

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.11

第40卷 第11期

目次

2018年中国长江三角洲地区气溶胶的垂直分布特征	沈吉, 曹念文(4743)
2018年石家庄市秋冬季典型霾污染特征	宿文康, 鲍晓磊, 倪爽英, 赵卫凤(4755)
武汉市PM _{2.5} 化学组分时空分布及聚类分析	张会涛, 田瑛泽, 刘保双, 杨佳美, 郁佳, 官攀, 吴建会, 张裕芬(4764)
郑州市某生活区大气PM _{2.5} 中重金属污染特征及生态、健康风险评估	何瑞东, 张轶舜, 陈永阳, 靳孟洁, 韩士杰, 赵金帅, 张瑞芹, 燕启社(4774)
厦门市降水中金属元素含量分布特征及来源解析	王珊珊, 程奕枫, 颜金培, 胡恭任(4783)
2015~2017年上海郊区大气新粒子生成特征	霍俊涛, 王新宁, 段玉森, 伏晴艳, 陈冰怡(4791)
太原市秋冬季大气污染特征和输送路径及潜在源区分析	闫世明, 王雁, 郭伟, 李莹, 张逢生(4801)
东北区域空气质量时空分布特征及重度污染成因分析	陈卫卫, 刘阳, 吴雪伟, 鲍秋阳, 高枳亭, 张学磊, 赵红梅, 张世春, 修艾军, 程天海(4810)
艾比湖流域气溶胶光学厚度时空演变及影响因素	陈香月, 丁建丽, 王敬哲, 葛翔宇, 梁静(4824)
中国住宅室内BTEX浓度水平及其影响因素	侯贝贝, 尹奕卉, 裴晶晶, 刘俊杰(4833)
石家庄地区芳香族化合物的污染特征及来源分析	杨阳, 李杏茹, 刘永桥, 杨玉磊, 赵清, 陈曦, 徐静(4841)
郑州市碳素行业无组织VOCs排放特征分析及健康风险评估	张轶舜, 王佳, 韩士杰, 何瑞东, 陈永阳, 靳孟洁, 赵庆炎, 张瑞芹, 燕启社(4847)
典型化工行业有害VOCs排放清单及长三角地区应用	鲁君, 黄奕玮, 黄成(4856)
2013~2017年江苏省人为源氨排放清单的建立及特征	侯新红, 于兴娜, 沈丽, 赵睿东, 王国祯, 张毓秀(4862)
焦化厂建构筑物和生产设施表面PAHs的赋存特征及健康风险	赵一澍, 廖晓勇, 李尤, 罗俊鹏, 龚雪刚, 侯艺璇(4870)
中国南海流沙湾中雄激素、糖皮质激素和孕激素的污染特征及其生态风险评价	杨雷, 张晋娜, 徐敏, 彭涛, 史文俊, 石义静, 应光国(4879)
岩溶流域洪水过程水化学动态变化及影响因素	原雅琼, 孙平安, 苏钊, 于爽, 钟丽华, 何师意, 徐茜(4889)
长江水体常量和微量元素的来源、分布与向海输送	吴文涛, 冉祥滨, 李景喜, 王昊, 李梦露, 刘军, 臧家业(4900)
望虞河西岸河网重金属污染特征及生态风险评价	徐晨, 王沛芳, 陈娟, 袁秋生, 胡斌(4914)
不同雨强对太湖河网河道入湖营养盐负荷影响	陈洁, 朱广伟, 许海, 詹旭, 朱梦圆, 宣文怡, 黄亚文(4924)
合肥市十八联圩湿地表层沉积物营养盐与重金属分布及污染评价	陈娜, 许凡, 谢三桃, 郭天星, 彭久赞, 雷琦, 张玮, 王丽卿(4932)
三峡库区不同河段支流丰水期叶绿素a和营养盐的空间分布特征	杨凡, 杨正健, 纪道斌, 苏青青, 龙良红, 刘心愿, 王耀耀, 赵冲(4944)
丹江口水库氮磷内源释放对比	王志齐, 刘新星, 姚志宏, 姚伦广, 常跃, 刘卓初, 曹连海(4953)
不同沉水植物净水能力与植株体细菌群落组成相关性	李琳, 岳春雷, 张华, 李贺鹏, 杨乐, 王琄(4962)
纳米氧化锌粒径对人工湿地性能及微生物群落的影响	王森, 任伶, 刘琳琳, 李颖, 张振, 孔范龙(4971)
水生植物生物炭去除水体中氮磷性能	刘舒蕾, 彭慧君, 杨佳怡, 肖琳(4980)
MgO改性莲蓬壳生物炭的制备及其磷吸附特性	王盛华, 朱丹晨, 邵敬爱, 向家涛, 杨海平, 易娟, 张世红, 陈汉平(4987)
微塑料对短流程膜工艺中膜污染的影响	王博东, 薛文静, 吕永涛, 苗瑞, 马百文(4996)
基于铁锰泥的除硝颗粒吸附剂制备及其比较	曾辉平, 于亚萍, 吕赛赛, 李冬, 张杰(5002)
氯氧铁非均相催化过氧化氢降解罗丹明B	张少朋, 陈瑞, 白淑琴, 刘锐平(5009)
天津市规模化奶牛养殖场废水中典型抗生素处理效果及生态风险评估	陈乾, 赵润, 牟美睿, 白鸽, 史宏伟, 刘海学, 吴惠惠(5015)
废水处理系统中抗生素抗性基因分布特征	姚鹏城, 陈嘉瑜, 张永明, 温东辉, 陈吕军(5024)
全程自养脱氮耦合反硝化除磷的启动及稳定运行	印雯, 陈亚, 张钰, 徐乐中, 吴鹏, 刘文如(5032)
FeCl ₃ -生化耦合技术调控未知诱因的污泥膨胀	魏东洋, 肖才林, 周雯, 李睿华, 曹茜(5040)
污泥龄对除磷亚硝化颗粒系统的影响	李冬, 刘博, 王文琪, 曹美忠, 李帅, 张杰(5048)
厌氧氨氧化耦合反硝化工艺的启动及微生物群落变化特征	宋壮壮, 吕爽, 刘哲, 时兴东, 潘傲, 张智(5057)
基质暴露水平对ANAMMOX微生物活性及生物量的影响	陈方敏, 高佳琦, 黄勇, 胡羽婷, 李祥, 顾澄伟, 谈新伟, 殷记强, 方文烨, 倪敏(5066)
太浦河流域农田土壤重金属污染特征与来源解析	李伟迪, 崔云霞, 曾撑撑, 朱永青, 彭月, 王凯, 李士俊(5073)
土壤重金属污染风险筛选值划分方法:以Cd为例	王锐, 张风雷, 徐姝姝, 张永文(5082)
半壁山金矿矿业活动区砷赋存的矿物特征及其对农田土壤砷累积的影响	温其谦, 阎秀兰, 申俊峰, 李鸣凤(5090)
土壤调理剂对镉污染稻田修复效果	周利军, 武琳, 林小兵, 王惠明, 刘晖, 张鸿燕, 胡敏, 石利萍, 张云, 黄欠如(5098)
改性蒙脱土对稻田土壤甲基汞的阻控修复	韩怡新, 何天容, 王祖波(5107)
铈锰改性生物炭对土壤As的固定效应	梁婷, 李莲芳, 朱昌雄, 叶婧(5114)
温和预氧化提高后续生物修复石油污染土壤	徐金兰, 王慧芳, 王荣, 章秋菊, 王杰(5124)
重金属污染农田生菜根际重金属固定细菌群落组成及其阻控效应	王铁军, 苏楠楠, 雷鹏, 邱明洋, 陈兆进, 姚伦广, 韩辉(5133)
双氰胺和3,4-二甲吡唑磷酸盐对蔬菜种植土壤氨氧化细菌和古菌的影响	郭俊丽, 刘毅, 魏文学, 葛体达, 王光军(5142)
不同再生水灌溉方式对土壤-辣椒系统中细菌群落多样性及病原菌丰度的影响	崔丙健, 高峰, 胡超, 李中阳, 樊向阳, 崔二革(5151)
黄土高原地区两种土地利用方式CO ₂ 和N ₂ O排放特征	韩佳乐, 郝珊, 刘振杰, 张曼, 张阿凤(5164)
生物炭对华北平原4种典型土壤N ₂ O排放的影响	张秀玲, 孙贇, 张水清, 岳克, 曹红亮, 林杉(5173)
优化施肥模式对我国热带地区水稻-豇豆轮作系统N ₂ O和CH ₄ 排放的影响	胡玉麟, 汤水荣, 陶凯, 何秋香, 田伟, 秦兴华, 伍延正, 孟磊(5182)
《环境科学》征订启事(4995)	
《环境科学》征稿简则(5039)	
信息(4782, 4979, 5056)	

厌氧氨氧化耦合反硝化工艺的启动及微生物群落变化特征

宋壮壮^{1,2}, 吕爽¹, 刘哲¹, 时兴东¹, 潘傲¹, 张智^{1*}

(1. 重庆大学城市建设与环境工程学院, 重庆 400045; 2. 重庆大学三峡库区环境与生态部重点实验室, 重庆 400045)

