

百方知库
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.9
第40卷 第9期

目次

气溶胶中不同类型碳组分粒径分布特征 杜翔, 赵普生, 董群, 苏捷 (3849)

郑州市 2014~2017 年大气污染特征及气象条件影响分析 郭蒙蒙, 姜楠, 王申博, 段时光, 张瑞芹 (3856)

济南市背景区域大气 PM_{2.5} 污染特征及其对能见度的影响 别淑君, 杨凌霄, 高颖, 姜盼, 李岩岩, 杨雨蒙, 赵彤, 王文兴 (3868)

聊城市冬季 PM_{2.5} 中多环芳烃来源解析及健康风险评估 刘晓迪, 侯战方, 孟静静, 燕丽, 周贝贝, 刘子亭, 衣雅男, 李静, 魏本杰, 伏梦璇 (3875)

2001~2017 年全国气溶胶光学厚度时空分布及变化趋势 刘海知, 郭海燕, 马振峰, 徐辉, 包红军, 徐成鹏 (3886)

长三角地区吸收性气溶胶时空分布特征 赵楠, 曹梵诗, 田晴, 陈勇航, 刘琼, 黄艺伟, 王羽佳 (3898)

燃煤锅炉颗粒物化学组成排放特征 杨艳蓉, 周雪明, 秦娟娟, 谭吉华, 胡京南, 陈荣志, 段菁春, 李艳 (3908)

高速公路沿线 PM_{2.5} 中重金属污染特征 李晓宝, 廖祖文, 赵红, 彭成辉, 谭腾飞, 黄萍 (3916)

北京市道路扬尘重金属污染特征及潜在生态风险 胡月琪, 郭建辉, 张超, 王铮, 颜旭, 杨懂艳, 刘兆莹 (3924)

风蚀扬尘抑尘剂效率测试方法与应用 秦建平, 李贝贝, 杨涛, 宋博, 黄玉虎, 张春荣 (3935)

京津冀地区典型印刷企业 VOCs 排放特征及臭氧生成潜势分析 刘文文, 方莉, 郭秀锐, 聂磊, 王敏燕 (3942)

成都市典型工艺过程源挥发性有机物源成分谱 周子航, 邓也, 吴柯颖, 谭钦文, 周小玲, 宋丹林, 黄凤霞, 曾文斌 (3949)

工业园区恶臭污染源排放特征和健康风险评估 孟洁, 翟增秀, 荆博宇, 崔焕文, 王亘 (3962)

典型华北农村地区冬季 HONO 的浓度水平及来源分析 王玉征, 薛朝阳, 张成龙, 刘鹏飞, 张圆圆, 陈晖, 陈建民, 牟玉静, 刘俊峰 (3973)

不同方法制备 Co₃O₄ 催化剂 CO-SCR 性能及机制 仲雪梅, 张涛, 李佳萌, 秦萱, 王亚洲, 曾洁, 张光明, 常化振 (3982)

全氟烷基物质在胶州湾海水、沉积物及生物中污染特征 崔文杰, 彭吉星, 谭志军, 翟毓秀, 郭萌萌, 李兆新, 牟海津 (3990)

江苏水源地型水库异味物质发生风险及影响因素 史鹏程, 朱广伟, 杨文斌, 许海, 朱梦圆, 邹伟, 胡林娜, 笄文怡, 季鹏飞 (4000)

城镇流域水体-沉积物中溶解性有机质的荧光特性及影响因素:以宁波市小浞江为例 高凤, 邵美玲, 唐剑锋, 曹昌丽, 易辉 (4009)

水华对沉积物中氮的转化和去除的影响 肖琳, 杨佳怡 (4018)

沉积物有效态磷对湖库富营养化的指示及适用性 刘辉, 胡林娜, 朱梦圆, 赵林林, 许海, 邹伟, 史鹏程, 韩慧洁, 季鹏飞, 朱广伟 (4023)

汾河下游雨季硝酸盐污染源解析 汪银龙, 冯民权, 董向前 (4033)

新疆喀什三角洲地下水化学特征及演化规律 魏兴, 周金龙, 乃尉华, 曾妍妍, 范薇, 李斌 (4042)

基于多个扩增子的 DNA metabarcoding 技术探究黄海微型真核浮游植物多样性 张莉, 张远, 林佳宁, 王书平 (4052)

FG、MFG 和 MBFG 浮游植物功能群的比较:以贵州三座水库为例 陈倩, 马欣洋, 熊梅君, 何应, 韩孟书 (4061)

天然含铁矿物对砷的吸附效果及机制 邵金秋, 温其谦, 阎秀兰, 申俊峰, 杨林生, 杨硕 (4072)

镁-钙羟基磷灰石吸附剂对水中 Pb²⁺ 的去除 何豪, 朱宗强, 刘杰, 朱义年, 阎起明, 刘阳, 莫南, 玄惠灵, 魏婉莹 (4081)

2,6-二氨基蒽醌/石墨烯复合电极强化电吸附 Pb²⁺ 晋圣珧, 向阳, 张隽瑀, 张凯, 吉庆华 (4091)

钙掺杂四氧化三铁回收水中磷的实验 白润英, 刘建明, 郝俊峰, 徐慧, 胡文斌, 宋蕾, 刘宇红, 李会东, 周琦善 (4098)

大型城市污水处理厂处理工艺对微塑料的去除 贾其隆, 陈浩, 赵昕, 李磊, 聂云汉, 叶建锋 (4105)

A²/O 流量分配处理低 C/N 污水性能与微生物结构优化 荣懿, 刘小钗, 何音旋, 章武首, 金鹏康 (4113)

上向流厌氧滤池 (UAF) 处理城市生活污水的运行效能 杨忠启, 刘秀红, 李海鑫, 刘智斌, 刘润雨, 杨庆 (4121)

微氧条件下自养-异养联合反硝化工艺的电子平衡分析 张若晨, 陈川, 王威, 徐熙俊, 任南琪 (4128)

基于反硝化除磷的低温启动与稳定运行的中试试验 张帆, 于德爽, 刘杰, 王晓霞, 宋新新, 李传举, 赵峰辉 (4136)

聚己内酯与聚羟基丁酸戊酸酯的脱氮性能对比 易成豪, 秦伟, 陈湛, 文湘华 (4143)

厌氧氨氧化颗粒污泥快速培养及其抑制动力学 唐鹏, 于德爽, 陈光辉, 张培玉, 王晓霞, 吕廷廷, 黄硕, 刘诚诚 (4152)

Ca²⁺ 对污泥硝化活性和絮体沉降性能的影响 张兰河, 赵倩男, 张海丰, 贾艳萍, 李正, 陈子成, 郭静波, 赵天鹏 (4160)

从剩余污泥厌氧发酵上清液中以鸟粪石形式回收磷 畅萧, 曾薇, 王保贵, 许欢欢 (4169)

信号分子联合脱氮硫杆菌对同步脱氮除硫的影响 徐金兰, 陈紫薇, 张少枫, 魏漪旋 (4177)

海水养殖尾水直排对河道沉积物细菌群落的影响 胡越航, 宣丽霞, 袁琼芬 (4185)

耦合短程硝化反硝化的垃圾渗滤液厌氧氨氧化处理系统构建及微生物群落分析 赵晴, 刘梦莹, 吕慧, 梁俊宇, 刁兴兴, 张鑫, 孟了 (4195)

稻秸添加对两种水稻土产甲烷古菌及细菌的影响 保琼莉, 王凤花, 保万魁, 黄益宗 (4202)

地膜覆盖对稻-油轮作农田温室气体排放的影响 陈世杰, 江长胜, 倪雪, 李晓茜, 郝庆菊 (4213)

氮肥深施及间种白三叶草对茶园 N₂O 排放的影响 吕天新, 伍延正, 沈健林, 陈丹, 姜文倩, 王娟, 李勇, 吴金水 (4221)

三峡库区及其下游溶解氧化亚氮 (N₂O) 分布和释放 程芳, 丁帅, 刘素美, 宋国栋, 张桂玲 (4230)

沉降除藻协同沉积物覆盖对藻华水体甲烷释放的影响 朱琳, 于江华, 施文卿, 易齐涛, 曹华勇, 蒲寅羽 (4238)

新建铅蓄电集聚区对周边土壤环境的影响:基于重金属空间特征 丁亚丽, 廖敏, 方至萍, 陈树森, 张云, 郭佳雯, 梁雨琦 (4244)

不同碳氮磷源改良剂对铅锌尾矿废弃地植被与土壤性质的影响 杨胜香, 李凤梅, 彭禧柱, 曹建兵, 高智席 (4253)

基于农产品安全的土壤重金属有效态含量限值推定方法 张云慧, 杜平, 何赢, 仲小飞, 罗会龙, 秦晓鹏, 徐刚 (4262)

