

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE



2015

中国科学院生态环境研究中心 主办

斜 学 出 版 社 出版



採 施 静 享 (HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第36卷 第9期 2015年9月15日

目 次

长江三角洲 PM _{2.5} 质量浓度遥感估算与时空分布特征 ·······················徐建辉,江洪(3119) 宁波市 PM _{2.5} 中碳组分的时空分布特征和二次有机碳估算 ····································
宁波市 PM,5中碳组分的时空分布特征和二次有机碳估算 ······
青岛大气中酸碱气体及 PM _{2.5} 中水溶性离子的浓度特征和气粒平衡关系 周佳佳,石金辉,李丽平,姚小红,高会旺(3135)
青岛大气中酸碱气体及 PM ₂₅ 中水溶性离子的浓度特征和气粒平衡关系 周佳佳,石金辉,李丽平,姚小红,高会旺(3135) 北京雾霾天大气颗粒物中微生物气溶胶的浓度及粒谱特征
·····································
2015 年春节北京市空气质量分析 程念亮,陈添,张大伟,李云婷,孙峰,魏强,刘嘉林,刘保献,孙瑞雯(3150)
上海市大气挥发性有机物化学消耗与臭氧生成的关系 王红丽(3159)
上海市大气挥发性有机物化学消耗与臭氧生成的关系
一种奉上 GULL 数1店的时 继系 a 依反 二.仅仅怕异保堂 ············
巢湖溶解性有机物时空分布规律及其影响因素 ····································
河北洨河溶解性有机物光谱学特性 虞敏达,张慧,何小松,檀文炳,张媛,马丽娜,席北斗,党秋玲,高如泰(3194)
东山岛地下水"三氮"空间分布特征 吴海燕, 傅世锋, 蔡晓琼, 汤坤贤, 曹超, 陈庆辉, 梁修雨(3203)
重庆典型岩溶区地下河中溶解态正构烷烃、脂肪酸来源、迁移及转化
全次兴生石福区地下将下部市场比较、加加坡水域、红沙及农民
硫酸对乌江中上游段岩溶水化学及 δ^{1} C _{DIC} 的影响····································
阆中市思依镇水化学特征及其成因分析 张艳,吴勇,杨军,孙厚云(3230)
东南沿海河流-水库系统藻类生长营养盐限制李节变动
水体氮磷當养盐水平与氯霉素浓度复合水体对苦草的生埋生化影响 胡珍珍,崔益斌,李梅,余静(3248)
浴澡活性物质对标囊澡浴澡及具脂肪酸影响的模拟 ····································
坡岸截留强化处埋设施在个问运行余件下对农业国源污染物去除效果 ············ 李怀止, 陈坷利, 危忠, 土卫则(3262)
坡岸截留强化处理设施在不同运行条件下对农业面源污染物去除效果
用水北姛升江口水件水泉(放)化泪每副广物广生行性与泪每上乙刈比 ····································
是氧-混凝交互作用对混凝效果的影响
吴丰·化炭、生作用为化炭、双木的影响
百侯小天氧化过程的尚 J 州侯敢益王风印影啊
们边及边料行业废水生物处理系统由的 Δ OV 污染研究 由洋洋 刘锐 徐灿灿 舒小纹 许江军 兰亚琼 陈吕军(3304)
印染及染料行业废水生物处理系统中的 AOX 污染研究 ······· 申洋洋,刘锐,徐灿灿,舒小铭,许江军,兰亚琼,陈吕军(3304) 螺旋霉素制药废水处理过程中耐药菌和抗性基因的转归特征 ········ 覃彩霞,佟娟,申佩弘,魏源送(3311) 两种膜生物反应器处理养猪沼液的比较研究 ····································
两种膜生物反应器外理差接沼涵的比较研究
农村污水膜生物反应器系统中微生物群落解析
四区—体反应器冬季启动脱氡特性及硝化菌群结构分析 张岩 孙凤侠 谢杭冀 陈敬 眭稀 廿志明 王修平 史扬(3339)
从亚硝酸环原厌氧氨氧化转变为硫酸盐则厌氧氨氧化
四区一体反应器冬季启动脱氮特性及硝化菌群结构分析 张岩,孙凤侠,谢杭冀,陈敬,眭稀,甘志明,王修平,史扬(3339) 从亚硝酸还原厌氧氨氧化转变为硫酸盐型厌氧氨氧化 刘正川,袁林江,周国标,李晶(3345) 提高有机负荷对好氧颗粒污泥形成与稳定过程的影响
党规施即条件下农田不同余经复麦提生的佰位研究 1714江由下游地区真王米季为例
「
厌氧条件下砂壤水稻土 N ₂ 、N ₂ O、NO、CO ₂ 和 CH ₄ 排放特征 ····································
·····································
黄土丘陵区不同有机碳背景下侵蚀坡面土壤呼吸特征············陈盖,许明祥,张亚锋,王超华,樊会敏,王闪闪(3383) 生物炭添加对半干旱地区土壤温室气体排放的影响····································
生物炭添加对半干旱地区土壤温室气体排放的影响 郭艳亮,王丹丹,郑纪勇,赵世伟,张兴昌(3393)
宁南山区林地土壤原位矿化过程中碳氮转化耦合特征 ····································
石漠化山地植被恢复过程土壤团聚体氮分布及与氮素矿化关系研究
一切,
江汉平原农田土壤有机碳分布与变化特点:以潜江市为例 ····· 土土竹, 肖和艾, 周淬, 重成立, 曷体达, 智池车, 吴金水(3422)
缙云山不同土地利用方式下土壤团聚体中活性有机碳分布特征 · · · · · · · 李睿,江长胜,郝庆菊(3429) 西北典型工矿型城市街道尘埃重金属污染的环境磁学响应 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
四北典型工矿型城市街担至埃里金禺行聚的环境懺字啊应 []
カー カ
电极厂问题环境中里金属万印存证及八种健康茶路风险计划 ************************************
要鱼上对商具的吸附与解吸特征
要芙莉对石油污染 <u>护碱土壤微生物</u> 群菠与石油烃降解的影响
四北典型工矿型城市街道至英里金属污染的环境磁学响应
· 上海 · 大海
北京市北袖树生活垃圾填埋场产甲烷菌的群落结构和油萃却律
城市分散式粪便颗粒化有机肥用作叶菜肥的肥力及环境影响 吕文洲, 乔字祥, 余宁, 史荣华, 王光明(3501)
V ₂ O ₅ -WO ₂ /TiO ₃ 催化剂与活性炭混合降解气相二 應 英····································
基于出行服务的纯电动公交车节能减排效益分析
我国挥发性有机物定义和控制指标的探讨
V_2O_3 - WO_3 / TiO_2 催化剂与活性炭混合降解气相二 哌 英
《环境科学》征订启事(3297) 《环境科学》征稿简则(3303) 信息(3127,3202,3277,3318)