摘要: 为了解厌氧氨氧化耦合反硝化启动过程中脱氮除碳性能与微生物群落的关系, 通过逐步提高进水 COD 浓度研究了 SAD 启动过程中脱氮除碳性能和微生物群落变化。结果表明, 随着进水 COD 浓度增加, 出水 NH_4^+-N 和 NO_2^--N 的浓度保持稳定, 平均去除率均在 98% 以上; TN 去除率逐渐升高, 第 3 阶段 TN 平均去除率为 95.6%, 比厌氧氨氧化理论 TN 去除率高 6.8%; $\Delta\text{NO}_3^--\text{N}/\Delta\text{NH}_4^+-\text{N}$ 明显下降, 从 0.15~0.17 逐步降至 0.03~0.07; 厌氧氨氧化脱氮贡献率逐渐下降, 反硝化脱氮贡献率逐渐上升, COD 去除率逐步增加。污泥活性分析表明 SAD 启动后污泥反硝化活性明显增加, 厌氧氨氧化活性略微降低。高通量测序结果表明, 反应器内微生物的优势菌门为绿弯菌门、浮霉菌门、厚壁菌门、装甲菌门和变形菌门, 微生物群落特征与 SAD 脱氮除碳性能密切相关, 与脱氮除碳有关的功能微生物主要有厌氧氨氧化菌、厌氧消化菌和反硝化菌, SAD 启动后反应器内厌氧氨氧化菌丰度减少, 厌氧消化菌和反硝化菌丰度明显增加。

关键词: 厌氧氨氧化耦合反硝化(SAD); 脱氮除碳; 污泥活性; 微生物群落; 高通量测序

中图分类号: X172; X703 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2019)11-5057-09 DOI: 10.13227/j.hj.kx.201905223

Start-up of Simultaneous ANAMMOX and Denitrification Process and Changes in Microbial Community Characteristics

SONG Zhuang-zhuang^{1,2}, LÜ Shuang¹, LIU Zhe¹, SHI Xing-dong¹, PAN Ao¹, ZHANG Zhi^{1*}

(1. School of Urban Construction and Environmental Engineering, Chongqing University, Chongqing 400045, China; 2. Key Laboratory of Three Gorges Reservoir Region's Eco-Environment, Ministry of Education, Chongqing University, Chongqing 400045, China)

Abstract: To understand the relationship between nitrogen and carbon removal performance and the microbial community during start-up of simultaneous ANAMMOX and denitrification (SAD), nitrogen and carbon removal performance and microbial community change were studied by gradually increasing the influent COD concentration. The results showed that with the increase of the influent COD concentration, NH_4^+-N and NO_2^--N effluent remained stable, and the average removal rate was more than 98%. The removal rate of TN increased gradually, and the rate was 95.6% in the third stage, which was 6.8% higher than that of ANAMMOX in theory. $\Delta\text{NO}_3^--\text{N}/\Delta\text{NH}_4^+-\text{N}$ decreased significantly from 0.15-0.17 to 0.03-0.07. The contribution rate of ANAMMOX to nitrogen removal decreased gradually, denitrification for nitrogen removal increased gradually, and the COD removal rate increased. Sludge activity analysis showed that the denitrification activity of sludge increased significantly and the ANAMMOX activity decreased slightly after the start-up of SAD. High throughput sequencing results showed that the dominant phyla of microorganisms in the reactor were Chloroflexi, Planctomycetes, Firmicutes, Armatimonadetes, and Proteobacteria. The characteristics of the microbial community in the reactor were closely related to the performance of SAD in nitrogen and carbon removal. The main functional microorganisms related to nitrogen and carbon removal were ANAMMOX bacteria, anaerobic digestive bacteria, and denitrifying bacteria. The abundance of ANAMMOX bacteria decreased after the start-up of SAD, and the anaerobic digestive bacteria and heterotrophic denitrifying bacteria increased significantly.

Key words: simultaneous ANAMMOX and denitrification (SAD); nitrogen and carbon removal; sludge activity; microbial community; high throughput sequencing

厌氧氨氧化(anaerobic ammonium oxidation, ANAMMOX)是一种新型脱氮工艺,因其具有脱氮效率高、曝气量少、无需额外碳源等优点成为近年来研究热点。目前厌氧氨氧化工艺已被用于处理各种废水^[1-4]。根据厌氧氨氧化反应方程式^[5]可知,经过厌氧氨氧化反应后仍然有 10% 以上的 NO_3^--N 无法去除,此外单一的厌氧氨氧化工艺对 COD 没有去除效果,但废水中往往存在较高的 COD。为了去除厌氧氨氧化产生的 NO_3^--N 和废水中的 COD,有必要将反硝化工艺与厌氧氨氧化工艺结合,厌氧氨

氧化耦合反硝化(simultaneous ANAMMOX and denitrification, SAD)能够实现同步脱氮除碳的目的。

Li 等^[6]的研究表明,厌氧氨氧化和反硝化反应

收稿日期: 2019-05-29; 修订日期: 2019-06-17

基金项目: 重庆市社会事业与民生保障科技创新专项(cstc2017shmsA20019); 中央高校基本科研业务费专项(2019CDXYCH0027)

作者简介: 宋壮壮(1994~),男,硕士研究生,主要研究方向为厌氧氨氧化工艺处理养殖废水, E-mail: szhzh1013@163.com

* 通信作者, E-mail: zhangzhicqu@cqu.edu.cn

可在同一反应器中发生,并具有良好的脱氮除碳效果.然而有研究表明,高 COD 浓度或高碳氮比对厌氧氨氧化反应具有抑制作用^[7],因此启动 SAD 工艺需要将碳氮比控制在合理范围内.张诗颖等^[8]发现采用 ABR 反应器时厌氧氨氧化耦合反硝化最佳协同条件为 COD/TN=1, TN 平均去除率为 93%,比单一厌氧氨氧化理论 TN 去除率高 4%.张美雪等^[9]的研究表明在 SAD 系统稳定期 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 和 TN 的去除率依次为 93.84%、94.62%和 86.46%.

以上研究均在低氮进水浓度下($\text{NH}_4^+\text{-N}$ 浓度 30 ~ 80 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 浓度 45 ~ 160 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$)进行,而采用 SAD 处理高氮浓度废水的研究鲜有报道,另外现有关于 SAD 的研究大多注重碳氮去除效果的分析,缺乏对微生物群落变化的分析,同时缺少对反应器内部不同部位的菌群变化分析.因此,本实验采用高氮低碳废水($\text{NH}_4^+\text{-N}$ 浓度 190.63 ~ 246.39 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 浓度 216.28 ~ 267.92

$\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$, COD 浓度 108 ~ 333 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$)启动 SAD 工艺,探究 SAD 启动过程中碳氮去除机制与微生物群落的关系,以期 SAD 应用于处理实际废水提供技术支持.

1 材料与方法

1.1 SAD 工艺装置与运行

实验采用膨胀颗粒污泥床(EGSB),主要结构见图 1,反应器高 1.3 m,反应区内径 80 mm,有效容积 9 L.该厌氧氨氧化反应器已稳定运行 2 年, TN 去除率 85% 以上.反应器主体采用水浴加热,温度 35 ~ 37℃,反应器进水 DO 控制在 (0.2 ± 0.02) $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$, HRT 为 9 h,实验阶段进水 TN 负荷为 1.13 ~ 1.44 $\text{kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$.

1.2 实验用水水质及检测方法

本实验采用人工配水,进水 pH 均控制在 7.8 ~ 8.2,水质指标如表 1 所示.

表 1 EGSB 反应器进水水质

Table 1 Influent water quality of EGSB reactor				
项目	阶段	$\text{NH}_4^+\text{-N}/\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	$\text{NO}_2^-\text{-N}/\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	COD/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$
启动前状态	0	196.76 ~ 239.42	223.88 ~ 277.03	0
	Phase1	211.54 ~ 228.83	239.82 ~ 267.92	108 ~ 116
	Phase2	210.70 ~ 246.39	236.03 ~ 262.61	188 ~ 231
	Phase3	190.63 ~ 219.62	216.28 ~ 255.77	306 ~ 333

DO、pH 通过溶解氧仪(520M-01A, Thermo, USA)和 pH 计(8107UWMMD, Thermo, USA)测量.水质测定均采用国家标准方法^[10]: $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 采用纳氏试剂分光光度法测定, $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 采用 N-(1-萘基)-乙二胺光度法测定, $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 采用紫外分光光度法测定, COD 采用快速消解分光光度法测定, MLVSS 采用恒重法测定.污泥的厌氧氨氧化活性和反硝化活性参考黄佳璐等^[11]和徐峥勇^[12]的测定方法并作适当调整,具体步骤如下:采用 100 mL 原水和 3 g(湿重)污泥置于 150 mL 血清瓶中,测定厌氧氨氧化活性时控制 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 的初始浓度分别为 100 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 120 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 左右,测定反硝化活性时控制 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 和葡萄糖初始浓度分别为 100 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 500 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 左右, pH 值均为 7.8 ~ 8.1,实验通过高纯氮气曝气 30 min 保证厌氧条件,然后将血清瓶避光置于 37℃、150 $\text{r}\cdot\text{min}^{-1}$ 的水浴恒温振荡器中,采用注射器每 1 h 取 1 次水样,测定 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 和 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 浓度.根据基质降解曲线计算出污泥的厌氧氨氧化活性[以 $\text{NH}_4^+\text{-N}/\text{VSS}$ 计, $\text{g}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$]和反硝化活性[以 $\text{NO}_3^-\text{-N}/\text{VSS}$ 计, $\text{g}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$].

