ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第34卷 第9期

Vol.34 No.9

2013

中国科学院生态环境研究中心 主办

科学出版社 出版

中国期刊方阵 双奖期刊 中华人民共和国新闻出版总署

环境科学
(HUANJING KEXUE)
ENVIRONMENTAL SCIENCE
第34卷 第9期
2013年9月15日

目 次

利用PUF被动采样技术研究长三角城市群大气中多环芳烃的时空分布及来源 …… 张利飞,杨文龙,董亮,史双昕,周丽,张秀蓝,李玲玲,钮珊,黄业茹(3339)
FTIR对大气颗粒物$PM_{2.5}$中硝酸盐的定量分析 …… 刘娜,魏秀丽,高闽光,徐亮,焦洋,李胜,童晶晶,程巳阳(3347)
福建茫荡山地区春季大气O_3、HONO、HCHO、H_2O_2对·OH的贡献率研究 …… 刘昊,王会祥(3352)
水体类固醇雌激素污染现状研究进展 …… 都韶婷,金崇伟,刘越(3358)
嘉兴市地表水中兽用抗生素的污染现状调查 …… 闾幸,余卫娟,兰亚琼,李立,吕升,叶朝霞,张永明,刘锐,陈吕军(3368)
上海食用鱼中短链氯化石蜡的污染特征 …… 姜国,陈来国,何秋生,孟祥周,封永斌,黄玉妹,唐才明(3374)
水体环境内毒素活性的鲎法定量检测及影响因素研究 …… 张灿,刘文君,张明露,田芳,孙雯,钱令嘉,战锐(3381)
四环素类抗生素对淡水绿藻的毒性作用 …… 徐冬梅,王艳花,饶桂维(3386)
光照对东海典型赤潮藻生长及硝酸还原酶活性的影响 …… 李鸿妹,石晓勇,丁雁雁,唐洪杰(3391)
围隔实验中浒苔在不同营养盐条件下的生长比较 …… 庞秋婷,李凤,刘湘庆,王江涛(3398)
长江口及邻近海域浮游植物色素分布与群落结构特征 …… 赖俊翔,俞志明,宋秀贤,韩笑天,曹西华,袁涌铨(3405)
长江中下游湖泊超微型真核藻类遗传多样性研究 …… 李胜男,史小丽,谢薇薇,龚伊,孔繁翔(3416)
峡谷型水源水库的氮、磷季节变化及其来源分析 …… 黄廷林,秦昌海,李璇(3423)
九龙江河流-库区系统沉积物磷特征及其生态学意义 …… 鲁婷,陈能汪,陈朱虹,王龙剑,吴杰忠(3430)
氮在高含沙水向人工浅水湖泊补水期间的变化规律 …… 陈友媛,申宇,杨世迎(3437)
石灰石和黄铁矿-石灰石人工湿地净化河水的研究 …… 张菁,李睿华,李杰,胡俊松,孙茜茜(3445)
杭州湾潮滩湿地3种优势植物碳氮磷储量特征研究 …… 邵学新,李文华,吴明,杨文英,蒋科毅,叶小齐(3451)
滇池优势挺水植物茭草和芦苇降解过程中DOM释放特征研究 … 谢理,杨浩,渠晓霞,朱元荣,鄢元波,张明礼,吴丰昌(3458)
自来水处理工艺对溶解相中全氟化合物残留的影响 …… 张鸿,陈清武,王鑫璇,柴之芳,沈金灿,杨波,刘国卿(3467)
J市饮用水氯消毒副产物分析及其健康风险评价 …… 李晓玲,刘锐,兰亚琼,余素林,文晓刚,陈吕军,张永明(3474)
水中硫酸根及溶解氧质量浓度变化对管垢金属元素释放的影响 …… 吴永丽,石宝友,孙慧芳,张枝焕,顾军农,王东升(3480)
重金属捕集剂对水中微量Hg(Ⅱ)的处理研究 …… 胡运俊,盛田田,薛晓芹,谭丽莎,徐新华(3486)
聚合氯化铁-聚(环氧氯丙烷-二甲胺)复合絮凝剂在模拟水处理中的混凝特性研究 …… 刘新新,杨忠莲,高宝玉,王燕,岳钦艳,李倩(3493)
镁铝复合脱色絮凝剂的微观结构形态及絮凝机制 …… 桑义敏,常雪红,车越,谷庆宝(3502)
钴掺杂铁酸铋活化过硫酸盐降解水中四溴双酚A的研究 …… 欧阳磊,丁耀彬,朱丽华,唐和清,廖海星(3507)
以海泡石为载体的双金属多相类芬顿催化剂的制备及表征 …… 宿程远,李伟光,刘兴哲,王恺尧,王勇(3513)
氧化还原介体调控亚硝酸盐反硝化特性研究 …… 赵丽君,马志远,郭延凯,席振华,杜海峰,刘晓宇,郭建博(3520)
缓释碳源滤料滤池用于二级出水的深度脱氮 …… 唐蕾,李彭,左剑恶,袁琳,李再兴(3526)
微膨胀对好氧颗粒污泥脱氮过程中N_2O产生量的研究 …… 陈丽丽,高大文(3532)
Fenton试剂与CPAM联合调理对污泥脱水效果的影响研究 …… 马俊伟,刘杰伟,曹芮,岳东北,王洪涛(3538)
高效厌氧氨氧化颗粒污泥的动力学特性 …… 唐崇俭,熊蕾,王云燕,郑平(3544)
内蒙古温带草原氮沉降的观测研究 …… 张菊,康荣华,赵斌,黄永梅,叶芝祥,段雷(3552)
湘中矿区不同用地类型面源Cd输出负荷的原位实验研究 …… 刘孝利,曾昭霞,陈喆,铁柏清,陈求稳,叶长城(3557)
蠡湖沉积物重金属形态及稳定性研究 …… 王书航,王雯雯,姜霞,宋倩文(3562)
密云县境内潮河流域土壤重金属分析评价 …… 于洋,高宏超,马俊花,李迎霞,莫罹,孔彦鸿(3572)
西北干旱区黄河沿岸典型工业带表土磁性特征及其环境意义 …… 许淑婧,张英,余晔,王博,夏敦胜(3578)
复合稳定剂对砷污染土壤的稳定研究 …… 王浩,潘利祥,张翔宇,李萌,宋宝华(3587)
湖南下水湾铅锌尾矿库优势植物重金属含量及富集特征 …… 何东,邱波,彭尽晖,彭亮,胡凌雪,胡瑶(3595)
安太堡露天矿复垦地不同人工植被恢复下的土壤酶活性和肥力比较 …… 王翔,李晋川,岳建英,周小梅,郭春燕,卢宁,王宇宏,杨生权(3601)
三苯基锡的微生物降解及其对降解菌的影响 …… 叶锦韶,田云,尹华,彭辉,黄捷,麻榆佳(3607)
二氯甲烷降解菌*Methylobacterium rhodesianum* H13的分离鉴定及降解特性研究 …… 刘洪霞,朱润晔,欧阳杜娟,庄庆丰,陈东之,陈建孟(3613)
引物选择对污泥微生物多样性分析的影响 …… 徐爱玲,吴等等,宋志文,任杰,夏岩,董珊珊,刘梦(3620)
钙铝类水滑石衍生复合氧化物的SO_2储存性能研究 …… 曹琳,王海林,解强(3627)
基于转运站满负荷的北京市新东西城区生活垃圾物流优化方案研究 …… 袁京,李国学,张红玉,罗一鸣(3633)
重金属污染土壤治理与生态修复论坛会议论文
多证据分析技术在场地重金属污染评价中的应用研究 …… 姜林,钟茂生,朱笑盈,姚珏君,夏天翔,刘辉(3641)
我国城市不同功能区地表灰尘重金属分布及来源 …… 李晓燕,刘艳青(3648)
黄河下游滩区开封段土壤重金属分布特征及其潜在风险评价 …… 张鹏岩,秦明周,闫江虹,胡长慧,赵亚平(3654)
青岛北站规划区原场地表层土壤重金属污染研究 …… 朱磊,贾永刚,潘玉英(3663)
某铅蓄电池厂土壤中铅的含量分布特征及生态风险 …… 郑立保,陈卫平,焦文涛,黄锦楼,魏福祥(3669)
某铅冶炼厂对周边土壤质量和人体健康的影响 …… 周小勇,雷梅,杨军,周广东,郭广慧,陈同斌,万小铭,梁琪,乔鹏炜(3675)
某铅蓄电池厂表土不同粒径中铅分布规律研究 …… 岳希,孙体昌,黄锦楼(3679)
原位生物稳定固化技术在铬污染场地治理中的应用研究 …… 张建荣,李娟,许伟(3684)
淋洗剂对多金属污染尾矿土壤的修复效应及技术研究 …… 朱光旭,郭庆军,杨俊兴,张晗芝,魏荣菲,王春雨,Marc Peters(3690)
铅蓄电池厂污染土壤中重金属铅的清洗及形态变化分析 …… 任贝,黄锦楼,苗明升(3697)
超声波辅助化学萃取对某工业场地铅污染土壤修复效果研究 …… 王鑫杰,黄锦楼,刘志强,岳希(3704)
摩擦清洗修复铅污染土壤的参数优化及清洗效率评价 …… 杨雯,黄锦楼,彭会清,李思拓(3709)
土壤重金属钝化修复剂生物炭对镉的吸附特性研究 …… 郭文娟,梁学峰,林大松,徐应明,王林,孙约兵,秦旭(3716)
无机稳定剂对重金属污染土壤的化学稳定修复研究 …… 曹梦华,祝玺,刘黄诚,王琳玲,陈静(3722)
《环境科学》征稿简则(3404) 《环境科学》征订启事(3444) 信息(3492, 3551, 3696, 3715)