从亚硝酸还原厌氧氨氧化转变为硫酸盐型厌氧氨氧化

刘正川,袁林江*,周国标,李晶

(西安建筑科技大学环境与市政工程学院,陕西省环境工程重点实验室,西北水资源与环境生态教育部重点实验室,西安 710055)

摘要:在 UASB 反应器内,研究了由亚硝酸盐型厌氧氨氧化转变为硫酸盐型厌氧氨氧化的过程及其微生物群落变化.结果表明,历时 177 d 成功实现了硫酸盐型厌氧氨氧化. 进水氨氮和硫酸盐浓度分别为 130 mg·L⁻¹和 500 mg·L⁻¹下,反应器对氨氮和硫酸盐的去除率分别达到 58.9%和 15.7%,对氨氮和硫酸盐的去除负荷为 74.3 mg·(L·d)⁻¹和 77.5 mg·(L·d)⁻¹,氮、硫损失摩尔比约为 2,出水 pH 值低于进水. 污泥中细菌从以球菌为主转变成以短杆菌为主,菌群中细菌由 *Candidatus brocadia* 为优势种转变为以 *Bacillus benzoevorans* 为优势种. 说明完成这两种厌氧氨氧化的优势菌不同,两种厌氧氨氧化并非同一种菌参与完成的.

关键词:生物脱氮;亚硝酸盐型厌氧氨氧化;硫酸盐型厌氧氨氧化;UASB;群落结构

中图分类号: X172; X703.1 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2015)09-3345-07 DOI: 10.13227/j. hjkx. 2015. 09.029

Achievement of Sulfate-Reducing Anaerobic Ammonium Oxidation Reactor Started with Nitrate-Reducting Anaerobic Ammonium Oxidation

LIU Zheng-chuan, YUAN Lin-jiang*, ZHOU Guo-biao, LI Jing

(Key Laboratory of Environmental Engineering of Shaanxi Province, Key Laboratory of Northwest Water Resources, Environment and Ecology, Ministry of Education, School of Environmental and Municipal Engineering, Xi'an University of Architecture and Technology, Xi'an 710055, China)

Abstract: The transformation of nitrite-reducing anaerobic ammonium oxidation to sulfate-reducing anaerobic ammonium oxidation in an UASB was performed and the changes in microbial community were studied. The result showed that the sulfate reducing anaerobic ammonium oxidation process was successfully accomplished after 177 days' operation. The removal rate of ammonium nitrogen and sulfate were up to 58.9% and 15.7%, the removing load of ammonium nitrogen and sulfate were 74.3 mg·(L·d)⁻¹ and 77.5 mg·(L·d)⁻¹ while concentration of ammonium nitrogen and sulfate of influent were 130 mg·L⁻¹ and 500 mg·L⁻¹, respectively. The lost nitrogen and sulphur was around 2 in molar ratio. The pH value of the effluent was lower than that of the influent. Instead of Candidatus brocadia in nitrite reducing anaerobic ammonium oxidation granular sludge, Bacillus benzoevorans became the dominant species in sulfate reducing anaerobic ammonium oxidation sludge. The dominant bacterium in the two kinds of anaerobic ammonium oxidation processes are carried out by different kind of bacterium.

Key words: biological nitrogen removal; nitrite reducing anaerobic ammonium oxidation; sulfate-reducing anaerobic ammonium oxidation; UASB; community structure

目前为止厌氧氨氧化被认为是一种有前途的生物脱氮途径 $^{[1-4]}$. 它是指在厌氧或缺氧条件下,微生物直接以氨为电子供体,以亚硝酸盐为电子受体,将两者转变成 N_2 的生物氧化过程 $^{[5-8]}$. 随着对厌氧氨氧化研究的深入,人们发现有时氨在厌氧环境中减少还伴随着硫酸盐的"丢失". 如 2001 年,Fdz-Polanco 等 $^{[9,10]}$ 在以颗粒活性炭为载体的厌氧流化床反应器处理甜菜酒糟废水时发现氨和硫酸盐同时减少. 随后,Zhang 等 $^{[11]}$ 和 Yang 等 $^{[12]}$ 研究表明,在厌氧环境中 SO_4^{2-} 和 NH_4^{+} 化学性质稳定,两者间不发生化学反应,而当在反应器中接种微生物以后,发现 SO_4^{2-} 和 NH_4^{+} 同步减少. 而 Liu 等 $^{[13]}$ 则进一步证明了硫酸盐型厌氧氨氧化是在微生物的作用下完成

