同 C/N 均能实现部分反硝化. 值得注意的是, 在 C/N 为 2.5 ~ 4.0 时, $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 积累量达到最大值时, 所对应的混合液中 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 浓度为 $1.60 \sim 4.80 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$. 然而在碳源充足的条件下 (C/N 为 3.5 和 4.0), $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 浓度达到峰值后, 又显著下降, 且随着 C/N 增加, $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 还原速率逐渐增加, 这阶段 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 浓度均下降至 $1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 以下.

这是因为在碳源充足的条件下, $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 存在时, $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 还原酶被抑制^[15], 反硝化菌优先以 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 作为电子受体进行反应; 随着 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 的减少, $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 还原酶抑制解除, $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 进一步还原为氮气. 当 C/N 为 2.5 ~ 3.0 时, 由于反应末端均有 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 残留, 从而使 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 维持一定的浓度, 因此, 在该 C/N 范围内有利于稳定实现部分反硝化.

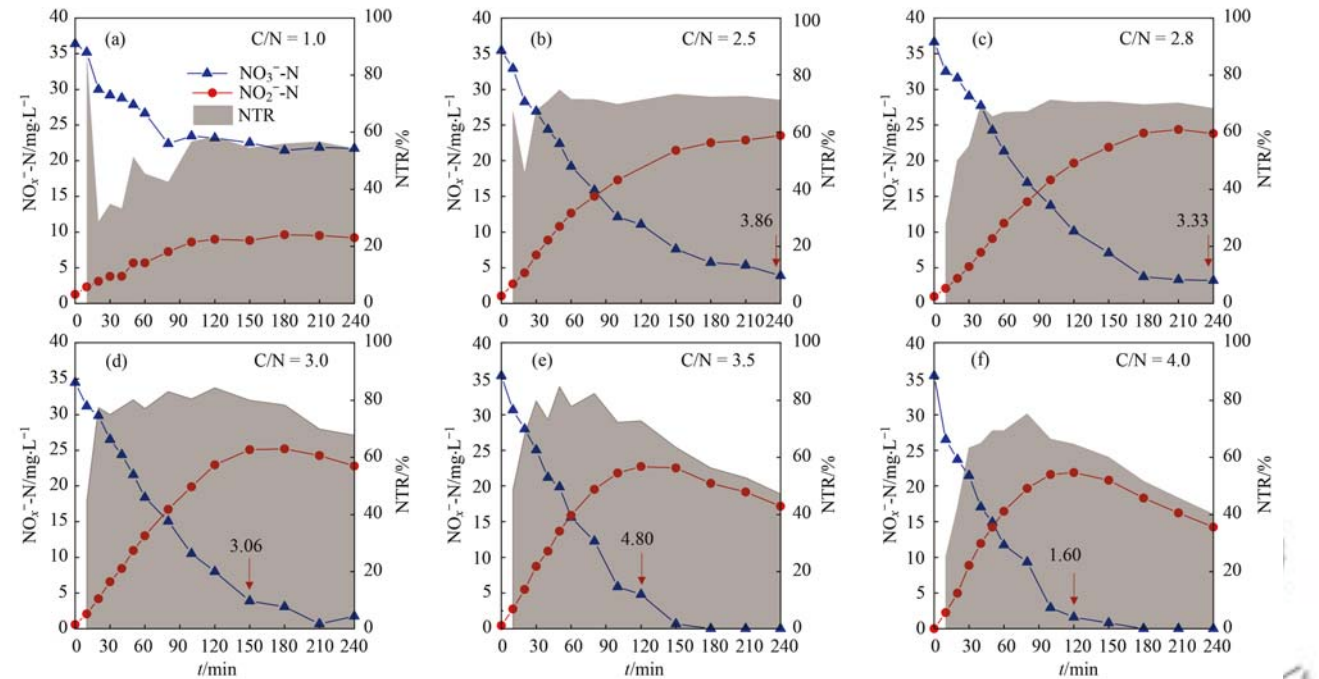
综上所述, 在生物膜系统中 C/N 对 PD 的影响与活性污泥系统^[8,20]类似, 当 C/N 为 2.5 ~ 3.0 这一范围内时, 均能够较好地实现部分反硝化.

2.1.2 填充率

图 2 为 C/N 分别为 2.5 和 3.0 时, 不同填充率下批次实验中氮浓度及 NTR 变化. 结果显示, C/N = 3.0, 填充率为 10%、20% 和 30% 时, $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 最大积累量所对应的 NTR 分别为 74.52%、78.68% 和 67.61%, 表明在不同填充率下均能够实现部分反硝化. 此外, 填充率越大, 达到 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 最大积累量所需的时间越少, 积累量达到峰值后, $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 逐渐下降, 且随着填充率增加, $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 还原速率逐渐增加. 由图 2(d) 可以看出, 当填充率 = 30% 时, 反应结束后 NTR 下降至 38.03%. 这是因为填充率与生物量密切相关^[21], 填充率越高, 生物量越多, 对

应的单位生物膜的 NO_3^- -N负荷降低,当 NO_3^- -N完全消耗后, NO_2^- -N通过内部碳源进一步还原,从而导致TN下降,NTR降低. $\text{C/N}=2.5$ 时,表现出相同的规律,但是由于碳源不足,NTR相较于 $\text{C/N}=$

3.0时略低. 因此,生物膜系统中,当填充率为10%和20%时,有利于稳定地实现部分反硝化;填充率过高时(30%)需要及时停止反应来维持 NO_2^- -N积累.



