

方知库  
Eco-Environmental  
Knowledge Web

# 环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV  
HUANJING KEXUE

- 主办 中国科学院生态环境研究中心
- 出版 科学出版社



2019

Vol.40 No.8  
第40卷 第8期

目次

2016年京津冀地区红色预警时段PM<sub>2.5</sub>污染特征与浓度控制效果 ..... 张冲, 郎建奎, 程水源, 王晓琦 (3397)

北京地区秋冬季大气污染特征及成因分析 ..... 徐冉, 张恒德, 杨孝文, 程水源, 张天航, 江琪 (3405)

合肥市PM<sub>2.5</sub>和PM<sub>10</sub>中元素组成特征及重污染成因分析 ..... 刘可可, 张红, 刘桂建 (3415)

濮阳市秋冬季大气细颗粒物污染特征及来源解析 ..... 陈楚, 王体健, 李源昊, 马红磊, 陈璞琬, 王德羿, 张元勋, 乔琦, 李光明, 王文红 (3421)

关中地区细颗粒物碳组分特征及来源解析 ..... 康宝荣, 刘立志, 刘焕武, 李养养, 艾双双, 曹宁, 雷颖 (3431)

长春季细颗粒物中有机气溶胶组成特征及来源 ..... 吴瑕, 曹芳, 翟晓瑶, 范美益, 张世春, 章炎麟 (3438)

中国城市扩张及空间特征变化对PM<sub>2.5</sub>污染的影响 ..... 王桂林, 张炜 (3447)

不同湿法脱硫工艺对燃煤电厂PM<sub>2.5</sub>排放的影响 ..... 邓建国, 马子珍, 李振, 段雷, 蒋靖坤 (3457)

浙江省合成革行业挥发性有机物污染特征及排放系数 ..... 徐佳琦, 王浙明, 宋爽, 徐志荣, 姚轶 (3463)

生活垃圾填埋场细菌气溶胶粒径分布及种群特征 ..... 马嘉伟, 杨凯雄, 柴风光, 王莹, 郭雪松, 李琳 (3470)

青岛近海生物气溶胶中总微生物的分布特征 ..... 官静, 祁建华, 李鸿涛 (3477)

广州饮用水水源地多环芳烃分布、来源及人体健康风险评价 ..... 宋玉梅, 王畅, 刘爽, 潘佳钊, 郭鹏然 (3489)

截污调水后滇池表层沉积物中16种PAHs的分布特征 ..... 胡昕怡, 高冰丽, 陈坦, 王洪涛, 金军, 饶竹, 朱雪芹, 王雪郡, 魏抱楷, 战楠, 刘彦廷, 戚敏 (3501)

黄河三角洲石油开采区盐渍化农田土壤多环芳烃的分布特征与源解析 ..... 邱慧, 刘月仙, 解小凡, 张萌, 王伟 (3509)

风场对太湖梅梁湾水华及营养盐空间分布的影响 ..... 余茂蕾, 洪国喜, 朱广伟, 权秋梅, 许海, 朱梦圆, 丁文浩, 李未, 吴挺峰 (3519)

向家坝水库营养盐时空分布特征及滞留效应 ..... 王耀耀, 吕林鹏, 纪道斌, 方海涛, 朱晓声, 张庆文, 霍静, 何金艳 (3530)

外源输入对底泥疏浚新生表层磷恢复及迁移的影响 ..... 李鑫, 耿雪, 王洪伟, 龚琬晴, 文帅龙, 钟继承, 李大鹏 (3539)

新疆喀什三角洲地下水SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>化学特征及来源 ..... 魏兴, 周金龙, 乃尉华, 曾妍妍, 范薇, 李斌 (3550)

黄土区洛川塬地下水化学特征及影响因素分析 ..... 李洲, 李晨曦, 华琨, 李志 (3559)

北京市河流秋季浮游动物群落特征分析 ..... 王海邻, 刘玉飞, 任玉芬, 贺玉晓, 王思琪, 张红星, 王效科, 李紫鑫 (3568)

三峡水库干流底栖硅藻群落组成及其与环境因子的关系 ..... 刘黎, 贺新宇, 付君珂, 杨燕君, 米文梅, 施军琼, 吴忠兴 (3577)

渭河流域水体细菌群落的环境响应及生态功能预测 ..... 万甜, 何梦夏, 任杰辉, 闫幸幸, 程文 (3588)

汾河下游水体nirS型反硝化细菌群落组成与无机氮关系 ..... 汪银龙, 冯民权, 董向前 (3596)

饮用水快速砂滤池优势微生物群落的代谢功能解析 ..... 胡万超, 赵琛, 王巧娟, 刘锐平, 柏耀辉 (3604)

基于污水厂污泥资源化利用的粗放型绿色屋顶水质控制效果 ..... 彭航宇, 李田, 齐悦, 何云鹏, 黄楚玉, 张卓然 (3612)

植被对绿色屋顶径流量和水质影响 ..... 章孙逊, 张守红, 张英, 吴思婷 (3618)

光催化/活性炭/纳滤组合工艺处理二级出水及对膜污染的控制 ..... 范科文, 李星, 杨艳玲, 周志伟 (3626)

多种材料对水中氨氮的吸附特性 ..... 焦巨龙, 杨苏文, 谢宇, 金位栋, 闫玉红, 徐彬 (3633)

不同氨氮浓度对4株常见藻株生长及酶活性的影响 ..... 常婷, 许智慧, 程鹏飞, 徐继林, 周成旭 (3642)

3种基质材料对高浓度养殖废水处理效果及降解过程 ..... 刘铭羽, 夏梦华, 李远航, 陈坤, 赵聪芳, 李希, 李裕元, 吴金水 (3650)

铝污泥酸化提取液改性沸石的除磷特性及机制 ..... 韩芸, 胡玉洁, 连洁, 杨思哲, 齐泽宁 (3660)

缺氧MBBR耦合部分厌氧氨氧化强化城市生活污水深度脱氮 ..... 杨岚, 彭永臻, 李健伟, 高锐涛, 王茗, 李夕耀 (3668)

连续流系统中好氧段及沉淀段对污泥及其缺氧段脱氮能力的影响 ..... 薛欢婷, 袁林江, 刘小博, 孙恒锐 (3675)

FeS自养反硝化与厌氧氨氧化的耦合脱氮机制 ..... 马景德, 潘建新, 李泽敏, 王一显, 吴海珍, 韦朝海 (3683)

ANAMMOX体系中氨与硫酸盐的同步转化条件 ..... 董石语, 毕贞, 张文静, 黄勇 (3691)

全国城市污水处理厂中微生物群落的溯源分析 ..... 张冰, 吴林蔚, 文湘华 (3699)

不同溶解氧浓度下硝化工艺中微生物种群结构对比 ..... 刘文如, 顾广发, 宋小康, 杨殿海 (3706)

异养硝化细菌Acinetobacter junii NP1的同步脱氮除磷特性及动力学分析 ..... 杨奎, 陈宁, 任勇翔, 崔坤, 汪旭晖, 肖倩, 郭淋凯 (3713)

Type 0092丝状菌污泥微膨胀在短程硝化中的实现 ..... 高春娣, 安冉, 韩徽, 张娜, 任浩, 赵楠, 焦二龙, 彭永臻 (3722)

高盐高碱环境下硝化反硝化过程及N<sub>2</sub>O产生特征 ..... 代伟, 赵剑强, 丁家志, 刘双 (3730)

生物炭对盐碱土壤氨挥发影响 ..... 王一宇, 王圣森, 戴九兰 (3738)

两种土壤增效剂对稻田氨挥发排放的影响 ..... 周玉玲, 侯朋福, 李刚华, 王绍华, 杨林章, 薛利红, 丁艳锋 (3746)

承德市滦河流域土壤重金属地球化学基线厘定及其累积特征 ..... 孙厚云, 卫晓锋, 甘凤伟, 王恒, 何泽新, 贾凤超, 张竞 (3753)

厦门某旱地土壤垂直剖面中重金属迁移规律及来源解析 ..... 张炜华, 于瑞莲, 杨玉杰, 胡恭任, 崔建勇, 颜妍, 黄华斌 (3764)

宝鸡市区土壤重金属污染影响因子探测及其源解析 ..... 张军, 董洁, 梁青芳, 杨宁宁, 耿雅妮 (3774)

铁铈氧化物对土壤As(V)和P的稳定化效果 ..... 林龙勇, 阎秀兰, 杨硕 (3785)

铁锰氧化物在不同水分条件下对土壤As的稳定化作用 ..... 周海燕, 邓一荣, 林龙勇, 曹梦华, 钟立荣 (3792)

生物质炭对双季稻水稻土微生物生物量碳、氮及可溶性有机碳氮的影响 ..... 刘杰云, 邱虎森, 汤宏, 沈健林, 吴金水 (3799)

有机物料对紫色土微生物量碳、氮及氮素供应的影响 ..... 汪月, 张名豪, 赵秀兰 (3808)

土地利用方式对土壤团聚体稳定性和有机碳含量的影响 ..... 罗晓虹, 王子芳, 陆畅, 黄容, 王富华, 高明 (3816)

宁南山区退耕还林还草对土壤氮素组成及其转化酶活的影响 ..... 高涵, 肖礼, 牛丹, 倪银霞, 黄懿梅 (3825)