氧化还原介体调控亚硝酸盐反硝化特性研究

赵丽君[1],马志远[2],郭延凯[1],席振华[1],杜海峰[1],刘晓宇[1],郭建博[1]*
(1. 河北科技大学环境科学与工程学院,石家庄 050018; 2. 河北省环境地质勘查院,石家庄 050021)

摘要: 采用实验室驯化的亚硝酸盐反硝化菌群作为菌种,优化亚硝酸盐降解条件,探究在氧化还原介体蒽醌-2-磺酸钠(AQS)存在条件下亚硝酸盐反硝化的特性. 结果表明,反硝化菌群降解亚硝酸盐的最适条件为:温度 35℃,pH 为 8,丁二酸钠为碳源,碳氮比 4∶1,初始亚硝酸盐浓度 100 mg·L^{-1}; AQS 的最佳投加量为 0.16 mmol·L^{-1},介体调控的反硝化体系氧化还原电位略有降低,维持在 -400 ~ -500 mV 之间,pH 随亚硝酸盐降解速率增加而增大,最终稳定到 9 ~ 10 之间; 通过分析反硝化中间代谢产物,推测 AQS 在亚硝酸盐反硝化过程中不仅起到辅酶 CoQ 的作用而且加速了细胞色素传递电子的全过程. 本研究可为氧化还原介体调控亚硝酸盐反硝化实际应用提供理论基础和优化参数.

关键词:亚硝酸盐; 反硝化; 氧化还原介体; 蒽醌-2-磺酸钠(AQS); 电子传递链
中图分类号: X703.1 **文献标识码**: A **文章编号**: 0250-3301(2013)09-3520-06

Nitrite Denitrification Characteristics with Redox Mediator

ZHAO Li-jun[1], MA Zhi-yuan[2], GUO Yan-kai[1], XI Zhen-hua[1], DU Hai-feng[1], LIU Xiao-yu[1], GUO Jian-bo[1]
(1. School of Environmental Science and Engineering, Hebei University of Science and Technology, Shijiazhuang 050018, China; 2. Hebei Institute of Environmental Geology Exploration, Shijiazhuang 050021, China)

Abstract: This study optimized the nitrite degradation conditions and explored the characteristics of nitrite degradation with redox mediators and nitrite denitrifying bacteria. The results suggested that the optimal condition of nitrite denitrification was 35℃, pH = 8.0, sodium succinate as the carbon source, the C/N rate of 4 and the initial nitrite concentration of 100 mg·L^{-1}; the optimal AQS concentration was 0.16 mmol·L^{-1}; ORP values stabilized around -400 mV to -500 mV with AQS, which were lower than that of controls during the denitrification process; the pH changed with nitrite removal and stabilized at 9 to 10; through the analysis of denitrifying intermediate metabolites, the impact of AQS on nitrite denitrifying process presumably not only played a coenzyme CoQ role but also accelerated the cytochrome transfer electronic process. This study provides the optimal parameters for practical application of the nitrite biodegradation with redox mediator.

Key words: nitrite; denitrification; redox mediator; anthraquinone-2-sodium sulfonate(AQS); electron transport chain

随着工农业的不断发展,大量的含氮废水排入水体从而产生水体富营养化和赤潮等重大污染现象. 生物脱氮被人们认为是经济、有效很有前景的污水脱氮处理方法[1]. 目前生物脱氮主要新工艺有厌氧氨氧化,短程硝化反硝化和同时硝化反硝化等[2]. 其中厌氧氨氧化和短程硝化反硝化是通过控制亚硝酸盐的转化来实现高效脱氮,因此研究亚硝酸盐的降解转化过程对于新工艺的进一步应用与推广具有重要意义.

近年来,很多研究者发现氧化还原介体在厌氧条件下对多卤代烃、硝基化合物、偶氮染料等多种污染物具有加速降解的效果[3~5]. 氧化还原介体被认为可能起到类似辅酶作用,加速电子传递过程[6]. 但对于氧化还原介体调控反硝化过程中的亚硝酸盐转化的相关报道较少[7]. 因此本研究采用氧化还原介体蒽醌-2-磺酸钠(AQS)调控亚硝酸盐反硝化过程,考察其调控效果和对过程参数的影响,以期为工业应用提供数据支持.

1 材料与方法

1.1 菌群来源

实验所用菌种为实验室驯化的具有降解亚硝酸盐功能的污泥混合菌群. 所用污泥取自石家庄桥西污水处理厂的厌氧消化池.

将驯化稳定的污泥按体积比为 5% 的比例,接入反硝化扩大培养基内进行扩大培养,使污泥中的菌群在培养基内富集生长. 将富集的反硝化扩大培养基在室温下静置,留作实验的菌种待用.