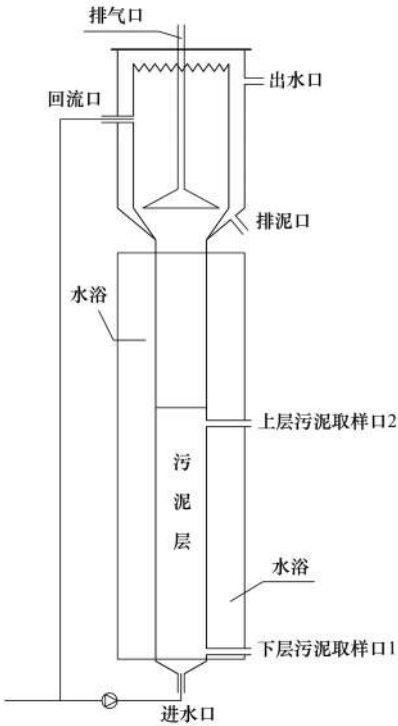


图 1 EGSB 反应器运行装置示意

Fig. 1 Schematic diagram of EGSB reactor operation

1.3 脱氮贡献率计算方法

厌氧氨氧化脱氮贡献率 A 和反硝化脱氮贡献

率 D 参考魏思佳等^[13]的计算方法:

$$A = 1.32(\text{NH}_4^+-\text{N})_{\text{rem}} / [(\text{NO}_2^--\text{N})_{\text{rem}} - \Delta\text{NO}_3^--\text{N} + 0.26(\text{NH}_4^+-\text{N})_{\text{rem}}] \times 100\%$$

$$D = 1 - A \quad (1)$$

式中, $(\text{NH}_4^+-\text{N})_{\text{rem}}$ 、 $(\text{NO}_2^--\text{N})_{\text{rem}}$ 分别为 NH_4^+-N 、 NO_2^--N 去除量 ($\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$), $\Delta\text{NO}_3^--\text{N}$ 为 NO_3^--N 变化量 ($\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$).

1.4 高通量测序分析方法

在 SAD 启动实验前后分别提取反应器内上层和下层污泥样品中的微生物 DNA, 其中 Up1 代表 SAD 启动前上层污泥, Down1 代表 SAD 启动前下层污泥, Up2 代表 SAD 启动后上层污泥, Down2 代表 SAD 启动后下层污泥. 采用高通量测序方法检测 4 组样品中的微生物^[14], 测序由上海美吉生物提供(上海, 中国).

2 结果与讨论

2.1 SAD 启动过程中脱氮除碳性能分析

SAD 启动采用逐步提高 COD 负荷的方式, 图 2 表示启动过程中氮素去除特征. 添加 COD 后 NH_4^+-N 出水浓度为 $0.15 \sim 11.64 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 平均去除率为 98.54%, 可见 COD 浓度的增加并没有使氨氮去除率下降. NO_2^--N 出水浓度为 $0.52 \sim 7.96 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 出水较稳定, 平均去除率为 98.05%. 从图 2(c) 可知, NO_3^--N 出水浓度随着 COD 的增加逐

渐下降, 从启动前的 $48.01 \sim 52.04 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 降至第 3 阶段的 $5.11 \sim 13.03 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$. 启动过程中 TN 出水浓度为 $16.56 \sim 48.85 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 且随着 COD 的增加 TN 浓度逐渐降低, 第 1 阶段 TN 平均去除率为 90.58%, 第 2 阶段为 94.33%, 第 3 阶段为 95.60%, 可见 TN 去除率随着 COD 增加而增加, 且增加速度趋缓. 启动实验结果表明 COD 为 $306 \sim 333 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ (COD/TN 约 0.75) 时厌氧氨氧化耦合反硝化效果最好, TN 最高去除率为 95.60%, 比厌氧氨氧化理论 TN 去除率高了 6.8%, 这在目前报道的 SAD 系统对 TN 去除率的研究中处于较高水平^[8, 9], 表明本实验厌氧氨氧化与反硝化反应达到了良好地协同脱氮效果.

图 3 表示 SAD 启动过程中三氮计量比关系及厌氧氨氧化和反硝化脱氮贡献率变化, 可见启动过程中 $\Delta\text{NO}_2^--\text{N}/\Delta\text{NH}_4^+-\text{N}$ 并没有明显变化, 保持在 1.05 ~ 1.21 范围内, 略低于厌氧氨氧化反应的理论值, 但 $\Delta\text{NO}_3^--\text{N}/\Delta\text{NH}_4^+-\text{N}$ 有明显下降的趋势, 第 1 阶段该比值范围为 0.15 ~ 0.17, 第 2 阶段为 0.07 ~ 0.10, 第 3 阶段为 0.03 ~ 0.07. 随着 COD 浓度的提高, NO_2^--N 去除量没有增加, 但 NO_3^--N 消耗量明显增加, 这是由于有机物浓度增加后反应器内异养反硝化菌快速生长, 且优先利用 NO_3^--N 作为反硝化氮源, 这与刘晓萍^[15]的研究结果相同.