数据为 NO_2^- -N浓度最大时所对应的 NO_3^- -N浓度

图1 C/N 比对部分反硝化的影响

Fig. 1 Effects of different C/N ratios on partial denitrification

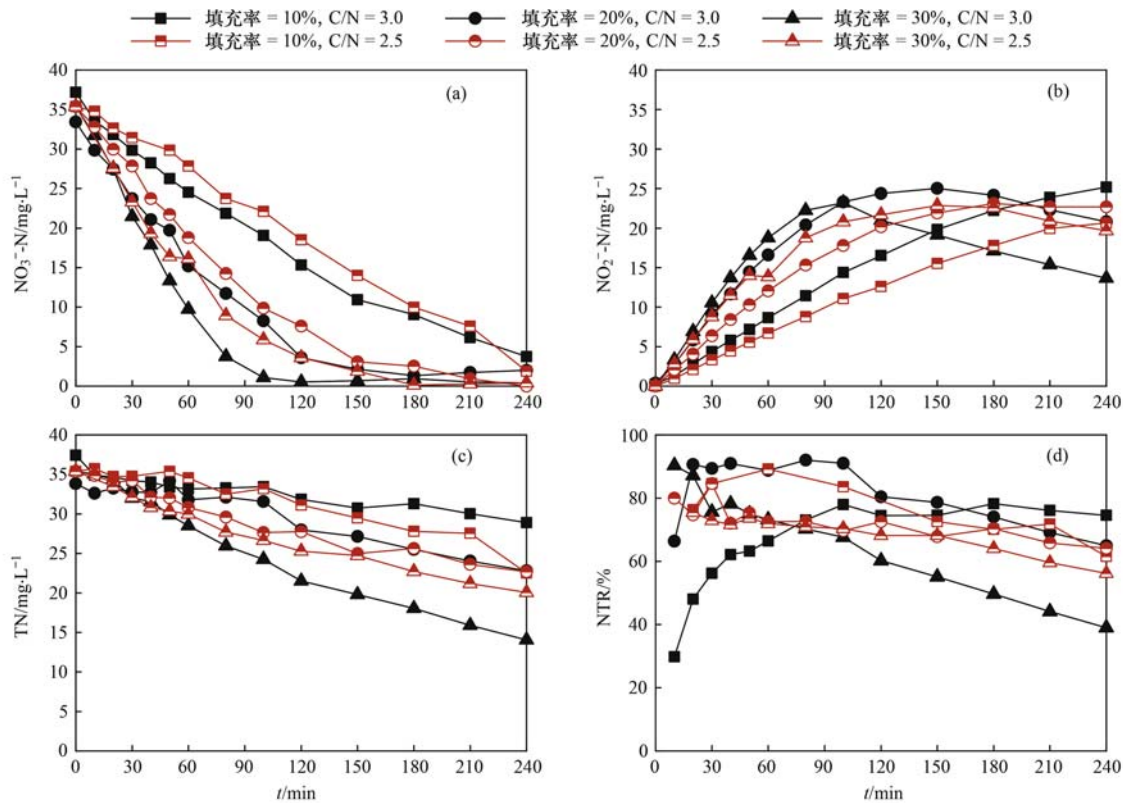


图2 填充率对部分反硝化的影响

Fig. 2 Effects of different filling proportions on partial denitrification

2.1.3 pH

图3为 $C/N = 3.0$, 填充率 = 20% 时, 不同进水 pH 下批式实验中氮浓度及 NTR 变化. 结果显示, 在不同进水 pH 条件下, 均能够实现部分反硝化, 随着 NO_3^- -N 的减少, NO_2^- -N 均逐渐增加, 且浓度变化接近. 对不同 pH 条件下的数据进行误差百分比分析, 结果表明误差百分比小于 10%. 这说明在进水 pH = 5~9 的范围内, NO_2^- -N 积累率受 pH 影响不大.

