

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第3期

Vol.39 No.3

2018

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

长三角典型站点冬季大气 $PM_{2.5}$ 中 OC、EC 污染特征	康晖, 朱彬, 王红磊, 施双双 (961)
南京北郊能见度变化中二次无机盐消光的重要作用	于超, 于兴娜, 赵天良, 张蕾, 马国煦, 王咏薇 (972)
常州夏冬季 $PM_{2.5}$ 中无机组分昼夜变化特征与来源解析	刘佳澍, 顾远, 马帅帅, 苏亚兰, 叶招莲 (980)
天津市春季道路降尘 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 中的元素特征	王士宝, 姬亚芹, 李树立, 张伟, 张蕾 (990)
北京、新乡夏季大气颗粒物中重金属的粒径分布及人体健康风险评价	张鑫, 赵小曼, 孟雪洁, 王小颖, 杨帅, 许晓鹏, 王书亭, 谷超, 王梦蕾, 任浩, 张子洋, 闫广轩, 曹治国, 王跃思 (997)
山西省武乡县城大气 $PM_{2.5}$ 痕量重金属的生态和健康风险分析	郭墨霞, 耿红, 张晋宏, 周欢, 彭妍, 翟帅营, 李金磊, 陈雨杉 (1004)
隧道中机动车排放颗粒物及无机元素特征	李凤华, 张衍杰, 张静, 袁远, 吴琳, 毛洪钧 (1014)
河南省 2013 年大气氨排放清单建立及分布特征	王琛, 尹沙沙, 于世杰, 卫军华, 谷幸珂, 官密秘, 张瑞芹 (1023)
城市道路行道树池裸地扬尘排放特征	李贝贝, 秦建平, 祁丽荣, 杨涛, 曲松, 石爱军, 黄玉虎 (1031)
DOC 和 CDPF 对柴油公交车颗粒物组分影响	楼狄明, 耿小雨, 宋博, 谭丕强, 胡志远, 刘继跃 (1040)
南水北调中线工程总干渠河南段原水中消毒副产物前体物变化规律	黄飘逸, 徐斌, 郭东良 (1046)
广州市流溪河水体中 6 种内分泌干扰素时空分布特征与环境风险	樊静静, 王赛, 唐金鹏, 戴玉女, 王林, 龙胜兴, 何文祥, 刘帅磊, 王佳希, 杨扬 (1053)
西藏拉萨河流域河水主要离子化学特征及来源	张清华, 孙平安, 何师意, 文化, 刘明隆, 于爽 (1065)
太子河下游河流硝酸盐来源及其迁移转化过程	李艳利, 杨梓睿, 尹希杰, 孙伟 (1076)
海南岛北部海湾沉积物重金属来源、分布主控因素及生态风险评价	曾维特, 杨永鹏, 张东强, 刘兵, 张航飞, 吴多誉, 王晓林 (1085)
天津农田重金属污染特征分析及降雨沥浸影响	许萌萌, 刘爱凤, 师荣光, 蓝靖, 田永, 赵宗山 (1095)
太湖出入湖河道与湖体水质季节差异分析	查慧铭, 朱梦圆, 朱广伟, 杨周生, 许海, 沈睿杰, 钟春妮 (1102)
春季敏感时期三峡水库典型支流沉积物-水界面氮释放特性	李欣, 宋林旭, 纪道斌, 刘德富, 苏青青, 吕林鹏, 王雄, 黄亚男, 吴庆 (1113)
不同湖泊入湖河流沉积物可转化态氮的空间分布及其影响因素	周睿, 袁旭音, Marip Ja Bawk, 于辉辉, 章琪, 唐豆豆 (1122)
水文气象因素对东南山区水库硅藻异常增殖的影响	孙祥, 朱广伟, 笄文怡, 余茂蕾, 杨文斌, 朱梦圆, 许海, 国超旋, 余丽 (1129)
深水型水库热分层诱导水质及真菌种群结构垂向演替	商潘路, 陈胜男, 黄廷林, 张海涵, 康鹏亮, 王跃, 刘珍芳, 刘彤彤 (1141)
太湖竺山湾春季浮游细菌群落结构及影响因素	薛银刚, 刘菲, 孙萌, 江晓栋, 耿金菊, 滕加泉, 谢文理, 张皓, 陈心一 (1151)
分层型水源水库沉积物需氧量特性	苏露, 黄廷林, 李楠, 张海涵, 文刚, 李扬, 陈家炜, 王晓江 (1159)
污水氮浓度和 NH_4^+ / NO_3^- 比对粉绿狐尾藻去氮能力和植物体氮组分的影响	马永飞, 杨小珍, 赵小虎, 胡承孝, 谭启玲, 孙学成, 吴金水 (1167)
水体氮磷营养负荷对苦草净化能力和光合荧光特性的影响	周裔文, 许晓光, 韩睿明, 周晓红, 冯德友, 李致春, 王国祥 (1180)