不同浸提剂条件下生物炭溶解性有机物的浸出规律 ..... 何晶晶, 张昊昊, 仇俊杰, 邵立明, 吕凡 (3833)

基于成组生物毒性测试的PM<sub>2.5</sub>毒性 ..... 江晓栋, 薛银刚, 魏永, 许霞, 刘菲, 薛柯, 施昕澜, 顾铭 (3840)

《环境科学》征订启事(3587) 《环境科学》征稿简则(3595) 信息(3611, 3705, 3745)

# FeS 自养反硝化与厌氧氨氧化的耦合脱氮机制

马景德<sup>1</sup>, 潘建新<sup>1</sup>, 李泽敏<sup>1</sup>, 王一显<sup>1</sup>, 吴海珍<sup>2</sup>, 韦朝海<sup>1\*</sup>

(1. 华南理工大学环境与能源学院, 广州 510006; 2. 华南理工大学生物科学与工程学院, 广州 510006)

**摘要:** 微生物的功能多样性对元素价态的转换存在协同作用是自然界关键的生态调节策略, 充分利用这种策略, 实现不同微生物的功能组合, 可以发展废水处理新工艺. 本文以静态批次实验的含氮污染物作为研究对象, 把 FeS 投加量、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N/NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N 比值、厌氧氨氧化 (ANAMMOX, AN) 和自养反硝化 (AD) 生物量之比作为反应控制条件, 讨论了 AN 与 AD 之间代谢产物互补的合作机制, 提出了 (AN + AD)<sub>TN=0</sub> 脱氮工艺的概念. 研究发现过量的 FeS 投加在保证 AD 过程的彻底性之外, 并不显著影响 AN 菌的代谢活性; 提高 NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N 在电子受体中的比例, 会使微生物复合群落处于代谢底物竞争关系之中, 对 TN 的去除产生负面影响; AN 生物量的增加加深了复合群落的合作程度, 当初始 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 与 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 的化学计量比小于 0.85 时, 可以实现 TN 浓度趋零. 结果表明, 通过认识微生物之间的交互作用, 寻求复杂微生物群落功能的规划或调控, 可以设计出更加合理的废水处理工艺, 达到低物耗投入条件下目标污染物的高效去除.

**关键词:** 硫化亚铁; 厌氧氨氧化 (ANAMMOX); 自养反硝化; 耦合作用; 总氮去除

中图分类号: X703.1 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2019)08-3683-08 DOI: 10.13227/j.hjkk.201901256

## Performance and Mechanisms of Advanced Nitrogen Removal via FeS-driven Autotrophic Denitrification Coupled with ANAMMOX

MA Jing-de<sup>1</sup>, PAN Jian-xin<sup>1</sup>, LI Ze-min<sup>1</sup>, WANG Yi-xian<sup>1</sup>, WU Hai-zhen<sup>2</sup>, WEI Chao-hai<sup>1\*</sup>

(1. School of Environment and Energy, South China University of Technology, Guangzhou 510006, China; 2. School of Biology and Biological Engineering, South China University of Technology, Guangzhou 510006, China)

**Abstract:** Synergy among members of complex microbial communities in the transformation of elements is a key ecological regulation strategy in nature. Making full use of this phenomenon and achieving functional combinations of different microorganisms may have a significant effect on developing new wastewater treatment processes. In this study, nitrogen-containing pollutants were applied in a static batch experiment. The dosage of FeS, the ratio of NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N/NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N, and the ratio of ANAMMOX (AN) to autotrophic denitrification (AD) biomass were the controlled reaction conditions. The cooperation mechanism resulting from the metabolic complementation of AN and AD is discussed, and the concept of a (AN + AD)<sub>TN=0</sub> nitrogen removal process is proposed. This study showed that the excessive dosage of FeS could ensure the more thorough reaction of AD without significantly affecting the metabolic activity of AN bacteria. A complex microbial community was involved in the competition for metabolic substrates when the proportion of NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N in the electron acceptor was increased, resulting in a negative impact on the removal of TN. The increase of AN biomass contributed to the strengthening of the cooperation between AN and AD. When the stoichiometric ratio of NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N to NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N was less than 0.85, TN could be completely removed. The results showed that a more effective wastewater treatment process may be established by understanding the interactions between microorganisms, and by manipulating or regulating complex microbial communities. This could achieve the efficient removal of pollutants under low material consumption conditions.

**Key words:** iron sulfide; anaerobic ammonium oxidation (ANAMMOX); autotrophic denitrification; coupling effect; total nitrogen removal

含氮污染物是困扰环保界的主要环境问题之一, 而氨氮是造成氮污染的最主要氮形式<sup>[1, 2]</sup>. 根据文献[3]的统计数据, 我国每年的氨氮排放量达到 141.8 万 t. 氨氮被认为是相对惰性的还原性物质, 目前从废水中生物性去除氨氮主要有两种路径: 其一是好氧氨氧化菌利用氧分子氧化氨氮为亚硝酸盐或硝酸盐, 再通过反硝化途径去除<sup>[4, 5]</sup>; 其二是厌氧氨氧化 (anaerobic ammonium oxidation, ANAMMOX) 菌介导氨氮和亚硝酸盐之间的电子转移, 在缺氧条件下将废水中的氮素一步转化为氮气<sup>[6, 7]</sup>. 前者需要大量能量和化学药剂的投入, 后者虽然可以实现氨氮的

自养去除, 被视为高氨氮废水最具前景的处理方式, 但是 ANAMMOX 菌需要以亚硝酸盐作为电子受体, 且进水总氮的 11.2% 左右继续以硝酸盐的形式残留, 导致出水总氮无法彻底去除, 意味着单一的 ANAMMOX 工艺难以满足废水脱氮的要求. 因此, 纯粹的 ANAMMOX 路径的广泛应用和产业化受到限制.

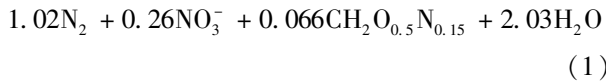


收稿日期: 2019-01-30; 修订日期: 2019-03-07

基金项目: 国家自然科学基金项目 (51778238); 广东省科技计划项目 (2015B020235005, 2017A020216001)

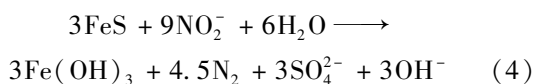
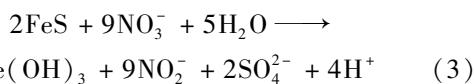
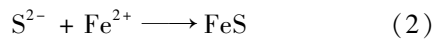
作者简介: 马景德 (1991 ~), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为水污染控制理论与技术, E-mail: 614476672@qq.com

\* 通信作者, E-mail: cechwei@scut.edu.cn



传统上, ANAMMOX 在主流脱氮工艺上的应用集中于耦合短程硝化过程<sup>[8]</sup>. 通过抑制亚硝酸盐氧化菌(NO<sub>B</sub>)的生长, 实现氨氮向亚硝酸盐的稳定转化<sup>[9, 10]</sup>. 但少量硝酸盐在这个过程中仍会产生, 且构建亚硝酸盐和氨氮的固定比例为 1.32 在实际工程中具有很大的难度<sup>[11]</sup>. 有趣的是, 异养/自养反硝化过程的中间产物也是亚硝酸盐. 厌氧氨氧化-异养反硝化 (ANAMMOX-heterotrophic denitrification, AN-HD) 耦合路径在达到高效除氮的同时, 也促进了有机物的削减, 但控制恰当的进水 C/N 比(COD 与硝酸盐浓度的比值) 仍然是一个挑战<sup>[12-17]</sup>. 迄今在厌氧氨氧化-自养反硝化 (ANAMMOX-autotrophic denitrification, AN-AD) 耦合路径方面的电子供体选择侧重于单质 S、S<sup>2-</sup> 和 S<sub>2</sub>O<sub>3</sub><sup>2-</sup>, 但也存在一些不足: pH 的急剧下降和大量硫酸盐的产生被认为是单质 S 应用的固有缺陷; 作为液态电子供体, S<sub>2</sub>O<sub>3</sub><sup>2-</sup> 逃脱不了需要对投加量精准控制的挑战; 一定浓度的游离 S<sup>2-</sup> 会显著抑制厌氧氨氧化菌的活性<sup>[18-22]</sup>.

通过 FeS 作为自养反硝化的固相电子供体, 有可能解决上述耦合系统中存在的问题<sup>[23]</sup>. FeS 是使用二价铁盐进行工业废水硫化物(S<sup>2-</sup>)控制过程中常见的沉淀物, 作用原理如式(2)所示<sup>[24, 25]</sup>. 本团队先前对 FeS 驱动的自养反硝化脱氮性能进行了研究, 观察到亚硝酸盐累积的现象, 且整个反应过程没有 S<sup>2-</sup> 的溢出<sup>[26]</sup>, 硝酸盐与 FeS 分两步进行反应, 即反应式(3)和(4).