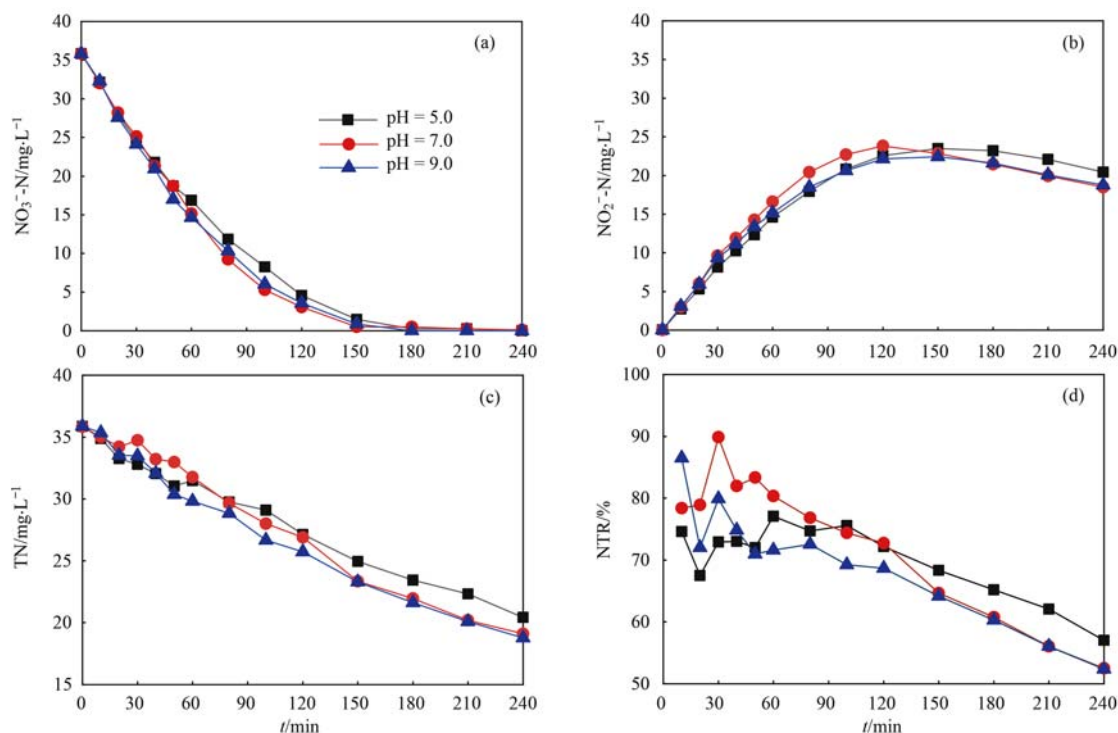


图3 pH 对部分反硝化的影响

Fig. 3 Effects of different pH on partial denitrification

2.2 MBBR 启动及运行特性

由 2.1.2 节可知, 10% 和 20% 填充率均有利于稳定维持部分反硝化, 考虑到启动初期生物量过少反应时间长, 采用 C/N 为 3.0, 填充率为 20% 作为长期运行条件. 图4为 MBBR 反应器长期运行结果, 根据反应器不同操作条件分为两个阶段. 其中阶段一为 MBBR 部分反硝化启动阶段 (1~71 d). 在启动第一天, 反应器出现 NO_2^- -N 积累, 其中 NTR 为 37.96%, NRR 为 54.10%. 这与接种填料有关, 本实验中的接种填料为某污水处理厂缺氧区的填料, 反硝化性能良好, 在限制碳源的条件下, NO_2^- -N 得到积累. 经过 40 d 的连续培养, 出水 NO_3^- -N 逐渐下降至 $3 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 以下, 出水 NO_2^- -N 达 $(20 \pm 1.68) \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, NTR 达到 $(69.38 \pm 3.53)\%$, 并能稳定维持. 这表明, MBBR 系统能够实现部分反硝化, 但低于以往活性污泥系统中高达 80% 的 NO_2^- -N 积累率^[16, 18, 24]. 对比其他生物膜系统的研究发现^[25, 26],

而在活性污泥系统中, Qian 等^[22]的研究认为, pH = 9.0 时会抑制 NO_2^- -N 还原酶, 从而有利于 NO_2^- -N 积累; Cao 等^[23]的研究认为低 pH (pH = 6.5) 会扩大 NO_3^- -N 还原速率和 NO_2^- -N 还原速率间的差异, 从而使 NO_2^- -N 更容易积累. 但从 PD 过程分析, NO_3^- -N 还原为 NO_2^- -N 时不产生碱度, 而且生物膜系统相较于活性污泥系统抗冲击能力强, 因此, 实验条件下 pH 对 PD 生物膜 NO_2^- -N 积累率影响不明显.

生物膜系统中 NO_2^- -N 积累率普遍低于活性污泥系统.