化学预氧化耦合生物锰氧化对水中有机物的去除	菅之奥, 常洋洋, 王立新, 梁金松, 柏耀辉 (1188)
铜铁氧体法处理模拟染料废水	韩志勇, 韩昆, 郝昊天, 于建伟, 石宝友, 庄媛, 孔岩 (1195)
草酸根对 α -FeOOH 多相 UV-Fenton 催化能力的增效实验	苗笑增, 戴慧旺, 陈建新, 蒋柏泉, 龚炯 (1202)
生物质基纳米 HZO 杂化材料的研制及其除磷特性	邱慧, 秦智峰, 刘凤玲, 梁晨, 宋明霞, 许正文, 管益东 (1212)
铁锰氧化物/生物炭复合材料对水中硝酸根的吸附特性	郑晓青, 韦安磊, 张一璇, 史良干, 张潇 (1220)
PAAm/HACC 半互穿网络水凝胶的制备及其对水中腐殖酸的吸附性能	刘泽琨, 周少奇, 马福臻 (1233)
二氧化钛对地下水砷的吸附及再生回用	马文静, 阎莉, 张建锋 (1241)
一体式絮体-超滤工艺去除腐殖酸效能与机制	李文江, 于莉芳, 苗瑞, 马百文 (1248)
中国城镇污水处理厂温室气体排放时空分布特征	闫旭, 邱德志, 郭东丽, 齐星昊, 郑仕侃, 程轲, 孙剑辉, 刘建伟 (1256)
硝化耦合 CANON 的铁锰氮生物净化工艺启动与运行	李冬, 曹瑞华, 杨航, 王艳菊, 吕赛赛, 张杰 (1264)
纤维载体的生物膜 CANON 反应器的启动特性	顾澄伟, 陈方敏, 李祥, 黄勇, 尤星怡, 金润, 张文静, 董石语 (1272)
DO/NH_4^+-N 实现短程硝化过程中生物膜特性	赵青, 卞伟, 李军, 王文啸, 孙艺齐, 梁东博, 张舒燕 (1278)
AUSB 中置曝气对 CANON 颗粒污泥工艺的影响	成朔, 李冬, 张杰, 李帅, 曹瑞华, 吕赛赛 (1286)
有机碳源对启动及运行 CANON 颗粒污泥工艺的影响	李冬, 王艳菊, 吕育锋, 曹瑞华, 李帅, 张杰 (1294)
中试一体式部分亚硝化-厌氧氨氧化反应器的启动与区域特性	周正, 王凡, 林兴, 董石语, 朱强, 李祥, 黄勇 (1301)
硝化液回流比对 ABR-MBR 工艺反硝化除磷效能的影响	吕亮, 尤雯, 张敏, 吴鹏, 沈耀良 (1309)
磁性纳米铁对厌氧颗粒污泥特性及其微生物群落的影响	宿程远, 郑鹏, 卢宇翔, 袁秋红, 赵力剑, 廖黎明, 黄智 (1316)
好氧颗粒污泥系统中溶解性微生物代谢产物的特征及主要组分	杨丹, 刘东方, 杜丽琼, 黄文力 (1325)
环丙沙星对膜生物反应器中微生物群落及抗性基因的影响	戴琦, 刘锐, 梁玉婷, 舒小铭, 徐灿灿, 陈吕军 (1333)
CEM-UF 组合膜-硝化/反硝化系统处理低 C/N 废水及种群结构分析	邢金良, 张岩, 陈昌明, 张博康, 郭威, 马翔山 (1342)
磷对混养反硝化污泥活性和微生物群落结构的影响	王佩琦, 周伟丽, 何圣兵, 黄荣振 (1350)
甲烷厌氧氧化协同硝酸盐还原菌群驯化及其群落特征	薛松, 张梦竹, 李琳, 刘俊新 (1357)
城市尾水排海过程中微生物及主要致病菌扩散规律	徐爱玲, 牛成洁, 宋志文, 郎秀璐, 郭明月 (1365)
氧四环素的微生物燃料电池处理及微生物群落	严伟富, 肖勇, 王淑华, 丁蕊, 赵峰 (1379)
近 30 年余干县耕地土壤碳氮比时空变异特征及其影响因素	江叶枫, 钟珊, 李婕, 王澜珂, 卞荣禧 (1386)
中宁枸杞土壤碳组分分布特征及其空间异质性	王幼奇, 赵云鹏, 白一茹, 张兴 (1396)
滨海滩涂围垦区不同围垦年限土壤酶活性变化及其与理化性质关系	解雪峰, 濮励杰, 王琪琪, 朱明, 王小涵 (1404)
青藏高原中东部表层土壤中多环芳烃的分布特征、来源及生态风险评价	周雯雯, 李军, 胡健, 朱兆洲 (1413)
基于 UNMIX 模型的矿区周边农田土壤金属源解析	卢鑫, 胡文友, 黄标, 李元, 祖艳群, 湛方栋, 卞荣禧 (1421)
铁锰双金属材料在不同 pH 条件下对土壤 As 和重金属的稳定化作用	费群, 阎秀兰, 李永华 (1430)
我国 3 个城市人体血清中新型溴代阻燃剂水平趋势及分布特征	王庆华, 袁浩东, 金军, 李鹏, 马玉龙, 王英 (1438)
《环境科学》征订启事 (979) 《环境科学》征稿简则 (996) 信息 (1022, 1064, 1293)	