1.2 培养基

反硝化扩大培养基(FM)成分:丁二酸钠 1.447

收稿日期: 2012-12-04; **修订日期**: 2013-01-14
基金项目: 国家自然科学基金项目(50978082);2010 年教育部新世纪优秀人才支持计划项目(NCET-10-0127);河北省杰出青年科学基金项目(E2012208012);河北省高校重点学科建设项目
作者简介: 赵丽君(1985 ~),女,硕士研究生,主要研究方向为水污染控制,E-mail:zlj2009good@163.com
* 通讯联系人,E-mail:jianbguo@163.com

$g\cdot L^{-1}$，亚硝酸钠 0.986 $g\cdot L^{-1}$，无水硫酸镁 0.12 $g\cdot L^{-1}$，磷酸二氢钾 0.013 2 $g\cdot L^{-1}$，酵母粉 0.125 $g\cdot L^{-1}$，胰蛋白胨 0.375 $g\cdot L^{-1}$ 和微量元素溶液 2 mL，调节 pH 为 7，121℃高温高压灭菌 30 min.

反硝化降解培养基(DM)成分：丁二酸钠 1.447 $g\cdot L^{-1}$，无水硫酸镁 0.12 $g\cdot L^{-1}$，磷酸二氢钾 0.013 2 $g\cdot L^{-1}$，酵母粉 0.125 $g\cdot L^{-1}$，胰蛋白胨 0.375 $g\cdot L^{-1}$，微量元素 2 mL，调 pH 为 7，121℃高温高压灭菌 30 min. 其中微量元素溶液组成为：EDTA 二钠盐 63.68 $mg\cdot L^{-1}$、$ZnSO_4$ 2.2 $mg\cdot L^{-1}$、$CaCl_2$ 5.5 $mg\cdot L^{-1}$、$MnSO_4$ 4.32 $mg\cdot L^{-1}$、$FeSO_4\cdot 7H_2O$ 5.0 $mg\cdot L^{-1}$、$Na_2MoO_4\cdot 2H_2O$ 2.11 $mg\cdot L^{-1}$、$CuSO_4\cdot 5H_2O$ 1.57 $mg\cdot L^{-1}$、$CoCl_2\cdot 6H_2O$ 1.61 $mg\cdot L^{-1}$. 实验所用培养基均采用去离子水配置.

污泥驯化采用人工配水，以亚硝酸钠为氮源，丁二酸钠为碳源，磷酸二氢钾为磷源，用 1 $mol\cdot L^{-1}$ 的 HCl 和 NaOH 调节进水 pH 为 7，模拟废水驯化污泥.

1.3　分析方法

亚硝酸盐氮浓度测定采用 *N*-(1-萘基)-乙二胺分光光度法[8]；pH 使用梅特勒托利多公司生产的 pH 计进行测定；氧化还原电位使用 leici-501 型氧化还原复合电极进行测定；反硝化体系中的 NO 和 N_2O 采用丹麦微电极系统测定[9].

1.4　实验方法

实验选用 250 mL 锥形瓶为反应体系，每组实验设置 3 个平行样. 在无菌条件下将菌种按 5% 比例接入降解培养基中在温度为 35℃ 转速为 120 $r\cdot min^{-1}$ 条件下培养 8 h 左右，待 600 nm 波长下测量菌液浊度 *D* 值达 0.3 左右时将其从恒温摇床中取出按 3∶25 的比例加入亚硝酸盐储备液使亚硝酸盐初始浓度为 100 $mg\cdot L^{-1}$，然后根据实验要求加入氧化还原介体 AQS，密封后放入 35℃ 恒温培养箱内进行降解实验. 实验首先从不同温度、不同初始 pH、不同碳源、碳氮比和不同初始亚硝酸盐浓度等因素优化亚硝酸盐反硝化的降解条件，随后在优化的降解条件基础上通过投加不同 AQS 浓度(0、0.008、0.04、0.08、0.16 和 0.32 $mmol\cdot L^{-1}$)考察介体调控效果并确定最佳投加量. 实验过程中每 1 h 记录体系 pH 和 ORP 的变化，每 2 h 测量体系 NO 和 N_2O 的变化，取样离心，测其上清液中亚硝酸盐的含量.

2　结果与讨论

2.1　菌群降解亚硝酸盐条件优化

2.1.1　温度对亚硝酸盐反硝化的影响

温度是影响生物生存和生物体内酶活性的重要因素，温度的不同直接影响了反硝化的效果. 本实验选定 20、30、35、40 和 50℃ 这 5 个温度范围考察亚硝酸盐降解情况，结果如图 1 所示.

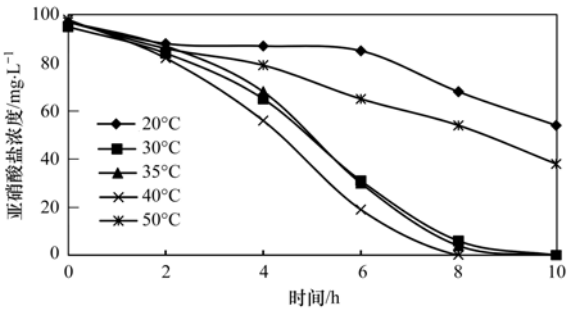


图 1　温度对亚硝酸盐反硝化的影响

Fig. 1　Effects of temperature on nitrite degradation

图 1 所示，温度在 20～30℃ 之间时亚硝酸盐反硝化速率随温度的增加而增加，30～40℃ 降解速率最快且速率相近，50℃ 时亚硝酸盐降解速率降低. 这是由于温度在 20～30℃ 之间时温度越高反硝化速率越快[10]. 30～40℃ 是由于实验以混合菌群为菌种，在多种菌的协同作用下实现的最佳温度范围. 50℃ 时亚硝酸盐反硝化菌群活性降低，由于反硝化酶是蛋白质，高温环境会使酶变性失活. 因此结合经济等因素综合考虑选用 35℃ 为最适降解温度.

2.1.2　pH 对亚硝酸盐降解的影响

pH 对生物反应的影响主要来自它对生物和基质的影响，考虑环境中 pH 的变化情况，本实验选用初始 pH 值为 5、6、7、8、9 考察亚硝酸盐降解情况，结果如图 2 所示.