基于上述考虑, 本研究尝试构建了 FeS 驱动的自养反硝化(AD)和厌氧氨氧化(AN)耦合的复合群落系统, 并考察了该系统的脱氮性能. 以总氮趋零为目标, 探讨了电子供体量(FeS)、电子受体比例(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N/NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N)及组合污泥比例(X<sub>AN</sub>/X<sub>AD</sub>)对氨氮、硝酸盐和总氮去除的影响, 结合反应计量参数讨论了 AD 和 AN 路径对总氮去除的贡献. 基于两种污泥单独、竞争和合作状态下各种氮污染物及副产物硫酸盐浓度随反应时间的动态变化, 进一步揭示了微生物复合群落的耦合作用机制, 尝试解析微生物群落之间的分工与合作规律.

## 1 材料与方法

### 1.1 接种污泥与硫化亚铁

自养反硝化种子污泥为本团队以硫代硫酸盐和硝酸盐的模拟废水为进水富集培养的 7 L UASB 中的污泥. 反硝化污泥的氮负荷达到 0.74 g·(L·d)<sup>-1</sup>, 且 *Thiobacillus* 为污泥中主要的属, 丰度占比 25.73% 以上, 未鉴定出与厌氧氨氧化功能相关的菌属<sup>[26]</sup>. 厌氧氨氧化污泥取自本团队实验室正在运行的 15 L UASB 反应器, 该反应器的进水氮负荷为 1.2 g·(L·d)<sup>-1</sup>, 经测序其主要的属为 *Candidatus kuenenia*<sup>[27]</sup>.

本实验污泥从培养反应器取出后, 用超纯水洗涤 3 次, 去除其中残留的硝酸盐、亚硝酸盐、氨氮和硫酸盐等化合物. 合成废水中包含的 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N、NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N 和 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N, 为化学品 NaNO<sub>3</sub>、NaNO<sub>2</sub> 和 NH<sub>4</sub>Cl 所配制. 合成废水中其他成分还包括 (mg·L<sup>-1</sup>): 10 KH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub>、140 CaCl<sub>2</sub>·2H<sub>2</sub>O、140 MgSO<sub>4</sub>·7H<sub>2</sub>O、500 NaHCO<sub>3</sub>、6.25 FeSO<sub>4</sub>·7H<sub>2</sub>O、6.25 EDTA-2Na 和 1.25 mL 微量元素溶液<sup>[27, 28]</sup>. 调节溶液的 pH 值为 7.5 ± 0.1.

为保证实验所使用的 FeS 包含较少的杂质, 利于实验数据的定量分析. 在恒温 30℃ 下, 迅速把过量的 FeCl<sub>2</sub> 溶液倒入 Na<sub>2</sub>S 溶液中, 立刻出现 FeS 沉淀<sup>[23, 29]</sup>. 待反应完全后, 用超纯水洗涤 3 次, 经冷冻干燥得到 FeS 粉末, 保存于干燥器中待用.

### 1.2 批次实验

为了评估电子供体、电子受体和污泥浓度对耦合系统脱氮性能的影响, 在 120 mL 的血清小瓶中进行了批次实验, 作为后续连续实验的条件基础. 将两种污泥、FeS 和合成废水依次加入小瓶中, 瓶中混合液的体积为 100 mL. 通入高纯氮气驱除溶解氧, 并使用配套胶塞迅速密封, 使系统在整个反应阶段处于缺氧状态. 将所有小瓶置于恒温摇床, 控制温度(30.0 ± 1.0)℃, 转速 180 r·min<sup>-1</sup>, 避光反应 48 h 后取样分析. 实验具体设计如下:

(1) 电子供体 FeS 的投加量 控制小瓶中含有 100 mg·L<sup>-1</sup> NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N、100 mg·L<sup>-1</sup> NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N、500 mg·L<sup>-1</sup> AD 污泥和 1500 mg·L<sup>-1</sup> AN 污泥的条件下, 考察了不同的 FeS 投加量(5、10、20、40、80、160 和 240 mg)对反应体系脱氮性能的影响.

(2) NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N/NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N 的比值 保持 AD 与 AN 污泥浓度分别为 500 mg·L<sup>-1</sup> 和 1500 mg·L<sup>-1</sup>, 两种污泥的电子供体 FeS 与 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 分别为 40 mg 和 100 mg·L<sup>-1</sup>. 在 NO<sub>x</sub><sup>-</sup>-N(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 和 NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N 之和) 恒定为 100 mg·L<sup>-1</sup>

的情况下,分析了 $\text{NO}_3^-$ -N/ $\text{NO}_2^-$ -N(0、0.25、0.5、1.0、2.0和4.0)对含氮污染物去除的影响。

(3)AN与AD生物量的比值 在 $100\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$   $\text{NO}_3^-$ -N、 $100\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$   $\text{NH}_4^+$ -N、 $40\text{ mg FeS}$ 和 $500\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  AD污泥条件下探索了 $X_{\text{AN}}/X_{\text{AD}}$ (0、1、2、3、4、5和6)对含氮污染物去除的影响。

### 1.3 含氮化合物浓度随时间的动态变化

在上述稳态研究的基础上,利用1L的烧瓶

进行了动力学实验,以清晰4个典型反应周期内化合物浓度随时间的动态变化过程。烧瓶置于 $(30.0 \pm 1.0)^\circ\text{C}$ 的恒温水浴锅中,且持续曝氮气搅拌,以保证反应在缺氧恒温的环境中进行。每间隔4h取样一次,直到反应到达稳态。根据污泥与含氮化合物反应的速度,实验具体设计如表1所示,表中数据为目标设计值,实际数据由取样过程决定。

表1 4组动力学实验的起始条件

Table 1 Initial conditions for four groups of kinetic experiments

组号	污泥浓度(以MLSS计)/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$		污染物浓度/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$			FeS/mg
	AD	AN	$\text{NO}_3^-$ -N	$\text{NO}_2^-$ -N	$\text{NH}_4^+$ -N	
1	0	1500	0	100	100	0
2	500	0	100	0	100	40
3	500	1500	0	100	100	40
4	500	1500	100	0	100	40

### 1.4 分析方法

水样均通过 $0.45\ \mu\text{m}$ 水系滤膜过滤后分析。无机阴离子( $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NO}_2^-$ 和 $\text{SO}_4^{2-}$ )使用ICS-900型离子色谱(Dionex,美国)测定;氨氮和污泥浓度(MLSS)依据标准方法分析<sup>[30]</sup>;pH值使用SX731型便携式pH计(三星,中国)测量。总氮(TN)为 $\text{NO}_3^-$ -N、 $\text{NO}_2^-$ -N和 $\text{NH}_4^+$ -N的加和。本研究的所有实验均重复3次。

### 1.5 计算

总氮去除率(TNR):

$$\text{TNR} = (\text{NH}_4^+ - \text{N}_{\text{rem}} + \text{NO}_3^- - \text{N}_{\text{rem}} + \text{NO}_2^- - \text{N}_{\text{rem}}) / \text{TN}_{\text{initial}} \times 100\% \quad (5)$$

厌氧氨氧化对总氮去除的贡献率(ANP):

$$\text{ANP} = (\text{NH}_4^+ - \text{N}_{\text{rem}} + 1.32 \text{NH}_4^+ - \text{N}_{\text{rem}} - 0.26 \text{NH}_4^+ - \text{N}_{\text{rem}}) / \text{TN}_{\text{rem}} \times 100\% \quad (6)$$

自养反硝化对总氮去除的贡献率(ADP):

$$\text{ADP}(\%) = 100(\%) - \text{ANP}(\%) \quad (7)$$

式中, $\text{NO}_3^-$ -N<sub>rem</sub>、 $\text{NO}_2^-$ -N<sub>rem</sub>、 $\text{NH}_4^+$ -N<sub>rem</sub>和 $\text{TN}_{\text{rem}}$ 分别为反应前后 $\text{NO}_3^-$ -N、 $\text{NO}_2^-$ -N、 $\text{NH}_4^+$ -N和TN的去除量, $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ;  $\text{TN}_{\text{initial}}$ 是初始TN浓度, $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ;数值1.32和0.26是依据厌氧氨氧化反应[反应式(1)]得到的化学计量参数。

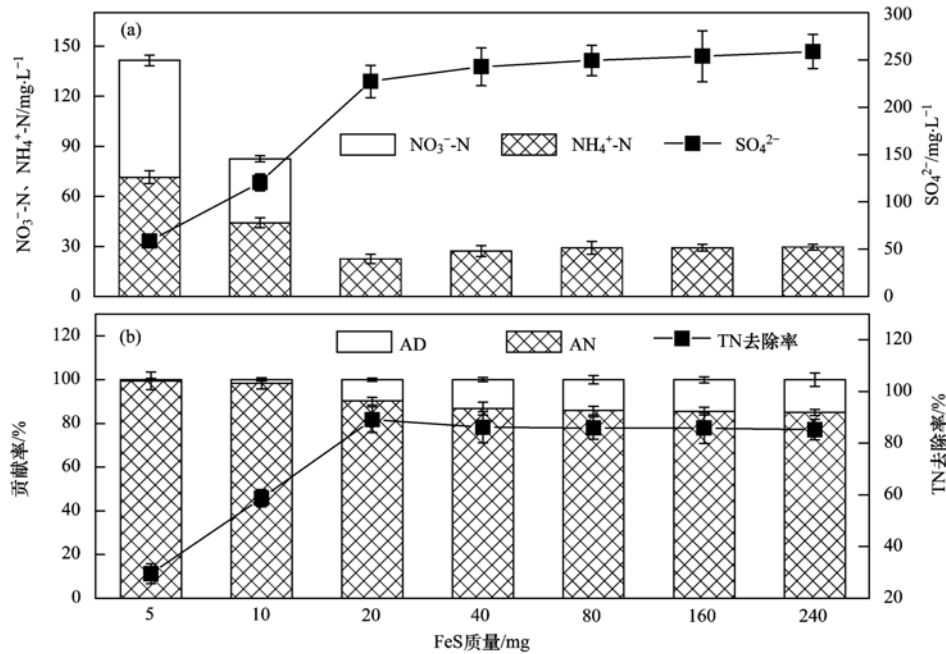
## 2 结果与讨论

### 2.1 电子供体量对污染物去除的影响

AD利用FeS为电子供体,把 $\text{NO}_3^-$ -N还原为 $\text{NO}_2^-$ -N,为AN反应提供底物,是AN与AD的耦合系统能否实现的先决条件和关键因素。因此,考察了FeS投加量对耦合系统去除 $\text{NH}_4^+$ -N和 $\text{NO}_3^-$ -N的影响,以及两种微生物对TN去除的贡献值,如图1