磁性纳米铁对厌氧颗粒污泥特性及其微生物群落的影响

宿程远^{1,2}, 郑鹏¹, 卢宇翔¹, 袁秋红¹, 赵力剑¹, 廖黎明¹, 黄智¹

(1. 广西师范大学环境与资源学院, 桂林 541004; 2. 广西师范大学岩溶生态与环境变化研究广西高校重点实验室, 桂林 541004)

摘要: 考察了磁性纳米铁(Fe_3O_4 NPs)对厌氧颗粒污泥溶解性微生物产物(SMP)、疏松胞外聚合物(LB-EPS)、紧密胞外聚合物(TB-EPS)的影响, 同时利用高通量测序技术对厌氧颗粒污泥内微生物群落结构的变化进行了分析. 结果表明, 在长期接触实验过程中, 投加 Fe_3O_4 NPs的反应器对COD去除率为83.6%, 与对照组相比降低了5.7%. 对照组与实验组中厌氧颗粒污泥TB-EPS含量(以VSS计)分别为178.20 $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 和138.24 $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$, 而SMP含量分别为34.88 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和27.44 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$; 同时投加 Fe_3O_4 NPs后, 在LB-EPS三维荧光(EEM)光谱中, 紫外光区类腐殖酸荧光峰消失, 辅酶F₄₂₀荧光峰强度有所降低. 在长期接触实验后, 甲烷杆菌属(*Methanobacterium*)所占比例从76.15%增至86.76%, 而甲烷丝菌属(*Methanothrix*)所占比例从17.1%降至7.51%, *Methanothrix*对于 Fe_3O_4 NPs更为敏感; 总细菌群落变化明显, 其中变形菌门(Proteobacteria)所占比例从66.44%降至47.16%, 放线菌门(Actinobacteria)所占比例从8.97%增至17.33%, 拟杆菌门(Bacteroidetes)所占比例从8.07%增至17.74%, 厚壁菌门和拟杆菌门比例的增加对有机物的厌氧水解过程发挥积极的作用.

关键词: 磁性纳米铁; 厌氧颗粒污泥; 长期接触; 胞外聚合物; 微生物群落

中图分类号: X172; X703.1 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)03-1316-09 DOI: 10.13227/j.hjks.201707138

Effects of Magnetic Fe_3O_4 Nanoparticles on the Characteristics of Anaerobic Granular Sludge and Its Interior Microbial Community

SU Cheng-yuan^{1,2}, ZHENG Peng¹, LU Yu-xiang¹, YUAN Qiu-hong¹, ZHAO Li-jian¹, LIAO Li-ming¹, HUANG Zhi¹

(1. School of Environment and Resources, Guangxi Normal University, Guilin 541004, China; 2. University Key Laboratory of Karst Ecology and Environmental Change of Guangxi, Guangxi Normal University, Guilin 541004, China)

Abstract: In this study, the effects of magnetic Fe_3O_4 nanoparticles (Fe_3O_4 NPs) on soluble microbial products (SMP), loosely bound extracellular polymeric substances (LB-EPS), and tightly bound extracellular polymeric substances (TB-EPS) in anaerobic granular sludge were examined. In addition, the anaerobic granular sludge interior microbial community dynamics were investigated using high-throughput sequencing. The results demonstrated that the removal rate of COD was 83.6% after long-term exposure in the experimental reactor, namely, the anaerobic reactor containing Fe_3O_4 NPs. It was reduced by 5.7% in comparison with the removal rate in the control reactor. The total amount of TB-EPS in anaerobic granular sludge in the experimental and control reactors was 178.20 $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ and 138.24 $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$, respectively, while the total amount of SMP in anaerobic granular sludge was 34.88 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ and 27.44 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$, respectively. With regard to the LB-EPS in anaerobic granular sludge in the experimental reactor, the peak of humic acid disappeared and the peak intensity of coenzyme F₄₂₀ decreased slightly using excitation-emission matrix (EEM) fluorescence spectra. In terms of the microbial community dynamics in the experimental reactor, the abundance of *Methanobacterium* was greatly augmented from 76.15% to 86.76%; whereas, the abundance of *Methanothrix* decreased from 17.1% to 7.51%. This indicated that *Methanothrix* was more sensitive to Fe_3O_4 NPs. Moreover, the changes in bacterial communities were evident: ① the abundance of Proteobacteria dropped from 66.44% to 47.16%; ② the abundance of Actinobacteria grew from 8.97% to 17.33%; and ③ the abundance of Bacteroidetes increased from 8.07% to 17.74%. The increasing abundance of Actinobacteria and Bacteroidetes plays a positive role in the anaerobic hydrolysis of organic matter.

Key words: magnetic Fe_3O_4 nanoparticles; anaerobic granular sludge; long exposure; extracellular polymer substrates; microbial community

头孢类抗生素具有抗菌谱广、杀菌力强的特点, 是国内外临床应用最多的抗感染药物之一^[1,2], 大量的市场需求使得我国头孢类药物产量逐年增加. 然而抗生素在为人类及动物健康作出贡献的同时, 其对环境与人类所产生的潜在危害, 特别是抗生素废水的有效处理, 引起了人们的广泛关注. 当

前抗生素废水的处理多以生物处理为主体, 包括活

收稿日期: 2017-07-17; 修订日期: 2017-09-07

基金项目: 国家自然科学基金项目(51641803); 广西自然科学基金项目(2015GXNSFAA139267); 广西研究生教育创新计划项目(XYCSZ2017062)

作者简介: 宿程远(1981~), 男, 博士, 副教授, 主要研究方向为废水及污泥处理理论与技术, E-mail: suchengyuan2008@126.com