缙云山不同土地利用方式下土壤植硅体碳的含量特征 罗东海, 王子芳, 陆畅, 黄容, 王富华, 李娇, 高明 (4270)

西南喀斯特土地利用变化对植物凋落物-土壤 C、N、P 化学计量特征和土壤酶活性的影响 田静, 盛茂银, 汪攀, 温培才 (4278)

调理剂+淹水措施对 Cd 污染稻田控 Cd 效果分析 彭鸥, 刘玉玲, 铁柏清, 何钟响, 杨蕊嘉, 李丹阳, 刘寿涛, 罗海艳 (4287)

海螺沟植物和积雪中有机磷酸酯的分布及来源 陈阳, 印红玲, 吴迪, 罗怡, 邓旭, 徐维新, 柳锦宝 (4295)

《环境科学》征订启事 (3923) 《环境科学》征稿简则 (3941) 信息 (4041, 4051, 4229)

微氧条件下自养-异养联合反硝化工艺的电子平衡分析

张若晨, 陈川*, 邵博, 王威, 徐熙俊, 任南琪

(哈尔滨工业大学环境学院, 城市水资源与水环境国家重点实验室, 哈尔滨 150090)

摘要: 自养-异养联合反硝化(integrated autotrophic and heterotrophic denitrification, IAHD)工艺可以同时进行硫化物, 硝酸盐和有机物的降解, 作为工业废水处理的关键单元近年来受到广泛关注. 引入微量氧气作为电子受体的微氧技术已被证明是强化 IAHD 运行效能的有效策略. 本研究关注于 IAHD 工艺的电子平衡计算并发现了 IAHD 生物反应器在微氧条件下运行时利用有限的硝酸盐可将硫化物和乙酸盐完全转化去除. 在 IAHD 序批实验中, 当电子缺失率达到峰值 55.1% 时, 硫化物、硝酸盐和乙酸盐去除效率和去除速率均最高. 进一步的硫化物氧化间歇实验表明, 电子得失不平衡现象发生在生物硫化物氧化过程中, 当氧气含量为 5 mL 和 10 mL 时, 电子缺失率分别为 18.7% 和 38.2%. Illumina 微生物群落测序结果表明, *Thiobacillus*、*Thauera*、*Mangroviflexus* 和 *Erysipelothrix* 为硫化物氧化的主要占优属, 其中 *Thiobacillus* 的相对丰度随着电子缺失率的增加而增加. 本研究揭示了微氧条件下电子受体缺失现象与强化的 IAHD 运行效能之间的潜在联系, 并为深入探讨硫、氮和有机碳的代谢机制提供了新的研究视角.

关键词: 自养-异养联合反硝化(IAHD); 微氧; 硫化物; 电子受体; 微生物群落结构

中图分类号: X703 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2019)09-4128-08 DOI: 10.13227/j.hjks.201902106

Electron Equilibrium Analysis of Integrated Autotrophic and Heterotrophic Denitrification Process Under Micro-aerobic Conditions

ZHANG Ruo-chen, CHEN Chuan*, SHAO Bo, WANG Wei, XU Xi-jun, REN Nan-qi

(State Key Laboratory of Urban Water Resource and Environment, School of Environment, Harbin Institute of Technology, Harbin 150090, China)

Abstract: The integrated autotrophic and heterotrophic denitrification (IAHD) process, which can simultaneously degrade sulfide, nitrate, and organic carbon with nitrate as a solo electron acceptor, has gained increasing attention as a key unit in industrial wastewater treatment. Micro-aerobic technology, which introduces trace oxygen as an additional electron acceptor, has been demonstrated as an effective strategy for enhancing the IAHD performance. This study focus on the electronic balance calculation of the IAHD process and reveals for the first time that the IAHD process can efficient proceed with an insufficient supply of electron acceptors (nitrate) under micro-aerobic conditions. In the IAHD batch tests, the highest sulfide, nitrate, and acetate removal efficiencies and rates were obtained with an electronic deletion rate peak at 55.1%. Further sulfide oxidizing batch tests demonstrated that the electronic deletion rates were 18.7% and 38.2% under oxygen contents of 5 mL and 10 mL, respectively, in the biological sulfide oxidizing process. Illumina sequencing was used to analyze the microbial community structure in the sulfide oxidation process and indicated *Thiobacillus*, *Thauera*, *Mangroviflexus*, and *Erysipelothrix* dominated in all community compositions, in which the relative abundance of *Thiobacillus* increased with an increase in the electronic deletion rate. This study reveals a potential linkage between the electronic gap and the enhanced IAHD performance, which proves new insights into the simultaneous sulfur, nitrogen, and organic carbon removal process.

Key words: integrated autotrophic and heterotrophic denitrification (IAHD); micro-aerobic; sulfur oxidation; electron acceptor; microbial community structure

工业化在促进我国经济高速发展的同时也引起一系列环境问题, 其中工业废水处理中现有硫化物脱除工艺尚存在缺陷^[1]. 自养-异养联合反硝化(integrated autotrophic and heterotrophic denitrification, IAHD)工艺作为硫化物脱除的生物处理技术, 由于其可以利用硝酸盐作为电子受体同时进行硫化物, 硝酸盐和有机碳的降解近年来广泛应用于工业废水处理并受到越来越多的关注^[2]. 相比于传统的自养反硝化脱硫和异养反硝化工艺, IAHD 工艺具有诸多优点. 从脱碳的角度看, 其减小了异养反硝化工艺对碳源的依赖性, 对于低碳氮比污水也可以取得较理想的处理效果; 从脱硫脱氮

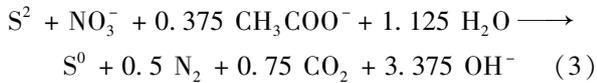
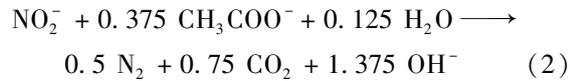
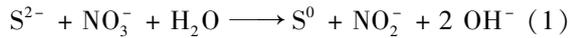
的角度看, 其克服了自养反硝化工艺水力停留时间长, 构筑物容积较大及反硝化速率较低等缺点. 根据笔者之前的研究, IAHD 过程涉及两大类功能微生物: 自养硫化物氧化-硝酸盐还原菌和异养硝酸盐还原菌(包括异养硫化物氧化-硝酸盐还原细菌). 他们之间可能存在的互作途径如下^[3,4]:

收稿日期: 2019-02-26; 修订日期: 2019-04-02

基金项目: 国家重点研发计划项目(2016YFC0401102-2); 国家自然科学基金项目(51576057, 51676057); 中国博士后科学基金项目(AUGA 4130903217); 黑龙江省博士后科学基金项目(AUGA 4110002617); 城市水资源与环境国家重点实验室(哈尔滨工业大学)项目(2015DX04)

作者简介: 张若晨(1991~), 女, 博士研究生, 主要研究方向为污水碳氮硫共脱除技术, E-mail: zhrch1027@163.com

* 通信作者, E-mail: echo110244@126.com



围绕上述途径, 研究人员开发了诸多调控策略以维持 3 种功能微生物间的代谢平衡从而强化 IAHD 工艺的硫氮碳去除效率. 例如调节 C/N 和 S/N 摩尔比^[5]、优化反应器构型、控制水力停留时间(hydraulic retention time, HRT)和运行温度^[6]等. 然而, 微氧曝气是目前提高 IAHD 工艺运行效能的最有效策略. Chen 等^[7]首次将少量氧气引入 IAHD 工艺系统, 发现当反应器中的 DO 浓度为 $0.8 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时, 硫化物和硝酸盐去除率均得到提升. 微量氧气可以缓解体系内自养反硝化菌与异养反硝化菌对于唯一电子受体(NO_3^-)的竞争, 从而调节不同水质条件下 IAHD 的运行效能^[8,9].

研究者们试图从反应动力学、微生物群落结构、功能基因和功能酶的角度解析微氧条件对 IAHD 工艺运行效能的强化机制^[10-12]. Chen 等^[13]对 IAHD 过程的物料平衡进行了详细核算. 然而, 该体系中的电子平衡尚未引起足够的关注. 氧气作为电子受体被引入 IAHD 体系, 从电子转移平衡的角度进行探究可能是解析微氧对 IAHD 运行效能强化机制的关键突破.

因此, 本研究聚焦于 IAHD 过程中的电子平衡计算, 主要关注 IAHD 体系中的电子不平衡现象, 并发现了在微氧条件下电子缺失的现象相关性, 通过 IAHD 和硫化物氧化序批摇瓶实验进一步探究电子缺失率与硫氮碳去除效能特别是硫氧化过程的内在联系.