为探究生物膜系统中 PD + ANAMMOX 工艺脱氮可行性及稳定性, 在阶段二 (PD + ANAMMOX 阶段, 72~120 d) 中加入了厌氧氨氧化生物膜及氨氮, 该阶段 C/N 由于加入氨氮降至 1.6. 由图4可知, 在第 72 d (耦合第 1 d), 出水 NO_2^- -N 由耦合前的 $(20 \pm 1.68) \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 降至 $6.44 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, NH_4^+ -N 由进水的 $24.82 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 降至 $11.90 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 表明在启动初期厌氧氨氧化菌将部分反硝化生成的 NO_2^- -N 和进水中的 NH_4^+ -N 转化成了 N_2 , 从而实现了协同脱氮. 随着耦合时间的增加, 出水氮浓度逐渐降低并趋于稳定, 其中出水 NH_4^+ -N 为 $(2.90 \pm 0.67) \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 出水总氮为 $(6.41 \pm 1.50) \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 总氮去除率达 $(88.16 \pm 2.71)\%$. 这表明了 MBBR 中 PD + ANAMMOX 具有初步可行性. 此外, 在阶段二中, NTR 始终保持在 $(74.92 \pm 5.71)\%$, 表明在耦合阶段

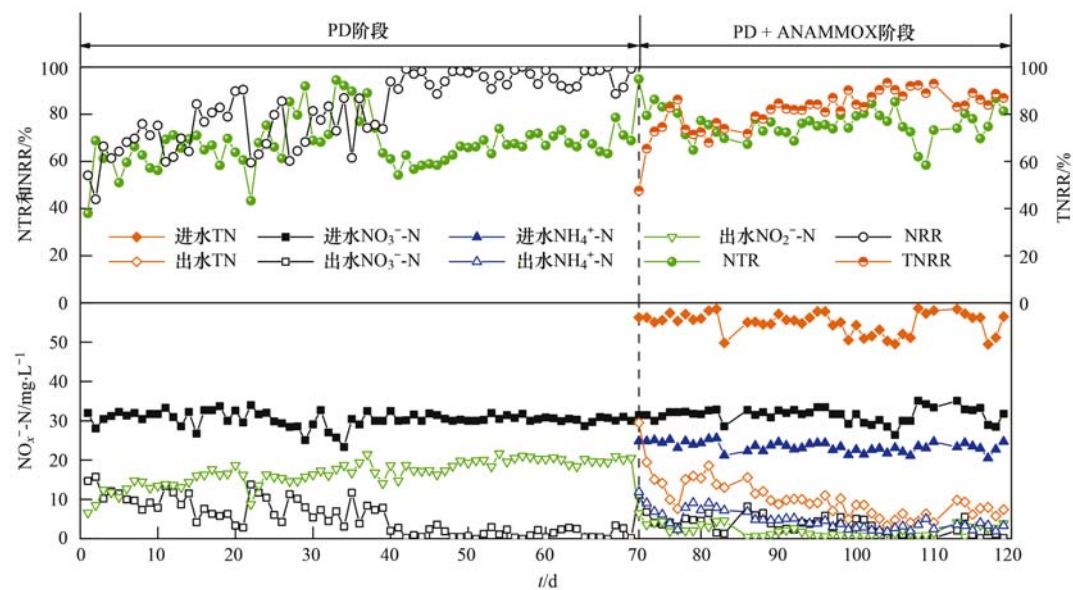


图4 MBBR 进出水氮浓度变化

Fig. 4 Variations of nitrogen in influent and effluent of the MBBR system

PD 能够稳定提供 NO_2^- -N,从而保证生物膜系统中 PD + ANAMMOX 工艺的正常运行.

2.3 MBBR 部分反硝化典型周期

图5为 MBBR 部分反硝化阶段的一个典型周期(第50 d).前50 min内, NO_3^- -N浓度迅速从 $32.9\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 降至 $9.49\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,COD从 $90\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 降至 $16.66\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,而 NO_2^- -N迅速增加至 $18.7\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,这是由于在反应初期,进水中 NO_3^- -N和COD相对充足,有利于反应的进行.随后50~220 min,COD浓度基本不变, NO_3^- -N逐渐降至 $1.11\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,而 NO_2^- -N增加至 $22.23\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,平均NTR达70.24%,在这一阶段,由于外部碳源匮乏, NO_3^- -N主要通过前期吸附的碳源及内部碳源进行还原,且由于在整个过程中 NO_3^- -N始终存在,使得 NO_2^- -N未进行进一步的还原.

显然,在反应过程中, NO_2^- -N积累浓度始终未达到初始 NO_3^- -N浓度,且在反应初期,总氮迅速下降 $6.23\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$.这是因为生物膜系统包含混合液和生物膜内部两个反应区域^[27],当反应初期底物充足时, NO_3^- -N迅速还原为 NO_2^- -N,其中部分 NO_2^- -N通过扩散进入生物膜内部被进一步还原,从而导致总氮下降,NTR偏低.

此外,反应时间是活性污泥系统中实现PD的一个重要参数^[28,29],然而由图5可以发现,尽管PD主要集中在前50 min,但在之后的170min内也能够保持良好的 NO_2^- -N积累性能,NTR在220 min内仅从73%降至65%.其主要原因是碳源受限以及 NO_3^- -N残留,这与上述C/N对PD影响中的讨论结果是一致的.因此,在生物膜系统中,PD的反应时

间灵活,能够为实际工程应用中与ANAMMOX的耦合提供良好的基础.