性污泥法与厌氧生物处理技术等,但由于抗生素的自身特点,使得传统生物处理方法不能将废水中残留的抗生素进行高效地去除^[3~5]。

近年来,高级氧化法(AOPs)被认为是处理含有毒性与难生物降解废水的具有潜力的技术^[6]。在AOPs中,芬顿技术因其处理高效、操作简便、反应条件温和而被人们所接受^[7~9]。特别是多相类芬顿技术,由于其具有工作区pH条件宽、无铁泥处理问题和有机污染物去除高效等优点被诸多学者广泛研究^[10]。当前多相类芬顿技术实际应用的关键因素之一就是催化剂的制备与选择,磁性纳米 Fe_3O_4 (Fe_3O_4 NPs)具备制备和改性容易、毒性低、反应活性高、易在外部磁场的作用下实现回收利用这些优点而受到人们的青睐,其作为催化剂所构成的多相类芬顿体系对难生物降解有机物具有良好的去除效果^[11~13]。同时芬顿反应组合生物工艺处理工业废水也引起了人们的浓厚兴趣^[13,14]。然而当前人们对多相类芬顿反应的研究更多关注高效催化剂的制备与降解有机污染物最佳反应条件的确定^[15],多相类芬顿反应组合生物工艺用于处理工业废水的研究还鲜有报道;且与均相芬顿反应不同,多相类芬顿反应体系中由于存在催化剂,催化剂可能进入后续的生物处理反应器中,因此催化剂对生物处理单元的影响也应当引起人们的重视,但当前对此还缺乏系统研究。

鉴于此,本文系统探讨了 Fe_3O_4 NPs作为多相类芬顿催化剂对厌氧颗粒污泥的影响。首先研究了 Fe_3O_4 NPs对厌氧颗粒污泥去除有机污染物的影响;继而对 Fe_3O_4 NPs对厌氧颗粒污泥溶解性微生物产物(SMP)、疏松胞外聚合物(LB-EPS)、紧密胞外聚合物(TB-EPS)的含量与组分的影响进行了分析;而后利用扫描电镜(SEM)、高通量测序对长期暴露于 Fe_3O_4 NPs下,厌氧颗粒污泥的表观形态、污泥中古细菌与总细菌的群落结构进行了探讨,以期为保障 Fe_3O_4 NPs多相类芬顿-厌氧生物有效处理提供科学的指导。

1 材料与方法

1.1 实验材料

Fe_3O_4 NPs购于华北金属材料某有限公司,称取100 mg Fe_3O_4 NPs置于1 L超纯水(pH 6.9)超声1 h(250 W, 40 Hz),此悬浮液经动态光散射(Malvern Instruments Ltd, UK)分析得平均粒径为60~80 nm。厌氧颗粒污泥取自广西某啤酒厂厌氧发酵罐的颗粒污泥,其粒径为1.5~3.0 mm。

本实验使用人工配制COD浓度为2000 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 左右的抗生素废水,为了降低头孢氨苄本身对于厌氧颗粒污泥的抑制,控制头孢氨苄的浓度,具体成分如下($\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$):头孢氨苄(20)、葡萄糖(3000)、 NH_4Cl (200)、 KH_2PO_4 (44)、 NaHCO_3 (2000);配制废水的pH值为7.0~7.5。

1.2 实验方法

厌氧反应装置为250 mL锥形瓶两个,其中一个为对照组,另一个为实验组。对照组(A)不投加 Fe_3O_4 NPs,实验组(B)中 Fe_3O_4 NPs的投加量逐渐增大^[16]:50 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ (1~12 d)、100 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ (13~24 d)和150 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ (25~40 d)。取人工配制的抗生素废水160 mL、40 mL厌氧颗粒污泥加入锥形瓶中,其污泥浓度约为20 $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 。两个锥形瓶中充氮气10 min,然后密闭置于 $(35\pm1)^\circ\text{C}$ 恒温振荡进行实验。研究过程中,每天对进、出水COD变化情况进行分析;本实验结束后,对装置中的厌氧颗粒污泥SMP、LB-EPS、TB-EPS进行分析,同时利用SEM、高通量测序技术对污泥的表观结构、微生物群落组分进行探讨。

1.3 分析方法

SMP与EPS的提取和分析^[17]:取泥水混合液,至离心管中,4000 $\text{r}\cdot\text{min}^{-1}$ 离心10 min,然后取一部分上清液用0.45 μm 微孔滤膜过滤后待测。然后在离心管内加入0.05%的NaCl溶液,在 20×10^3 Hz的条件下,超声2 min,然后在150 $\text{r}\cdot\text{min}^{-1}$ 的条件下振荡10 min,通过5000 $\text{r}\cdot\text{min}^{-1}$ 离心10 min,取一部分上清液用0.45 μm 微孔滤膜过滤后保存,即为LB-EPS。剩余污泥用蒸馏水洗涤2次,将洗涤好的污泥用0.9%生理盐水补足,摇匀混合后于80 $^\circ\text{C}$ 的水浴锅中热提取30 min,之后于5000 $\text{r}\cdot\text{min}^{-1}$ 的离心机中离心10 min,上清液用0.45 μm 的微孔滤膜过滤后保存,用于测定TB-EPS。然后利用三维荧光(EEM)光谱(Cary Eclipse,美国Varian公司)对SMP与EPS的组分进行分析;采用蒽酮比色法、考马斯亮蓝法测定SMP、EPS提取物中的多糖与蛋白质含量^[18,19]。