所示。本实验采用序批实验的方法,其他初始实验条件保持不变(见1.2节)的情况下,控制对反应体系FeS梯度增加为5.0、10.0、20.0、40.0、80.0、160.0和240.0mg,相对应的提供电子的能力分别为5.11、10.23、20.45、40.90、81.82、163.64和245.45 $\text{mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ 。如图1(a)所示,当投加的FeS(5mg和10mg)量不足时,会造成反应体系中 $\text{NO}_3^-$ -N的残留,相对应的残留量为 $69.87\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $38.31\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。随着FeS的投加量增加到20mg,反应达到稳态后已检测不到 $\text{NO}_3^-$ -N的存在,此时剩余的 $\text{NH}_4^+$ -N量在所有测试中处于最低的水平。理论上 $100\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 的 $\text{NO}_3^-$ -N完全反硝化为 $\text{N}_2$ 需要电子供体提供 $35.72\text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ 的电子,远远高于20mg的FeS所能提供的电子,这说明大部分 $\text{NO}_3^-$ -N通过短程反硝化途径转化为 $\text{NO}_2^-$ -N。但在所有测试稳态时 $\text{NO}_2^-$ -N均没有被检测到,这表明所生成的 $\text{NO}_2^-$ -N和投加的 $\text{NH}_4^+$ -N通过厌氧氨氧化途径被去除。随着FeS投加量的进一步增加, $\text{NH}_4^+$ -N的残留量有轻微的上升,但仍保持在 $29.27\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。

AN与AD对总氮去除的贡献也被反应体系中FeS的投加量所影响,如图1(b)所示。当FeS投加量为5mg和10mg时,AN对总氮去除的贡献率接近于100%,换言之,在电子供体不足的情况下, $\text{NO}_3^-$ -N倾向于被硝酸盐还原酶还原为亚硝酸盐,为厌氧氨氧化菌提供代谢底物。随着FeS量从20mg增加为240mg,AN途径的贡献率降低并最终保持在85.60%的水平,说明FeS投加量的增加会引起AN和AD对亚硝酸盐的竞争,这一点从生成的硫酸根浓度由 $227.34\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 增加为 $258.94\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 所证实[图1(a)]。此外,反应体系在初始 $\text{NO}_3^-$ -N/



(a)  $\text{NO}_3^-$ -N、 $\text{NH}_4^+$ -N和 $\text{SO}_4^{2-}$ 最终浓度; (b) AN与AD菌对TN去除的贡献率

图1 不同硫化亚铁量下混合污泥协同脱氮性能

Fig. 1 Synergistic removal performance of nitrogen by mixed sludge with varied FeS dosages

$\text{NH}_4^+$ -N比例为1.0的条件下,对TN的去除率由29.54%增加为85.90%。总的来说,过高的S/N比并不会影响AN菌的代谢活性,这是使用有机碳源的异养反硝化和厌氧氨氧化耦合所不具备的优点。因为当进水C/N比为2.0或更高时,会观察到AN能力的丧失且不可恢复<sup>[31, 32]</sup>。

## 2.2 $\text{NO}_3^-$ -N/ $\text{NO}_2^-$ -N比例对污染物去除的影响

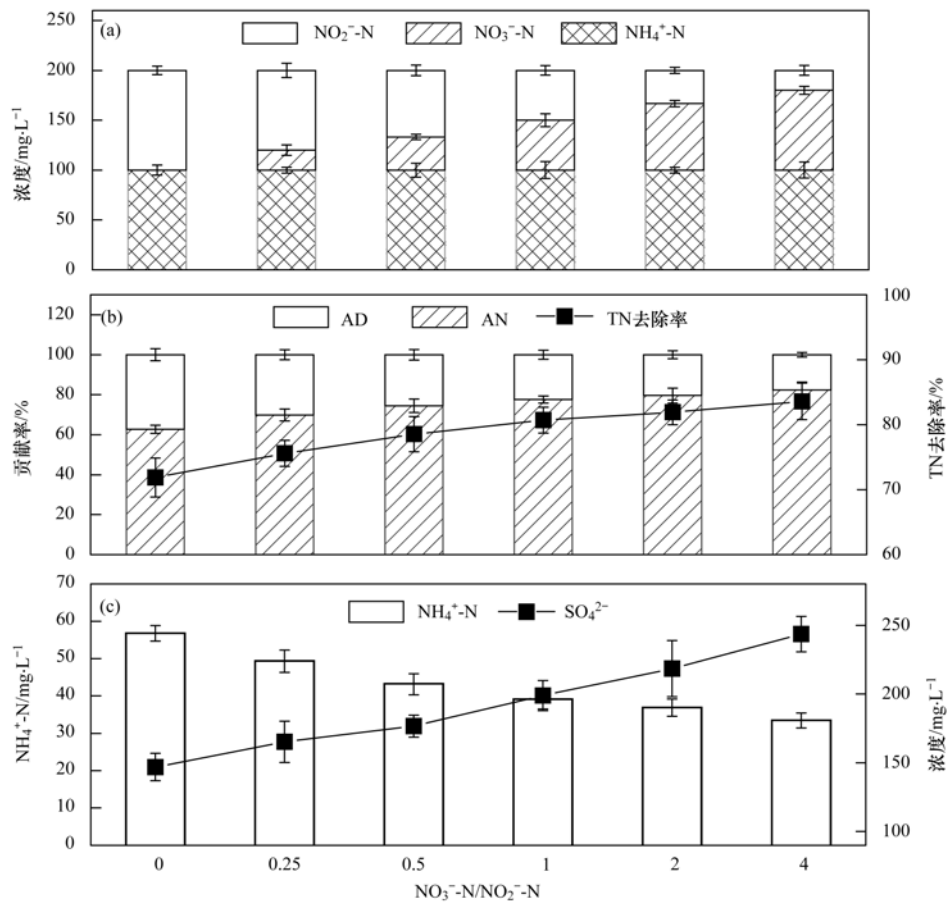
对AD而言,硝酸盐和亚硝酸盐的还原均以FeS为电子供体,且亚硝酸盐又是AN和AD的共同代谢底物。在 $\text{NO}_x^-$ -N恒定为 $100.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 的情况下(其它实验条件见1.2节),研究了 $\text{NO}_3^-$ -N/ $\text{NO}_2^-$ -N比例对耦合系统含氮化合物去除效果的影响,如图2所示。分别控制废水中 $\text{NO}_3^-$ -N/ $\text{NO}_2^-$ -N的起始比例为0、0.25、0.5、1、2和4,相对应的 $\text{NO}_3^-$ -N( $\text{NO}_2^-$ -N)浓度为0.0、20.0、33.3、50、66.7和 $80 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ (100.0、80.0、66.7、50、33.3和 $20 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ )。由于所投加电子供体量充足,所有测试比例中 $\text{NO}_3^-$ -N和 $\text{NO}_2^-$ -N都实现了完全的去除。显而易见,当反应体系中仅存在 $\text{NO}_2^-$ -N时,AN和AD菌均利用 $\text{NO}_2^-$ -N为代谢电子受体,两者处于一种竞争的关系,而非合作。此时, $\text{NH}_4^+$ -N的残留量、AN对TN去除的贡献率以及TN去除率分别为 $56.76 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 、62.72%和71.89%。随着 $\text{NO}_3^-$ -N/ $\text{NO}_2^-$ -N比例的增加, $\text{NH}_4^+$ -N的残留量逐渐减少为 $33.43 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ,相对应的AN途径的贡献率和TN去除率分别提升为82.34%和83.60%。这是因为AD可选

择 $\text{NO}_3^-$ -N为代谢电子受体,从而调节了两种微生物的竞争程度,逐渐转换为合作的关系。虽然更多的亚硝酸盐通过AN途径去除,但还原 $\text{NO}_3^-$ -N需要更多的电子,故 $\text{SO}_4^{2-}$ 产生量随着 $\text{NO}_3^-$ -N/ $\text{NO}_2^-$ -N比例的增加而增加。