的. 硫酸盐型厌氧氨氧化的存在得到了越来越多的证实^[14,15]. 近年来,人们又发现氨氮和硫酸盐的同步去除不仅可发生在实验室规模的人工强化系统中,自然界中也发现了类似的现象. Schrum 等^[16]对海底沉积物的一项研究表明海底厌氧环境中也存在着硫酸盐还原厌氧氨氧化现象. 由于污水中多存在一定浓度的硫酸盐^[17],因此硫酸盐型厌氧氨氧化的发生可以借助硫酸盐将氨态氮在厌氧环境中脱除,

收稿日期: 2015-02-02; 修订日期: 2015-04-06

基金项目: 国家水体污染控制与治理科技重大专项(2009ZX07212-

002)

作者简介: 刘元川(1988~),男,硕士研究生,主要研究方向为城市 水污染技术开发与理论, E-mail:zhengchuanliu@163.com

* 通讯联系人,E-mail:yuanlinjiang@ xauat.edu.cn

而不需要也不必像厌氧氨氧化那样,需要将氨态氮的一半转化为亚硝态氮(好氧亚硝化)才能和另一半氨态氮在厌氧环境下同时脱除.硫酸盐厌氧氨氧化为污水直接厌氧脱氨奠定了基础.

目前已有不少研究关注到硫酸盐型厌氧氨氧化的发生,但对于硫酸盐型厌氧氨氧化的启动特性及污泥中微生物重要菌群的动态变化、演替规律,尚未见报道.基于此,本研究以实验室成功富集到的亚硝酸盐型厌氧氨氧化污泥启动硫酸盐型厌氧氨氧化,并从污泥中微生物的群落结构出发,分析其种群特性.探求微生物群落改变与硫酸盐型厌氧氨氧化的内在联系,以期为新型生物脱氮除硫途径提供理论基础.

1 材料与方法

1.1 试验水质

试验装置采用直径 10 cm, 柱高 60 cm, 有效容积为 6.3 L 的升流式流化床反应器. 外侧为水浴保温层, 保温层外包裹黑布进行避光. 亚硝酸盐型厌氧氨氧化阶段的运行参数: 温度 35 \mathbb{C} ± 1 \mathbb{C} , pH 控制在 7.6 ± 0.5 之间, HRT = 1 d, 回流比为 5. 在进水氨氮和亚硝氮分别为 137.8 mg·L⁻¹ 和 165.7 mg·L⁻¹下, 反应器对它们的去除率能达到 94.8% 和 93.2%. 最大氮去除负荷达 0.32 kg·(m³·d) ⁻¹.

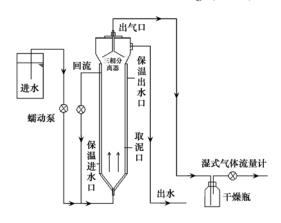


图 1 试验装置示意

Fig. 1 Schematic diagram of the reactor

1.2 污泥与试验废水

污泥为成功启动并稳定运行的传统厌氧氨氧化污泥。 SS: $5\,487\,\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$, VSS: $4\,354\,\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$, MLVSS/MLSS: 0.79; TN 容积负荷为 $0.568\,\text{kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$. 废水采用人工配水,其组成如下: NH₄Cl、NaNO₂ 和 Na₂SO₄ 按试验需要配制; KHCO₃ $500\,\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$; KH₂PO₄ $27\,\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$; CaCl₂ $180\,\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$; CaCl₂ $180\,\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$; CaCl₂ $180\,\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$; CaCl₃ $180\,\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$; CaCl₄ $180\,\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$; CaCl₅ $180\,\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$; CaCl₇ $180\,\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$; CaCl₈ $180\,\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$; CaCl₉ $180\,\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$

mg·L⁻¹; MgCl, 200 mg·L⁻¹; 微量元素^[18].

1.3 测定方法

1.3.1 常规指标分析

氨氮、亚硝氮、硝氮等水质指标测定均采用国家环保总局颁布的标准方法^[19]. 硫酸盐采用离子色谱法;pH值采用玻璃电极法;MLSS、MLVSS采用重量法;污泥粒径采用激光粒度分布仪测定、污泥微生物采用扫描电镜(SEM)观察.

1.3.2 微生物菌群分析

DGGE 所用仪器为 DCodeTM Universal Mutation Detection System (U. S. A, Bio-RAD Co). DGGE 电泳胶浓度为 8%, 其变性梯度范围为 40% ~ 70% (100%的变性剂中含有 7 $mol\cdot L^{-1}$ 的尿素和 40%的去离子甲酰胺),上量为 15 μ L 的 PCR 产物,运行条件为:在 1 × TAE 电缓冲液中,60℃条件下,130V 预沉 10 min,然后 80V 运行 12 h,电泳完成后,Gel Red染色 30 min,然后在紫外照射下观察电泳结果[20,21].

为防止同一泳道上的非特异性条带干扰后续试验,本研究对明亮的特异性条带割胶回收并进行二次 PCR 后,将所得产物进行克隆转化测序.