由图 3 可知, 随着 COD 的增加厌氧氨氧化脱

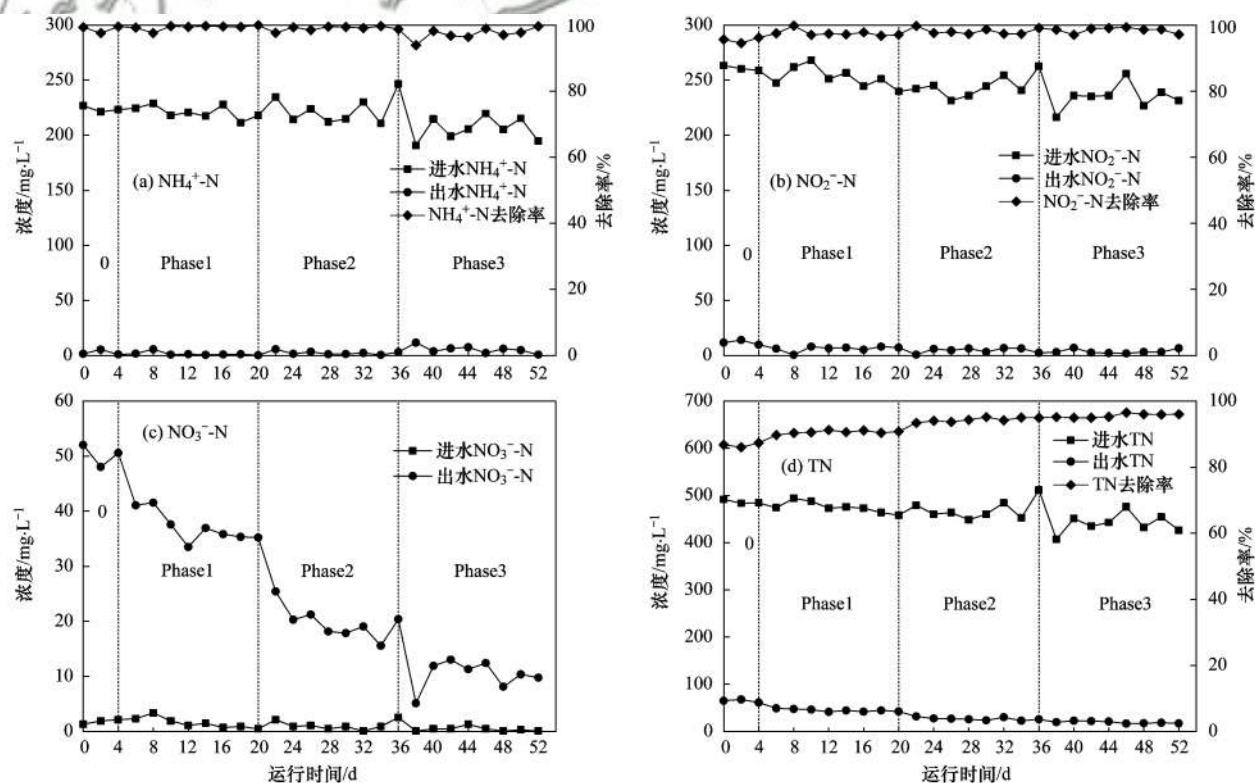


图 2 SAD 启动过程中氮素去除特征

Fig. 2 Characteristics of nitrogen removal during SAD startup process

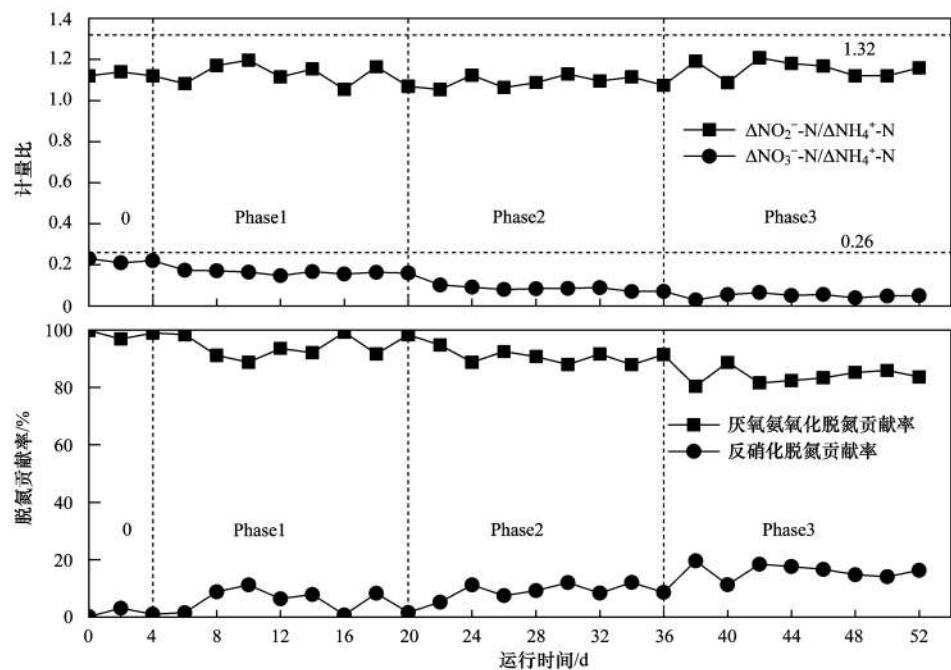


图3 SAD启动过程中计量比关系及厌氧氨氧化和反硝化脱氮贡献率变化

Fig. 3 Characteristics of the measurement ratio relationship and TN removal contribution of ANAMMOX and denitrification during SAD startup process

氮贡献率不断下降,启动前厌氧氨氧化平均脱氮贡献率为98.5%,第1阶段为94.1%,第2阶段为90.7%,第3阶段为83.9%,相反地,反硝化脱氮贡献率从启动前的1.5%增至第3阶段的16.1%,呈逐渐上升趋势,这主要是因为异养反硝化菌在反应器内比例逐渐增加.由于COD/TN控制在0.75以下,碳源不足导致反硝化菌无法正常进行反硝化反应,其生长增加到一定程度后得到抑制,增加的反硝化菌并没有和厌氧氨氧化菌抢夺基质 NO_2^- -N,而是利用厌氧氨氧化反应产生的 NO_3^- -N,因此反应器内厌氧氨氧化菌的脱氮性能并没有受到影响.Kumar等^[16]指出SAD耦合成功的必要条件是反硝化反应不会和厌氧氨氧化反应争夺 NO_2^- -N,本实验结果也证明了这一点.

图4表示,SAD启动过程中COD去除特征,可知第1阶段COD出水浓度为 $38 \sim 46 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,第2阶段为 $48 \sim 68 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,第3阶段为 $58 \sim 81 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,可见,COD进水浓度的大幅增加并没有导致出水浓度大幅增加,一方面是异养反硝化作用逐渐增强的影响,另一方面可能是由于反应器内存在一定比例的厌氧消化菌,COD增加后反应器内厌氧消化菌得到生长,异养反硝化和厌氧消化的共同作用使得COD去除率维持在较高水平,最终稳定在75%~80%之间.

2.2 污泥厌氧氨氧化活性和反硝化活性分析

通过对反应器内上层污泥和下层污泥取样分析,计算污泥的厌氧氨氧化活性和反硝化活性,见

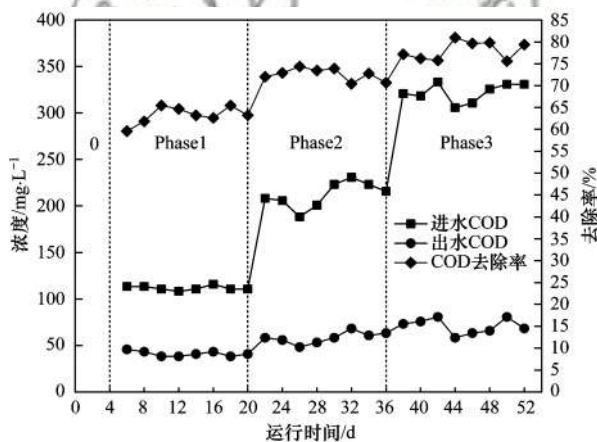


图4 SAD启动过程中COD去除特征

Fig. 4 Characteristics of COD removal during SAD startup process

表2.

由表2可知反应器下层污泥厌氧氨氧化活性明显优于上层,主要是因为反应器由下部进水,下部较高的基质浓度更有利于厌氧氨氧化菌的富集.SAD启动成功后,反应器上层污泥厌氧氨氧化活性下降,由 $0.08 \text{ g} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$ 降至 $0.027 \text{ g} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$,

表2 反应器内污泥厌氧氨氧化活性和反硝化活性			
Table 2 ANAMMOX and denitrification sludge activity in the reactor			
项目		厌氧氨氧化活性 / $\text{g} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$	反硝化活性 / $\text{g} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$
启动前	上层	0.08	0.057
	下层	0.114	0.049
启动后 (Phase3)	上层	0.027	0.241
	下层	0.11	0.213

主要是因为有机物进入反应器后异养菌增长较快，且异养菌多呈悬浮态，在上层污泥中较多，上层厌氧氨氧化菌变少，厌氧氨氧化活性降低。启动成功后下层污泥厌氧氨氧化活性几乎不变，由 $0.114 \text{ g} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$ 变为 $0.11 \text{ g} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$ ，主要是因为下层颗粒状厌氧氨氧化污泥较多，且具有一定的抗冲击性，异养菌的生长对厌氧氨氧化菌影响较少。

从反硝化活性看，SAD 启动前，反应器内上层污泥反硝化活性略高于下层污泥，启动后上下层污泥反硝化活性都有明显提高，分别由 $0.057 \text{ g} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$ 和 $0.049 \text{ g} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$ 增加为 $0.241 \text{ g} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$ 和 $0.213 \text{ g} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$ ，且上层污泥反硝化活性更高，这可能是因为厌氧氨氧化颗粒污泥沉降性能好，在反应器底部密度较大，而悬浮态的异养反硝化菌密度较小，在反应器上部生长更快，因此上层污泥的反硝化活性优于下层污泥。

2.3 SAD 典型周期内基质变化特征

图 5 表示典型周期 (Phase3) 内各基质变化曲线，典型周期结束后测得 MLVSS 浓度为 $3156 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。由基质变化曲线可看出， $\text{NO}_2^- \text{-N}$ 和 $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 降解可分为两个阶段：快速降解阶段 (0 ~ 10 h) 和稳定阶段 (10 ~ 18 h)。在快速降解阶段， $\text{NO}_2^- \text{-N}$ 和 $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 降解过程接近零级反应，在稳定阶段， $\text{NO}_2^- \text{-N}$ 和 $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 降解缓慢并趋于稳定。 $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 浓度在反应中先增后减，且在 10 h 时浓度达到最高，安芳娇等^[17] 的研究也发现相同的现象，这可能是由于在反应前期 $\text{NO}_2^- \text{-N}$ 浓度较高，反硝化菌在利用氮源时优先利用 $\text{NO}_2^- \text{-N}$ ，厌氧氨氧化反应产生的 $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 逐步累积，后期 $\text{NO}_2^- \text{-N}$ 浓度减小，更多的 $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 被反硝化菌利用， $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 浓度又逐渐降低。由图 5 可知，当 $\text{NO}_2^- \text{-N}$ 和 $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 浓度稳定后，COD

浓度依然在降低，这可能是反应器中厌氧消化菌和微生物繁殖消耗碳源的共同作用。

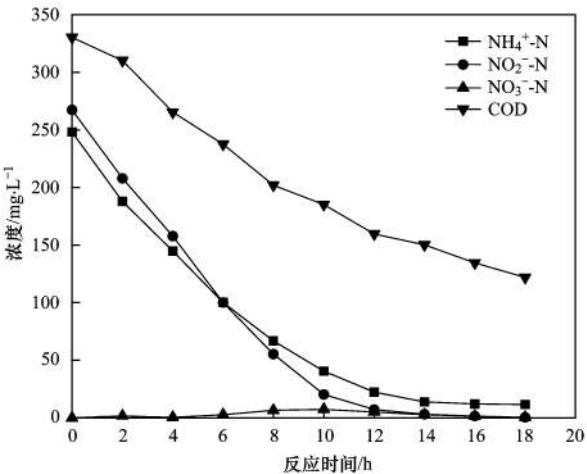


图 5 SAD 典型周期内基质变化特征
Fig. 5 Characteristics of matrix changes during a typical cycle of SAD