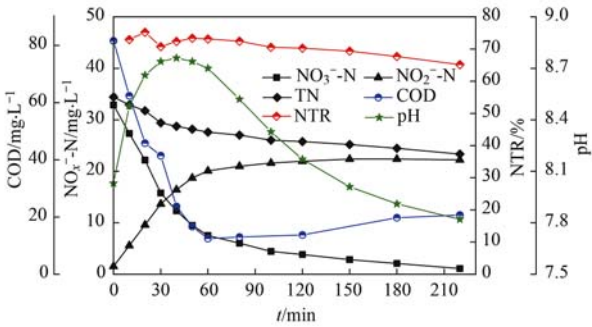


图5 MBBR 反应器典型周期内氮素转化以及 COD 和 pH 变化曲线(第50 d)

Fig. 5 Variation of nitrogen conversion, COD, and pH during a typical cycle of an MBBR reactor on day 50

2.4 反硝化活性及酶活性

2.4.1 反硝化活性

图6是 MBBR 反应器的反硝化活性.从中可见,随着 MBBR 运行时间的增加, NO_2^- -N积累量逐渐提高, $\mu(\text{NO}_3^-$ -N)由 $780.48\text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$ 增至 $5211.36\text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$; $\mu(\text{NO}_2^-$ -N)_{Accu}由 $168.48\text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$ 增至 $4861.44\text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$; $\mu(\text{NO}_2^-$ -N)由 $612\text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$ 降至 $349.92\text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$,这与反应器进出水的 NO_3^- -N和 NO_2^- -N浓度变化趋势是一致的.表明碳源受限时,随着 MBBR 运行时间的增加, $\mu(\text{NO}_3^-$ -N)与 $\mu(\text{NO}_2^-$ -N)差异增大,这可能是PD实现的原因.

2.4.2 酶活性

为进一步探究PD实现的原因,测定了接种生物膜及培养43 d生物膜的NAR活性和NIR活性.

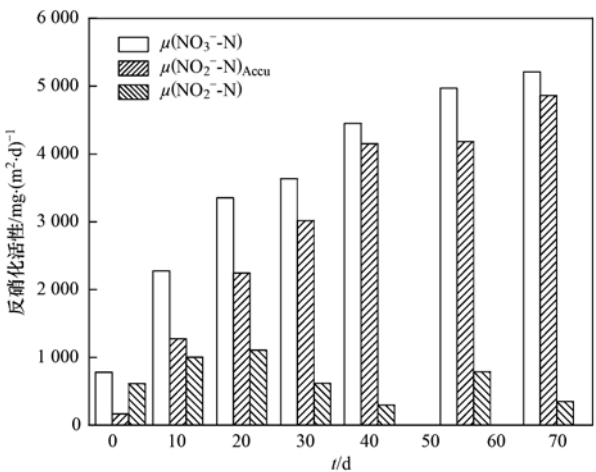


图6 MBBR 运行阶段反硝化活性

Fig. 6 Denitrification activity of MBBR system during the operation stage

实验结果如图7所示, NAR由 $0.03\text{ }\mu\text{mol}\cdot(\text{min}\cdot\text{mg})^{-1}$ 增至 $0.45\text{ }\mu\text{mol}\cdot(\text{min}\cdot\text{mg})^{-1}$; NIR由 $0.18\text{ }\mu\text{mol}\cdot(\text{min}\cdot\text{mg})^{-1}$ 降至 $0.02\text{ }\mu\text{mol}\cdot(\text{min}\cdot\text{mg})^{-1}$.与反硝化活性(图6)变化趋势一致.

值得一提的是,接种生物膜中NAR活性低于NIR活性,表明反应器初期的 NO_2^- -N积累是碳源受限的结果.此时,由于NIR较高,仍有部分 NO_2^- -N被还原为氮气, NO_2^- -N积累量相对较低.富集培养43 d后,生物膜中NAR活性远高于NIR活性,此时

NO_2^- -N积累量远高于启动初期.进一步说明,PD的实现是外部条件的变化刺激微生物酶活性的变化从而导致的最终结果.

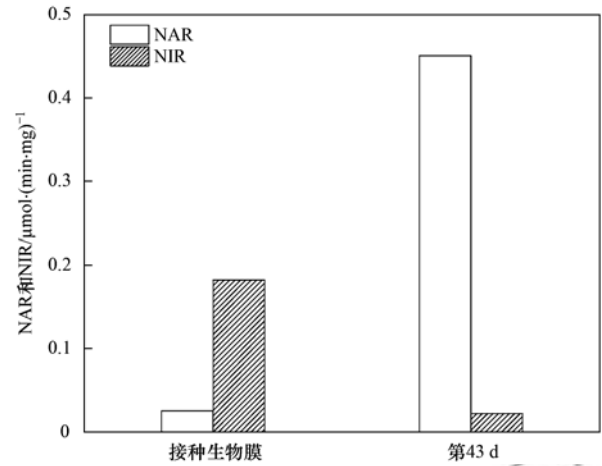


图7 部分反硝化前后酶活性变化

Fig. 7 Changes in enzyme activity before and after partial denitrification

2.5 系统中微生物群落变化分析

为了进一步研究MBBR中微生物群落的演化,分别取接种生物膜和培养第64 d的样品进行高通量测序.表3为 α 多样性指数分析结果.分析结果显示,反应器运行64 d后,Chao1指数和Shannon指数均有明显下降,表明随着部分反硝化的实现,微生物种类下降,群落多样性降低,优势菌群富集.