2 结果与讨论

2.1 硫酸盐型厌氧氨氧化的启动

将传统厌氧氨氧化反应器转变为硫酸盐型厌氧氨氧化反应器. 进水氨氮浓度保持为100 mg·L⁻¹不变,将进水中亚硝氮浓度由70 mg·L⁻¹逐步减少到20 mg·L⁻¹左右,同时增加硫酸盐浓度. 进出水中氨氮和亚硝氮浓度变化结果见图2和图3. 在开始的14 d里,氨氮的去除率为82.4%,亚硝氮的去除率达99.6%,而进、出水中硫酸盐的浓度几乎无变化,说明此阶段系统主要发生了亚硝酸盐型厌氧氨氧化. 由于硫酸盐型厌氧氨氧化作用还未显现,在降低进水亚硝氮浓度过程中,为防止氨氮浓度相对过高,同时也减少进水氨氮浓度. 因此控制氨氮浓度

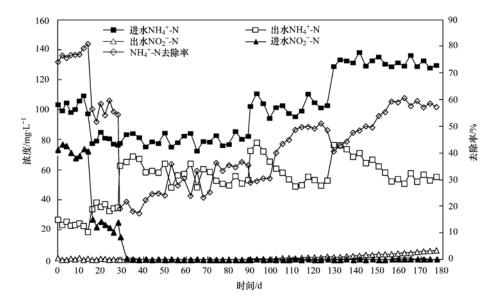


图 2 硫酸盐型厌氧氨氧化阶段氨氮和亚硝氮去除特性

Fig. 2 Removal of ammonium nitrogen and nitrite nitrogen in sulfate reducing anaerobic ammonium oxidation

为 80 mg·L⁻¹、亚硝氮为 25 mg·L⁻¹,硫酸盐浓度提 高为 200 mg·L⁻¹.

由于进水中亚硝氮浓度的降低使得厌氧氨氧化菌因缺乏电子受体而导致出水氨氮浓度升高,此时氨氮的去除率为 54.5%,亚硝氮的去除率接近100%,硫酸盐的去除率仅为 2.7%. 从第 29 d 开始进水中不再添加亚硝氮,维持进水氨氮浓度为 80 mg·L⁻¹、硫酸盐浓度为 200 mg·L⁻¹,此时氨氮的去除率下降至 19.2%,经过 61 d 的培养,氨氮的去除率提高至 35.5%,硫酸盐的去除率也增加至 12.7%,Liu等[13]研究指出硫酸盐型厌氧氨氧化的氮、硫去除摩尔比为 2,42. Fdz-Polanco等[22]研究表明硫酸盐型厌氧

氨氧化过程中会产生 NO₂ 等中间产物. 因此可以认为,此时系统中氨氮是在厌氧氨氧化菌和硫酸盐型厌氧氨氧化菌的共同作用下去除的. 提高进水氨氮浓度为 100 mg·L⁻¹、硫酸盐为 300 mg·L⁻¹,进水负荷的提高使得出水中氨氮和硫酸盐浓度迅速上升,然而经过 37 d 的培养驯化,出水中氨氮和硫酸盐浓度又回落到一个较低水平并趋于稳定.

第126 d 时氨氮的去除率为48.6%,硫酸盐的去除率为18.6%,氮、硫去除摩尔比为2.06,表明此过程中主要以硫酸盐型厌氧氨氧化为主.为了进一步提高氨氮和硫酸盐的去除效率,再次提高进水中氨氮和硫酸盐浓度分别为130 mg·L⁻¹和500 mg·L⁻¹.再经过48 d 的驯化培养至177 d 时氨氮和

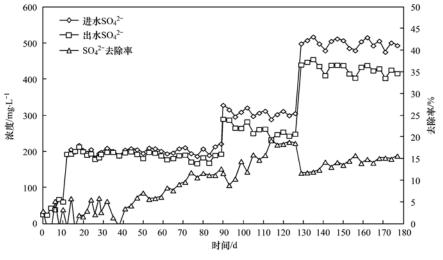


图 3 硫酸盐型厌氧氨氧化阶段硫酸盐去除特性

Fig. 3 Removal of sulfate in sulfate reducing anaerobic ammonium oxidation

硫酸盐的去除率分别为 58.9% 和 15.7%, 氨氮和硫酸盐的去除负荷分别为 $74.3 \text{ mg} \cdot (\text{L} \cdot \text{d})^{-1}$ 和 $77.5 \text{ mg} \cdot (\text{L} \cdot \text{d})^{-1}$, 氮、硫去除摩尔比为 2.19, 约为 2.5 氮和硫酸盐按摩尔比 N/S 为 2.10 同步去除,表明硫酸盐型厌氧氨氧化已成功启动.

2.2 启动过程硝氮和 pH 的变化

Jetten 等^[23]研究指出, 厌氧氨氧化过程会产生少量的硝氮. 因此硝氮的产量可以从侧面反应出厌氧氨氧化菌的增殖情况. 硫酸盐型厌氧氨氧化启动阶段硝氮的变化情况如图 4 所示. 整个阶段硝氮的生成量逐渐降低, 说明传统亚硝酸盐型厌氧氨氧化因缺少电子受体而受到抑制. 当进水中停止添加亚

硝氮,出水仍有 8.36 mg·L⁻¹的生成量,说明此时系统中仍以亚硝酸盐型厌氧氨氧化反应为主. 厌氧氨氧化菌利用硫酸盐型厌氧氨氧化过程中所产生 NO_2^- ,并将其氧化为硝氮,从而使得出水硝氮含量高于进水.

36 卷

随着反应时间的进行,亚硝酸盐型厌氧氨氧化菌受到抑制,硝氮的生成量逐渐降低. 赖杨岚等^[24]认为硫酸盐型厌氧氨氧化过程中产生的硫化物会和硝氮反应生成氮气和硫酸根或单质硫,从而使得出水硝氮浓度降低. 在本试验中,第105 d 首次检测到出水硝氮浓度低于进水硝氮浓度,到174 d 时硝氮的去除量达8.7 mg·L⁻¹.