2.4 SAD 启动前后微生物群落变化分析

2.4.1 微生物多样性和丰富度分析

微生物多样性和丰富度如表 3 所示，本实验中 4 组微生物测序样本覆盖率 (coverage) 均大于 0.99，能保证测序结果的准确性。Shannon 和 Simpson 代表样品多样性，Sobs、Ace 和 Chao 代表样品丰富度。由表 3 可知 SAD 启动前上层污泥 Shannon 和 Sobs 指数均高于下层污泥，因此反应器上层污泥微生物多样性和丰富度均高于下层污泥，这是由于下层污泥富集的厌氧氨氧化菌较多，微生物种类相对较少。SAD 启动后上层污泥 Shannon 和 Sobs 指数均有所下降，这表明 SAD 启动后反应器上下层污泥微生物多样性和丰富度有所上升，主要是因为有机物加入后异养菌得到生长，反应器内微生物种类增多。

表 3 反应器内微生物多样性和丰富度

组别	多样性指数		丰富度指数			覆盖率
	Shannon	Simpson	Sobs	Ace	Chao	
Up1	3.08	0.114 3	316	327.46	323.56	0.998 9
Up2	3.10	0.109 5	327	333.90	331.64	0.999 6
Down1	3.02	0.128 6	283	305.18	297.48	0.999 5
Down2	3.06	0.123 5	296	312.31	306.88	0.999 3

2.4.2 微生物门分类水平组成分析

将微生物检测相对丰度 > 1% 的菌门作为主要菌门，SAD 启动前后反应器上层污泥和下层污泥微生物门水平组成如图 6 所示。4 组微生物群落中共发现 9 个主要菌门，分别为绿弯菌门 (Chloroflexi)、浮霉菌门 (Planctomycetes)、厚壁菌门 (Firmicutes)、装甲菌门 (Armatimonadetes)、变形菌门

(Proteobacteria)、放线菌门 (Actinobacteria)、拟杆菌门 (Bacteroidetes)、绿菌门 (Chlorobi) 和 Patescibacteria 菌门。其中绿菌门仅是 SAD 启动前的主要菌门，而 Patescibacteria 仅是 SAD 启动后的主要菌门，二者相对丰度较小 (1.22% ~ 1.98%)，其它 7 个菌门在 SAD 启动前后均为反应器内主要菌门。

绿弯菌门是厌氧氨氧化系统中常见的菌门，汪瑶琪等^[18]在厌氧氨氧化系统中也发现较大丰度的绿弯菌门。Chen 等^[19]的研究发现，绿弯菌门是兼性厌氧菌，有利于厌氧氨氧化菌形成颗粒污泥。Kindaichi 等^[20]的研究表明，绿弯菌门分解死亡的厌氧氨氧化菌，且它的丝状结构有利于生物膜的形成，可见绿弯菌门对于厌氧氨氧化系统具有重要作用。由图 6 可知，SAD 启动后绿弯菌门相对丰度有所增加，反应器上下部分别由 35.87% 和 31.79% 升至 40.94% 和 38.92%，这是因为反应器内属于绿弯菌门的菌种主要为厌氧发酵菌，COD 增加后部分厌氧发酵菌得到生长，绿弯菌门丰度增加。浮霉菌门是厌氧氨氧化菌所在的主要菌门，在上下层污泥中相对丰度分别为 20.16% 和 32.29%，可见下层污泥厌氧氨氧化菌富集效果优于上部，这与污泥活性的分析结果相同。SAD 启动后上下层污泥浮霉菌门相对丰度均有所下降，表明 COD 增加后异养菌的生长抑制了厌氧氨氧化菌的生长，但是这种抑制效果并没有影响厌氧氨氧化脱氮效果，这可从较高的 $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 去除率得到验证。相关研究表明变形菌门和厚壁菌门对反硝化有重要作用^[21]，启动前后上下层污泥变形菌门相对丰度分别由 8.15% 和 8.45% 增至 13.84% 和 14.07%，这主要是异养反硝化菌生长增殖的作用。装甲菌门是厌氧氨氧化系统中常见的菌门，其相对丰度在 SAD 启动后略微下降。Zhang 等^[22]的研究发现，厌氧氨氧化系统中装甲菌门的存在会导致 $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 过量消耗，这可能是

本实验中 $\Delta\text{NO}_2^- \text{-N}/\Delta\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 低于理论值的原因。

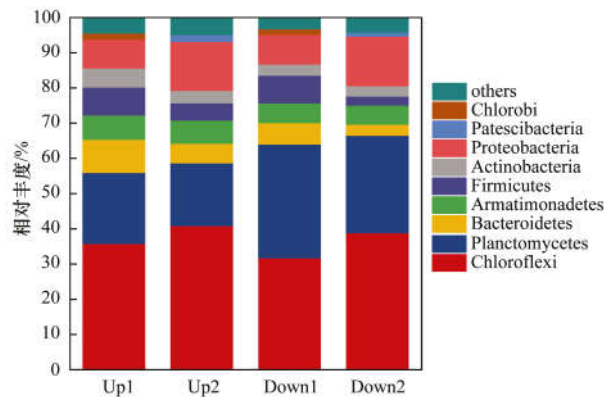


图 6 反应器内微生物门水平组成

Fig. 6 Composition of microorganisms at the phylum level in the reactor

2.4.3 功能微生物群属分析

将微生物检测相对丰度 $>0.5\%$ 的菌属作为主要分析对象，4 组微生物样品共检测出 27 个属，微生物属水平组成如图 7 所示。SAD 启动前反应器内部优势菌属为 *Candidatus Brocadia* (18.24% ~ 30.84%)、*norank_f_Anaerolineaceae* (13.33% ~ 14.42%)、*norank_o_SBR1031* (6.71% ~ 7.22%)、*norank_o_Fimbrimonadales* (5.03% ~ 5.62%)、*Limnobacter* (4.32% ~ 4.52%) 和 *Clostridium_sensu_stricto_1* (3.82% ~ 4.64%) 等。SAD 启动后反应器内部优势菌属为 *Candidatus Brocadia* (15.91% ~ 25.69%)、*OLB13* (11.09% ~ 23.98%)、*norank_o_SBR1031* (5.63% ~ 14.81%)、*norank_o_*

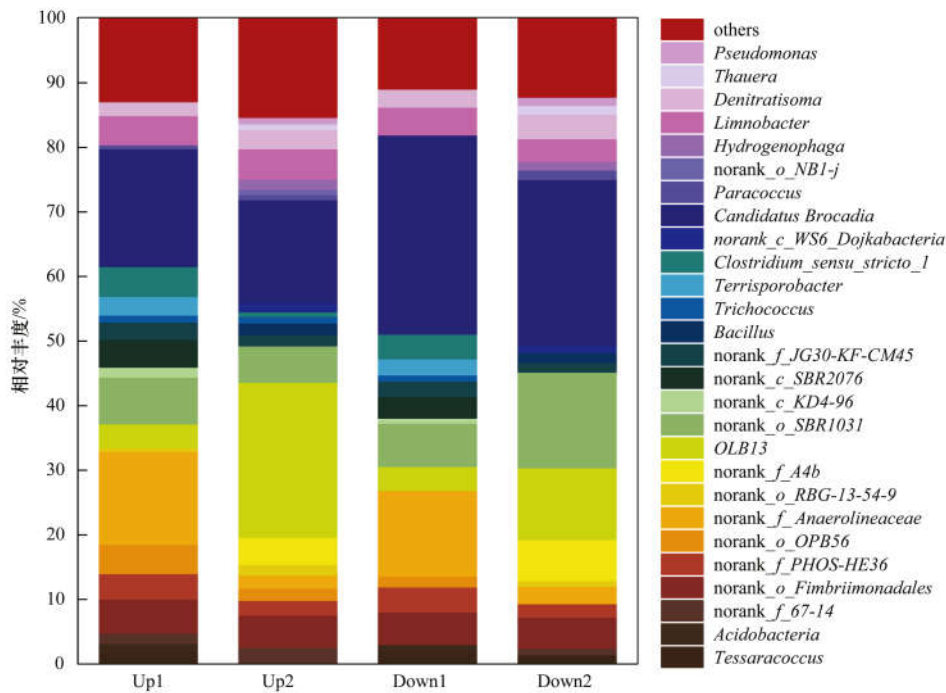


图 7 反应器内微生物属水平组成

Fig. 7 Composition of microorganisms at the genus level in the reactor

Fimbrimonadales (4.84% ~ 4.99%)、*norank_f_A4b* (4.25% ~ 6.37%) 和 *Limnobacter* (3.53% ~ 4.73%) 等。 *Candidatus Brocadia* 为反应器内检测出的唯一厌氧氨氧化菌, 其相对丰度和浮霉菌门相当, 表明本实验 *Candidatus Brocadia* 为厌氧氨氧化菌优势菌种。文献[23]的研究发现 *Candidatus Kuenenia* 适合存在于低基质浓度废水中, 而 *Candidatus Brocadia* 主要存在于高基质浓度废水中, 本实验进水 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 平均浓度在 $200 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 以上, 属于高基质浓度废水, 更适合 *Candidatus Brocadia* 生长。 *Limnobacter* 是一种异养菌, 属于变形菌门, SAD 启动前后 *Limnobacter* 丰度没有较大变化。有研究表明 *Limnobacter* 能和厌氧氨氧化菌共生, 保护厌氧氨氧化菌免受外界恶劣环境的影响^[24], *Candidatus Brocadia* 相对丰度在 SAD 启动后有所下降, 但下降不明显, 仍然表现出较高的厌氧氨氧化活性, 这可能与 *Limnobacter* 的保护作用有关。

norank_f_Anaerolineaceae、*norank_o_SBR1031*、*OLB13* 和 *norank_f_A4b* 均属于绿弯菌门厌氧绳菌纲 (*Anaerolineae*), 有研究表明该类微生物为厌氧消化核心微生物种群^[25], SAD 启动后该类厌氧消化菌丰度有所增加, 由于实验采用葡萄糖作为碳源, 可能是葡萄糖的添加促进了厌氧消化作用。另有研究表明隶属于厚壁菌门的土孢杆菌 (*Terrisporobacter*) 和毛球菌 (*Trichococcus*) 也属于厌