表3 α 多样性指数分析

Table 3 Analysis of α diversity index

样品	OTUs	Chao1 指数	Shannon 指数	Simpson 指数
接种生物膜	2 962	2 984.56	8.65	0.99
第64 d 生物膜	1 426	1 649.13	5.04	0.85

图8(a)为接种生物膜和培养第64 d的生物膜样品门水平微生物丰度群落,其中,A为接种生物膜,B为培养第64 d生物膜.从中可知,接种生物膜主要菌门为:Proteobacteria(40.59%)、Chloroflexi(13.69%)、Firmicutes(10.08%)、Bacteroidetes(9.06%)、Spirochaetae(3.18%)和Acidobacteria(2.98%)等;培养第64 d生物膜主要菌门为:Proteobacteria(75.17%)、Bacteroidetes(10.58%)、Acidobacteria(4.06%)和Chloroflexi(2.91%)等.其中,Proteobacteria在氮循环中具有重要作用,在之前的PD活性污泥系统研究中通常占很高的比例^[28,30,31].随着PD的实现,变形菌门丰度增加至75.17%,占主导地位,说明反应器功能菌富集程度高.

图8(b)为接种生物膜和培养第64 d的生物膜样品属水平微生物丰度群落.接种生物膜主要菌属

为: *Sulfuritalea* 属(3.62%)、*Desulfobacterium_catecholicum_group* 属(3.39%)和*Desulfomonile* 属(2.34%),培养64 d生物膜主要菌属为: *Thauera* 属(37.28%)、*Ottowia* 属(11.97%)和*Flavobacterium* 属(4.74%).可以发现,随着PD的实现,*Thauera* 属从0.3%增加至37.27%,占主导地位.在以乙酸为碳源的PD过程中,*Thauera* 属被认为是实现 NO_2^- -N积累的主要功能菌属^[15,31],这是因为*Thauera* 属中NAR含量远大于NIR,且在 NO_3^- -N完全消耗前,NIR不表达^[11,32].这与上述PD实现后的酶活性(图6)趋势是一致的.进一步从微生物群落的角度证明了PD的实现是由外部条件的变化刺激微生物酶活性变化,最终使微生物群落发生变化导致的最终结果.

此外,本实验中,*Thauera* 属从0.3%增加至37.27%,实现了菌群富集,成为优势菌属,然而低于

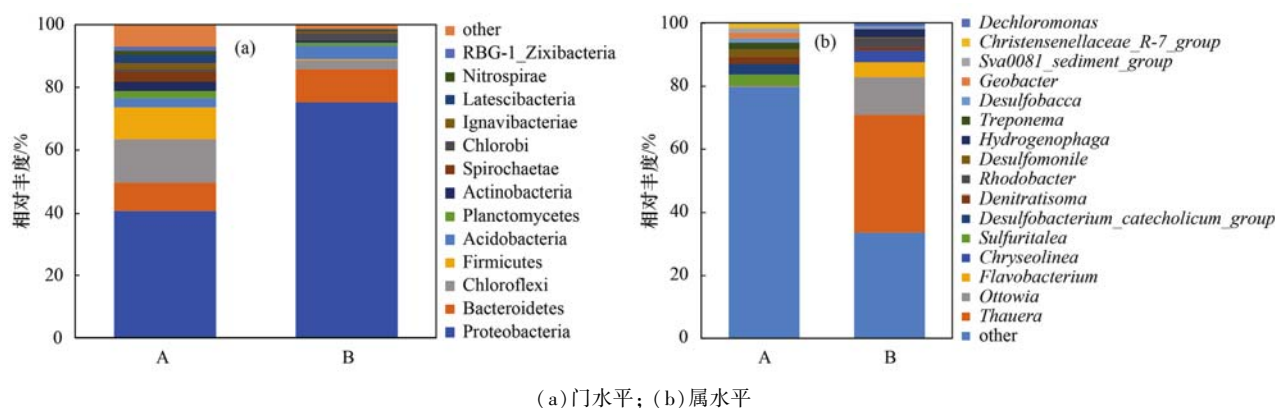


图8 接种生物膜和培养第64 d 细菌群落的相对丰度

Fig. 8 Relative abundance of microbial community of biofilm, inoculated and cultured on day 64

同样以乙酸钠为碳源的活性污泥系统中 NTR 大于 80% 的研究^[11,15,33]. 推测在生物膜系统中 NO_2^- -N 积累率低于活性污泥系统是由于生物膜特性或者操作条件等因素未能富集足够多的功能菌群导致的.