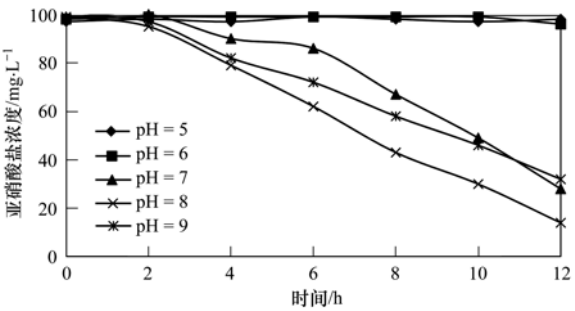


图 2　pH 对亚硝酸盐反硝化的影响

Fig. 2　Effects of pH on nitrite degradation

图 2 所示，当 pH 为 5 和 6 反硝化过程没有进行，被完全抑制；pH 为 7 时初始降解速度较慢，但当亚硝酸盐降到 6 h 时突然出现拐点降解速度加快；pH 为 8 时降解效果最好；pH 为 9 时降解效果

有所下降. 这是由于当 pH 较低时会影响酶的稳定性,使酶遭到不可逆转的破坏,进而使菌群完全失活,失去降解能力,所以 pH 为 5 和 6 时反硝化过程没有进行. 当 pH = 7 出现拐点是由于亚硝酸盐降解使 OH^- 在一定范围内有所增加达到了反硝化细菌的适应 pH 范围,所以反硝化速率突然增加与 pH 为 8 时速率相当. 曹相生等[11]得出 OH^- 浓度过高不利于亚硝酸盐的降解,所以 pH 为 9 降解效果会有所下降. 反硝化过程产 OH^-,反硝化细菌比较适应偏碱性的环境,而且反硝化生成 HCO_3^- 可与初始溶液中 OH^- 结合从而加速反应进行提高亚硝酸盐降解速率,所以微碱性环境适宜微生物的降解[12]. 因此实验选用 pH = 8 为最佳 pH 初始值.

2.1.3 碳源和碳氮比对亚硝酸盐反硝化的影响

反硝化过程是一个异养过程,碳源的种类可直接影响微生物的利用情况影响反硝化效果. 根据环境中有机物的存在种类,本实验选用酸类、醇类、糖类等物质作为亚硝酸盐反硝化碳源,在起始浓度为 100 mg·L^{-1}条件下考察碳源和碳氮比对亚硝酸盐反硝化的影响,结果如图 3 所示.

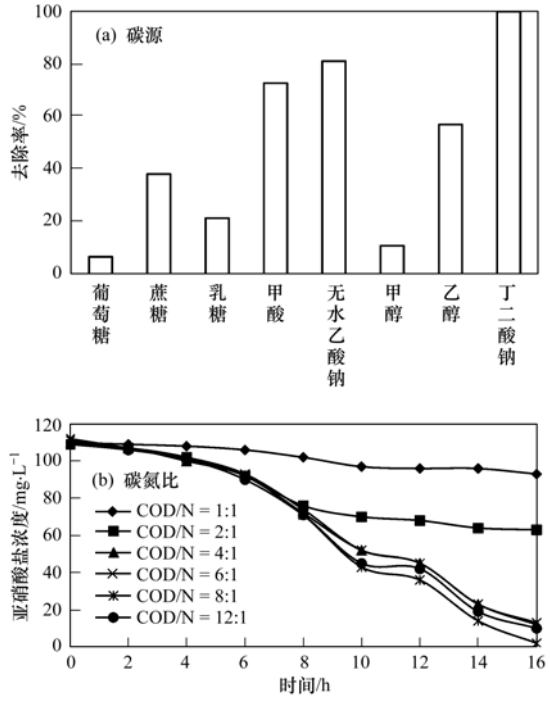


图 3 碳源和碳氮比对亚硝酸盐反硝化的影响

Fig. 3 Effects of carbon source and C/N on nitrite degradation

图 3(a)所示,亚硝酸盐降解 12 h 后考察不同碳源条件下的亚硝酸盐去除率. 酸类物质甲酸、乙酸钠、丁二酸钠为碳源时的亚硝酸盐去除率分别为 73%、81%、100%; 对于硝酸盐降解常用碳源醇类物质即甲醇和乙醇作为碳源[13,14],亚硝酸盐去除率为 11% 和 57%; 对于糖类物质乳糖、蔗糖、葡萄糖作为碳源亚硝酸盐去除率为 7%、38%、21%. 结果说明酸类物质比较适宜反硝化细菌的降解,且丁二酸钠最好. 由于糖类碳源较酸类和醇类碳源分子量较大不容易被生物利用,所以降解速率较低. 醇类物质作为硝酸盐反硝化的碳源时降解效果很好[13],但作为亚硝酸盐反硝化碳源却效果较差,说明亚硝酸盐反硝化过程不同于硝酸盐的降解过程,亚硝酸盐对微生物的毒性影响可能是碳源选择的主要原因之一. 所以本实验选用丁二酸钠为最优碳源.

图 3(b)所示碳氮比在 1∶1 和 2∶1 降解速率较低; 当 C/N 为 4∶1 时,碳源充足可使亚硝酸盐反硝化完全[15]; 当 C/N > 4∶1 时,在亚硝酸盐降解 10 h 时出现拐点,C/N 越大停滞现象越明显. 这是由于 C/N < 4∶1 时,碳源为限制性因素,随着碳氮比的增加反硝化速率会随着增加. 当 C/N > 4∶1 时,由于碳源过剩,菌群生长旺盛出现对其它营养物质的争夺,致使降解速率短时间降低,碳源越丰富降解速率降低越快甚至停滞,但持续时间较短均为 2 h,之后亚硝酸盐继续降解速率恢复正常. 王淑莹等[16]在碳氮比对生物反硝化 N_2O 产量的影响中指出完全反硝化最佳 C/N 为 4∶1 与本实验结果一致. 因此从降解速率和经济两方面综合考虑选用 C/N 为 4∶1 最为合理.

2.1.4 亚硝酸盐起始浓度对反硝化的影响

亚硝酸盐是毒性物质,对反硝化细菌具有一定的抑制作用,因此本实验考察亚硝酸盐起始浓度对反硝化的影响. 实验考察含氮量从 50 ~ 500 mg·L^{-1} 的范围内 12 h 的降解情况,结果如图 4 所示.

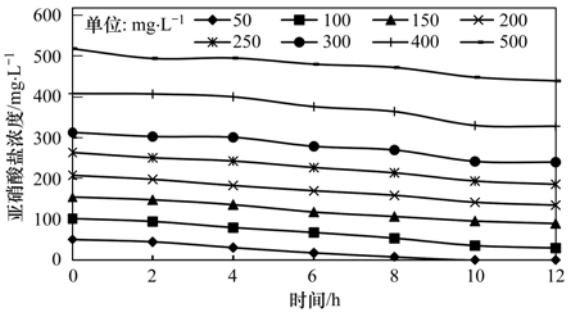


图 4 亚硝酸盐起始浓度对反硝化的影响

Fig. 4 Effects of initial nitrite concentration on nitrite degradation

图 4 所示,在生物序批次实验中,亚硝酸盐浓度在 50 ~ 250 mg·L^{-1} 浓度之间时亚硝酸盐降解速率不受浓度影响. 起始浓度大于 300 mg·L^{-1}时,在降解 10 h 后出现停滞现象. 说明当浓度高于 300 mg·L^{-1}时[17],亚硝酸盐的毒性影响影响了反硝化菌

群的降解作用，出现停滞现象. 综合考虑实验选用起始氮浓度为 100 mg·L^{-1}.

2.2　介体对亚硝酸盐反硝化的影响

2.2.1　AQS 浓度对亚硝酸盐反硝化的影响

考察投加 AQS 体系的经济高效性，实验选用 0、0.008、0.04、0.08、0.16 和 0.32 mmol·L^{-1}这 5 个浓度范围考察介体投加量对亚硝酸盐降解的影响，结果如图 5 所示.