1 材料与方法

1.1 生物反应器的启动

本实验采用 UASB (up-flow anaerobic sludge blanket) 生物反应器进行. 反应器由有机玻璃制成, 工作容积为 580 mL. 接种污泥取自哈尔滨文昌污水处理厂二沉池污泥, 过筛沉淀后污泥的悬浮固体浓度(suspended solids, SS)和挥发性悬浮固体浓度(volatile suspended solids, VSS)分别为 $79.6 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $39.3 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$, 接种量为 280 mL. 反应器在室温下运行, HRT 为 12 h. 反应器进水中含有: 硫化物(S^{2-}) $200 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、硝酸盐(NO_3^-) $465 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、乙酸盐(Ac^-) $184.4 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、氯化铵 $50 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、三水合磷酸氢二钾 $50 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、碳酸氢钠 1500

$\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和微量元素^[14] $1 \text{ mL}\cdot\text{L}^{-1}$.

1.2 序批静态摇瓶实验

待反应器运行稳定后, 从反应器底部取样口取泥样, 用去离子水离心洗涤 3 次后进行 IAHD 序批静态摇瓶实验, 经预处理后, 待接种污泥的 SS 及 VSS 含量分别为 $38.8 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $22.1 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$. 厌氧血清瓶体积为 250 mL, 污泥接种体积为 5 mL, 培养基(成分与反应器进水相同)体积为 95 mL. 接种前用氩气对培养基及瓶体上方空气吹脱 15 min, 以除掉氧气形成完全厌氧的条件. 除厌氧实验组外, 为探究氧气对 IAHD 过程的影响, 分别向两个实验组的血清瓶中注入 5 mL 和 10 mL 的氧气, 在注入氧气前, 抽出等量的瓶体上方气体以维持注入氧气后的瓶中的气压. 每个实验组设置 3 个平行, 3 个实验组均置于摇床中培养, 摇床转速为 $135 \text{ r}\cdot\text{min}^{-1}$, 反应温度为 30°C . 3 组反应结束后, 收集接种污泥, 每组分别经去离子水离心洗涤 3 次, 用于进行后续的硫化物氧化序批静态摇瓶实验. 每瓶的污泥接种量及培养基体积均与 IAHD 序批静态摇瓶实验保持一致. 硫化物氧化培养基除不含有乙酸盐和硝酸盐外, 其余组分及浓度均与 IAHD 培养基相同. 接种污泥前对培养基及上方空气曝氩气除氧, 同样设置微氧 5 mL 和 10 mL 实验组及化学对照组(厌氧瓶中注射 10 mL 无污泥接种), 瓶内压强通过抽除与氧气等体积的气体保持恒定, 每组设置 3 个平行. 所有厌氧血清瓶均置于摇床中 30°C 培养, 转速 $135 \text{ r}\cdot\text{min}^{-1}$.

1.3 数据测定

本实验中污泥样品的 SS 和 VSS 采用 $103 \sim 105^\circ\text{C}$ 烘干恒重法测定^[15]. 所有水样在取样后先在 $12000 \text{ r}\cdot\text{min}^{-1}$ 下离心 3 min, 后通过孔径 $0.22 \mu\text{m}$ 的聚醚砜水系微孔滤膜过滤掉水样中的微生物杂质待测. 硫离子的测定采用亚甲基蓝分光光度法^[16]. 水样中乙酸根、亚硝酸根、硝酸根、硫酸根和硫代硫酸根离子浓度采用离子色谱(Dionex ICS-3000)测定. 采用的离子色谱柱型号为 AS11-HC $4 \times 250 \text{ mm}$, 淋洗液为浓度 $1.5 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ 的 NaOH, 流速为 $1 \text{ cm}^3\cdot\text{min}^{-1}$. 水中溶解氧浓度由型号 pH/Oxi 340i 的溶解氧仪测定. pH 值由型号为 pHS-25 的 pH 仪测定. 气体中的 O_2 含量由安捷伦 7890A 型气相色谱测定.

1.4 DNA 提取及高通量测序

待硫化物氧化序批实验结束后, 分别收集各实验组污泥, 用土壤基因组 DNA 提取试剂盒(DP336)进行 DNA 的提取. 选取 515F (5'-GTGC CAGCMGCCGCGG-3') 和 907R (5'-CCGTC AATC MTTTRAGTTT-3') 作为引物对细菌 16S rRNA 在

V4-V5 区进行扩增。20 μL 的扩增体系包括: DNA 母版 10 ng, $5 \times \text{FastPfu}$ 缓冲液 4 μL , dNTP s ($2.5 \text{ mmol} \cdot \text{L}^{-1}$) 2 μL , 正向引物 ($5 \mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$) 0.8 μL , 反向引物 ($5 \mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$) 0.8 μL , FastPfu DNA 聚合酶 0.4 μL , 及无菌双蒸水 12 μL . PCR 扩增程序为: 95°C 初始变性 3 min, 30 个循环, 其中 95°C 变性 30 s, 55°C 退火 30 s, 72°C 延伸 45 s, 循环结束后最终于 72°C 下延伸 10 min. PCR 产物经 1% 琼脂糖凝胶电泳-紫外投射核扩扩增成功, 采用 AxyPrep DNA 纯化试剂盒对扩增产物进行纯化并进行后续高通量测序. 采用 Illumina MiSeq PE250 平台对群落 DNA 片段进行双端测序, 调用 Usearch (vsesion 7.0, <http://drive5.com/uparse/>) 软件对所有相似度大于 97% 的序列进行 OTU 分类划分. 每个 OTU 对应的物种分类信息, 采用 RDP classifier 贝叶斯算法依照 Silva (Release128, <http://www.arb-silva.de>) 数据库进行分类学分析. 16S rRNA 原始测序序列上传至 NCBI 数据库中, 登录号为: SRP125349.

1.5 电子平衡计算

在连续流 IAHD 系统中, 硫化物和乙酸盐被氧化, 失去电子充当电子供体, 而伴随进水裹挟入反应器的微量氧气和硝酸盐被还原, 得到电子充当电子受体. 由于硫化物本身呈现强还原性, 在进水中硫化物浓度为 $200 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时无法检测到 DO 值. 在不考虑氧气的情况下, 依据反应器内的物质转化及物料守恒, 参见以下公式对 IAHD 反应器进行初步的电子平衡计算:

$$e_{(S\text{失电子量})}^- = 2e^- (S^{2-}\text{-}S_{\text{进水}} - S^{2-}\text{-}S_{\text{出水}} - \text{SO}_4^{2-}\text{-}S_{\text{进水}} - \text{S}_2\text{O}_3^{2-}\text{-}S_{\text{出水}}) + 4e^- \text{S}_2\text{O}_3^{2-}\text{-}S_{\text{出水}} + 8e^- \text{SO}_4^{2-}\text{-}S_{\text{出水}} \quad (4)$$

$$e_{(C\text{失电子量})}^- = 4e^- (\text{Ac}^-\text{-}C_{\text{进水}} - \text{Ac}^-\text{-}C_{\text{出水}}) \quad (5)$$

$$e_{(N\text{得电子量})}^- = 2e^- \text{NO}_2^-\text{-}N_{\text{出水}} + 5e^- (\text{NO}_3^-\text{-}N_{\text{出水}} - \text{NO}_3^-\text{-}N_{\text{进水}} - \text{NO}_2^-\text{-}N_{\text{出水}}) \quad (6)$$

式中, 各物质分别代表 IAHD 反应器进出水的硫、氮和碳系物的浓度 ($\text{mmol} \cdot \text{L}^{-1}$).

在序批静态摇瓶实验中, 依据反应初始硫化物, 硝酸盐和乙酸盐浓度及反应结束时硫氮碳氧化及还原产物的浓度对整个过程进行电子平衡分析, 参见上式进行计算. 注入氧气的摩尔质量在已知氧气体积的情况下依据理想气体状态方程 ($PV = nRT$) 进行计算.

2 结果与分析

2.1 连续运行的 UASB-IAHD 反应器的效能

在连续运行的 41 d 内, 进水硫化物浓度始终保

持在 $200 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 左右, S: N: C 的摩尔比为 5: 6: 5. 图 1 和表 1 展示了 UASB 生物反应器的详细运行参数及运行效能. 如图 1 所示, 在整个运行周期内, 硫化物, 硝酸盐和乙酸盐的去除率均为 100%. 反应器出水中没有检测到硫代硫酸盐, 70.0% 的进水硫化物在微生物的作用下转化成硫酸盐从反应器流出. 出水亚硝酸盐积累率在开始启动的第 1 ~ 15 d 波动很大, 达到平稳期后稳定在 6.3%.