## 2.3 $X_{\text{AN}}/X_{\text{AD}}$ 比例对污染物去除的影响

在AN与AD的协同过程中,电子供体、电子受体和污泥浓度均是影响污染物去除的重要因素。对于耦合共培养系统,AN和AD的相对生物量决定了两者之间合作与竞争的关系及程度。在 $\text{NO}_3^-$ -N和 $\text{NH}_4^+$ -N初始浓度均为 $100.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 的条件下,向 $500 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ AD污泥中加入梯次浓度AN污泥,探究了 $X_{\text{AN}}/X_{\text{AD}}$ 对两种污泥耦合反应的影响。如图3所示,当反应体系中 $X_{\text{AN}}/X_{\text{AD}}$ 由0.0提高到5.0时, $\text{NH}_4^+$ -N的绝对去除量从0.0逐渐增加到 $85.50 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ,相应地经AN途径去除的TN与TN去除率分别由0.0%、50.0%升至94.73%、92.42%。这些结果表明,在 $X_{\text{AN}}/X_{\text{AD}}$ 值较小时,AD产生亚硝酸盐的速率要高于AN对亚硝酸盐的消耗速率,因此两者之间的合作程度会随比例的增加而加深。但是,随着 $X_{\text{AN}}/X_{\text{AD}}$ 提高到6.0,反应体系的脱氮性能并未进一步提升,说明此时AN菌比反硝化菌占优势,硝酸盐通过AD转化为亚硝酸盐后,即刻被AN菌捕获并去除。当 $X_{\text{AN}}/X_{\text{AD}}$ 增加到一定值后,AD的反应速率成为耦合反应体系的限速因素。

电子供受体的化学计量比对耦合反应体系实现

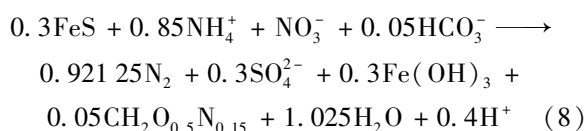


(a)  $\text{NO}_3^-$ -N、 $\text{NH}_4^+$ -N和 $\text{NO}_2^-$ -N初始浓度; (b) AN与AD菌对TN去除的贡献率; (c)  $\text{NH}_4^+$ -N和 $\text{SO}_4^{2-}$ 的最终浓度

图2 不同 $\text{NO}_3^-$ -N/ $\text{NO}_2^-$ -N比例下混合污泥协同脱氮性能

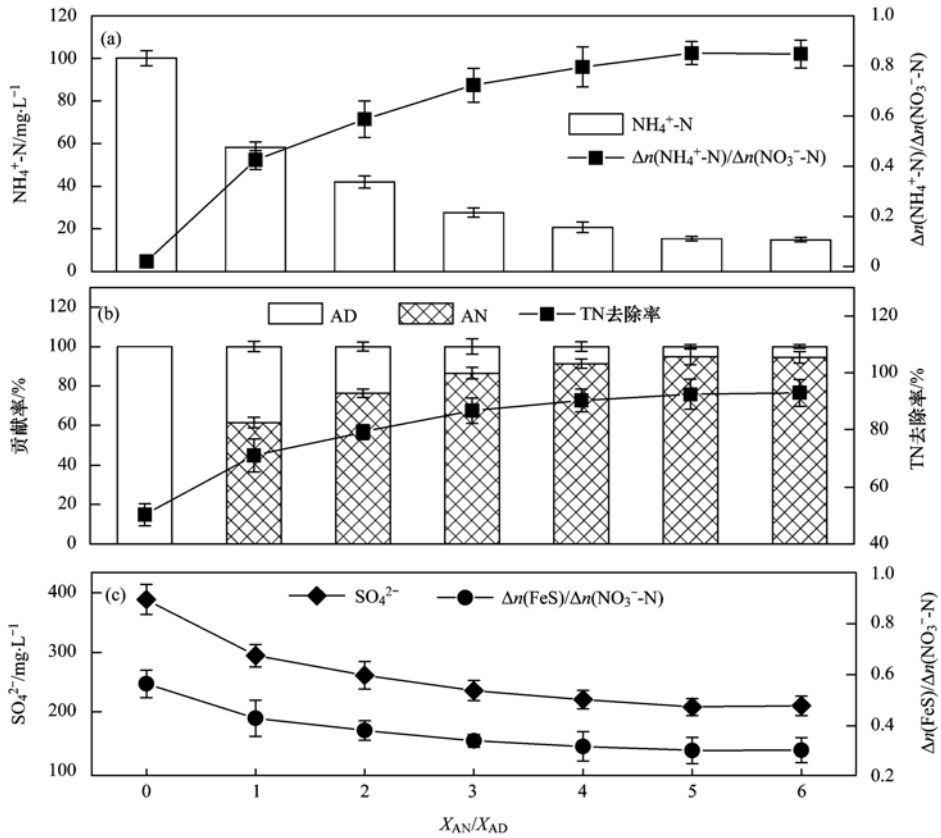
Fig. 2 Synergistic removal performance of nitrogen by mixed sludge with varied ratios of  $\text{NO}_3^-$ -N/ $\text{NO}_2^-$ -N

TN 趋零具有重要意义. 根据反应式(1)和(3), 理论上  $\Delta n(\text{FeS}) : \Delta n(\text{NH}_4^+ - \text{N}) : \Delta n(\text{NO}_3^- - \text{N})$  的比值为 0.276 : 0.943 : 1.0. 然而, 在两种污泥生物量的比例实验中,  $\Delta n(\text{NH}_4^+ - \text{N}) / \Delta n(\text{NO}_3^- - \text{N})$  由 0.0 逐渐趋向稳定值 0.85, 见图 3(a),  $\Delta n(\text{FeS}) / \Delta n(\text{NO}_3^- - \text{N})$  从初始值 0.56 逐渐逼近 0.30, 见图 3(c). 也就是说, 随  $X_{\text{AN}} / X_{\text{AD}}$  的增大, FeS、 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$  和  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  这 3 个反应底物的化学计量比可能为 0.30 : 0.85 : 1.0, 反应式(8)表达了整个耦合反应. 从三者摩尔计量比的变化规律及其与理论值的对比中, 可以发现 AN 菌对底物亚硝酸盐的竞争能力随  $X_{\text{AN}} / X_{\text{AD}}$  的增加而提高, 从而减少了 FeS 电子的释放量,  $\text{SO}_4^{2-}$  产生量的变化趋势进一步验证了这个观点. 值得注意的是, 由于 FeS 的过量投加, 只要初始  $\text{NH}_4^+ - \text{N} / \text{NO}_3^- - \text{N}$  小于 0.85, 即可实现耦合系统 TN 趋零的目标. 与单一的 AN 过程需要固定的反应底物摩尔比, 这是一个明显的优势<sup>[33]</sup>.



#### 2.4 2种污泥单独及混合状态下污染物的动态变化

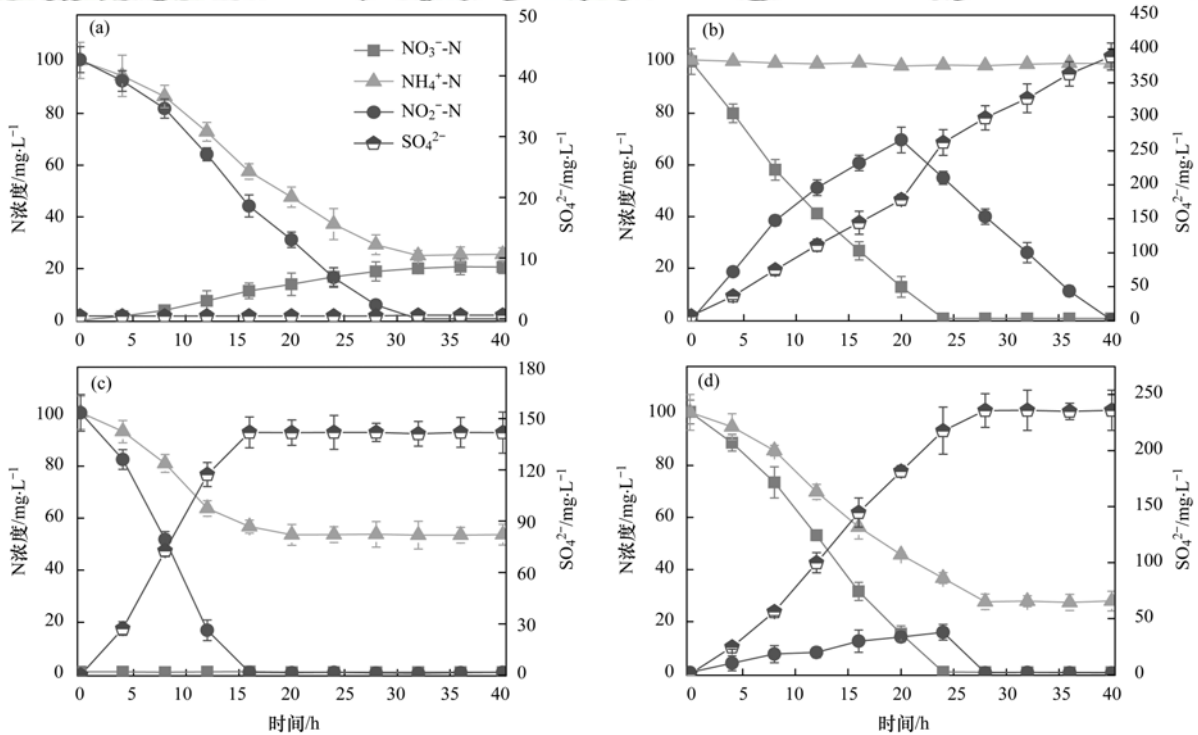
为了进一步揭示两种污泥协同去除硝酸盐和氨氮污染物的作用机制, 根据实验条件(见表 1)设计了 4 组动力学实验, 分别考察了 2 种污泥单独、竞争和合作状态下各种氮污染物( $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 、 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 和 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ )及副产物硫酸盐浓度随反应时间的动态变化. 如图 4(a)所示, 对于单一的 AN 过程,  $\text{NO}_2^- - \text{N}$  和  $\text{NH}_4^+ - \text{N}$  的绝对去除量之比约等于 1.32, 而且  $20.3 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  的  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  累积被观察到, 这与先前的研究结果是一致的<sup>[27]</sup>. 然而, 当 2 种污泥混合培养共同利用底物亚硝酸盐时[图 4(c)],  $\text{NO}_2^- - \text{N}$  和  $\text{NH}_4^+ - \text{N}$  的绝对去除量分别为  $100.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  和  $43.8 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ , 且  $\text{NO}_2^- - \text{N}$  的降解速率为  $6.3 \text{ mg} \cdot (\text{L} \cdot \text{h})^{-1}$ , 约为单一 AN 过程的两倍, 这种现象可以被理解为是 AD 和 AN 对底物竞争的结果,  $\text{SO}_4^{2-}$  浓度变化趋势的不同也证实了这个观点. 当 AD 为单一污泥时, 可以观察到明显的亚硝酸盐产生与累积, 这是实现 2 种污泥耦合的前提条件.  $\text{NO}_2^- - \text{N}$  的变化趋势为先逐渐累积到一个峰值  $69.6 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ , 随后由于  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  的不足,  $\text{NO}_2^- - \text{N}$  开始被 FeS 还原到 0.0