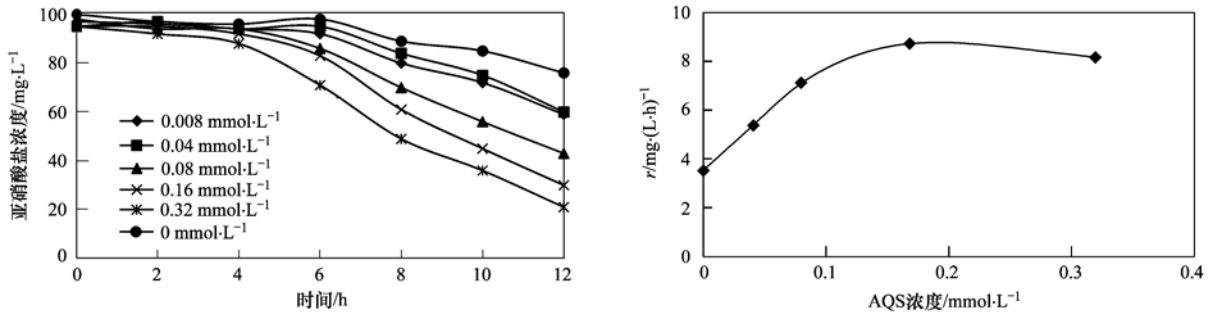


图 5　AQS 投加浓度对亚硝酸盐降解的影响

Fig. 5　Effects of AQS concentration on nitrite degradation

图 5 所示，投加不同量的 AQS 对亚硝酸盐反硝化体系加速程度不同. 投加介体浓度在 0.008 ~ 0.16 mmol·L^{-1}范围内，亚硝酸盐降解速率随介体投加浓度的增加而不断提高且呈线性关系，当介体浓度为 0.32 mmol·L^{-1}时，虽然亚硝酸盐最先降完，但降解速率不再增加. 这是由于介体浓度与菌体利用之间存在对应关系，介体浓度超过菌体能够利用的范围后，亚硝酸盐降解的速率将不再增加，当浓度过高时甚至会出现抑制.

2.2.2　AQS 加速亚硝酸盐反硝化过程中 pH 和氧化还原电位的特性

投加不同量的 AQS 对亚硝酸盐降解体系可能产生不同的影响，因此研究了 AQS 存在条件下降解体系 pH 和氧化还原电位的变化，结果如图 6 所示.

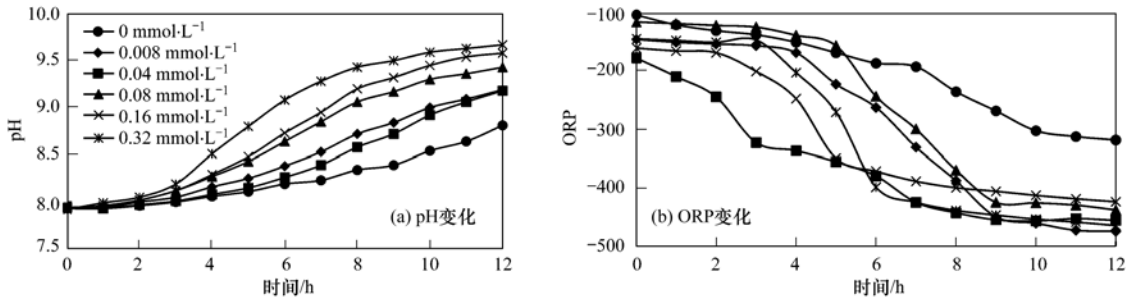


图 6　不同浓度 AQS 加速亚硝酸盐降解过程中 pH 和氧化还原电位的变化

Fig. 6　The pH and ORP changes during the nitrite degradation with different AQS concentrations

图 6(a)所示，亚硝酸盐降解体系 pH 随亚硝酸盐的降解速率的增加不断增加；当亚硝酸盐降解完全时，pH 变化出现拐点；投加不同浓度 AQS 体系最终的 pH 拐点位置接近相同. 由于亚硝酸盐降解过程产生 OH^- 离子，反硝化体系 pH 会随着降解的进行而增加. 加入不同浓度的 AQS 使亚硝酸盐的降解速率有不同程度的加快，所以 pH 变化趋势不同，即亚硝酸盐降解速率越快，pH 值变化越快，但随着降解完全 pH 拐点位置基本相同. 葛士建等[18]研究发现 pH 拐点直接反映反硝化情况. 因此体系 pH 变化也可以间接反映介体加速效果.

图 6(b)所示，投加介体后亚硝酸盐降解过程加快，体系氧化还原电位降低在 -300 ~ -500 mV 之间，加入介体氧化还原电位比空白体系电位低 100 mV 左右，因此介体的加入不仅改变了亚硝酸盐降解速率，而且改变了体系的稳定氧化还原电位. 介体加速亚硝酸盐对 ORP 的影响与固定化介体加速亚硝酸盐降解过程趋势变化相同[7].

2.2.3　AQS 对亚硝酸盐降解过程中间代谢产物的影响

为了全面地了解介体对亚硝酸盐降解过程的影响，不仅考察介体对反硝化降解体系的影响，还要进一步了解亚硝酸盐转化为氮气过程中间产物 NO 和 N_2O的变化，探究介体加速位点，为研究介体的加速

机制奠定基础.

图 7 所示,亚硝酸盐降解的过程中,中间代谢产物 NO 和N_2O也随之变化. 过程中 NO 一直维持在较低浓度,这是由于 NO 化学性质不稳定,极易转化;N_2O相对稳定但转化速率较低,出现积累高峰,表明N_2O降解过程比亚硝酸盐降解过程慢. 加入 AQS 以后,亚硝酸盐降解速率加快的同时,N_2O积累高峰值高于空白对照高峰值近 2 倍. 说明 AQS 在亚硝酸盐反硝化过程中加速了亚硝酸盐转化为N_2O过程,但对N_2O转化为 N_2 的过程没有明显加速作用.

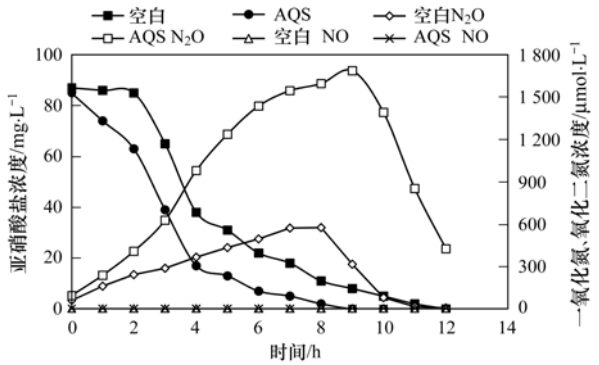
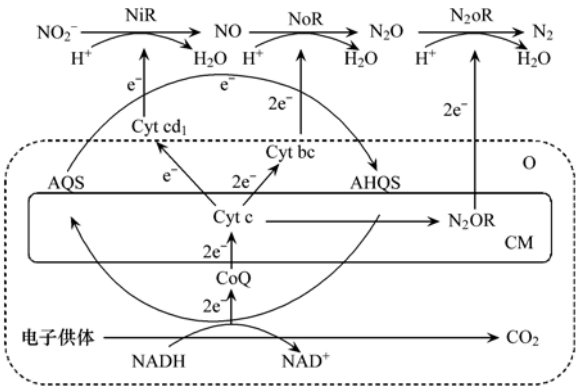