SEM分析:①取10 mL污泥混合液,用pH为6.8的磷酸盐缓冲液对污泥进行清洗;②用2.5%的戊二醛淹没污泥于4 $^\circ\text{C}$ 条件下固定12 h;③污泥样品分别用30%、50%、70%、80%、90%的乙醇脱水,每次10 min,然后用100%的乙醇脱水3次,每次15 min;④将处理后样品置于低温干燥机中进行干燥;⑤在样品表面喷上1500 nm的金膜;⑥将

喷金后的样品置于 SEM (Vario Micro Cube, 德国 Elementar 公司) 下进行观察^[20]。

高通量测序技术分析: 古菌 PCR 扩增所用引物为融合了 MiSeq 测序平台的 V3-V4 通用引物 349F 引物和 806R 引物。细菌 PCR 所用的引物为融合了 MiSeq 测序平台的 V3-V4 通用引物 341F 引物和 805R 引物。DNA 扩增后, DNA 信息库被构建, 并在 MiSeq Illumina 测序平台上被用于焦磷酸测序。所得到的高质量序列以 97% 的序列相似性阈值处

理生成 OTUs (运算分类单位), 并利用 RDP (核糖体数据库项目) 分类器进行分类分析样品中微生物群落结构与分布^[21]。

另外 COD 采用快速消解法进行分析。

2 结果与讨论

2.1 厌氧颗粒污泥对 COD 的去除情况

本文首先分析了投加 Fe_3O_4 NPs 后对厌氧颗粒污泥去除 COD 的影响, 结果如图 1 所示。

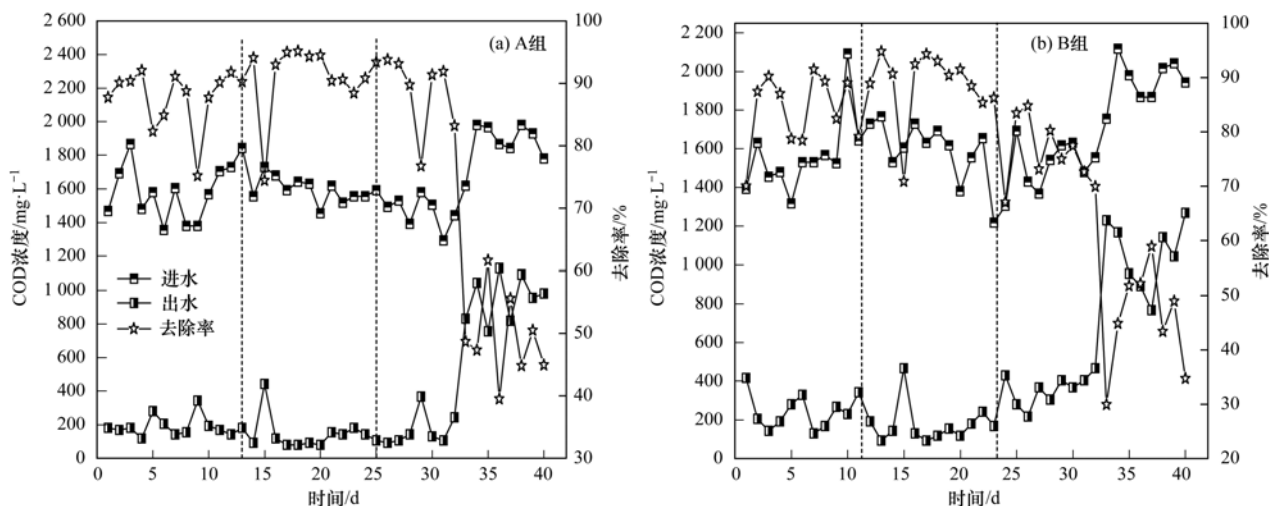


图 1 Fe_3O_4 NPs 对 COD 去除率的影响

Fig. 1 Effects of Fe_3O_4 NPs on the COD removal rate during long-term exposure

由图 1 可知, 在第 33 d 之前, 逐渐增加 Fe_3O_4 NPs 的投加量 ($50 \sim 150 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$), 实验组与对照组对平均 COD 去除率分别为 83.6% 和 89.3%, 两者均对有机物的去除保持了良好的效果, 这表明在此投加范围内, Fe_3O_4 NPs 为对厌氧颗粒污泥的除污效果未造成明显影响。在第 33 d 后, 对照组与实验组对 COD 的平均去除率分别为 49.1% 和 45.6%, 均出现了急剧下降, 由于对照组同样出现了 COD 去除效率的降低, 因此可能的原因在于头孢氨苄属于难生物降解有机物, 且作为典型的抗生素具有一定的生物毒性, 其在反应器内逐渐累积到一定量后, 对厌氧颗粒污泥的活性造成明显的抑制作用, 从而造成 COD 去除率降低, 这也表明在处理有毒物质时, 单纯地采用厌氧生物处理技术存在一定的局限性。

2.2 厌氧颗粒污泥 EPS 与 SMP 的含量分析

EPS 来自于正常的细胞分泌物、细胞裂解和水解产物, 由多糖、蛋白质、核酸等组成; EPS 根据其空间位置的不同, 可分为紧密附着在细胞壁上的囊胞聚合物 TB-EPS 和以胶体和溶解状态松散于液