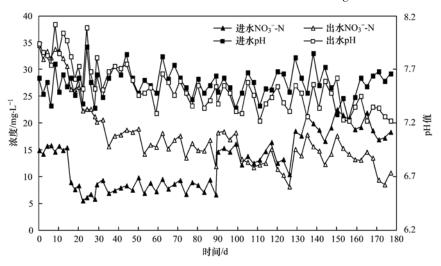


图 4 硫酸盐型厌氧氨氧化阶段硝氮及 pH 值的变化

Fig. 4 Variation of nitrate and pH in sulfate reducing anaerobic ammonium oxidation

前期反应器出水 pH 值比进水 pH 值略高,进一步降低进水亚硝氮浓度后,出水 pH 值也逐渐降低,但出水 pH 值始终高于进水. 唐崇俭等^[25]认为传统厌氧氨氧化反应消耗 H⁺能引起 pH 上升,因此在 0~29 d 里反应器主要以传统厌氧氨氧化为主. 当反应进行到 44 d 时,首次检测到出水 pH 值低于进水 pH. 在 44~177 d 阶段里,出水 pH 值进一步降低,说明硫酸盐型厌氧氨氧化是一个 pH 下降的产酸过程,同袁怡等^[26]研究结果一致. 因此可以将 pH 值的变化作为硫酸盐型厌氧氨氧化反应强弱的指标.

2.3 污泥及微生物形态特征

污泥性状如表 1 所示,0~29 d 由于进水亚硝氮浓度的降低,使得亚硝酸盐型厌氧氨氧化菌逐渐受到抑制,此时还未完全向硫酸盐型厌氧氨氧化的转变,因而 MLVSS/MLSS 降低到 0.73. 经过 61 d 的驯化培养,到 90 d 时 MLVSS/MLSS 提高了 0.01,这主要是因为硫酸盐型厌氧氨氧化的标准吉布斯自由能

变化值 ΔG 为 -45.35 kJ·mol $^{-1}$, 而 Zhang 等 $^{[11]}$ 认为 在低基质浓度下, ΔG 为正值, 而在高基质浓度下 ΔG 为负值. 因此, 反应物浓度可显著影响硫酸盐型 厌氧氨氧化反应. 而本阶段由于硫酸盐浓度还较低, 因此微生物增长较慢. 到 177 d 时 MLVSS/MLSS 提高到 0.77, 说明微生物在高基质浓度条件下增长 较快.

表 1 转变过程中污泥性状

Table 1 Sludge characteristics during the transformation

时间/d	MLSS/g \cdot L $^{-1}$	MLVSS/g \cdot L $^{-1}$	MLVSS/MLSS
0	5. 487	4. 354	0. 79
29	5. 214	3. 798	0.73
90	5. 372	3. 960	0.74
 177	5. 253	4. 052	0.77

从亚硝酸盐型厌氧氨氧化向硫酸盐型厌氧氨氧化转变过程中污泥粒径如表 2 所示,颗粒污泥粒径变化较小,粒径主要分布在 0.3~0.8 mm 之间.

表 2 反应器中颗粒污泥粒径变化

Table 2	Change	of size	of	granular	sludge	during	the	transformation
rabic 2	Change	OI SILC	OI	granulai	Siuuge	uuiiiig	uic	transionnation

时间/d	比例/%						
h.i lei) / a	< 0. 3 mm	0. 3 ~ 0. 8 mm	0.8 ~ 1.0 mm	1. 0 ~ 2. 0 mm	>2.0 mm		
0	16. 5	34. 7	18. 4	17. 4	13. 0		
90	18. 3	37. 9	15.7	16. 2	11.9		
177	17. 1	35. 3	18. 4	18.8	10. 4		

采用扫描电镜(SEM)对污泥进行观察,如图 5 所示,(a)为亚硝酸盐型厌氧氨氧化污泥中微生物,主要以球菌为主;(b)为经过177 d 驯化后的硫酸

盐型厌氧氨氧化污泥中微生物,主要以短杆菌为主, 长约 2~3 μm. 亚硝酸盐型厌氧氨氧化和硫酸盐型 厌氧氨氧化可能是由于不同细菌作用的结果.

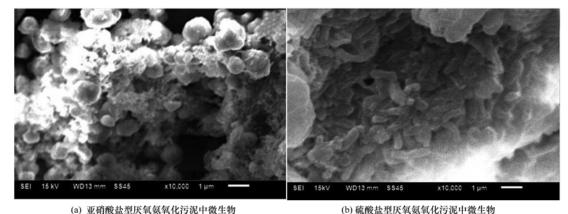


图 5 扫描电镜下污泥形态

Fig. 5 Sludge morphology of scanning electron microscope

2.4 微生物菌群结构解析

采用 PCR-DGGE 技术对反应器运行前后生物 菌群的变化情况进行了研究,如图 6 所示. A、B 分 别为亚硝酸盐型厌氧氨氧化污泥和硫酸盐型厌氧氨 氧化污泥微生物 DNA 的 DGGE 图谱. 将 DGGE 图 谱中的明亮条带 band1~band6 割胶回收采用二次 PCR 并进行克隆测序. 其测序结果登录 GenBank 进 行 BLAST 比对,结果显示 band2 序列同 Candidatus brocadia sinica (AB565477)的相似度为 100%,同时 将此序列信息提交 GenBank 数据库,命名为 Uncultured Candidatus brocadia sp. clone YLJ-1,基因 序列登录号 KM583866. Band1 序列和 Bacillus benzoevorans 16S rRNA gene (Y14693)的相似度为 100%, 在 GenBank 数据库中命名为 Uncultured bacillus sp. clone YLJ-2,基因登录号 KP336392. 运 用软件 ClustalX 及 MEGA 构建 16S rRNA 序列系统 发育树如图 7 所示.