(a)  $NH_4^+-N$ 最终浓度及反应化学计量比; (b) AN 与 AD 菌对 TN 去除的贡献率; (c)  $SO_4^{2-}$  最终浓度及反应化学计量比

图3 不同厌氧氨氧化与自养反硝化菌 ( $X_{AN}/X_{AD}$ ) 比例下混合污泥协同脱氮性能

Fig. 3 Synergistic removal performance of nitrogen by mixed sludge with varied anamox-to-denitrifying biomass ratios ( $X_{AN}/X_{AD}$ )



(a) 单独 AN 污泥; (b) 单独 AD 污泥; (c) AN 和 AD 污泥以  $NO_2^- - N$  为底物共培养;

(d) AN 和 AD 污泥以  $NO_3^- - N$  为底物共培养

图4 2类污泥单独、竞争及协同状态  $NO_3^- - N$ 、 $NO_2^- - N$ 、 $NH_4^+ - N$  和  $SO_4^{2-}$  浓度随时间的变化

Fig. 4 Time courses of  $NO_3^- - N$ ,  $NO_2^- - N$ ,  $NH_4^+ - N$ , and  $SO_4^{2-}$  in monocultures of AN and AD as well as their competition and cooperation



$\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , 这说明在  $\text{NO}_3^-$ -N 存在的情况下, AD 菌更倾向于使用  $\text{NO}_3^-$ -N 作为电子受体, 而不是  $\text{NO}_2^-$ -N. 此外, 在整个反应过程中,  $\text{NH}_4^+$ -N 浓度始终保持不变. 当投加 AN 污泥后,  $\text{NH}_4^+$ -N 以近乎恒定的速率被去除,  $\text{NO}_2^-$ -N 的最高累积量和硫酸盐的生成量仅分别为  $15.9 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  和  $235.7 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , 且到达反应稳态所需的时间更短. 这是因为通过 AD 所生成的中间物质  $\text{NO}_2^-$ -N, 为 AN 提供了充足的电子受体. 4 组实验的 TN 去除率分别为 77.5%、50.0%、71.9% 和 86.5%, 到达反应稳态所需的时间分别为 32、40、16 和 28 h.

## 2.5 AN 与 AD 菌协同脱氮机制分析及应用形式

对于众多的活性污泥法工艺, 原理上就是协调不同功能微生物的关系, 以达到化合物向人类所希望的方向有序转化的目的. 在本研究中, 通过对 AN 与 AD 两种功能细菌的共培养, 成功建立了一个同时去除废水中氨氮和硝酸盐的新途径, 如图 5 所示. 硝酸盐在 AD 菌的作用下, 被 FeS 提供的电子还原为亚硝酸盐, 从而引发了 AN 反应, 被氨氮进一步还原为氮气. 同时 AN 过程产生的大约 11.2% 的硝酸盐, 又为 AD 菌补充了电子受体. 两种微生物构成了相互交叉喂养的功能互补群落, 从而实现氨氮和硝酸盐的同时去除. 相比于单一的 AN 与 AD 过程, 在同等的进水 TN 下, 耦合群落具有更高的 TN 去除效率和速率, 且避免了 AN 过程中硝酸盐的形成.

含氮污染物去除率的不同揭露了混合群落中存在的合作与竞争行为规律. 电子受体之比 ( $\text{NO}_3^-$ -N/ $\text{NO}_2^-$ -N) 和微生物生物量之比 ( $X_{\text{AN}}/X_{\text{AD}}$ ) 是两个主要的混合群落生态功能“控制器”. 通过调控它们, 可以降低 AD 菌对亚硝酸盐的竞争, 使 AN 过程成为 TN 去除的主要途径. AN 细菌具有较低的细胞增殖速率, 倍增时间为 10~14 d, 维持 AN 细菌的高活性, 对保持混合群落的种群平衡以及长期运行过程的稳定性有重要意义<sup>[34]</sup>. 此外, FeS 作为 AD

的电子供体, 过量的投加并不会对菌群的代谢活性产生影响, 有效地避免了有机碳源需精准投加的难题, 这是未来耦合系统可以在实际废水处理中应用的技术基础.

这项工作的未来应用可能会以两种形式开展: ①不同种类废水的相互组合, 例如好氧硝化出水和金属工业废水等含  $\text{NO}_3^-$ -N 废水, 与垃圾渗滤液和沼气发酵液等含  $\text{NH}_4^+$ -N 废水的组合; ②高氨氮废水的自我调配, 即把部分废水硝化之后和废水原水的组合. 为达到耦合系统 TN 趋零的目的, 调配废水的关键控制点是  $\text{NH}_4^+$ -N 与  $\text{NO}_3^-$ -N 的比值. 对此, 应该以不同工业废水作为案例加以检验, 研究在 (AN + AD)<sub>TN=0</sub> 脱氮工艺中其它相关污染物的同步去除规律, 以及各种自养反硝化电子供体的可行性与经济性.

## 3 结论

本研究构建了厌氧氨氧化和自养反硝化复合菌落的耦合系统, 实现了含氮废水的高效去除, 通过调控反应条件, 指出了总氮浓度趋零的可能性, 并将上述过程定义为 (AN + AD)<sub>TN=0</sub> 工艺. 针对常见的含氨氮和硝酸盐的低 C/N 比废水, 相同初始 TN 浓度条件下, AN 和 AD 处于单独、竞争和合作状态下, TN 去除率分别为 77.5%、50.0%、71.9% 和 86.5%; 当 AN 与 AD 污泥浓度大于 5.0 时, 两者的合作表现出最佳的动力学匹配关系, 此时 AN 对 TN 去除的贡献率达到 94.73%; 氨氮的残留限制了耦合系统对 TN 的去除率, 调配  $\text{NH}_4^+$ -N 与  $\text{NO}_3^-$ -N 的初始比小于 0.85, 以及自养反硝化电子供体的足量投加, 是实现 TN 浓度趋零的先决条件. 通过物料浓度的调控, 结合 AN + AD 工艺污泥中微生物之间功能交互作用的实现, 可以设计出彻底脱氮的废水处理新工艺, 可能成为具有潜力的节能低耗污染控制技术.