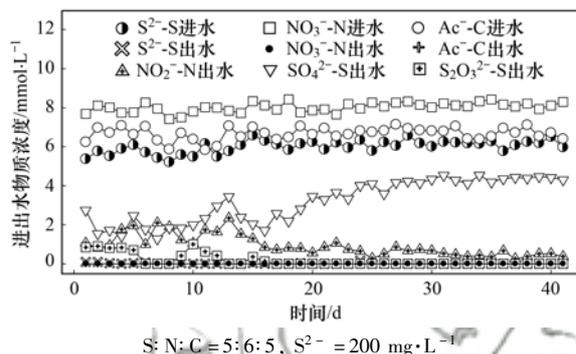


图 1 生物反应器连续运行 41 d 的进出水指标

Fig. 1 Bioreactor performance over the 41 operational days

如表 1 所示, 硝酸盐在去除和转化的过程中接受电子的量为 $39.37 \text{ mmol} \cdot \text{L}^{-1}$, 不能满足硫化物 ($-38.31 \text{ mmol} \cdot \text{L}^{-1}$) 和乙酸盐 ($-27.02 \text{ mmol} \cdot \text{L}^{-1}$) 生成氧化产物的电子需求. 笔者将电子得失不平衡的差值与接受电子的比率定义为电子缺失率. 在连续流反应器的稳定运行阶段, 电子得失差值为 $20.94 \text{ mmol} \cdot \text{L}^{-1}$, 此时的电子缺失率为 65.9%, 这可能与体系内无法检测的微量氧气有关. Chen 等^[7]也发现了微氧条件下 IAHD 过程中的电子不平衡现象, 其利用 EGSB 生物反应器在微氧条件下对硫化物负荷为 $800 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 的 IAHD 过程进行强化, 硫化物、硝酸盐和乙酸盐的去除率均为 100% 时, 电子缺失率为 31.5%. 为了进一步明确微量氧气在 IAHD 工艺中对电子得失不平衡的贡献度, 将氧气含量作为 IAHD 过程中的独立变量来研究碳氮硫共脱除过程中的电子转移.

表 1 UASB 生物反应器稳态运行性能和电子转化

Table 1 Operational performance and electron transformation in IAHD bioreactor in the steady state

类型	项目	去除(转化)率/%	电子得失量 ¹⁾ / $\text{mmol} \cdot \text{L}^{-1}$	电子缺失率 ²⁾ /%
硫系物	S^{2-}	100		
	SO_4^{2-}	70.1	-38.31	65.9
	$\text{S}_2\text{O}_3^{2-}$	0		
氮系物	NO_3^-	100	39.37	65.9
	NO_2^-	6.3		
碳系物	Ac^-	100	-27.02	65.9

1) 负值表示失电子的量, 正值表示得电子的量; 2) 电子缺失率 = 电子得失差值/得电子数

2.2 不同氧气含量下的 IAHD 序批静态摇瓶实验

从稳定运行的 IAHD 生物反应器中取出共 50 mL 的驯化污泥进行序批实验. 图 2 显示了 IAHD 过程中不同氧气含量下硫化物, 硝酸盐和乙酸盐的去除与转化规律. 在氧气含量为 10 mL 的条件下, 硫化氢和乙酸盐在 1.5 h 内降解至 $0 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ [图 2(a)]. 当氧气含量为 5 mL 和 0 mL 时, 此时间缩短至 0.5 h. 摇瓶实验中, 硫酸盐是硫化物的主要氧化产物. 当氧含量为 10、5 和 0 mL 时, 硫酸盐转化率分别为 84%、78% 和 48%. 可以看到, 随着氧气含量的增高, 硫酸盐转化率逐渐增高. 无论在何种氧气含量条件下, 当硝酸盐浓度几乎降低至零时, 亚硝酸盐转化率达 50%, 出现亚硝酸盐的累积峰. 产生的亚硝酸盐继续发生反硝化反应, 当亚硝酸盐浓度降低至 $0 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$, 在 5 mL 和 0 mL 的氧气注入量下再次检测到硫化物, 且其浓度出现累积上升的趋势. 在 5 mL 的氧气含量下, 硫化物浓度在反应开始 3 h 后发生反弹, 在 5 h 时浓度增加至 $0.81 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$. 在厌氧条件下(0 mL 氧气), 硫化物在反应开始 1.5 h 后发生反弹, 且在反应结束时反

弹至初始硫化物浓度的一半 ($2.92 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$). 氧含量的增加明显抑制了硫化物的这种反弹现象. Zhou 等^[17]使用古菌引物对 IAHD 体系中的污泥进行高通量测序, 发现 *Methanobacterium* 丰度较高. *Methanobacterium* 可以利用乙酸盐作为电子供体将单质硫还原为硫化物, 因此推测 IAHD 体系中的硫化物反弹可能和这类功能微生物关系密切.

计算在 IAHD 序批静态摇瓶实验过程中的电子得失情况(表 2), 可以发现在不同氧气含量的条件下, 均存在电子得失不平衡的现象, 即电子受体缺失. 10、5 和 0 mL 氧气条件下, 电子缺失率分别为 24.3%、55.1% 和 39.2%. 如图 2 所示, 在氧气含量为 5 mL 的情况下, 最初 0.5 h 内硫化物, 硝酸盐和乙酸盐的去除率 [$\text{mmol}\cdot(\text{L}\cdot\text{h})^{-1}$] 高于氧气含量为 10 mL 时的去除率, 而硫化物反弹后的最终浓度 ($0.81 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$) 则低于厌氧条件下硫化物反弹后的最终浓度 ($2.92 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$). 因此, 综合以上指标考量 IAHD 过程的运行效能, 推测电子缺失率越大, IAHD 可能更能获得更稳定更高效的硫氮碳去除效能.

表 2 硫化物浓度为 $200 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时不同氧气含量下 IAHD 过程的电子平衡计算

Table 2 Electron balance calculation of batch tests with sulfide concentration of $200 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ under different oxygen contents

氧气计算值 (实际注入值)/mL	反应时间 /h	失电子量/mmol		得电子量/mmol		电子得失差值 /mmol	电子缺失率 /%
		S	C	N	O ₂		
10 (12)	5	-3.53	-2.76	3.07	1.99	-1.23	24.3
5 (6.5)	5	-4.01	-2.89	3.37	1.08	-2.45	55.1
0	5	-2.51	-2.72	3.75	0	-1.47	39.2

2.3 不同氧气含量下的硫化物氧化序批静态摇瓶实验

在 IAHD 序批实验结束后, 分别将不同氧气含量下的每组污泥取出并用蒸馏水洗涤 3 次, 注入氧气作为唯一的电子受体进行硫化物氧化序批实验(图 3). 如图 3(a)和 3(b)所示, 当氧气含量为 10 mL 和 5 mL 时, 硫化物到硫代硫酸盐的转化率分别为 66.9% 和 32.4%. 除了在 10 mL 氧含量下生成了 $2.07 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ 的 $\text{SO}_4^{2-}\text{-S}$ 外, 厌氧和氧气含量为 5 mL 的条件下几乎没有硫酸盐生成[图 3(a)]. 在化学对照组中, 硫代硫酸盐也是硫化物主要的氧化产物, 转化率为 39% [图 3(d)]. 当没有氧气注入时(厌氧条件)[图 3(c)], 整个体系没有电子受体, 硫化物不发生氧化, 浓度始终保持在 $6 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ 左右.

表 3 中计算了硫化物氧化序批实验中, 硫化物利用氧气发生氧化过程中的电子得失情况. 在厌氧条件下, 硫化物不发生氧化, 体系中没有电子转移

的发生. 当氧气含量为 5 mL 和 10 mL 时, 电子受体缺失的量为 0.14 mmol 和 0.73 mmol, 电子缺失率为 18.7% 和 38.2%. 在化学对照组中, 硫化物氧化成硫酸盐和硫代硫酸盐失去的 1.2 mmol 电子完全被氧气接受, 不存在电子受体缺失的现象. 根据以上 4 组实验的结果可知, 在硫化物氧化过程当中出现的电子得失差值仅存在于生物硫化物氧化过程中, 且电子缺失率与氧含量呈现正相关.