BLAST 结果表明 6 条条带均与已知菌属序列表现出了较高的相似度,其中 band3 与已知菌属 Anaerolineaceae(厌氧绳菌)序列相似度为 100%; band4 与 Bacteroidetes(拟杆菌)序列相似度分别为 91%; Band5 同已知菌属 Nitrospira(硝化螺旋菌)序



图 6 PCR-DGGE 指纹图谱 Fig. 6 PCR-DGGE fingerprint

列相似度为96%,band6与已知菌属 Thiobacillus(硫杆菌)序列相似性度93%.从 DGGE 图谱中条带的亮度强弱可知,band5(硝化螺旋菌)随着硫酸盐取代亚硝氮后而被淘汰,相反 band6 的出现说明硫杆菌属能够更好地适应新环境并最终得以增殖;band3、band4 在 A、B 条带中均有所出现,变化不明

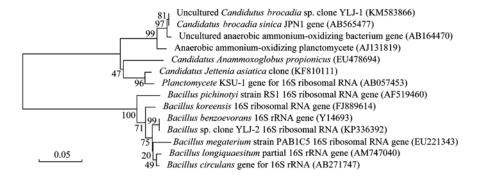


图 7 16S rRNA 序列发育树

Fig. 7 Molecular phylogenetic tree

显,在整个阶段始终存在,表明该类菌属对反应器中 进水环境的改变具有较强的适应能力,不属于系统 中功能性微生物菌群. band1、band2 条带亮度发生 最为明显的变化,表明 Bacillus(芽孢杆菌)能够适应 氨氮和硫酸盐共存的环境,并成为反应器中优势菌 群; 而 Candidatus brocadia 属则无法适应新环境致 使数量逐渐减少. 蔡靖等[27]研究发现,Bacillus 能够 在无分子态氧存在的条件下,以硫酸盐为电子受体 氧化氨,具有硫酸盐型厌氧氨氧化能力. 试验中反 映出硫酸盐型厌氧氨氧化的出现很可能是由于 Bacillus 的增殖引起的. 当 Bacillus 增殖并成为优势 菌属后,系统中便出现硫酸盐型厌氧氨氧化现象. 发育树表明, Uncultured Candidatus brocadia sp. clone YLJ-1 同 Uncultured bacillus sp. clone YLJ-2 16S rRNA gene 分别位于两个不同分支,亲缘关系较远, 属于不同种属.

3 结论

- (1)以传统亚硝酸盐型厌氧氨氧化污泥为污泥源可以实现硫酸盐型厌氧氨氧化反应器的启动. 历时 177 d 成功实现了硫酸盐型厌氧氨氧化. 进水氨氮和硫酸盐浓度分别为 130 mg·L⁻¹和 500 mg·L⁻¹下,反应器对氨氮和硫酸盐的去除率分别达到58.9%和 15.7%,对氨氮和硫酸盐的去除负荷为74.3 mg·(L·d)⁻¹和 77.5 mg·(L·d)⁻¹,氮、硫损失摩尔比为 2.19. 出水 pH 值低于进水.
- (2)污泥中细菌从以球菌为主转变成以短杆菌为主,菌群中细菌由 Candidatus brocadia 为优势种转变为以 Bacillus benzoevorans 为优势种. 说明完成这两种厌氧氨氧化的优势菌不同,两种厌氧氨氧化并非同一种菌参与完成的.

参考文献:

[1] Tsushima I, Ogasawara Y, Kindaichi T, et al. Development of

- high-rate anaerobic ammonium-oxidizing (ANAMMOX) biofilm reactors [J]. Water Research, 2007, 41(8): 1623-1634.
- [2] 唐崇俭,熊蕾,王云燕,等. 高效厌氧氨氧化颗粒污泥的动力学特性[J]. 环境科学, 2013, 34(9): 3544-3551.
- [3] Jin R C, Yang G F, Zhang Q Q, et al. The effect of sulfide inhibition on the ANAMMOX process [J]. Water Research, 2013, 47(3): 1459-1469.
- [4] 赵志瑞,侯彦林. 半短程亚硝化与厌氧氨氧化联合脱氮工艺 微生物特征研究进展[J]. 环境科学,2014,35(7):2834-2842.
- [5] Van De Graaf A A, Mulder A, De Bruijn P, et al. Anaerobic oxidation of ammonium is a biologically mediated process [J]. Applied and Environmental Microbiology, 1995, 61(4): 1246-1251.
- [6] Sumino T, Isaka K, Ikuta H, et al. Nitrogen removal from wastewater using simultaneous nitrate reduction and anaerobic ammonium oxidation in single reactor [J]. Journal of Bioscience and Bioengineering, 2006, 102(4): 346-351.
- [7] Kartal B, Kuypers M M M, Lavik G, et al. Anammox bacteria disguised as denitrifiers: nitrate reduction to dinitrogen gas via nitrite and ammonium[J]. Environmental Microbiology, 2007, 9 (3): 635-642.
- [8] Sabumon P C. Development of a novel process for anoxic ammonia removal with sulphidogenesis [J]. Process Biochemistry, 2008, 43(9): 984-991.
- [9] Fdz-Polanco F, Fdz-Polanco M, Fernandez N, et al. Simultaneous organic nitrogen and sulfate removal in an anaerobic GAC fluidised bed reactor[J]. Water Science and Technology, 2001, 44(4): 15-22.
- [10] Fdz-Polanco F, Fdz-Polanco M, Fernandez N, et al. Combining the biological nitrogen and sulfur cycles in anaerobic condition [J]. Water Science and Technology, 2001, 44(8): 77-84.
- [11] Zhang L, Zheng P, He Y H, et al. Performance of sulfate-dependent anaerobic ammonium oxidation [J]. Science in China Series B; Chemistry, 2009, 52(1); 86-92.
- [12] Yang Z Q, Zhou S Q. Simultaneous removal of ammonium and sulfate from synthetic wastewater by anaerobic biodegradation [J]. Ecological Science, 2008, 27(5): 427-428.
- [13] Liu S T, Yang F L, Gong Z, et al. Application of anaerobic