图 7 AQS 加速亚硝酸盐降解过程 NO_2^-/NO/N_2O浓度变化

Fig. 7 Concentration of NO_2^-/NO/N_2O during nitrite degradation with AQS

亚硝酸盐反硝化电子转移过程如图 8 所示,与王淑莹等[13]曾经报道过硝酸盐反硝化过程中电子传递过程类似. 首先电子供体将电子传递给辅酶 Q,辅酶 Q 接受电子后,通过细胞色素(Cyt bc1)复合物将电子传递给细胞色素 c,然后以细胞色素 c 为节点,首先将电子传递给亚硝酸盐还原酶内的细胞色素 cd1,使 NO_2^- 还原成 NO. 其次,细胞色素 c 把 $2e^-$ 传给一氧化氮还原酶中的细胞色素 bc,使 NO 还原成N_2O. 最后,氧化二氮还原酶内的 Cu 活性中心接受细胞色素 c 提供的 $2e^-$,将电子传递给氧化二氮还原酶内的另一个 Cu 活性部位,使N_2O还原成 N_2. 至此完成亚硝酸盐反硝化的电子传递. 而投加 AQS 加速亚硝酸盐反硝化的可能原因是 AQS 参与了亚硝酸盐反硝化电子传递过程. 由于 AQS 的分子结构和反硝化过程中的辅酶 CoQ 相似,具有传递电子的作用. 郭建博等[19]在介体加速偶氮染料机制研究中提出介体相当于辅酶的作用. 结合实验结果 AQS 加速亚硝酸盐转化是由于促进了 NO_2^- 到N_2O的转化过程,可以推测 AQS 在亚硝酸盐反硝化过程中不仅起到辅酶 CoQ 的作用而且加速了细胞色素传递电子的全过程,从而促进了 NO_2^- 到N_2O的转化,对细胞色素未参与的 N_2oR 电子转移过程没有加速作用.



CM:细胞质膜; O:细胞膜外部; NiR:亚硝酸盐还原酶; NoR:一氧化氮还原酶; N_2oR:一氧化二氮还原酶; Cyt:细胞色素; NAD:烟酰胺腺嘌呤二核苷酸; CoQ:辅酶 Q

图 8 AQS 加速亚硝酸盐反硝化作用位点机制示意

Fig. 8 Mechanism diagram of AQS accelerated nitrite denitrification site

3 结论

(1)亚硝酸盐反硝化最适条件温度为 35℃、pH 为 8、最佳碳源为丁二酸钠、最佳碳氮比为 4∶1、亚硝酸盐起始浓度为 100 $mg\cdot L^{-1}$.

(2)在优化降解条件基础上考察介体蒽醌-2-磺酸钠对亚硝酸盐降解过程的影响,确定最佳投加量为 0.16 $mmol\cdot L^{-1}$; AQS 加速亚硝酸盐降解的同时,对体系 pH 和 ORP 的变化进行考察,发现体系 pH 变化与亚硝酸盐降解速率变化相对应,体系 ORP 值降低 100 mV 左右.

(3)通过对投加介体 AQS 亚硝酸盐降解体系中间产物的变化分析,发现 AQS 加速亚硝酸盐降解的位点为亚硝酸盐转化为N_2O的过程,对于介体加速作用机制有待进一步研究.

参考文献:

[1] 钱程, 任丽波, 姚瑶. 废水生物脱氮技术简述[J]. 环境科学与管理, 2008, **33**(7): 122-124.

[2] 石娟, 张传义. 生物脱氮新技术[J]. 山西建筑, 2011, **37**(4): 112-114.

[3] Guo J B, Kang L, Yang J L, *et al*. Study on a novel non-dissolved redox mediator catalyzing biological denitrification (RMBDN) technology[J]. Bioresource Technology, 2010, **101**(11): 4238-4241.

[4] Wang J, Li L H, Zhou J T, *et al*. Enhanced biodecolorization of azo dyes by electropolymerization-immobilized redox mediator [J]. Journal of Hazardous Materials, 2009, **168**(2-3): 1098-1104.

[5] Li L H, Wang J, Zhou J T, *et al*. Enhancement of nitroaromatic

compounds anaerobic biotransformation using a novel immobilized redox mediator prepared by electropolymerization [J]. Bioresource Technology, 2008, **99**(15): 6908-6916.

[6] Field J A, Cervantes F J, Van der Zee F P, *et al*. Role of quinones in the biodegradation of priority pollutants: a review [J]. Water Science and Technology, 2000, **42**(5-6): 215-222.

[7] 廉静, 许志芳, 赵丽君, 等. 固定化氧化还原介体加速亚硝酸盐生物反硝化作用[J]. 环境工程学报, 2012, **6**(6): 1805-1809.

[8] 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.

[9] Zhu X Y, Chen Y G. Reduction of N_2O and NO generation in Anaerobic-aerobic(Low dissolved oxygen) biological wastewater treatment process by using sludge alkaline fermentation liquid [J]. Environmental Science and Technology, 2011, **45**(6): 2137-2143.

[10] 尚会来, 彭永臻, 张静蓉, 等. 温度对短程硝化反硝化的影响[J]. 环境科学学报, 2009, **29**(3): 516-520.

[11] 曹相生, 付昆明, 钱栋, 等. 甲醇为碳源时 C/N 对反硝化过程中亚硝酸盐积累的影响[J]. 化工学报, 2010, **61**(11): 2938-2943.

[12] 王少坡, 王淑莹, 彭永臻, 等. 常温内源反硝化脱氮过程中pH 和 ORP 变化规律[J]. 环境污染治理技术与设备, 2005, **6**(3): 20-24.

[13] 王淑莹, 孙洪伟, 杨庆, 等. 传统生物脱氮反硝化过程的生化机理及动力学[J]. 应用与环境生物学报, 2008, **14**(5): 732-736.

[14] Modin O, Fukushi K, Yamamoto K. Denitrification with methane as external carbon source[J]. Water Research, 2007, **41**(12): 2726-2738.

[15] Snu H W, Yang Q, Peng Y Z, *et al*. Nitrite accumulation during the denitrification process in SBR for the treatment of pre-treated landfill leachate[J]. Chinese Journal of Chemical Engineering, 2009, **17**(6): 1027-1031.

[16] 王淑莹, 王赛, 巩有奎. 碳氮比对生物反硝化中N_2O产量的影响[J]. 北京工业大学学报, 2012, **38**(6): 898-903.

[17] 张云霞, 周集体, 袁守志. 高效亚硝酸型反硝化菌生长特性及脱氮研究[J]. 大连理工大学学报, 2009, **49**(2): 180-186.

[18] 葛士建, 王淑莹, 杨岸明, 等. 反硝化过程中亚硝酸盐积累特性分析[J]. 土木建筑与环境工程, 2011, **33**(1): 140-146.

[19] 郭建博, 周集体, 王栋, 等. 固定化蒽醌对偶氮染料生物降解促进作用研究[J]. 环境科学, 2006, **27**(10): 2071-2075.