2.4 微生物群落结构分析

在硫化物氧化序批实验结束后, 采用 Illumina 二代测序对各个实验组的活性污泥进行微生物群落结构分析. 在 97% 序列相似性水平上鉴定了 424 个 OTU. 表 4 中给出了群落的 Shannon、Simpson、Ace 和 Chao1 指数. Ace 和 Chao1 指数反映微生物群落的丰富度, 该值越大, 则群落的丰富度越高. Shannon 和 Simpson 指数则在考虑群落丰度的基础上也可以反映群落的均匀度, Shannon 指数越大, Simpson 指数越小则表示群落的多样性越高^[18]. 厌

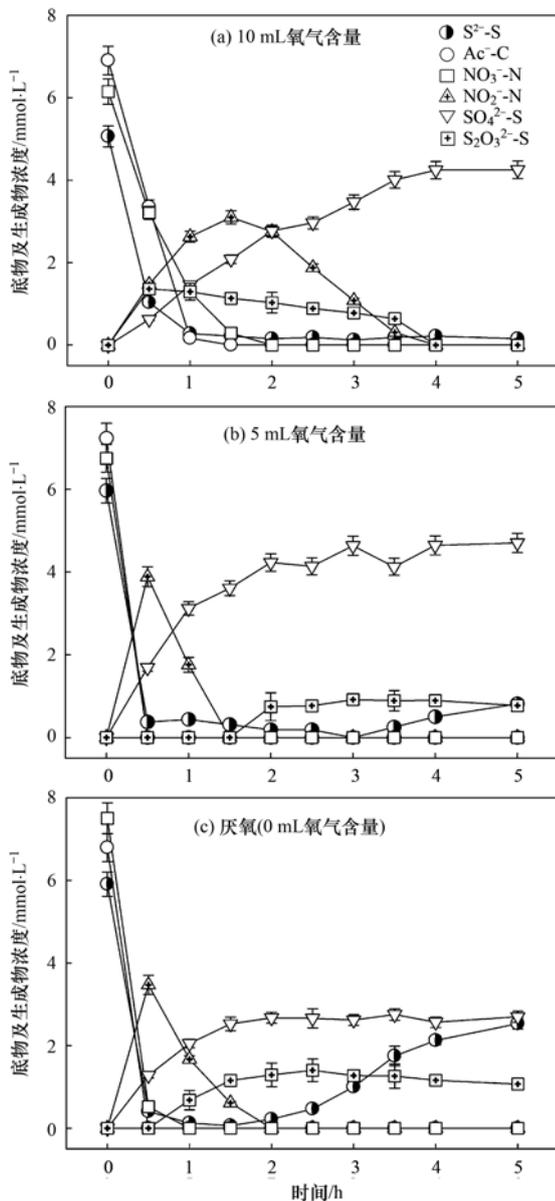


图 2 不同氧气含量下的硫氮碳降解规律

Fig. 2 Time course of sulfide, nitrate, and acetate removal and transformation in IAHD batch tests

表 3 以氧气作为唯一电子受体时硫系物的浓度变化及电子平衡计算

Table 3 Variation of sulfur containing compounds and electronic balance calculation in batch tests with oxygen only

氧气计算值 (实际注入值)/mL	$S^{2-}-S/\text{mmol}\cdot\text{L}^{-1}$		$\text{SO}_4^{2-}-S/\text{mmol}\cdot\text{L}^{-1}$		$\text{S}_2\text{O}_3^{2-}-S/\text{mmol}\cdot\text{L}^{-1}$		失电子量 /mmol	得电子量 /mmol	电子得失差值 /mmol	电子缺失率 /%
	初始	最终	初始	最终	初始	最终				
10 (11.5)	6.50	0.97	0	1.33	0	3.67	-2.64	1.91	-0.73	38.2%
5 (4.5)	6.38	4.15	0	0.29	0	1.39	-0.89	0.75	-0.14	18.7%
0	6.16	6.41	0	0	0	0.14	— ¹⁾	—	—	—
10 (7.5) ²⁾	6.09	3.62	0	0.57	0	1.82	-1.20	1.24	0.04	—

1) “—”表示文章中没有相关数据; 2) 无生物量接种的化学对照组

表 4 微生物群落的多样性及丰富度指数

Table 4 Species richness and diversity analysis of microbial communities

样品	Shannon 指数	Simpson 指数	Ace 指数	Chao1 指数
S10	1.902	0.381	229.128	220.037
S5	1.991	0.350	216.595	194.556
S0	2.192	0.298	298.437	260.550

氧条件下, 微生物群落的多样性最高, 随着氧气含量的增加, 微生物群落多样性逐渐降低。

图 4 展示了微生物群落结构在属水平上的分类, 测序丰度小于 0.5% 的属统一归类为 others. 在硫氧化序批摇瓶实验的群落结构中, *Thiobacillus*、*Thauera*、*Mangroviiflexus* 和 *Erysipelothrix* 是主要占优势属, 在 S0、S5 和 S10 中总相对丰度达 75% 以上. *Thiobacillus* 是污水处理过程中常见的化能自养微生物, 可以利用硝酸盐, 亚硝酸盐和氧气作为电子受体进行硫化物, 单质硫和硫代硫酸盐等硫系物的氧化^[19]. 随着氧气含量的增加, 微生物群落中 *Thiobacillus* 的相对丰度逐渐增加, 在 S0、S5 和 S10 中分别占 54%、60% 和 61%. 作为反硝化脱氮工艺及 IAHD 过程中常见的异养微生物, *Thauera* 在不同氧气含量下其丰度占到总群落 11% ~ 15%. *Erysipelothrix* 也可以利用有机碳源进行生长繁殖, 同时可以将硝酸盐还原成氮气^[20]. 在 IAHD 批次实验中, 最初 0.5 h 的硝酸盐还原速率为 $5.88 \text{ mmol}\cdot(\text{L}\cdot\text{h})^{-1}$, 这仅为氧气含量为 5 mL 和 0 mL (厌氧) 时的一半. 相应地, 在 S5 和 S0 中, *Erysipelothrix* 的相对丰度分别为 2% 和 5%, 而在 S10 中仅仅占到 1%. 据报道, *Mangroviiflexus* 是一类兼性厌氧菌, 同时具有将硫酸盐或亚硫酸盐还原为硫化物的能力^[21]. 因此, 推测 *Mangroviiflexus* 可能与 IAHD 序批测试中的硫化物反弹现象相关. 在厌氧条件及氧气含量为 5 mL 时, *Mangroviiflexus* 的丰度分别占 3% 和 4%, 而在氧气含量为 10 mL 硫化物反弹现象消失的情况下, 其比例下降至 0%.

从丰度排名前 15 的属可以看出, 经 IAHD 过程长期驯化的接种污泥, 在仅有硫化物与氧气共存的硫氧化环境下, 自养反硝化菌虽绝对占优, 但群落结构仍具有自养反硝化与异养反硝化菌共存的特

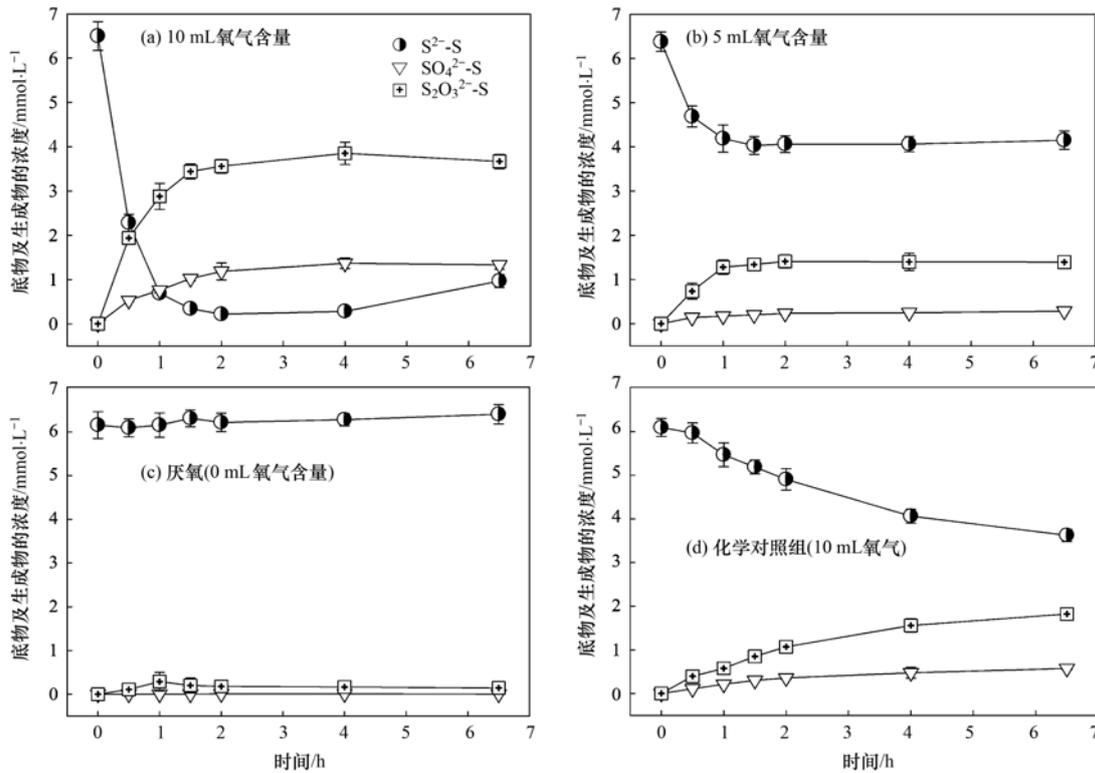


图 3 不同氧气含量下的硫化物及其氧化产物的变化规律

Fig. 3 Time evolution of sulfide, sulfate and thiosulfate concentrations for sulfide oxidizing batch tests