## 参考文献:

- [1] Ma B, Qian W T, Yuan C S, et al. Achieving mainstream nitrogen removal through coupling anammox with denitration [J]. Environmental Science & Technology, 2017, 51 (15): 8405-8413.
- [2] González-Martínez A, Calderón K, González-López J. New concepts of microbial treatment processes for the nitrogen removal: effect of protein and amino acids degradation [J]. Amino Acids, 2016, 48(5): 1123-1130.
- [3] 国家统计局, 环境保护部. 中国环境统计年鉴[M]. 北京: 中国统计出版社, 2016.
- [4] Hooper A B, Vannelli T, Bergmann D J, et al. Enzymology of the oxidation of ammonia to nitrite by bacteria[J]. Antonie Van Leeuwenhoek, 1997, 71(1-2): 59-67.
- [5] Arp D J, Sayavedra-Soto L A, Hommes N G. Molecular biology and biochemistry of ammonia oxidation by *Nitrosomonas europaea*

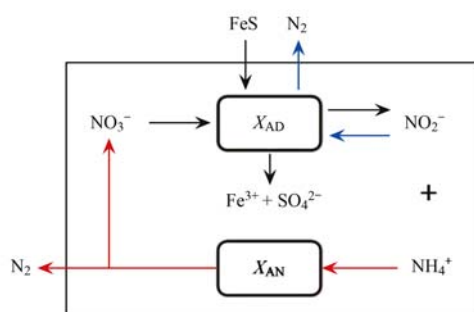


图 5 AN 与 AD 菌协同脱氮机制分析

Fig. 5 Analysis of the synergistic removal mechanisms of nitrogen between AN and AD

- [J]. Archives of Microbiology, 2002, **178**(4): 250-255.
- [6] Van Der Heijden R T J M, Heijnen J J, Hellinga C, *et al.* Linear constraint relations in biochemical reaction systems: I. Classification of the calculability and the balanceability of conversion rates[J]. Biotechnology and Bioengineering, 1994, **43**(1): 3-10.
- [7] Strous M, Heijnen J J, Kuenen J G, *et al.* The sequencing batch reactor as a powerful tool for the study of slowly growing anaerobic ammonium-oxidizing microorganisms [J]. Applied Microbiology and Biotechnology, 1998, **50**(5): 589-596.
- [8] Ding S Z, Bao P, Wang B, *et al.* Long-term stable simultaneous partial nitrification, anammox and denitrification (SNAD) process treating real domestic sewage using suspended activated sludge[J]. Chemical Engineering Journal, 2018, **339**: 180-188.
- [9] Ma Y, Peng Y Z, Wang S Y, *et al.* Achieving nitrogen removal via nitrite in a pilot-scale continuous pre-denitrification plant[J]. Water Research, 2009, **43**(3): 563-572.
- [10] Li X J, Sun S, Badgley B D, *et al.* Nitrogen removal by granular nitrification-anammox in an upflow membrane-aerated biofilm reactor[J]. Water Research, 2016, **94**: 23-31.
- [11] Ali M, Okabe S. Anammox-based technologies for nitrogen removal: advances in process start-up and remaining issues[J]. Chemosphere, 2015, **141**: 144-153.
- [12] 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.
- [13] Li W, Li H, Liu Y D, *et al.* Salinity-aided selection of progressive onset denitrifiers as a means of providing nitrite for anammox[J]. Environmental Science & Technology, 2018, **52**(18): 10665-10672.
- [14] Wu L, Li Z, Zhao C, *et al.* A novel partial-denitrification strategy for post-anammox to effectively remove nitrogen from landfill leachate[J]. Science of the Total Environment, 2018, **633**: 745-751.
- [15] 安芳娇, 黄剑明, 黄利, 等. 基质比对厌氧氨氧化耦合反硝化脱氮除碳的影响[J]. 环境科学, 2018, **39**(11): 5058-5064.
- An F J, Huang J M, Huang L *et al.* Effect of substrate ratio on removal of nitrogen and carbon using anaerobic ammonium oxidation and denitrification[J]. Environmental Science, 2018, **39**(11): 5058-5064.
- [16] Qin Y J, Cao Y, Ren J Y, *et al.* Effect of glucose on nitrogen removal and microbial community in anammox-denitrification system[J]. Bioresource Technology, 2017, **244**: 33-39.
- [17] Karanasios K A, Vasiliadou I A, Tekerlekopoulou A G, *et al.* Effect of C/N ratio and support material on heterotrophic denitrification of potable water in bio-filters using sugar as carbon source [J]. International Biodeterioration & Biodegradation, 2016, **111**: 62-73.
- [18] 周健, 黄勇, 刘忻, 等. 硫自养反硝化耦合厌氧氨氧化脱氮条件控制研究[J]. 环境科学, 2016, **37**(3): 1061-1069.
- Zhou J, Huang Y, Liu X, *et al.* Element sulfur autotrophic denitrification combined anaerobic ammonia oxidation [J]. Environmental Science, 2016, **37**(3): 1061-1069.
- [19] Li X, Yuan Y, Huang Y, *et al.* Simultaneous removal of ammonia and nitrate by coupled S<sup>0</sup>-driven autotrophic denitrification and Anammox process in fluorine-containing semiconductor wastewater[J]. Science of the Total Environment, 2019, **661**: 235-242.
- [20] Zhu T T, Cheng H Y, Yang L H, *et al.* Coupled sulfur and iron (II) carbonate-driven autotrophic denitrification for significantly enhanced nitrate removal [J]. Environmental Science & Technology, 2019, **53**(3): 1545-1554.
- [21] Qian J, Zhang M K, Pei X J, *et al.* A novel integrated thiosulfate-driven denitrification (TDD) and anaerobic ammonia oxidation (anammox) process for biological nitrogen removal[J]. Biochemical Engineering Journal, 2018, **139**: 68-73.
- [22] Jin R C, Yang G F, Zhang Q Q, *et al.* The effect of sulfide inhibition on the ANAMMOX process [J]. Water Research, 2013, **47**(3): 1459-1469.
- [23] Gong Y Y, Tang J C, Zhao D Y. Application of iron sulfide particles for groundwater and soil remediation: a review [J]. Water Research, 2016, **89**: 309-320.
- [24] Wei Y Y, Dai J, Mackey H R, *et al.* The feasibility study of autotrophic denitrification with iron sludge produced for sulfide control[J]. Water Research, 2017, **122**: 226-233.
- [25] Lu H, Huang H Q, Yang W M, *et al.* Elucidating the stimulatory and inhibitory effects of dissolved sulfide on sulfur-oxidizing bacteria (SOB) driven autotrophic denitrification [J]. Water Research, 2018, **133**: 165-172.
- [26] 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.
- [27] Pan J X, Ma J D, Wu H Z, *et al.* Application of metabolic division of labor in simultaneous removal of nitrogen and thiocyanate from wastewater[J]. Water Research, 2019, **150**: 216-224.
- [28] 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.
- [29] Gallegos T J, Hyun S P, Hayes K F. Spectroscopic investigation of the uptake of arsenite from solution by synthetic mackinawite [J]. Environmental Science & Technology, 2007, **41**(22): 7781-7786.
- [30] 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.
- [31] Lackner S, Terada A, Smets B F. Heterotrophic activity compromises autotrophic nitrogen removal in membrane-aerated biofilms: Results of a modeling study [J]. Water Research, 2008, **42**(4-5): 1102-1112.
- [32] Sun X B, Du L F, Hou Y Q, *et al.* Endogenous influences on anammox and sulfocompound-oxidizing autotrophic denitrification coupling system (A/SAD) and dynamic operating strategy [J]. Bioresource Technology, 2018, **264**: 253-260.
- [33] Shi Y, Hu S H, Lou J Q, *et al.* Nitrogen removal from wastewater by coupling anammox and methane-dependent denitrification in a membrane biofilm reactor[J]. Environmental Science & Technology, 2013, **47**(20): 11577-11583.
- [34] Strous M, Kuenen J G, Jetten M S M. Key physiology of anaerobic ammonium oxidation[J]. Applied and Environmental Microbiology, 1999, **65**(7): 3248-3250.