- ammonium-oxidizing consortium to achieve completely autotrophic ammonium and sulfate removal [J]. Bioresource Technology, 2008, 99(15): 6817-6825.
- [14] Zhao Q L, Li W, You S J. Simultaneous removal of ammoniumnitrogen and sulphate from wastewaters with an anaerobic attached-growth bioreactor [J]. Water Science and Technology, 2006, 54(8): 27-35.
- [15] 祝静, 袁林江, 魏勃. 厌氧产氢 ASBR 对氮的脱除[J]. 环境工程学报, 2014, **8**(4): 1273-1277.
- [16] Schrum H N, Spivack A J, Kastner M, et al. Sulfate-reducing ammonium oxidation: A thermodynamically feasible metabolic pathway in subseafloor sediment[J]. Geology, 2009, 37 (10): 943-946.
- [17] 刘华平,李田,段小平. 污水管道的硫化氢腐蚀及其控制 [J]. 市政技术,2004,22(5):282-284,310.
- [18] Van de Graaf A A, De Bruijn P, Robertson L A, et al. Autotrophic growth of anaerobic ammonium-oxidizing microorganisms in a fluidized bed reactor [J]. Microbiology, 1996, 142(8): 2187-2196.
- [19] 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.

- [20] Wu M L, Chen L M, Tian Y Q, et al. Degradation of polycyclic aromatic hydrocarbons by microbial consortia enriched from three soils using two different culture media [J]. Environmental Pollution, 2013, 178: 152-158.
- [21] 刘新春,吴成强,张昱. PCR-DGGE 法用于活性污泥系统中 微生物群落结构变化的解析[J]. 生态学报, **25**(4): 842-847.
- [22] Fdz-Polanco F, Fdz-Polanco M, Fernand N, et al. New process for simultaneous removal of nitrogen and sulphur under anaerobic conditions [J]. Water Research, 2001, 35(4); 1111-1114.
- [23] Jetten M S M, Strous M, Van De Pas-Schoonen K T, et al. The anaerobic oxidation of ammonium [J]. FEMS Microbiology Reviews, 1998, 22(5): 421-437.
- [24] 赖杨岚,周少奇. 硫酸盐型厌氧氨氧化反应器的启动特征分析[J]. 中国给水排水,2010,26(15):41-44.
- [25] 唐崇俭,郑平,张蕾. 厌氧氨氧化菌富集培养技术的研究与应用[J]. 化工进展, 2009, **28**(8): 1421-143.
- [26] 袁怡, 黄勇, 李祥, 等. 硫酸盐还原-氨氧化反应的特性研究 [J]. 环境科学, 2013, **34**(11): 4362-4369.
- [27] 蔡靖, 蒋坚祥, 郑平. 一株硫酸盐型厌氧氨氧化菌的分离和 鉴定[J]. 中国科学: 化学, 2010, **40**(4): 421-426.

HUANJING KEXUE

Environmental Science (monthly)