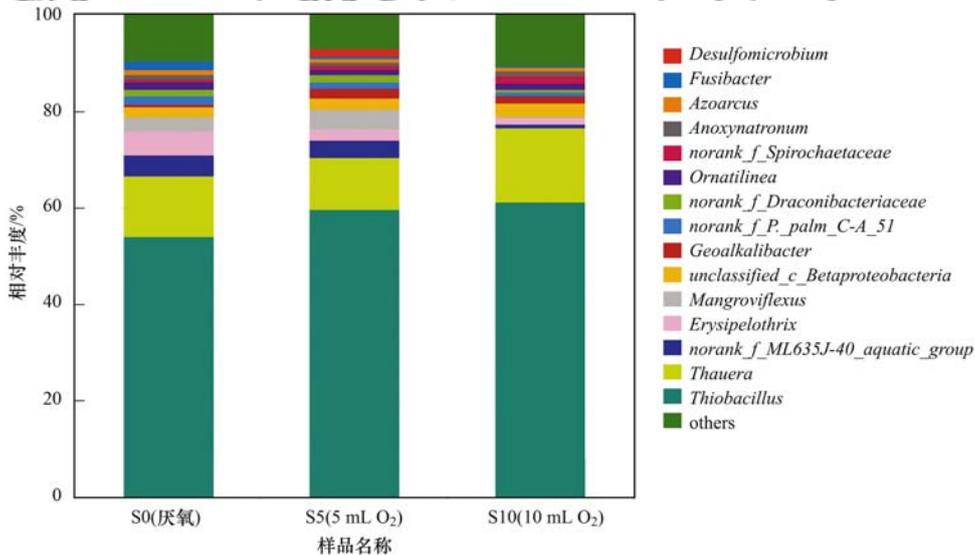


图 4 硫化物氧化序批实验中不同氧气含量下的微生物群落结构

Fig. 4 Bacterial community structures at genus level in sulfide oxidizing batch tests corresponding to different oxygen contents

征,这与先前的研究工作相符^[22].本课题组前期利用经 IAHD 过程成功驯化的活性污泥,在硫化物浓度为 200 mg·L⁻¹,硫:氮:碳摩尔比为5:6:5的条件下设置不同氧气梯度探究最适宜的微氧浓度,随着氧气含量的升高,也发现了 IAHD 过程中的电子缺失率逐渐升高的现象^[9].微生物群落分析结果表明在氧气含量为 8 mL 和 12 mL 的情况下, *Thauera*、*Azoarcus* 和 *Thiobacillus* 为占优属,其中 *Thauera* 的丰度高达 60%左右.但是,由于微氧的 IAHD 过程

涉及多种电子供体及受体,硫化物好氧化及厌氧氧化,自养及异养反硝化以及有机物的好氧化过程同时发生,微氧 IAHD 群落结构在属水平的分布特征与电子缺失率并没有展现出明显相关性.因此,针对某一过程建立占优属与电子缺失率间的联系对于解读微氧 IAHD 中的电子不平衡现象具有重要意义.

作为硫化物氧化群落结构中丰度最高的属, *Thiobacillus* 的相对丰度随着氧气含量的增加而增加

(S0: 54%、S5: 60% 和 S10: 61%), 并且与硫化物氧化序批实验中的电子得失差值呈现一定的正相关关系. 目前, 已有文献报道了 *Thiobacillus* 可以在电子受体不足的条件下进行硫化物氧化过程. Janssen 等^[23]证明, 接种在连续流气升式生物反应器中的混合 *Thiobacillus* 菌株, 能够在 O₂/H₂S 摩尔比低至 0.35 时将约 20% 硫化物完全氧化成硫酸盐, 经计算, 其电子缺失率为 128%. 此外, Alcántara 等^[24]在其生物反应器中也以 *Thiobacillus* 属的纯菌作为接种物, 当 O₂/H₂S 摩尔比为 1.0 时发现 60% 的硫化物完全氧化成了硫酸盐, 而基于电子平衡计算, 反应器中提供的氧气仅仅能达到 33% 的硫酸盐转化率. Klok 等^[25]依据其运行的曝气生物反应器中的现象提出了一条硫化物在碱性条件下发生氧化时可能存在的特殊电子传递途径 (limited oxygen route, LOR). 其中硫化物氧化的直接电子受体不是氧气, 而是通过蒽醌类化合物将电子传递给 NAD⁺, 再通过胞内 NAD⁺ 与 NADH 间的循环再生实现硫化物的氧化. 但在 IAHD 过程中, 除发生硫化物氧化过程外, 还存在硝酸盐和亚硝酸盐的还原及有机物的降解过程, 因此, 是否仅在硫化物的氧化过程中存在电子得失的差值, 以及通过碳固定再生的 NAD⁺ 是否是 IAHD 过程中潜在的内源电子受体, 仍需要进一步实验验证.

与常规好氧工艺相比, 采用微氧工艺可以显著节省曝气运行的成本. 针对 IAHD 过程来说, 微氧条件是一种可以同步强化硫化物、硝酸盐和有机物去除效率的有效手段. 在本研究中, 对反应器中硫、氮、碳进行电子平衡计算发现了微氧条件下运行的 IAHD 反应器中存在电子得失不平衡的现象, 并且试图建立电子缺失率, 功能微生物和高效 IAHD 性能之间的关系. 通过 IAHD 序批实验发现当电子缺失率最大时, 可以获得满意的 IAHD 性能. 因此, 通过对 IAHD 过程的电子平衡计算可以对曝气速率及曝气量进行优化, 以在微氧条件下获得最高的硫氮碳去除效率. 此外, 找出潜在的内源电子受体不仅可以明确自养反硝化和异养反硝化菌对于体系的贡献度, 进一步解析 IAHD 过程中硫、氮和碳的生物降解机制, 而且可以为微氧强化 IAHD 工艺在实际应用中提供调控的新思路.

3 结论

(1) 在微氧条件下, 当硫化物浓度为 200 mg·L⁻¹, S: N: C 为 5: 6: 5 时, IAHD 生物反应器在硝酸盐供给不足的情况下, 可以实现 100% 的硫化物, 硝酸盐和乙酸盐去除率以及 70% 的硫酸盐转化率.

IAHD 序批实验中达到最佳的硫、氮、碳去除效能时, 相应的电子缺失率也达到最大值, 为 55.1%.

(2) 电子得失不平衡现象仅存在于硫化物的生物氧化过程中, 且氧气含量越高电子缺失率越大, 氧气含量和电子缺失率之间存在正相关关系.

(3) 经过 IAHD 过程驯化的活性污泥, 在硫化物条件下进行微生物群落结构分析, *Thiobacillus* 为主要占优属, 在厌氧、氧气含量 5 mL 及 10 mL 的条件下丰度分别为 54%、60% 和 61%, 其相对丰度随着电子缺失率的增大而增加.

(4) 微氧条件下的电子得失不平衡现象打破了先前需要严格依照化学计量比例来运行 IAHD 工艺的思维模式, 给出了微氧强化可以拓宽 IAHD 工艺水质适用范围的另一理论依据.