HUANJING KEXUE

Environmental Science (monthly)

Vol. 34 No. 9

Sep. 15, 2013

CONTENTS

PUF Passive Air Sampling of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Atmosphere of the Yangtze River Delta, China: Spatio-Temporal Distribution and Potential Sources ····· ZHANG Li-fei, YANG Wen-long, DONG Liang, *et al.* (3339)

Quantitative Analysis of Nitrate in Atmospheric Particulates $PM_{2.5}$ with Fourier Transform Infrared Spectroscopy ····· LIU Na, WEI Xiu-li, GAO Min-guang, *et al.* (3347)

Study on Contribution Factor to Atmospheric ·OH by O_3, HONO, HCHO and H_2O_2 in Spring at Mangdang Mountain, Fujian Province ····· LIU Hao, WANG Hui-xiang (3352)

A Review on Current Situations of Steroid Estrogen in the Water System ····· DU Shao-ting, JIN Chong-wei, LIU Yue (3358)

A Study on the Veterinary Antibiotics Contamination in Groundwater of Jiaxing ····· LÜ Xing, YU Wei-juan, LAN Ya-qiong, *et al.* (3368)

Contamination Characteristics of Short-Chain Chlorinated Paraffins in Edible Fish of Shanghai ····· JIANG Guo, CHEN Lai-guo, HE Qiu-sheng, *et al.* (3374)

Detection of Endotoxin Activity in Water Environment and Analysis of Influence Factors for TAL Assay ····· ZHANG Can, LIU Wen-jun, ZHANG Ming-lu, *et al.* (3381)

Cellular Response of Freshwater Green Algae to the Toxicity of Tetracycline Antibiotics ····· XU Dong-mei, WANG Yan-hua, RAO Gui-wei (3386)

Illumination's Effect on the Growth and Nitrate Reductase Activity of Typical Red-Tide Algae in the East China Sea ····· LI Hong-mei, SHI Xiao-yong, DING Yan-yan, *et al.* (3391)

Compare the Growth of *Enteromorpha prolifera* Under Different Nutrient Conditions ····· PANG Qiu-ting, LI Feng, LIU Xiang-qing, *et al.* (3398)

Phytoplankton Pigment Patterns and Community Structure in the Yangtze Estuary and Its Adjacent Areas ····· LAI Jun-xiang, YU Zhi-ming, SONG Xiu-xian, *et al.* (3405)

Genetic Diversity of Picoeukaryotic Phytoplankton in the Lakes Along the Middle-lower Reaches of the Yangtze River ····· LI Sheng-nan, SHI Xiao-li, XIE Wei-wei, *et al.* (3416)

Studies on Seasonal Variation and Sources of Nitrogen and Phosphorus in a Canyon Reservoir Used as Water Source ····· HUANG Ting-lin, QIN Chang-hai, LI Xuan (3423)

Characteristics of Sediment Phosphorus in the Jiulong River-Reservoir System and Its Ecological Significance ····· LU Ting, CHEN Neng-wang, CHEN Zhu-hong, *et al.* (3430)

Variation of Nitrogen During the High Suspended Sediments Concentration Water Supply in an Artificial Shallow Lake ····· CHEN You-yuan, SHEN Yu, YANG Shi-ying (3437)

Limestone and Pyrite-Limestone Constructed Wetlands for Treating River Water ····· ZHANG Jing, LI Rui-hua, LI Jie, *et al.* (3445)

Dynamics of Carbon, Nitrogen and Phosphorus Storage of Three Dominant Marsh Plants in Hangzhou Bay Coastal Wetland ····· SHAO Xue-xin, LI Wen-hua, WU Ming, *et al.* (3451)

Dissolved Organic Matter Release of *Zizania caduciflora* and *Phragmites australis* from Lake Dianchi ····· XIE Li, YANG Hao, QU Xiao-xia, *et al.* (3458)

Influence of Tap Water Treatment on Perfluorinated Compounds Residue in the Dissolved Phase ····· ZHANG Hong, CHEN Qing-wu, WANG Xin-xuan, *et al.* (3467)

Study on Chlorinated Disinfection Byproducts and the Relevant Health Risk in Tap Water of J City ····· LI Xiao-ling, LIU Rui, LAN Ya-qiong, *et al.* (3474)

Effect of the Change in Sulphate and Dissolved Oxygen Mass Concentration on Metal Release in Old Cast Iron Distribution Pipes ····· WU Yong-li, SHI Bao-you, SUN Hui-fang, *et al.* (3480)

Research on Low-level Hg(Ⅱ) Removal from Water by the Heavy Metal Capturing Agent ····· HU Yun-jun, SHENG Tian-tian, XUE Xiao-qin, *et al.* (3486)

Coagulation Characteristics of Polyferric Chloride-Poly (Epichlorohydrin-Dimethylamine) Composite Flocculant for Simulated Water Treatment ····· LIU Xin-xin, YANG Zhong-lian, GAO Bao-yu, *et al.* (3493)

Microstructure Morphology and Flocculation Mechanism of the Decolorizing Flocculant Poly-aluminum(Ⅲ)-magnesium(Ⅱ)-sulfate ····· SANG Yi-min, CHANG Xue-hong, CHE Yue, *et al.* (3502)

Efficient Degradation of Tetrabromobisphenol A in Water by Co-doped $BiFeO_3$ ····· OUYANG Lei, DING Yao-bin, ZHU Li-hua, *et al.* (3507)

Preparation Bimetallic Heterogeneous Fenton-Like Catalyst as Sepiolite Supported and Its Surface Chemical Characterization ····· SU Cheng-yuan, LI Wei-guang, LIU Xing-zhe, *et al.* (3513)

Nitrite Denitrification Characteristics with Redox Mediator ····· ZHAO Li-jun, MA Zhi-yuan, GUO Yan-kai, *et al.* (3520)

Advanced Nitrogen Removal Using Innovative Denitrification Biofilter with Sustained-Release Carbon Source Material ····· TANG Lei, LI Peng, ZUO Jian-e, *et al.* (3526)

N_2O Production in Nitrogen Removal by Micro-expansion of Granular Sludge ····· CHEN Li-li, GAO Da-wen (3532)

Sludge Dewaterability with Combined Conditioning Using Fenton's Reagent and CPAM ····· MA Jun-wei, LIU Jie-wei, CAO Rui, *et al.* (3538)

Kinetic Characteristics of High-rate ANAMMOX Granules ····· TANG Chong-jian, XIONG Lei, WANG Yun-yan, *et al.* (3544)

Monitoring Nitrogen Deposition on Temperate Grassland in Inner Mongolia ····· ZHANG Ju, KANG Rong-hua, ZHAO Bin, *et al.* (3552)

Non-Point Loads of Soluble Cadmium by *in situ* Field Experiment with Different Landuses, in Central Hunan Province Mining Area ····· LIU Xiao-li, ZENG Zhao-xia, CHEN Zhe, *et al.* (3557)

Heavy Metal Speciation and Stability in the Sediment of Lihu Lake ····· WANG Shu-hang, WANG Wen-wen, JIANG Xia, *et al.* (3562)