氧消化菌^[26, 27], 在本实验中也检测到。有研究表明, 氢噬菌 (*Hydrogenophaga*)、索氏菌 (*Thauera*)、假单胞菌 (*Pseudomonas*)、副球菌 (*Paracoccus*) 和 *Denitratisoma* 菌都具有反硝化功能, 其中索氏菌、副球菌和 *Denitratisoma* 主要发生异养反硝化^[28-30], 假单胞菌既可以发生自养反硝化^[31], 也可以发生异养反硝化, 而氢噬菌主要发生自养反硝化^[32]。另外有研究发现属于厚壁菌门的芽孢杆菌 (*Bacillus*) 也具有反硝化功能^[33]。

图 8 反映了 SAD 启动前后上下层污泥不同功能菌属相对丰度及其变化。可见 SAD 启动后厌氧消化菌相对丰度有较大增加, 反应器上下部厌氧消化菌相对丰度分别由 29.87% 和 27.14% 增至 38.56% 和 35.82%。厌氧氨氧化菌在 SAD 启动后相对丰度有所下降, 上下层污泥厌氧氨氧化菌相对丰度分别由 18.24% 和 30.84% 降至 15.91% 和 25.69%。SAD 启动后反硝化菌相对丰度增幅较大, 反应器上下部变形菌门相对丰度分别由 2.76% 和 2.79% 增至 9.10% 和 10.88%。菌群变化的主要原因在于有机物进入反应器后, 异养反硝化菌在有外部碳源情况下快速生长, 外加碳源和异养菌的增加抑制了厌氧氨氧化菌的生长, 部分厌氧氨氧化菌死亡, 厌氧氨氧化菌相对丰度下降, 死亡的厌氧氨氧化菌细胞和外加碳源为厌氧消化菌提供了营养物质, 厌氧消化菌得到生长, 相对丰度增加。

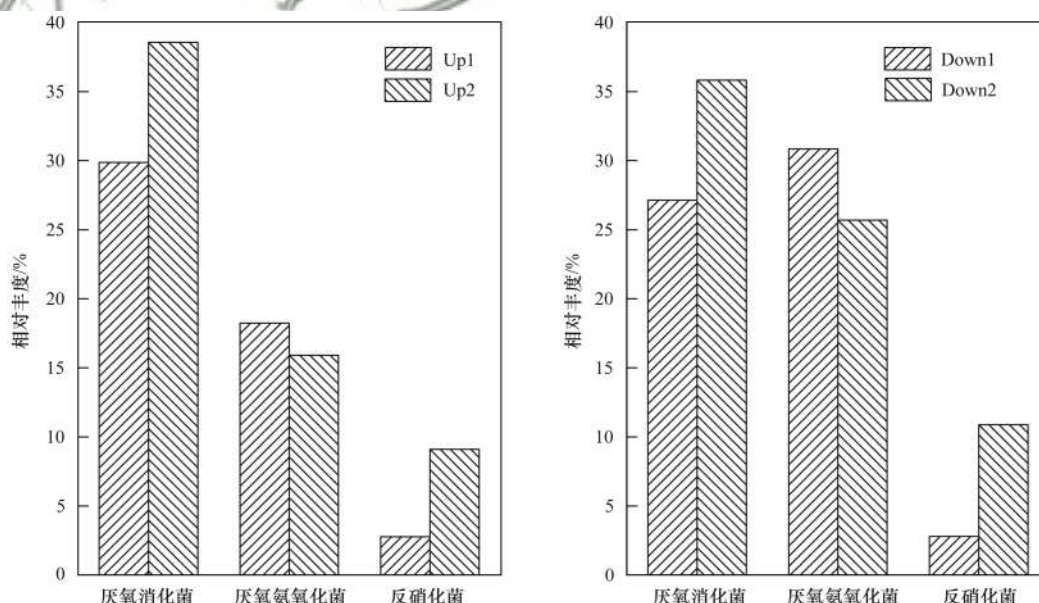


图 8 功能微生物相对丰度变化

Fig. 8 Changes of relative abundance of functional microorganisms

3 结论

(1) 在高氮进水基质下启动 SAD 反应, 随着进水 COD 浓度的增加, $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 和 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 出水稳定,

平均去除率在 98% 以上; TN 去除率逐渐升高, 第 3 阶段 TN 平均去除率为 95.6%, 比厌氧氨氧化理论 TN 去除率高 6.8%。随着进水 COD 浓度的增加, $\Delta\text{NO}_3^- - \text{N} / \Delta\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 明显下降, 从 0.15 ~ 0.17 逐步

降至 0.03~0.07; COD 浓度增加的过程中厌氧氨氧化脱氮贡献率逐渐下降,反硝化脱氮贡献率逐渐上升, COD 去除率逐步增加。

(2)反应器内下层污泥厌氧氨氧化活性明显高于上层污泥,下层污泥反硝化活性略高于上层污泥。SAD 启动后厌氧氨氧化活性略微降低,污泥反硝化活性明显增加,上层污泥反硝化活性更高。

(3)典型周期内,即 SAD 脱氮效果最佳时, NO_2^- -N 和 NH_4^+ -N 在快速降解阶段降解过程接近零级反应, NO_3^- -N 浓度在反应中先增后减,且在 10 h 时浓度达到最高。

(4)高通量测序分析结果表明反应器内微生物群落特征与 SAD 脱氮除碳性能密切相关。反应器内与脱氮除碳有关的功能微生物主要有厌氧氨氧化菌、反硝化菌和厌氧消化菌。SAD 启动后反应器内厌氧氨氧化菌丰度相对减少,厌氧消化菌和异养反硝化菌丰度明显增加。

参考文献:

- [1] Akgul D, Aktan C K, Yapsakli K, *et al.* Treatment of landfill leachate using UASB-MBR-SHARON-Anammox configuration [J]. *Biodegradation*, 2013, **24**(3): 399-412.
- [2] 王欢,裴伟征,李旭东,等. 低碳氮比猪场废水短程硝化反硝化-厌氧氨氧化脱氮[J]. *环境科学*, 2009, **30**(3): 815-821.
Wang H, Pei W Z, Li X D, *et al.* Removing nitrogen from low-C/N-piggery-wastewater using shortcut nitrification/denitrification-ANAMMOX [J]. *Environmental Science*, 2009, **30**(3): 815-821.
- [3] Leal C D, Pereira A D, Nunes F T, *et al.* ANAMMOX for nitrogen removal from anaerobically pre-treated municipal wastewater: effect of COD/N ratios on process performance and bacterial community structure [J]. *Bioresource Technology*, 2016, **211**: 257-266.
- [4] 杨振琳,于德爽,李津,等. 海藻糖强化厌氧氨氧化耦合反硝化工艺处理高盐废水的脱氮除碳效能[J]. *环境科学*, 2018, **39**(10): 4612-4620.
Yang Z L, Yu D S, Li J, *et al.* Enhanced nitrogen and carbon removal performance of simultaneous ANAMMOX and denitrification (SAD) with trehalose addition treating saline wastewater [J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(10): 4612-4620.
- [5] 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.
- [6] Li J, Qiang Z M, Yu D S, *et al.* Performance and microbial community of simultaneous ANAMMOX and denitrification (SAD) process in a sequencing batch reactor [J]. *Bioresource Technology*, 2016, **218**: 1064-1072.
- [7] Chamchoi N, Nitisoravut S, Schmidt J E. Inactivation of ANAMMOX communities under concurrent operation of anaerobic ammonium oxidation (ANAMMOX) and denitrification [J]. *Bioresource Technology*, 2008, **99**(9): 3331-3336.
- [8] 张诗颖,吴鹏,宋吟玲,等. 厌氧氨氧化与反硝化协同脱氮处理城市污水[J]. *环境科学*, 2015, **36**(11): 4174-4179.
Zhang S Y, Wu P, Song Y L, *et al.* Nitrogen removal using ANAMMOX and denitrification for treatment of municipal sewage [J]. *Environmental Science*, 2015, **36**(11): 4174-4179.
- [9] 张美雪,李芸,李军,等. 低浓度乙酸盐诱导下厌氧氨氧化与异养反硝化高效耦合脱氮[J]. *环境工程学报*, 2016, **10**(11): 6127-6132.
Zhang M X, Li Y, Li J, *et al.* Nitrogen removal performance of ANAMMOX coupling heterotrophic denitrification in low concentration of acetate [J]. *Chinese Journal of Environmental Engineering*, 2016, **10**(11): 6127-6132.
- [10] APHA. Standard methods for the examination of water and wastewater (21st ed.) [M]. Washington, DC: American Public Health Association, American Water Works Association, Water Environment Federation, 2005.
- [11] 黄佳路,王小龙,高大文. 常温下厌氧氨氧化污泥的储存及活性恢复[J]. *环境科学*, 2017, **38**(11): 4687-4695.
Huang J L, Wang X L, Gao D W. Storage and reactivation of anaerobic ammonium oxidation (ANAMMOX) sludge at room temperature [J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(11): 4687-4695.
- [12] 徐峥勇. 基于亚硝化、厌氧氨氧化与反硝化的脱氮耦合工艺及其控制策略研究[D]. 长沙: 湖南大学, 2011.
Xu Z Y. Study on control strategies of partial nitrification, anaerobic ammonium oxidation and denitrification coupling process [D]. Changsha: Hunan University, 2011.
- [13] 魏思佳,于德爽,李津,等. 厌氧氨氧化与反硝化耦合脱氮除碳研究 I: COD/ NH_4^+ -N 对耦合反应的影响 [J]. *中国环境科学*, 2016, **36**(3): 759-767.
Wei S J, Yu D S, Li J, *et al.* Simultaneous carbon and nitrogen removal by anaerobic ammonium oxidation and denitrification I: effect of COD/ NH_4^+ -N on coupled reaction [J]. *China Environmental Science*, 2016, **36**(3): 759-767.
- [14] 陈重军,张海芹,汪瑶琪,等. 基于高通量测序的 ABR 厌氧氨氧化反应器各隔室细菌群落特征分析 [J]. *环境科学*, 2016, **37**(7): 2652-2658.
Chen C J, Zhang H Q, Wang Y Q, *et al.* Characteristics of microbial community in each compartment of ABR ANAMMOX reactor based on high-throughput sequencing [J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(7): 2652-2658.
- [15] 刘晓萍. 厌氧氨氧化菌的富集及其与反硝化菌协同脱氮研究 [D]. 青岛: 青岛科技大学, 2016.
Liu X P. Enrichment of anaerobic ammonium oxidation bacteria and coupled with denitrification bacteria for nitrogen removal [D]. Qingdao: Qingdao University of Science & Technology, 2016.
- [16] Kumar M, Lin J G. Co-existence of ANAMMOX and denitrification for simultaneous nitrogen and carbon removal—Strategies and issues [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2010, **178**(1-3): 1-9.
- [17] 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.
- [18] 汪瑶琪,张敏,姜滢,等. 厌氧氨氧化启动过程及微生物群落结构特征 [J]. *环境科学*, 2017, **38**(12): 5184-5191.
Wang Y Q, Zhang M, Jiang Y, *et al.* Start-up and Characteristics of the microbial community structure of ANAMMOX [J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(12): 5184-5191.

- [19] Chen C J, Huang X X, Lei C X, *et al.* Effect of organic matter strength on ANAMMOX for modified greenhouse turtle breeding wastewater treatment[J]. *Bioresource Technology*, 2013, **148**: 172-179.
- [20] Kindaichi T, Yuri S, Ozaki N, *et al.* Ecophysiological role and function of uncultured *Chloroflexi* in an ANAMMOX reactor[J]. *Water Science & Technology*, 2012, **66**(12): 2556-2561.
- [21] Miao Y, Liao R H, Zhang X X, *et al.* Metagenomic insights into Cr(VI) effect on microbial communities and functional genes of an expanded granular sludge bed reactor treating high-nitrate wastewater[J]. *Water Research*, 2015, **76**: 43-52.
- [22] Zhang Z, Liu S. Insight into the overconsumption of ammonium by ANAMMOX consortia under anaerobic conditions[J]. *Journal of Applied Microbiology*, 2014, **117**(6): 1830-1838.
- [23] Van Der Star W R L, Mielea A I, Van Dongen U G J M, *et al.* The membrane bioreactor: a novel tool to grow ANAMMOX bacteria as free cells[J]. *Biotechnology and Bioengineering*, 2008, **101**(2): 286-294.
- [24] Wang C, Liu S T, Xu X C, *et al.* Achieving mainstream nitrogen removal through simultaneous partial nitrification, ANAMMOX and denitrification process in an integrated fixed film activated sludge reactor[J]. *Chemosphere*, 2018, **203**: 457-466.
- [25] Xia Y, Wang Y B, Wang Y, *et al.* Cellular adhesiveness and cellulolytic capacity in *Anaerolineae* revealed by omics-based genome interpretation[J]. *Biotechnology for Biofuels*, 2016, **9**: 111.
- [26] Deng Y, Guo X, Wang Y W, *et al.* *Terrisporobacter petrolearius* sp. nov., isolated from an oilfield petroleum reservoir[J]. *International Journal of Systematic and Evolutionary Microbiology*, 2015, **65**(10): 3522-3526.
- [27] Parshina S N, Strepis N, Aalvink S, *et al.* *Trichococcus shcherbakoviae* sp. nov., isolated from a laboratory-scale anaerobic EGSB bioreactor operated at low temperature[J]. *International Journal of Systematic and Evolutionary Microbiology*, 2019, **69**(2): 529-534.
- [28] Thomsen T R, Kong Y H, Nielsen P H. Ecophysiology of abundant denitrifying bacteria in activated sludge[J]. *FEMS Microbiology Ecology*, 2007, **60**(3): 370-382.
- [29] Osaka T, Yoshie S, Tsuneda S, *et al.* Identification of acetate-or methanol-assimilating bacteria under nitrate-reducing conditions by stable-isotope probing[J]. *Microbial Ecology*, 2006, **52**(2): 253-266.
- [30] Cao S B, Du R, Li B K, *et al.* High-throughput profiling of microbial community structures in an ANAMMOX-UASB reactor treating high-strength wastewater[J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2016, **100**(14): 6457-6467.
- [31] Su J F, Ma M, Huang T L, *et al.* Characteristics of autotrophic and heterotrophic denitrification by the strain *Pseudomonas* sp. H117[J]. *Geomicrobiology Journal*, 2017, **34**(1): 45-52.
- [32] Zhang Y H, Zhong F H, Xia S Q, *et al.* Autohydrogenotrophic denitrification of drinking water using a polyvinyl chloride hollow fiber membrane biofilm reactor[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2009, **170**(1): 203-209.
- [33] Kong Q, He X, Feng Y, *et al.* Pollutant removal and microorganism evolution of activated sludge under ofloxacin selection pressure[J]. *Bioresource Technology*, 2017, **241**: 849-856.