## CONTENTS

Characteristics of PM <sub>2.5</sub> Pollution and the Efficiency of Concentration Control During a Red Alert in the Beijing-Tianjin-Hebei Region, 2016 .....	ZHANG Chong, LANG Jian-lei, CHENG Shui-yuan, <i>et al.</i> (3397)
Concentration Characteristics of PM <sub>2.5</sub> and the Causes of Heavy Air Pollution Events in Beijing During Autumn and Winter .....	XU Ran, ZHANG Heng-de, YANG Xiao-wen, <i>et al.</i> (3405)
Elemental Composition Characteristics of PM <sub>2.5</sub> and PM <sub>10</sub> , and Heavy Pollution Analysis in Hefei .....	LIU Ke-ke, ZHANG Hong, LIU Gui-jian (3415)
Pollution Characteristics and Source Apportionment of Fine Particulate Matter in Autumn and Winter in Puyang, China .....	CHEN Chu, WANG Ti-jian, LI Yuan-hao, <i>et al.</i> (3421)
Pollution Characteristics and Sources of Carbonaceous Components in PM <sub>2.5</sub> in the Guanzhong Area .....	KANG Bao-rong, LIU Li-zhong, LIU Huan-wu, <i>et al.</i> (3431)
Molecular Composition and Source Apportionment of Fine Organic Aerosols in Autumn in Changchun .....	WU Xia, CAO Fang, ZHAI Xiao-yao, <i>et al.</i> (3438)
Effects of Urban Expansion and Changes in Urban Characteristics on PM <sub>2.5</sub> Pollution in China .....	WANG Gui-lin, ZHANG Wei (3447)
Effect of a Wet Flue Gas Desulphurization System on the Emission of PM <sub>2.5</sub> from Coal-Fired Power Plants .....	DENG Jian-guo, MA Zi-zhen, LI Zhen, <i>et al.</i> (3457)
Pollution Characteristics and Emission Coefficients for Volatile Organic Compounds from the Synthetic Leather Industry in Zhejiang Province .....	XU Jia-qí, WANG Zhe-míng, SONG Shuang, <i>et al.</i> (3463)
Particle Size Distribution and Population Characteristics of Airborne Bacteria Emitted from a Sanitary Landfill Site .....	MA Jia-wei, YANG Kai-xiong, CHAI Feng-guang, <i>et al.</i> (3470)
Distribution of Total Microbes in Atmospheric Bioaerosols in the Coastal Region of Qingdao .....	GONG Jing, QI Jian-hua, LI Hong-tao (3477)
Distribution, Sources, and Health Risk Assessment of PAHs in Water Supply Source Regions of Guangzhou .....	SONG Yu-mei, WANG Chang, LIU Shang, <i>et al.</i> (3489)
Distribution of 16 Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Dianchi Lake Surface Sediments After the Integrated Water Environment Control Project .....	HU Xin-yi, GAO Bing-li, CHEN Tan, <i>et al.</i> (3501)
Distribution Characteristics and Source Analysis of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Salinized Farmland Soil from the Oil Mining Area of the Yellow River Delta .....	QIU Hui, LIU Yue-xian, XIE Xiao-fan, <i>et al.</i> (3509)
Wind Field Influences on the Spatial Distribution of Cyanobacterial Blooms and Nutrients in Meiliang Bay of Lake Taihu, China .....	YU Mao-lei, HONG Guo-xi, ZHU Guang-wei, <i>et al.</i> (3519)
Spatial and Temporal Distribution Characteristics and the Retention Effects of Nutrients in Xiangjiaba Reservoir .....	WANG Yao-yao, LÜ Lin-peng, JI Dao-bin, <i>et al.</i> (3530)
Effects of Exogenous Inputs on Phosphorus Recovery and Transport in Newborn Surface Layers from Sediment Dredging .....	LI Xin, GENG Xue, WANG Hong-wei, <i>et al.</i> (3539)
Chemical Characteristics and Sources of Groundwater Sulfate in the Kashgar Delta, Xinjiang .....	WEI Xing, ZHOU Jin-long, NAI Wei-hua, <i>et al.</i> (3550)
Groundwater Chemistry Characteristics and the Analysis of Influence Factors in the Luochuan Loess Tablelands .....	LI Zhou, LI Chen-xi, HUA Kun, <i>et al.</i> (3559)
Analysis of River Zooplankton Community Characteristics in Autumn in Beijing .....	WANG Hai-lin, LIU Yu-fei, REN Yu-fen, <i>et al.</i> (3568)
Benthic Diatom Communities in the Main Stream of Three Gorges Reservoir Area and Its Relationship with Environmental Factors .....	LIU Li, HE Xin-yu, FU Jun-ke, <i>et al.</i> (3577)
Environmental Response and Ecological Function Prediction of Aquatic Bacterial Communities in the Weihe River Basin .....	WAN Tian, HE Meng-xia, REN Jie-hui, <i>et al.</i> (3588)
Community Composition of <i>nirS</i> -type Denitrifying Bacteria in the Waters of the Lower Reaches of the Fenne River and Its Relationship with Inorganic Nitrogen .....	WANG Yin-long, FENG Min-quan, DONG Xiang-qian (3596)
Metabolic Functional Analysis of Dominant Microbial Communities in the Rapid Sand Filters for Drinking Water .....	HU Wan-chao, ZHAO Chen, WANG Qiao-juan, <i>et al.</i> (3604)
Control Measure Effects on the Effluent Quality from Extensive Green Roofs Based on Stabilized Sludge Recycling .....	PENG Hang-yu, LI Tian, QI Yue, <i>et al.</i> (3612)
Impacts of Vegetation on Quantity and Quality of Runoff from Green Roofs .....	ZHANG Sun-xun, ZHANG Shou-hong, ZHANG Ying, <i>et al.</i> (3618)
Organic Matter Removal and Membrane Fouling Control of Secondary Effluents Using a Combined Nanofiltration Process .....	FAN Ke-wen, LI Xing, YANG Yan-ling, <i>et al.</i> (3626)
Adsorption Properties of Ammonia Nitrogen in Aqueous Solution by Various Materials .....	JIAO Ju-long, YANG Su-wen, XIE Yu, <i>et al.</i> (3633)
Effects of Different Concentrations of Ammonia Nitrogen on the Growth and Enzyme Activity of Four Common Algae Strains .....	CHANG Ting, XU Zhi-hui, CHENG Peng-fei, <i>et al.</i> (3642)
Treatment of Highly Concentrated Swine Wastewater and Its Degradation Processes Using Three Matrix Materials .....	LIU Ming-yu, XIA Meng-hua, LI Yuan-hang, <i>et al.</i> (3650)
Phosphorus Removal Performance and Mechanism of Modified Zeolite Using Alum Sludge Acidified Extraction Liquid .....	HAN Yun, HU Yu-jie, LIAN Jie, <i>et al.</i> (3660)
Advanced Denitrification of Municipal Wastewater Achieved via Partial ANAMMOX in Anoxic MBBR .....	YANG Lan, PENG Yong-zhen, LI Jian-wei, <i>et al.</i> (3668)
Effect of an Aerobic Unit and a Sedimentation Unit on Sludge and Nitrogen Removal in an Anoxic Unit in a Continuous-flow System .....	XUE Huan-ting, YUAN Lin-jiang, LIU Xiao-bo, <i>et al.</i> (3675)
Performance and Mechanisms of Advanced Nitrogen Removal via FeS-driven Autotrophic Denitrification Coupled with ANAMMOX .....	MA Jing-de, PAN Jian-xin, LI Ze-min, <i>et al.</i> (3683)
Simultaneous Conversion Conditions of Ammonia and Sulfate in ANAMMOX Systems .....	DONG Shi-yu, BI Zhen, ZHANG Wen-jing, <i>et al.</i> (3691)
Potential Source Environments for Microbial Communities in Wastewater Treatment Plants (WWTPs) in China .....	ZHANG Bing, WU Lin-wei, WEN Xiang-hua (3699)
Comparison of the Microbial Community Structure in Nitrifying Processes Operating with Different Dissolved Oxygen Concentrations .....	LIU Wen-ru, GU Guang-fa, SONG Xiao-kang, <i>et al.</i> (3706)
Simultaneous Nitrogen and Phosphorus Removal and Kinetics by the Heterotrophic Nitrifying Bacterium <i>Acinetobacter junii</i> NPI .....	YANG Lei, CHEN Ning, REN Yong-xiang, <i>et al.</i> (3713)
Realization of Limited Filamentous Bulking with Type 0092 Filamentous Bacteria as the Dominant Filamentous Bacteria in Shortcut Nitrification .....	GAO Chun-di, AN Ran, HAN Hui, <i>et al.</i> (3722)
Nitrification, Denitrification, and N <sub>2</sub> O Production Under Saline and Alkaline Conditions .....	DAI Wei, ZHAO Jian-qiang, DING Jia-zhi, <i>et al.</i> (3730)
Effect of Biochar on Ammonia Volatilization in Saline-Alkali Soil .....	WANG Yi-yu, WANG Sheng-sen, DAI Jiu-lan (3738)
Effect of Two Soil Synergists on Ammonia Volatilization in Paddy Fields .....	ZHOU Yu-ling, HOU Peng-fu, LI Gang-hua, <i>et al.</i> (3746)
Determination of Heavy Metal Geochemical Baseline Values and Its Accumulation in Soils of the Luanhe River Basin, Chengde .....	SUN Hou-yun, WEI Xiao-feng, GAN Feng-wei, <i>et al.</i> (3753)
Migration and Source Analysis of Heavy Metals in Vertical Soil Profiles of the Drylands of Xiamen City .....	ZHANG Wei-hua, YU Rui-lian, YANG Yu-jie, <i>et al.</i> (3764)
Heavy Metal Pollution Characteristics and Influencing Factors in Baoji Urban Soils .....	ZHANG Jun, DONG Jie, LIANG Qing-fang, <i>et al.</i> (3774)
Stabilizing Effects of Fe-Ce Oxide on Soil As(V) and P .....	LIN Long-yong, YAN Xiu-lan, YANG Shuo (3785)
Stabilization of Arsenic-Contaminated Soils Using Fe-Mn Oxide Under Different Water Conditions .....	ZHOU Hai-yan, DENG Yi-rong, LIN Long-yong, <i>et al.</i> (3792)
Effects of Biochar Amendment on Soil Microbial Biomass Carbon, Nitrogen and Dissolved Organic Carbon, Nitrogen in Paddy Soils .....	LIU Jie-yun, QIU Hu-sen, TANG Hong, <i>et al.</i> (3799)
Effects of Organic Amendments on Microbial Biomass Carbon and Nitrogen Uptake by Corn Seedlings Grown in Two Purple Soils .....	WANG Yue, ZHANG Ming-hao, ZHAO Xiu-lan (3808)
Effects of Land Use Type on the Content and Stability of Organic Carbon in Soil Aggregates .....	LUO Xiao-hong, WANG Zi-fang, LU Chang, <i>et al.</i> (3816)
Effects of Converting Farmland into Forest and Grassland on Soil Nitrogen Component and Conversion Enzyme Activity in the Mountainous Area of Southern Ningxia .....	GAO Han, XIAO Li, NIU Dan, <i>et al.</i> (3825)
Leaching Behavior of Dissolved Organic Matter in Biochar with Different Extracting Agents .....	HE Pin-jing, ZHANG Hao-hao, QIU Jun-jie, <i>et al.</i> (3833)
Toxicity of PM <sub>2.5</sub> Based on a Battery of Bioassays .....	JIANG Xiao-dong, XUE Yin-gang, WEI Yong, <i>et al.</i> (3840)