3 结论

(1) 在低浓度移动床生物膜系统中, $\text{C/N} = 3.0$, 填充率为 20% 的条件下能够较好地实现 NO_2^- -N 积累.

(2) 在 MBBR 部分反硝化系统中长期运行 40 d 后能够稳定实现部分反硝化且 NTR 能够达到 $(69.38 \pm 3.53)\%$. 稳定运行期间, NAR 活性是 NIR 活性的 22.5 倍, 分别为 $0.45 \mu\text{mol} \cdot (\text{min} \cdot \text{mg})^{-1}$ 和 $0.02 \mu\text{mol} \cdot (\text{min} \cdot \text{mg})^{-1}$.

(3) MBBR 系统部分反硝化实现后, *Thauera* 成为优势菌属, 占比 37.27%, 有利于稳定维持部分反硝化.

(4) 耦合厌氧氨氧化后, MBBR 出水总氮为 $(6.41 \pm 1.50) \text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 总氮去除率达 $(88.16 \pm 2.71)\%$, 证明了生物膜系统中 PD + ANAMMOX 的可行性.

参考文献:

- [1] Du R, Peng Y Z, Ji J T, *et al.* Partial denitrification providing nitrite: opportunities of extending application for anammox [J]. Environment International, 2019, **131**, doi: 10.1016/j.envint.2019.105001.
- [2] Zhang M, Wang S Y, Ji B, *et al.* Towards mainstream deammonification of municipal wastewater: partial nitrification-anammox versus partial denitrification-anammox [J]. Science of the Total Environment, 2019, **692**: 393-401.
- [3] Shi L L, Du R, Peng Y Z, *et al.* Simultaneous carbon reutilization for primary sludge and stable nitrite production in a hydrolytic acidification coupled with partial denitrification system to treat nitrate contaminant [J]. Bioresource Technology, 2020, **318**, doi: 10.1016/J.BIORTECH.2020.124062.
- [4] Ma B, Xu X X, Wei Y, *et al.* Recent advances in controlling denitrification for achieving denitrification/anammox in mainstream wastewater treatment plants [J]. Bioresource Technology, 2019, **299**, doi: 10.1016/j.biortech.2019.122697.
- [5] Du R, Cao S B, Zhang H Y, *et al.* Flexible nitrite supply alternative for mainstream anammox: advances in enhancing process stability [J]. Environmental Science & Technology, 2020, **54**(10): 6353-6364.
- [6] Zhang M, Gao J, Liu Q L, *et al.* Nitrite accumulation and microbial behavior by seeding denitrifying phosphorus removal sludge for partial denitrification (PD): the effect of COD/ NO_3^- ratio [J]. Bioresource Technology, 2021, **323**, doi: 10.1016/J.BIORTECH.2020.124524.
- [7] Zhang Z Z, Zhang Y, Chen Y G. Recent advances in partial denitrification in biological nitrogen removal: from enrichment to application [J]. Bioresource Technology, 2020, **298**, doi: 10.1016/j.biortech.2019.122444.
- [8] Gong L X, Huo M X, Yang Q, *et al.* Performance of heterotrophic partial denitrification under feast-famine condition of electron donor: a case study using acetate as external carbon source [J]. Bioresource Technology, 2013, **133**: 263-269.
- [9] Cao S B, Wang S Y, Peng Y Z, *et al.* Achieving partial denitrification with sludge fermentation liquid as carbon source: the effect of seeding sludge [J]. Bioresource Technology, 2013, **149**: 570-574.
- [10] 毕春雪, 于德爽, 杜世明, 等. 乙酸钠作为碳源不同污泥源短程反硝化过程亚硝酸盐积累特性 [J]. 环境科学, 2019, **40**(2): 783-790.
- [11] Bi C X, Yu D S, Du S M, *et al.* Nitrite accumulation characteristics of partial denitrification in different sludge sources using sodium acetate as carbon source [J]. Environmental Science, 2019, **40**(2): 783-790.
- [12] Du R, Cao S B, Wang S Y, *et al.* Performance of partial denitrification (PD)-ANAMMOX process in simultaneously treating nitrate and low C/N domestic wastewater at low temperature [J]. Bioresource Technology, 2016, **219**: 420-429.
- [13] López H, Puig S, Ganigué R, *et al.* Start-up and enrichment of a granular anammox SBR to treat high nitrogen load wastewaters [J]. Journal of Chemical Technology and Biotechnology, 2008, **83**(3): 233-241.
- [14] Jetten M S M, Strous M, van de Pas-Schoonen K T, *et al.* The anaerobic oxidation of ammonium [J]. FEMS Microbiology Reviews, 1998, **22**(5): 421-437.
- [15] Sabba F, Terada A, Wells G, *et al.* Nitrous oxide emissions from biofilm processes for wastewater treatment [J]. Applied Microbiology and Biotechnology, 2018, **102**(22): 9815-9829.
- [16] Du R, Peng Y Z, Cao S B, *et al.* Mechanisms and microbial structure of partial denitrification with high nitrite accumulation