参考文献:

- [1] 李名升, 周磊, 陈远航, 等. 经济结构调整的污染减排效应: 以 COD 减排为例[J]. 环境科学, 2014, **35**(8): 3212-3218. Li M L, Zhou L, Chen Y H, et al. Effect of economic structure adjustment on pollution emission: a case study of COD [J]. Environmental Science, 2014, **35**(8): 3212-3218.
- [2] 李祥, 马航, 黄勇, 等. 异养与硫自养反硝化协同处理高硝氮废水特性研究[J]. 环境科学, 2016, **37**(7): 2646-2651. Li X, Ma H, Huang Y, et al. Characteristics of a combined heterotrophic and sulfur autotrophic denitrification technology for removal of high nitrate in water [J]. Environmental Science, 2016, **37**(7): 2646-2651.
- [3] 谭文勃, 马晓丹, 黄聪, 等. 1 株异养反硝化硫细菌的分离鉴定及代谢特性[J]. 环境科学, 2017, **38**(2): 809-814. Tan W B, Ma X D, Huang C, et al. Isolation, identification and metabolic characteristics of a heterotrophic denitrifying sulfur bacterial strain [J]. Environmental Science, 2017, **38**(2): 809-814.
- [4] Zhang R C, Xu X J, Chen C, et al. Interactions of functional bacteria and their contributions to the performance in integrated autotrophic and heterotrophic denitrification [J]. Water Research, 2018, **143**: 355-366.
- [5] 郭磊, 王爱杰, 刘春爽, 等. 碳氮比对碳氮硫同步脱除的影响[J]. 给水排水, 2008, **34**(S1): 224-227. Guo L, Wang A J, Liu C S, et al. Effect of C/N ratio on the simultaneous removal of carbon, nitrogen and sulfur [J]. Water & Wastewater Engineering, 2008, **34**(S1): 224-227.
- [6] Ghorbel L, Coudert L, Gilbert Y, et al. Determination of critical operational conditions favoring sulfide production from domestic wastewater treated by a sulfur-utilizing denitrification process [J]. Journal of Environmental Management, 2017, **198**: 16-23.
- [7] Chen C, Ren N Q, Wang A J, et al. Enhanced performance of denitrifying sulfide removal process under micro-aerobic condition [J]. Journal of Hazardous Materials, 2010, **179**(1-3): 1147-1151.
- [8] Chen C, Zhang R C, Xu X J, et al. Enhanced performance of denitrifying sulfide removal process at high carbon to nitrogen ratios under micro-aerobic condition [J]. Bioresource Technology, 2017, **232**: 417-422.
- [9] Chen C, Shao B, Zhang R C, et al. Mitigating adverse impacts of varying sulfide/nitrate ratios on denitrifying sulfide removal process performance [J]. Bioresource Technology, 2018, **267**:

- 782-788.
- [10] Wang X W, Zhang Y, Zhang T T, *et al.* Effect of dissolved oxygen on elemental sulfur generation in sulfide and nitrate removal process: characterization, pathway, and microbial community analysis [J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2016, **100**(6): 2895-2905.
- [11] 于皓, 陈川, 张莉, 等. 溶解氧对碳氮硫共脱除工艺中微生物群落影响解析[J]. *环境科学*, 2013, **34**(6): 2368-2374.
- Yu H, Chen C, Zhang L, *et al.* Effect of dissolved oxygen on microbial community in simultaneous removal of carbon, nitrogen and sulfur process[J]. *Environmental Science*, 2013, **34**(6): 2368-2374.
- [12] Guo H L, Chen C, Lee D J, *et al.* Proteomic analysis of sulfur-nitrogen-carbon removal by *Pseudomonas* sp. C27 under micro-aeration condition[J]. *Enzyme and Microbial Technology*, 2014, **56**: 20-27.
- [13] Chen C, Wang A J, Ren N Q, *et al.* High-rate denitrifying sulfide removal process in expanded granular sludge bed reactor [J]. *Bioresource Technology*, 2009, **100**(7): 2316-2319.
- [14] Zhang R C, Xu X J, Chen C, *et al.* Bioreactor performance and microbial community analysis of autotrophic denitrification under micro-aerobic condition[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **647**: 914-922.
- [15] 周虹丽, 朱建华, 韩冰, 等. 重量法测量悬浮物浓度关键技术研究[J]. *海洋技术学报*, 2004, **23**(3): 15-20.
- Zhou H L, Zhu J H, Han B, *et al.* Research on the key technique of the analysis of suspended matter by weighting method[J]. *Ocean Technology*, 2004, **23**(3): 15-20.
- [16] 林李秋. 亚甲基蓝分光光度法测定水中硫化物影响因素的探讨[J]. *化学工程师*, 2006, **20**(10): 32-33, 35.
- Lin L Q. Study on factors effecting the determination of sulfide in water by methylene blue spectrophotometry [J]. *Chemical Engineer*, 2006, **20**(10): 32-33, 35.
- [17] Zhou X, Liu L H, Chen C, *et al.* Reduction of produced elementary sulfur in denitrifying sulfide removal process [J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2011, **90**(3): 1129-1136.
- [18] Haegeman B, Sen B, Godon J J, *et al.* Only Simpson diversity can be estimated accurately from microbial community fingerprints [J]. *Microbial Ecology*, 2014, **68**(2): 169-172.
- [19] 车轩, 罗国芝, 谭洪新, 等. 脱氮硫杆菌的分离鉴定和反硝化特性研究[J]. *环境科学*, 2008, **29**(10): 2931-2937.
- Che X, Luo G Z, Tan H X, *et al.* Isolation, identification and denitrification characterization of *Thiobacillus denitrificans* [J]. *Environmental Science*, 2008, **29**(10): 2931-2937.
- [20] Mielcarek A, Rodziewicz J, Janczukowicz W, *et al.* Citric acid application for denitrification process support in biofilm reactor [J]. *Chemosphere*, 2017, **171**: 512-519.
- [21] Han R, Yuan Y Z, Cao Q W, *et al.* PCR-DGGE analysis on microbial community structure of rural household biogas digesters in Qinghai Plateau [J]. *Current Microbiology*, 2018, **75**(5): 541-549.
- [22] Huang C, Liu Q, Chen C, *et al.* Elemental sulfur recovery and spatial distribution of functional bacteria and expressed genes under different carbon/nitrate/sulfide loadings in up-flow anaerobic sludge blanket reactors [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2017, **324**: 48-53.
- [23] Janssen A J H, Meijer S, Bontsema J, *et al.* Application of the redox potential for controlling a sulfide oxidizing bioreactor [J]. *Biotechnology and Bioengineering*, 1998, **60**(2): 147-155.
- [24] Alcántara S, Velasco A, Muñoz A, *et al.* Hydrogen sulfide oxidation by a microbial consortium in a recirculation reactor system: sulfur formation under oxygen limitation and removal of phenols [J]. *Environmental Science & Technology*, 2004, **38**(3): 918-923.
- [25] Klok J B M J, Van Den Bosch P L F, Buisman C J N, *et al.* Pathways of sulfide oxidation by haloalkaliphilic bacteria in limited-oxygen gas lift bioreactors [J]. *Environmental Science & Technology*, 2012, **46**(14): 7581-7586.