Vol. 36 No. 9 Sep. 15, 2015

CONTENTS

Estimation of PM _{2.5} Concentration over the Yangtze Delta Using Remote Sensing: Analysis of Spatial and Temporal Variations	
Seasonal and Spatial Variations of Carbon Fractions in PM _{2.5} in Ningbo and the Estimation of Secondary Organic Carbon	
Concentrations of Acidic Gases, Ammonia and Related Water-Soluble Ions in PM _{2,5} and Gas-Particle Partitioning in Qingdao ···	
Concentration and Particle Size Distribution of Microbiological Aerosol During Haze Days in Beijing	HU Ling-fei, ZHANG Ke, WANG Hong-bao, et al. (3144)
Air Quality Characteristics in Beijing During Spring Festival in 2015	
Chemical Loss of Volatile Organic Compounds and Its Impact on the Formation of Ozone in Shanghai	
Removal of Waste Gas Containing Mixed Chlorinated Hydrocarbons by the Biotrickling Filter	
A Three Band Chlorophyll-a Concentration Estimation Model Based on GOCI Imagery	
Temporal and Spatial Distribution Characteristics of Dissolved Organic Matter and Influencing Factors in Lake Chaohu	
Spectral Characteristic of Dissolved Organic Matter in Xiaohe River, Hebei	
Spatial Variation of Ammonia-N, Nitrate-N and Nitrite-N in Groundwater of Dongshan Island	
Sources, Migration and Conversion of Dissolved Alkanes, Dissolved Fatty Acids in a Karst Underground River Water, in Chongg	ning Area
	LIANG Zuo-bing, SUN Yu-chuan, WANG Zun-bo, et al. (3212)
Influence of Sulfuric Acid to Karst Hydrochemical and $\delta^{13}C_{DIC}$ in the Upper and Middle Reaches of the Wujiang River	
Hydrochemical Characteristic and Reasoning Analysis in Siyi Town, Langzhong City	
Seasonal Variation on Nutrient Limitation for Phytoplankton Growth in a Coastal River-Reservoir System, Southeast China	
Physiological Effect of Vallisneria natans Under Different Concentrations of Nitrogen, Phosphorus and Chloramphenicol	
Effects of Algicidal Substance on Phaeocystis globosa and Its Fatty Acids by the Simulation Experiment	
Agricultural Non-Point Source Pollutants Removal by Enhanced Riverbank Interception Facilities Under Different Operating Condi	
Speciation Distribution and Risk Assessment of Heavy Metals in Typical Material Roof Dusts	
Formation of Disinfection By-Products During Chlor(am) ination of Danjiangkou Reservoir Water and Comparison of Disinfection	
Total and the Desire of the Company	······ ZHANG Min-sheng XII Bin ZHANG Tian-yang et al. (3278)
Effects of Interaction of Ozonation and Coagulation on Coagulation Results	
Effects of Anions on Bromate Formation During Ozonation of Bromide-Containing Water	
XAS Analysis upon Dissolved Species of Orpiment in Anoxic Environment	
AOX Pollution in Wastewater Treatment Process of Dyeing and Dyestuff Chemical Industries	
Fate of ARB and ARGs During Wastewater Treatment Process of Spiramycin Production	
A Comparative Study on Two Membrane Bioreactors for the Treatment of Digested Piggery Wastewater	
Analysis of Microbial Community in the Membrane Bio-Reactor (MBR) Rural Sewage Treatment System	
Start-up Characteristics of Four-zone Integrated Reactor for Nitrogen Removal in Winter and Analysis of Nitrobacteria Community	
Achievement of Sulfate-Reducing Anaerobic Ammonium Oxidation Reactor Started with Nitrate-Reducing Anaerobic Ammonium Oxidation Reactor Started Nitrate-Reducing Nitrate	
Achievement of Sunate-Aeducing Anaerobic Ammontum Oxidation Reactor Started with Nitrate-Aeducing Anaerobic Ammontum C	Oxidation LIII Thomashuan VIIAN Lin Hans ZHOU Cue kies at al. (2245)
Effect of Increasing Organic Loading Rate on the Formation and Stabilization Process of Aerobic Granular Sludge	
Nitrogen Loss Through Different Ways in Cropland Under Conventional Fertilization: An In-situ Study of Summer Maize Season in	n the middle and Lower Reaches of the Tangize River
Effects of Water and Nitrogenous Fertilizer Coupling on CH ₄ and N ₇ O Emission from Double-Season Rice Paddy Field	
Characteristics of N ₂ , N ₂ O, NO, CO ₂ and CH ₄ Emissions in Anaerobic Condition from Sandy Loam Paddy Soil	
Characteristics of Soil Respiration along Eroded Sloping Land with Different SOC Background on the Hilly Loess Plateau	
Effect of Biochar on Soil Greenhouse Gas Emissions in Semi-arid Region	
Characteristics and Coupling Relationship of Soil Carbon and Nitrogen Transformation During In-situ Mineralization Cultivation in	rorestiands in the mountain Area of Southern Ningxia
Nitrogen Fraction Distributions and Impacts on Soil Nitrogen Mineralization in Different Vegetation Restorations of Karst Rocky D	resemination
Distribution and Dynamics of Cropland Soil Organic Carbon in Jianghan Plain; A Case Study of Qianjiang City	
Impact of Land Utilization Pattern on Distributing Characters of Labile Organic Carbon in Soil Aggregates in Jinyun Mountain Magnetic Responses of Heavy Metals in Street Dust of Typical Mine-Based City, Northwest China	
Distribution Characteristics of Heavy Metals in Environmental Samples Around Electroplating Factories and the Health Risk Asses	ssment CUO D. LELV. : (7HOLLO: 1: / (2447)
Homologues Levels and Distribution Pattern of Polychlorinated Biphenyls in Typical Capacitor Contaminated Soil Adsorption and Desorption Characteristics of Endosulfan in Purple Soil	
·	
Influence of Mirabilis jalapa Linn. Growth on the Microbial Community and Petroleum Hydrocarbon Degradation in Petroleum Co	ontaminated Saline-alkali Soil
Al ^{3 +} Absorption and Assimilation by Four Ectomycorrhizal Fungi	
Contamination of Organophosphorus Pesticides Residue in Fresh Vegetables and Related Health Risk Assessment in Changehun,	
Community Structure and Succession of Methanogens in Beishenshu Landfill, Beijing	
Fertility and Environmental Impacts of Urban Scattered Human Feces Used as Organic Granular Fertilizer for Leaf Vegetables	LU Wen-zhou, QIAO Yu-xiang, YU Ning, et al. (3501)
Degradation of PCDD/Fs by the Mixture of V ₂ O ₅ -WO ₃ /TiO ₂ Catalyst and Activated Carbon	REN Yong, JI Sha-sha, YU Ming-feng, et al. (3508)
Energy Conservation and Emissions Reduction Benefits Analysis for Battery Electric Buses Based on Travel Services	

《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 刘 毅 汤鸿霄 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

环维种草

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2015年9月15日 第36卷 第9期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 36 No. 9 Sep. 15, 2015

		<u>, , , , , , , , , , , , , , , , , , , </u>			
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
协	办	(以参加先后为序)			Academy of Sciences
		北京市环境保护科学研究院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental
		清华大学环境学院			Protection
主	编	欧阳自远			School of Environment, Tsinghua University
编	辑	《环境科学》编辑委员会	Editor-in -Chief		OUYANG Zi-yuan
>m	7-4	北京市 2871 信箱(海淀区双清路	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science (HUANJING
		18号,邮政编码:100085)			KEXUE)
		电话:010-62941102,010-62849343			P. O. Box 2871, Beijing 100085, China
		传真:010-62849343			Tel:010-62941102,010-62849343; Fax:010-62849343
		E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn			E-mail; hjkx@ rcees. ac. cn
		http://www.hjkx.ac.cn			http://www. hjkx. ac. en
出	版	4 学业版社	Published	by	Science Press
_	,	北京东黄城根北街 16 号			16 Donghuangchenggen North Street,
		邮政编码:100717			Beijing 100717, China
印刷装	も订	北京北林印刷厂	Printed	by	Beijing Bei Lin Printing House
发	行	斜华出版社	Distributed	by	Science Press
		电话:010-64017032			Tel:010-64017032
		E-mail:journal@mail.sciencep.com			E-mail:journal@mail.sciencep.com
订购	处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总统	发行	中国国际图书贸易总公司	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji
		(北京 399 信箱)			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:120.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行