- [J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2016, **100**(4): 2011-2021.
- [16] Du R, Cao S B, Li B K, *et al.* Performance and microbial community analysis of a novel DEAMOX based on partial-denitrification and anammox treating ammonia and nitrate wastewaters[J]. *Water Research*, 2017, **108**: 46-56.
- [17] 国家环境保护局. 水和废水监测分析方法[M]. (第三版). 北京: 中国环境科学出版社, 1989.
- [18] Li W, Lin X Y, Chen J J, *et al.* Enrichment of denitrating bacteria from a methylotrophic denitrifying culture[J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2016, **100**(23): 10203-10213.
- [19] 于莉芳, 汪宇, 滑思思, 等. 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[J]. *环境科学*, 2021, **42**(4): 1923-1929.
- Yu L F, Wang Y, Hua S S, *et al.* Seasonal effects of influent ammonia oxidizing bacteria of municipal wastewater treatment plants on activated sludge system[J]. *Environmental Science*, 2021, **42**(4): 1923-1929.
- [20] Le T, Peng B, Su C Y, *et al.* Nitrate residual as a key parameter to efficiently control partial denitrification coupling with anammox[J]. *Water Environment Research*, 2019, **91**(11): 1455-1465.
- [21] 王亚举, 黄胜, 杨慧敏, 等. 不同填充率对 MBBR 污水处理效果影响研究[J]. *广东化工*, 2017, **44**(8): 149-150, 185.
- Wang Y J, Huang S, Yang H M, *et al.* Study on the effect of different filling rate on MBBR wastewater treatment[J]. *Guangdong Chemical Industry*, 2017, **44**(8): 149-150, 185.
- [22] Qian W T, Ma B, Li X Y, *et al.* Long-term effect of pH on denitrification: high pH benefits achieving partial-denitrification[J]. *Bioresource Technology*, 2019, **278**: 444-449.
- [23] Cao X S, Qian D, Meng X Z. Effects of pH on nitrite accumulation during wastewater denitrification[J]. *Environmental Technology*, 2013, **34**(1): 45-51.
- [24] Li W, Liu S, Zhang M, *et al.* Oxidation of organic electron donor by denitrification: performance, pathway and key microorganism[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2018, **343**: 554-560.
- [25] Cui B, Liu X H, Yang Q, *et al.* Achieving partial denitrification through control of biofilm structure during biofilm growth in denitrifying biofilter[J]. *Bioresource Technology*, 2017, **238**: 223-231.
- [26] 田夏迪, 张树军, 杨岸明, 等. 城市污水厂部分反硝化滤池启动及运行[J]. *中国环境科学*, 2020, **40**(3): 1068-1074.
- Tian X D, Zhang S J, Yang A M, *et al.* Study on start-up and operation of partial denitrification filter in municipal wastewater treatment plant[J]. *China Environmental Science*, 2020, **40**(3): 1068-1074.
- [27] Sabba F, Picioreanu C, Nerenberg R. Mechanisms of nitrous oxide (N_2O) formation and reduction in denitrifying biofilms[J]. *Biotechnology and Bioengineering*, 2017, **114**(12): 2753-2761.
- [28] Cao S B, Zhou Y. New direction in biological nitrogen removal from industrial nitrate wastewater via anammox[J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2019, **103**(18): 7459-7466.
- [29] Lu Y F, Ding Z B, Gao K X, *et al.* The effect of hydraulic retention time on ammonia and nitrate bio-removal over nitrite process[J]. *Environmental Technology*, 2020, **41**(10): 1275-1283.
- [30] 张星星, 王超超, 王垚, 等. 基于不同废污泥源的短程反硝化快速启动及稳定性[J]. *环境科学*, 2020, **41**(8): 3715-3724.
- Zhang X X, Wang C C, Wang Y, *et al.* Rapid start-up and stability of partial denitrification based on different waste sludge sources[J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(8): 3715-3724.
- [31] Si Z, Peng Y Z, Yang A M, *et al.* Rapid nitrite production via partial denitrification: pilot-scale operation and microbial community analysis[J]. *Environmental Science: Water Research & Technology*, 2018, **4**(1): 80-86.
- [32] Liu B B, Mao Y J, Bergaust L, *et al.* Strains in the genus *Thauera* exhibit remarkably different denitrification regulatory phenotypes[J]. *Environmental Microbiology*, 2013, **15**(10): 2816-2828.
- [33] 董晓莹, 彭党聪. 不同碳氮比下污水反硝化过程中亚硝酸盐积累的特性研究[J]. *环境科学学报*, 2017, **37**(9): 3349-3355.
- Dong X Y, Peng D C. Nitrite accumulation in denitrification with different C/N ratios[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2017, **37**(9): 3349-3355.

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)