CONTENTS

Size Distributions of Different Carbonaceous Components in Ambient Aerosols	DU Xiang, ZHAO Pu-sheng, DONG Qun, <i>et al.</i> (3849)
Analysis of Air Pollution Characteristics and Meteorological Conditions in Zhengzhou from 2014 to 2017	GUO Meng-meng, JIANG Nan, WANG Shen-bo, <i>et al.</i> (3856)
Characteristics of Atmospheric PM _{2.5} Pollution and Its Influence on Visibility in Background Areas of Ji'nan	BIE Shu-jun, YANG Ling-xiao, CAO Ying, <i>et al.</i> (3868)
Source Analysis and Health Risk Assessment of PAHs in PM _{2.5} During Winter in Liaocheng City	LIU Xiao-di, HOU Zhan-fang, MENG Jing-jing, <i>et al.</i> (3875)
Temporal-Spatial Characteristics and Variability in Aerosol Optical Depth over China During 2001-2017	LIU Hai-zhi, GUO Hai-yan, MA Zhen-feng, <i>et al.</i> (3886)
Spatial-Temporal Distribution of Absorptive Aerosols in the Yangtze River Delta	ZHAO Nan, CAO Fan-shi, TIAN Qing, <i>et al.</i> (3898)
Emission Characteristics of Chemical Composition of Particulate Matter from Coal-fired Boilers	YANG Yan-rong, ZHOU Xue-ming, QIN Juan-juan, <i>et al.</i> (3908)
Pollution Characteristics of Heavy Metals in PM _{2.5} Near Highway	LI Xiao-bao, LIAO Zu-wen, ZHAO Hong, <i>et al.</i> (3916)
Pollution Characteristics and Potential Ecological Risks of Heavy Metals in Road Dust in Beijing	HU Yue-qi, GUO Jian-hui, ZHANG Chao, <i>et al.</i> (3924)
Application of Test Method for Dust Suppression Efficiency of Wind Erosion Dust Suppressant	QIN Jian-ping, LI Bei-bei, YANG Tao, <i>et al.</i> (3935)
Emission Characteristics and Ozone Formation Potential of VOCs in Printing Enterprises in Beijing-Tianjin-Hebei	LIU Wen-wen, FANG Li, GUO Xiu-rui, <i>et al.</i> (3942)
Source Profiles of VOCs Associated with Typical Industrial Processes in Chengdu	ZHOU Zi-hang, DENG Ye, WU Ke-ying, <i>et al.</i> (3949)
Characterization and Health Risk Assessment of Exposure to Odorous Pollutants Emitted from Industrial Odor Sources	MENG Jie, ZHAI Zeng-xiu, JING Bo-yu, <i>et al.</i> (3962)
Analysis of HONO Concentration and Source in Typical Rural Area of North China	WANG Yu-zheng, XUE Chao-yang, ZHANG Cheng-long, <i>et al.</i> (3973)
CO-SCR Performance and Mechanism over Co ₃ O ₄ Catalysts	ZHONG Xue-mei, ZHANG Tao, LI Jia-yin, <i>et al.</i> (3982)
Pollution Characteristics of Perfluorinated Alkyl Substances (PFASs) in Seawater, Sediments, and Biological Samples from Jiaozhou Bay, China CUI Wen-jie, PENG Ji-xing, TAN Zhi-jun, <i>et al.</i> (3990)
Occurrence and Influencing Factors of Odorous Compounds in Reservoirs Used as Drinking Water Resources in Jiangsu Province SHI Peng-cheng, ZHU Guang-wei, YANG Wen-bin, <i>et al.</i> (4000)
Fluorescence Characteristics and Influencing Factors of Dissolved Organic Matter (DOM) in Water and Sediment of Urban Watershed: A Case Study of Xiaojia River in Ningbo City GAO Feng, SHAO Mei-ling, TANG Jian-feng, <i>et al.</i> (4009)
Water Bloom Modified Sediment Nitrogen Transformation and Removal XIAO Lin, YANG Jia-yi (4018)
Applicability of Bioavailable Phosphorus in Sediments to Indicating Trophic Levels of Lakes and Reservoirs	LIU Hui, HU Lin-na, ZHU Meng-yuan, <i>et al.</i> (4023)
Analysis of Nitrate Pollution Sources in the Rainy Season of the Lower Fenhe River	WANG Yin-long, FENG Min-quan, DONG Xiang-qian (4033)
Hydrochemical Characteristics and Evolution of Groundwater in the Kashgar Delta Area in Xinjiang	WEI Xing, ZHOU Jin-long, NAI Wei-hua, <i>et al.</i> (4042)
Community Diversity of Eukaryotic Nano-phytoplankton in Yellow Sea Using DNA Metabarcoding Technology Based on Multiple Amplicons ZHANG Li, ZHANG Yuan, LIN Jia-ning, <i>et al.</i> (4052)
Comparison of Functional Groups of Phytoplankton in FG, MFG, and MBFG; Taking Three Reservoirs as an Example in Guizhou Plateau	CHEN Qian, LI Qiu-hua, MA Xin-yang, <i>et al.</i> (4061)
Adsorption and Mechanism of Arsenic by Natural Iron-containing Minerals	SHAO Jin-qiu, WEN Qi-qian, YAN Xiu-lan, <i>et al.</i> (4072)
Removal of Pb ²⁺ from Aqueous Solution by Magnesium-Calcium Hydroxyapatite Adsorbent	HE Hao, ZHU Zong-qiang, LIU Jie, <i>et al.</i> (4081)
Intensified Electrosorption of Pb ²⁺ by 2,6-diaminoanthraquinone/Graphene Composite Electrode	JIN Sheng-yao, XIANG Yang, ZHANG Jun-yu, <i>et al.</i> (4091)
Experiment on Recovery of Phosphorus from Aqueous Solution by Calcium Doped Fe ₃ O ₄	BAI Run-ying, LIU Jian-ming, HAO Jian-feng, <i>et al.</i> (4098)
Removal of Microplastics by Different Treatment Processes in Shanghai Large Municipal Wastewater Treatment Plants	JIA Qi-long, CHEN Hao, ZHAO Xin, <i>et al.</i> (4105)
Enhanced Nutrient Removal and Microbial Community Structure in a Step-feed A ² /O Process Treating Low-C/N Municipal Wastewater	RONG Yi, LIU Xiao-chai, HE Yin-xuan, <i>et al.</i> (4113)
Performances Analysis of an Upflow Anaerobic Filter for Domestic Sewage Treatment	YANG Zhong-qi, LIU Xiu-hong, LI Hai-xin, <i>et al.</i> (4121)
Electron Equilibrium Analysis of Integrated Autotrophic and Heterotrophic Denitrification Process Under Micro-aerobic Conditions	ZHANG Ruo-chen, CHEN Chuan, SHAO Bo, <i>et al.</i> (4128)
Pilot Study on Start-up and Stable Operation at Low Temperature Based on Denitrifying Phosphorus Removal	ZHANG Fan, YU De-shuang, LIU Jie, <i>et al.</i> (4136)
Comparison of Polycaprolactone and Poly-3-hydroxybutyrate-co-3-hydroxyvalerate for Nitrogen Removal	YI Cheng-hao, QIN Wei, CHEN Zhan, <i>et al.</i> (4143)
Rapid Cultivation of Anaerobic Ammonium Oxidation Granular Sludge and Inhibition Kinetics of Granular Sludge	TANG Peng, YU De-shuang, CHEN Guang-hui, <i>et al.</i> (4152)
Effect of Ca ²⁺ on the Nitrification Activity and the Flocculation and Sedimentation Performances of the Activated Sludge	ZHANG Lan-he, ZHAO Qian-nan, ZHANG Hai-feng, <i>et al.</i> (4160)
Recovery of Phosphorus in the Form of Struvite from the Anaerobic Fermentation Supernatant of Excess Sludge	CHANG Xiao, ZENG Wei, WANG Bao-gui, <i>et al.</i> (4169)
Effect of Signal Molecule Combined with <i>Thiobacillus denitrificans</i> on Simultaneous Removal of Nitrogen and Sulfur	XU Jin-lan, CHEN Zi-wei, ZHANG Shao-feng, <i>et al.</i> (4177)
Bacterial Community Composition in Channel Sediment in Response to Mariculture Wastewater Drainage	HU Yue-hang, XUAN Li-xia, QIU Qiong-fen (4185)
Setup and Microbial Community Analysis of ANAMMOX System for Landfill Leachate Treatment Coupling Partial Nitrification-Denitrification Process ZHAO Qing, LIU Meng-ying, LÜ Hui, <i>et al.</i> (4195)
Effects of Rice Straw Addition on Methanogenic Archaea and Bacteria in Two Paddy Soils	BAO Qiong-li, WANG Feng-hua, BAO Wan-kui, <i>et al.</i> (4202)
Effect of Plastic Film Mulching on Greenhouse Gas Emissions from Rice-Rapeseed Rotation in Cropland	CHEN Shi-jie, JIANG Chang-sheng, NI Xue, <i>et al.</i> (4213)
N ₂ O Emissions from a Tea Field with Deep Application of Nitrogen Fertilizer and Intercropping with White Clover	LÜ Tian-xin, WU Yan-zheng, SHEN Jian-lin, <i>et al.</i> (4221)
Distribution and Emission of Nitrous Oxide (N ₂ O) in Three Gorges Reservoir and Downstream River	CHENG Fang, DING Shuai, LIU Su-mei, <i>et al.</i> (4230)
Synergy of Algal Sedimentation and Sediment Capping for Methane Emission Control in Bloom Waters	ZHU Lin, YU Jiang-hua, SHI Wen-qing, <i>et al.</i> (4238)
Impact of Newly Build Lead-Acid Battery Agglomeration Area on the Surrounding Soil Environment; A Study Based on the Spatial Characteristics of Heavy Metals DING Ya-li, LIAO Min, FANG Zhi-ping, <i>et al.</i> (4244)
Effects of Amendments with Different C/N/P Ratios on Plant and Soil Properties of a Pb-Zn Mine Tailings	YANG Sheng-xiang, LI Feng-mei, PENG Xi-zhu, <i>et al.</i> (4253)
Derivation of the Thresholds of Available Concentrations of Heavy Metals in Soil Based on Agricultural Product Safety	ZHANG Yun-hui, DU Ping, HE Ying, <i>et al.</i> (4262)
Content of Soil Phytolith-Occluded Organic Carbon in Different Land Use Patterns in Jinyun Mountain	LUO Dong-hai, WANG Zi-fang, LU Chang, <i>et al.</i> (4270)
Influence of Land Use Change on Litter and Soil C, N, P Stoichiometric Characteristics and Soil Enzyme Activity in Karst Ecosystem, Southwest China TIAN Jing, SHENG Mao-yin, WANG Pan, <i>et al.</i> (4278)
Effect of Conditioning Agent Combined with Flooding Measures on Absorption and Accumulation of Cadmium in Rice	PENG Ou, LIU Yu-ling, TIE Bai-qing, <i>et al.</i> (4287)
Distribution and Sources of OPEs in Plants and Snow in Hailuoguo	CHEN Yang, YIN Hong-ling, WU Di, <i>et al.</i> (4295)