Analysis and Evaluation of Heavy Metals Along the Chaohe River in Miyun County ····· YU Yang, GAO Hong-chao, MA Jun-hua, *et al.* (3572)

Magnetic Properties of Topsoils in Typical Industrial Belt Along the Yellow River in Arid Regions in Northwest China and Their Environmental Significance ····· XU Shu-jing, ZHANG Ying, YU Ye, *et al.* (3578)

Study on Composite Stabilization of Arsenic (As) Contaminated Soil ····· WANG Hao, PAN Li-xiang, ZHANG Xiang-yu, *et al.* (3587)

Heavy Metal Contents and Enrichment Characteristics of Dominant Plants in a Lead-Zinc Tailings in Xiashuiwan of Hunan Province ····· HE Dong, QIU Bo, PENG Jin-hui, *et al.* (3595)

Comparison of Soil Fertility Among Open-pit Mine Reclaimed Lands in Antaibao Regenerated with Different Vegetation Types ····· WANG Xiang, LI Jin-chuan, YUE Jian-ying, *et al.* (3601)

Biodegradation of Triphenyltin and Its Effect on *Klebsiella pneumoniae* ····· YE Jin-shao, TIAN Yun, YIN Hua, *et al.* (3607)

Isolation and Degradation Characteristics of Dichloromethane-Degradation Bacterial Strain by *Methylobacterium rhodesianum* H13 ····· LIU Hong-xia, ZHU Run-ye, OUYANG Du-juan, *et al.* (3613)

Effect of Different Primers on Microbial Community of Activated Sludge ····· XU Ai-ling, WU Deng-deng, SONG Zhi-wen, *et al.* (3620)

Reaction of SO_2 over CaAl Mixed Oxides Derived from Hydrotalcites Samples ····· CAO Lin, WANG Hai-lin, XIE Qiang (3627)

Optimization for MSW Logistics of New Xicheng and New Dongcheng Districts in Beijing Based on the Maximum Capacity of Transfer Stations ····· YUAN Jing, Li Guo-xue, ZHANG Hong-yu, LUO Yi-ming *et al.* (3633)

Application of Multiple Lines of Evidence Analysis Technology in the Assessment of Sites Contaminated by Heavy Metals ····· JIANG Lin, ZHONG Mao-sheng, ZHU Xiao-ying, *et al.* (3641)

Heavy Metals and Their Sources in Outdoor Settled Dusts in Different Function Areas of Cities ····· LI Xiao-yan, LIU Yan-qing (3648)

Study on Distribution Characteristics and Potential Ecological Risk of Soil Heavy Metals in the Yellow River Beach Region in Kaifeng City ····· ZHANG Peng-yang, QIN Ming-zhou, YAN Jiang-hong, *et al.* (3654)

Study on Pollution Evaluation of Heavy Metal in Surface Soil of the Original Site of Qingdao North Station ····· ZHU Lei, JIA Yong-gang, PAN Yu-ying (3663)

Distribution Characteristics and Ecological Risk of Pb in Soils at a Lead Battery Plant ····· ZHENG Li-bao, CHEN Wei-ping, JIAO Wei-tao, *et al.* (3669)

Effect of Lead on Soil Quality and Human Health Around a Lead Smeltery ····· ZHOU Xiao-yong, LEI Mei, YANG Jun, *et al.* (3675)

Distribution Characteristics of Lead in Different Particle Size Fractions of Surface Soil of a Lead-acid Battery Factory Contaminated Site ····· YUE Xi, SUN Ti-chang, HUANG Jin-lou (3679)

Research on the Application of *In-situ* Biological Stabilization Solidification Technology in Chromium Contaminated Site Management ····· ZHANG Jian-rong, LI Juan, XU Wei (3684)

Research on the Effect and Technique of Remediation for Multi-Metal Contaminated Tailing Soils ····· ZHU Guang-xu, GUO Qing-jun, YANG Jun-xing, *et al.* (3690)

Analysis of Washing Efficiency and Change in Lead Speciation in Lead-contaminated Soil of a Battery Factory ····· REN Bei, HUANG Jin-lou, MIAO Ming-sheng (3697)

Remediation Efficiency of Lead-Contaminated Soil at an Industrial Site by Ultrasonic-assisted Chemical Extraction ····· WANG Xin-jie, HUANG Jin-lou, LIU Zhi-qiang, *et al.* (3704)

Parameters Optimization and Cleaning Efficiency Evaluation of Attrition Scrubbing Remediation of Pb-Contaminated Soil ····· YANG Wen, HUANG Jin-lou, PENG Hui-qing, *et al.* (3709)

Adsorption of Cd^{2+} on Biochar from Aqueous Solution ····· GUO Wen-juan, LIANG Xue-feng, LIN Da-song, *et al.* (3716)

Effect of Inorganic Amendments on the Stabilization of Heavy Metals in Contaminated Soils ····· CAO Meng-hua, ZHU Xi, LIU Huang-cheng, *et al.* (3722)

《环境科学》第 6 届编辑委员会

主　编：欧阳自远

副主编：赵景柱　郝吉明　田　刚

编　委：（按姓氏笔画排序）

万国江　王华聪　王凯军　王绪绪　田　刚　田　静　史培军

朱永官　刘志培　汤鸿霄　陈吉宁　孟　伟　周宗灿　林金明

欧阳自远　赵景柱　姜　林　郝郑平　郝吉明　聂永丰　黄　霞

黄　耀　鲍　强　潘　纲　潘　涛　魏复盛

环 境 科 学

（HUANJING KEXUE）

（月刊　1976 年 8 月创刊）

2013 年 9 月 15 日　34 卷　第 9 期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

（Monthly　Started in 1976）

Vol. 34　No. 9　Sep. 15, 2013

主　　管	中国科学院	**Superintended** by	Chinese Academy of Sciences
主　　办	中国科学院生态环境研究中心	**Sponsored** by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协　　办	（以参加先后为序） 北京市环境保护科学研究院 清 华 大 学 环 境 学 院	**Co-Sponsored** by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主　　编	欧 阳 自 远	**Editor-in -Chief**	OUYANG Zi-yuan
编　　辑	《环境科学》编辑委员会 北京市 2871 信箱（海淀区双清路 18 号，邮政编码：100085） 电话：010-62941102，010-62849343 传真：010-62849343 E-mail：hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn	**Edited** by	The Editorial Board of Environmental Science（HUANJING KEXUE） P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel：010-62941102, 010-62849343; Fax：010-62849343 E-mail：hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn
出　　版	科 学 出 版 社 北京东黄城根北街 16 号 邮政编码：100717	**Published** by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印 刷 装 订	北京北林印刷厂	**Printed** by	Beijing Bei Lin Printing House
发　　行	科 学 出 版 社 电话：010-64017032 E-mail：journal@ mail. sciencep. com	**Distributed** by	Science Press Tel：010-64017032 E-mail：journal@ mail. sciencep. com
订　购　处	全国各地邮电局	**Domestic**	All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易总公司 （北京 399 信箱）	**Foreign**	China International Book Trading Corporation（Guoji Shudian）, P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号：ISSN 0250-3301 / CN 11-1895/X　　**国内邮发代号**：2-821

国 内 定 价：90.00 元　　**国外发行代号**：M 205

国 内 外 公 开 发 行