相主体中的黏性聚合物 LB-EPS; EPS 对于厌氧颗粒污泥的形成以及保持其稳定性发挥着举足轻重的作用^[22]。SMP 是一种由基质代谢和生物质衰变产生的废水中的成分, 人们普遍认为, 大量 SMP 的存在不仅会降低生物处理反应器的出水质量, 还会对其运行产生不利影响^[23]。因此本文对 SMP 与 EPS 的含量变化进行了分析, 结果如图 2 所示。

由图 2 可知, 在投加 Fe_3O_4 NPs 后, SMP 总量由 $34.88 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 降至 $27.44 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 其中蛋白质含量从 $27.39 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 降至 $23.23 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 多糖含量由 $7.49 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 降至 $4.21 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。这表明投加 Fe_3O_4 NPs 后, SMP 中的大分子有机物含量降低, 而这大分子有机物会增加后续处理单元的负担, 从这一角度分析而言, Fe_3O_4 NPs 具有一定的积极作用。同时 LB-EPS 总量 (以 VSS 计) 由 $172.40 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$ 增至 $191.85 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$, 特别是多糖含量增加了 86.4%, 这表明通过长期投加 Fe_3O_4 NPs, 其投加量增加到 $150 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 会为厌氧颗粒污泥中的微生物产生一定的刺激, 从而刺激其分泌较多的 EPS, 起到保护作用。而 TB-EPS 总量 (以 VSS 计) 由 178.20

$\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 降至 $138.24\text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$ ，其中蛋白质含量从 $24.92\text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 降至 $15.70\text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$ ，多糖含量由 $153.28\text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 降至 $122.54\text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$ ，这表明 Fe_3O_4 NPs 的影响未深入到厌氧颗粒污泥内部。

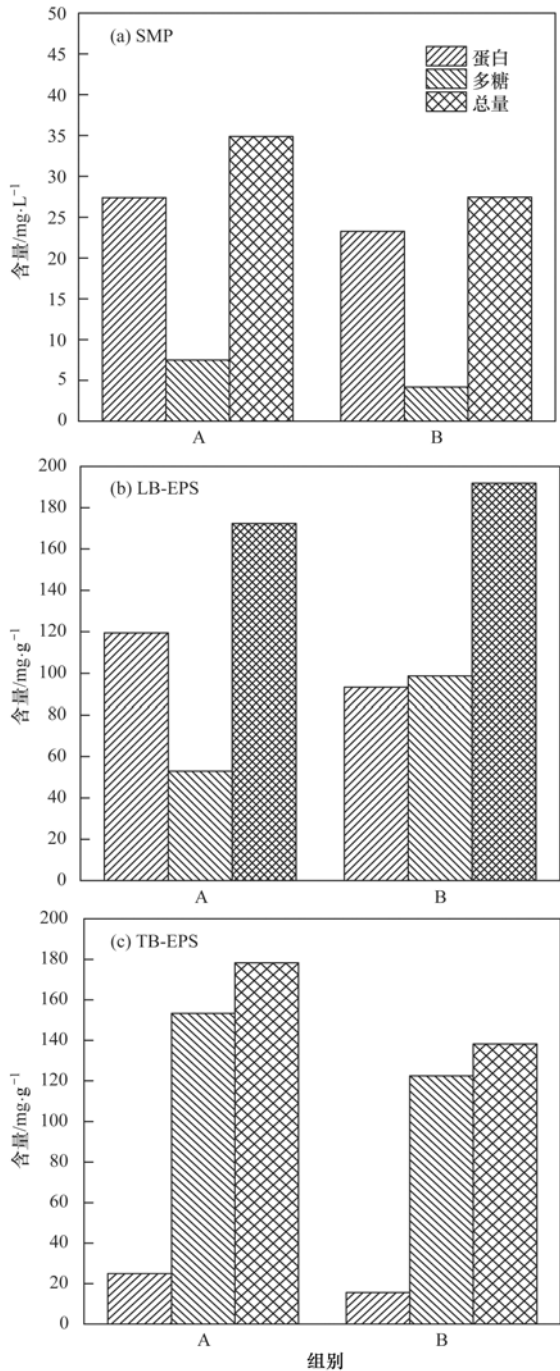


图2 Fe_3O_4 NPs 对 SMP 与 EPS 含量的影响

Fig. 2 Effects of Fe_3O_4 NPs on the contents of SMP and EPS

2.3 厌氧颗粒污泥 EPS 与 SMP 的 EEM 分析

为了进一步探讨 Fe_3O_4 NPs 对厌氧颗粒污泥的 SMP、LB-EPS、TB-EPS 的影响，本文利用 EEM 光谱对其进行了分析(图3)。

如图3所示，在实验组与对照组的厌氧颗粒污泥 SMP 的 EEM 光谱中均出现了色氨酸蛋白($E_x/E_m=260\sim300/340\sim380\text{ nm}$)、可见光区类腐殖酸($E_x/E_m=310\sim360/400\sim450\text{ nm}$)^[24]及类富里酸($E_x/E_m=240\sim260/400\sim440\text{ nm}$)的吸收峰^[25]，这表明投加 Fe_3O_4 NPs 后，SMP 的组分未发生明显变化，但类富里酸吸收峰有所增强。而对于厌氧颗粒污泥 LB-EPS 而言，其 EEM 光谱中均出现了色氨酸蛋白和可见光区类腐殖酸及辅酶 F_{420} ($E_x/E_m=420/470\text{ nm}$)的吸收峰^[26]，值得注意的是，投加 Fe_3O_4 NPs 后，厌氧颗粒污泥 LB-EPS 中微弱的紫外光区类腐殖酸($270\sim300/440\sim470\text{ nm}$)吸收峰消失，辅酶 F_{420} 的荧光峰强度明显降低，这表明产甲烷菌的活性受到了一定的影响^[27]。而对于厌氧颗粒污泥 TB-EPS 而言，其 EEM 光谱中均出现了色氨酸蛋白和可见光区类腐殖酸的吸收峰，投加 Fe_3O_4 NPs 后，厌氧颗粒污泥的稳定性未受到影响。