CONTENTS

Characteristics of Aerosol Vertical Distribution over the Yangtze River Delta Region of China in 2018	SHEN Ji, CAO Nian-wen (4743)
Characteristics of Haze Pollution Episodes During Autumn and Winter in 2018 in Shijiazhuang	SU Wen-kang, BAO Xiao-lei, NI Shuang-ying, <i>et al.</i> (4755)
Spatial Temporal Characteristics and Cluster Analysis of Chemical Components for Ambient PM _{2.5} in Wuhan	ZHANG Hui-tao, TIAN Ying-ze, LIU Bao-shuang, <i>et al.</i> (4764)
Heavy Metal Pollution Characteristics and Ecological and Health Risk Assessment of Atmospheric PM _{2.5} in a Living Area of Zhengzhou City	HE Rui-dong, ZHANG Yi-shun, CHEN Yong-yang, <i>et al.</i> (4774)
Distribution Characteristics and Sources of Metal Elements in Rainwater in Xiamen	WANG Shan-shan, CHENG Yi-feng, YAN Jin-pei, <i>et al.</i> (4783)
First Long-Term Study of Atmospheric New Particle Formation in the Suburb of Shanghai from 2015 to 2017	HUO Jun-tao, WANG Xin-ning, DUAN Yu-sen, <i>et al.</i> (4791)
Characteristics, Transportation, Pathways, and Potential Sources of Air Pollution During Autumn and Winter in Taiyuan	YAN Shi-ming, WANG Yan, GUO Wei, <i>et al.</i> (4801)
Spatial and Temporal Characteristics of Air Quality and Cause Analysis of Heavy Pollution in Northeast China	CHEN Wei-wei, LIU Yang, WU Xue-wei, <i>et al.</i> (4810)
Spatiotemporal Evolution and Driving Mechanism of Aerosol Optical Depth in the Ebinur Lake Basin	CHEN Xiang-yue, DING Jian-li, WANG Jing-zhe, <i>et al.</i> (4824)
Concentration Levels and Impact Factors of Benzene Series in Chinese Residential Building	HOU Bei-bei, YIN Yi-hui, PEI Jing-jing, <i>et al.</i> (4833)
Pollution Characteristics and Source Analysis of Aromatic Compounds in Shijiazhuang	YANG Yang, LI Xing-ru, LIU Shui-qiao, <i>et al.</i> (4841)
Emission Characteristics Analysis and Health Risk Assessment of Unorganized VOCs in the Carbon Industry, Zhengzhou	ZHANG Yi-shun, WANG Jia, HAN Shi-jie, <i>et al.</i> (4847)
Hazardous Volatile Organic Compound Emission Inventory Study and Its Application in a Typical Chemical Industry in the Yangtze River Delta	LU Jun, HUANG Yi-wei, HUANG Cheng (4856)
Establishment and Characteristics of an Artificial Ammonia Emissions Inventory in Jiangsu Province from 2013 to 2017	HOU Xin-hong, YU Xing-na, SHEN Li, <i>et al.</i> (4862)
Occurrence Characteristics and Health Risks of PAHs on the Surface of Buildings and Devices in the Coking Plant	ZHAO Yi-shu, LIAO Xiao-yong, LI You, <i>et al.</i> (4870)
Contamination Characteristics and Ecological Risk Assessment of Androgens, Glucocorticoids, and Progesterone in the Liusha Bay, South China Sea	YANG Lei, ZHANG Jin-na, XU Min, <i>et al.</i> (4879)
Dynamic Changes in Hydrochemical Characteristics and Influencing Factors in the Karst Watershed Flood Process	YUAN Ya-qiong, SUN Ping-an, SU Zhao, <i>et al.</i> (4889)
Sources, Distribution, and Fluxes of Major and Trace Elements in the Yangtze River	WU Wen-tao, RAN Xiang-bin, LI Jing-xi, <i>et al.</i> (4900)
Contaminant Characteristics and Ecological Risk Assessments of Heavy Metals from River Networks in the Western Area of the Wangyu River	XU Chen, WANG Pei-fang, CHEN Juan, <i>et al.</i> (4914)
Influence of Rainfall Intensity on the Nutrient Loading from an Inflowing River in the Plain River Network of the Taihu Catchment	CHEN Jie, ZHU Guang-wei, XU Hai, <i>et al.</i> (4924)
Distribution and Pollution Assessment of Nutrients and Heavy Metals in Surface Sediments from Shibalianwei Wetland in Hefei, Anhui Province, China	CHEN Shan, XU Fan, XIE San-tao, <i>et al.</i> (4932)
Spatial Distribution Characteristics of Chlorophyll-a and Nutrient Salts in Tributaries of Different River Sections in the Three Gorges Reservoir Area During the Flood Season	YANG Fan, YANG Zheng-jian, JI Dao-bin, <i>et al.</i> (4944)
Endogenous Release of Nitrogen and Phosphorus in the Danjiangkou Reservoir	WANG Zhi-qi, LIU Xin-xing, YAO Zhi-hong, <i>et al.</i> (4953)
Correlation Between Water Purification Capacity and Bacterial Community Composition of Different Submerged Macrophytes	LI Lin, YUE Chun-lei, ZHANG Hua, <i>et al.</i> (4962)
Size-dependent Effects of Zinc Oxide Nanoparticles on Performance and Microbial Community Structure of a Constructed Wetland	WANG Sen, REN Ling, LIU Lin-lin, <i>et al.</i> (4971)
Removal of Nitrogen and Phosphorus from Water by Biomass Carbon of Aquatic Plants	LIU Shu-lei, PENG Hui-jun, YANG Jia-yi, <i>et al.</i> (4980)
Preparation of MgO Modified Lotus Shell Biochar and Its Phosphorus Adsorption Characteristics	WANG Sheng-hua, ZHU Dan-chen, SHAO Jing-ai, <i>et al.</i> (4987)
Effects of Microplastics on Membrane Fouling During a Shortened Ultrafiltration Membrane Process	WANG Bo-dong, XUE Wen-jing, LÜ Yong-tao, <i>et al.</i> (4996)
Preparation and Comparison of Arsenic Removal Granular Adsorbent Based on Iron-Manganese Sludge	ZENG Hui-ping, YU Ya-ping, LÜ Sai-sai, <i>et al.</i> (5002)
Catalytic Degradation of Rhodamine B by FeOCl Activated Hydrogen Peroxide	ZHANG Shao-peng, CHEN Yu, BAI Shu-qin, <i>et al.</i> (5009)
Treatment Effect and Ecological Risk Assessment of Typical Antibiotics in Wastewater from Large-scale Dairy Farms in Tianjin	CHEN Qian, ZHAO Run, MOU Mei-rui, <i>et al.</i> (5015)
Distribution Characteristics of Antibiotic Resistance Genes in Wastewater Treatment Plants	YAO Peng-cheng, CHEN Jia-yu, ZHANG Yong-ming, <i>et al.</i> (5024)
Start-up and Stable Operation of CANON Coupled with Denitrifying Phosphorus Removal	YIN Wen, CHEN Ya, ZHANG Yu, <i>et al.</i> (5032)
Control of Sludge Bulking Caused by Unknown Reason Through FeCl ₃ Coupled with Biochemical Methods	WEI Dong-yang, XIAO Cai-lin, ZHOU Wen, <i>et al.</i> (5040)
Effects of Solid Retention Time on the Phosphorus Removal and Nitrosation Granules System	LI Dong, LIU Bo, WANG Wen-qi, <i>et al.</i> (5048)
Start-up of Simultaneous ANAMMOX and Denitrification Process and Changes in Microbial Community Characteristics	SONG Zhuang-zhuang, LÜ Shuang, LIU Zhe, <i>et al.</i> (5057)
Influence of Substrate Exposure Level on ANAMMOX Microbial Activity and Biomass	CHEN Fang-min, GAO Jia-qi, HUANG Yong, <i>et al.</i> (5066)
Pollution Characteristics and Source Analysis of Heavy Metals in Farmland Soils in the Taige Canal Valley	LI Wei-di, CUI Yun-xia, ZENG Cheng-cheng, <i>et al.</i> (5073)
Method of Dividing the Value of Soil Heavy Metal Pollution Risk Screening: Using Cd as an Example	WANG Rui, ZHANG Feng-lei, XU Shu-shu, <i>et al.</i> (5082)
Mineral Characteristics of Arsenic in the Active Area of the Banbisha Gold Mine and Its Effect on Arsenic Accumulation in Farmland Soil	WEN Qi-qian, YAN Xiu-lan, SHEN Jun-feng, <i>et al.</i> (5090)
Remediation of Cadmium Contaminated Paddy Fields Using Soil Conditioners	ZHOU Li-jun, WU Lin, LIN Xiao-bing, <i>et al.</i> (5098)
Inhibition and Remediation of Methylmercury Contaminated Soil by Use of Modified Montmorillonite	HAN Yi-xin, HE Tian-rong, WANG Zu-bo (5107)
Cerium-manganese Modified Biochar Immobilizes Arsenic in Farmland Soils	LIANG Ting, LI Lian-fang, ZHU Chang-xiong, <i>et al.</i> (5114)
Improving Bioremediation of Crude Oil-contaminated Soil by Mild Pre-oxidation	XU Jin-lan, WANG Hui-fang, WANG Rong, <i>et al.</i> (5124)
Community Structure of Heavy Metal Immobilized Bacteria in the Lettuce (<i>Lactuca sativa</i> L.) Rhizosphere in Soil Polluted by Heavy Metals and Its Effects on Reducing Heavy Metal Accumulation in Lettuce	WANG Tie-jun, SU Nan-nan, LEI Peng, <i>et al.</i> (5133)
Impact of Dicyandiamide (DCD) and 3,4-Dimethylpyrazole Phosphate (DMPP) on Ammonia-oxidizing Bacteria and Archaea in a Vegetable Planting Soil	GUO Jun-li, LIU Yi, WEI Wen-xue, <i>et al.</i> (5142)
Effect of Different Reclaimed Water Irrigation Methods on Bacterial Community Diversity and Pathogen Abundance in the Soil-Pepper Ecosystem	CUI Bing-jian, GAO Feng, HU Chao, <i>et al.</i> (5151)
Characteristics of CO ₂ and N ₂ O Emissions Under Two Land Use Types in the Loess Plateau of China	HAN Jia-le, HAO Shan, LIU Zhen-jie, <i>et al.</i> (5164)
Effects of Biochar on N ₂ O Emission from Four Typical Soils in the North China Plain	ZHANG Xiu-ling, SUN Yun, ZHANG Shui-qing, <i>et al.</i> (5173)
Effects of Optimizing Fertilization on N ₂ O and CH ₄ Emissions in a Paddy-Cowpea Rotation System in the Tropical Region of China	HU Yu-lin, TANG Shui-rong, TAO Kai, <i>et al.</i> (5182)