2.4 厌氧颗粒污泥的表观形态分析

本文利用 SEM 对实验组与对照组厌氧颗粒污泥的表观形态进行了分析，结果如图4所示。

如图4所示，厌氧颗粒污泥通过扫描电子显微镜放大13 000倍观察时，可以观察到未投加 Fe_3O_4 NPs(A组)与投加 Fe_3O_4 NPs(B组)的厌氧颗粒污泥表面菌种形态均以短杆状菌和小球菌为主，两种菌相互交错，丝状菌较少；同时投加 Fe_3O_4 NPs 的颗粒污泥表面可明显观察到颗粒物吸附于微生物表面。继而通过能谱分析(EDS)对其进行分析可知，投加 Fe_3O_4 NPs 的厌氧颗粒污泥能谱图中存在较强的 Fe 元素信号峰，Fe 含量由 0.64% 增加到了 44.78%，再次验证 Fe_3O_4 NPs 附着在厌氧颗粒污泥表面，但 Fe_3O_4 NPs 的附着并未对微生物活性造成明显抑制，这与 COD 的去除率也是一致的。

2.5 厌氧颗粒污泥微生物群落分析

为了更为全面地了解 Fe_3O_4 NPs 对于厌氧颗粒污泥中古细菌与总细菌的影响，本文利用高通量测序技术对其进行了分析，结果如图5~8所示。

如图5所示，对古细菌科水平系统进化树进行分析，两个样品中的古细菌域主要有12类，其中主要是甲烷杆菌科(Methanobacteriaceae)、甲烷规则菌科(Methanoregulaceae)、甲烷螺菌科(Methanospirillaceae)、甲烷微菌科(Methanomicrobiaceae)，其中甲烷杆菌科比例最高，其次为甲烷规则菌科。甲烷杆菌科中样品A(未投加 Fe_3O_4 NPs) < 样品B(投加 Fe_3O_4 NPs)的含量，

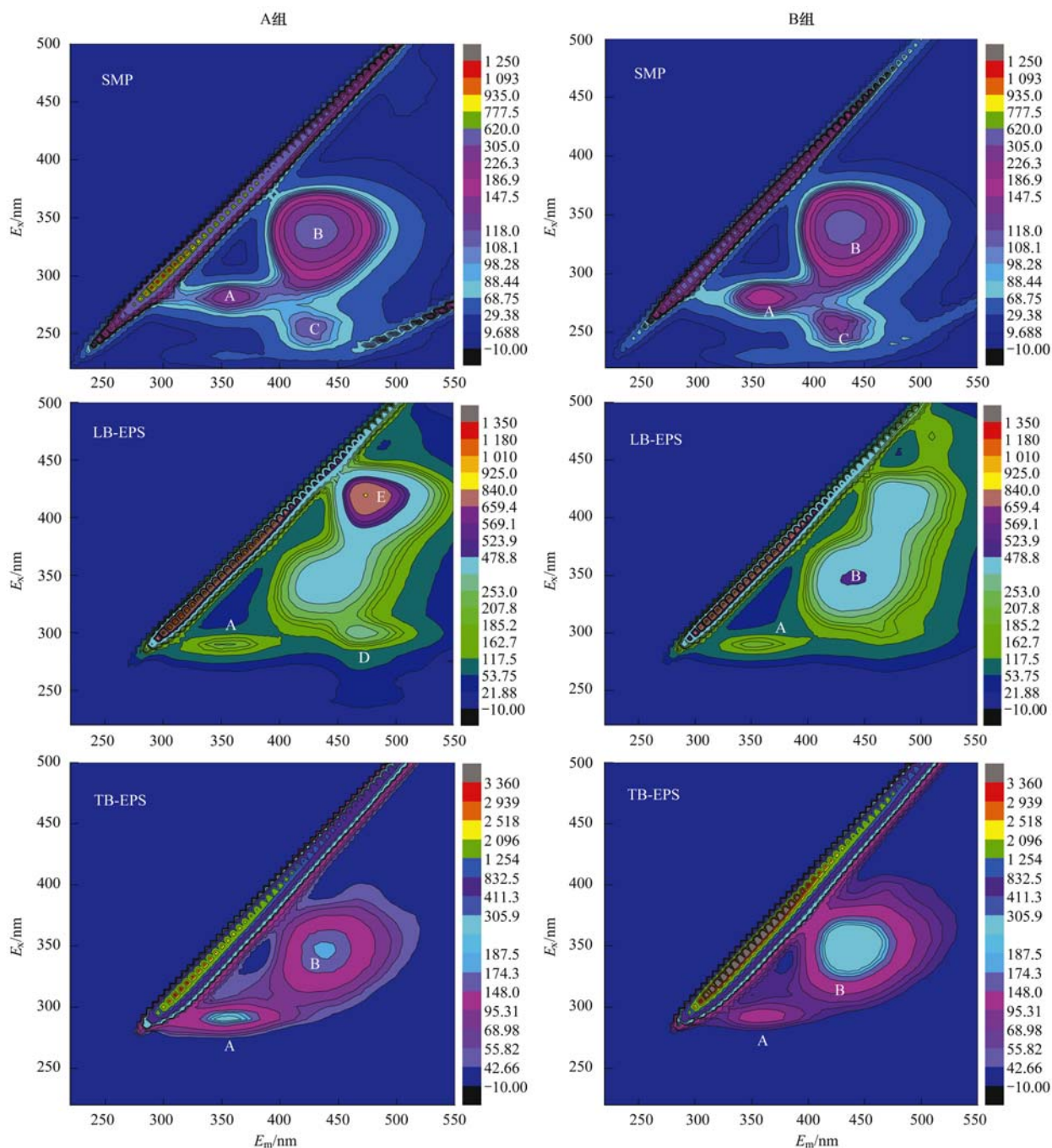


图3 SMP与EPS的三维荧光光谱图

Fig. 3 EEM spectra of SMP and EPS

甲烷规则菌科中样品 A > 样品 B 的含量, 表明投加 Fe_3O_4 NPs 对甲烷规则菌有一定的抑制作用. 从进化角度分析, 甲烷规则菌科、甲烷微菌科、甲烷螺菌科属于同一个簇, 进化关系较为接近.

如图 6 所示, 对总细菌门水平系统进化树进行分析, 两个样品中的细菌域主要有 23 类. 在细菌域中, 比例最多的菌群为变形菌门 (Proteobacteria), 其次是放线菌门 (Actinobacteria)、厚壁菌门 (Firmicutes)、拟杆菌门 (Bacteroidetes), 接着是绿

弯菌门 (Chloroflexi). 在变形菌门中, 样品 A > 样品 B 的含量, 在放线菌门中, 样品 B > 样品 A 的含量, 在厚壁菌门中, 样品 B > 样品 A 的含量, 在拟杆菌门中, 样品 B > 样品 A 的含量, 表明投加 Fe_3O_4 NPs 后, Actinobacteria、Firmicutes、Bacteroidetes 能够很好适应投加 Fe_3O_4 NPs 的环境, 而 Proteobacteria 受到一定程度的抑制. 从进化的角度进行分析, Bacteroidetes、Chloroflexi、Ignavibacteriae 属于同一个簇, 进化关系较为接近; 衣原体 (Chlamydiae)、

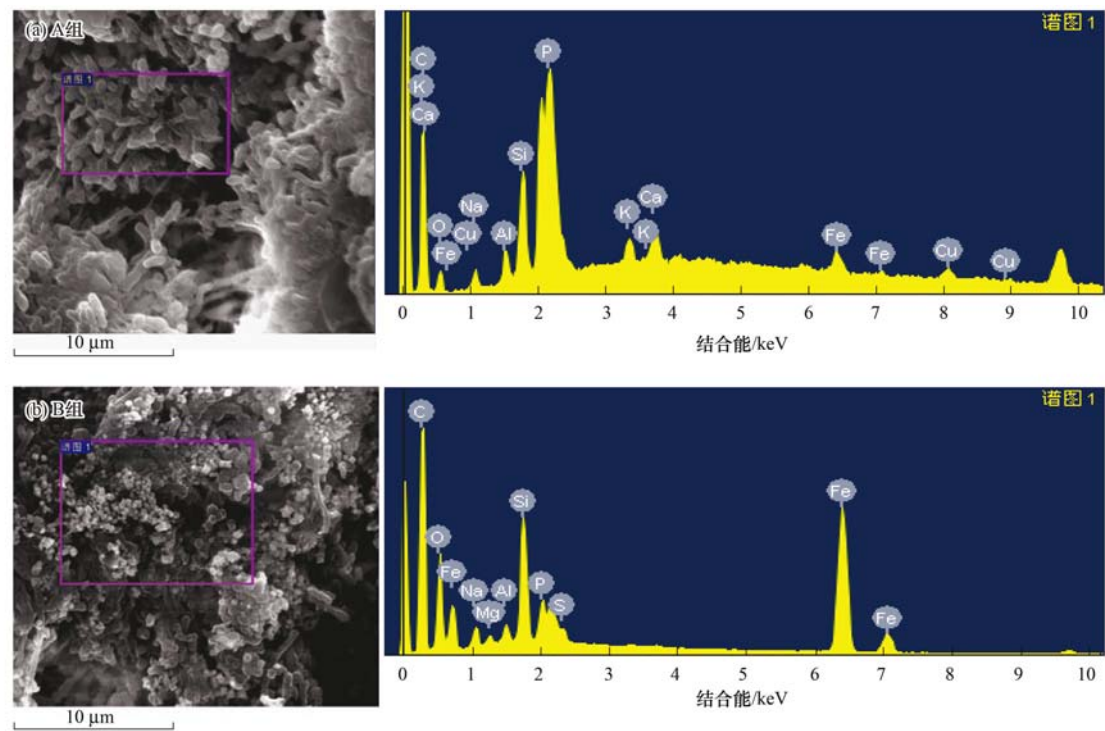


图 4 厌氧颗粒污泥的 SEM 与 EDS
Fig. 4 SEM images and EDS of anaerobic granular sludge

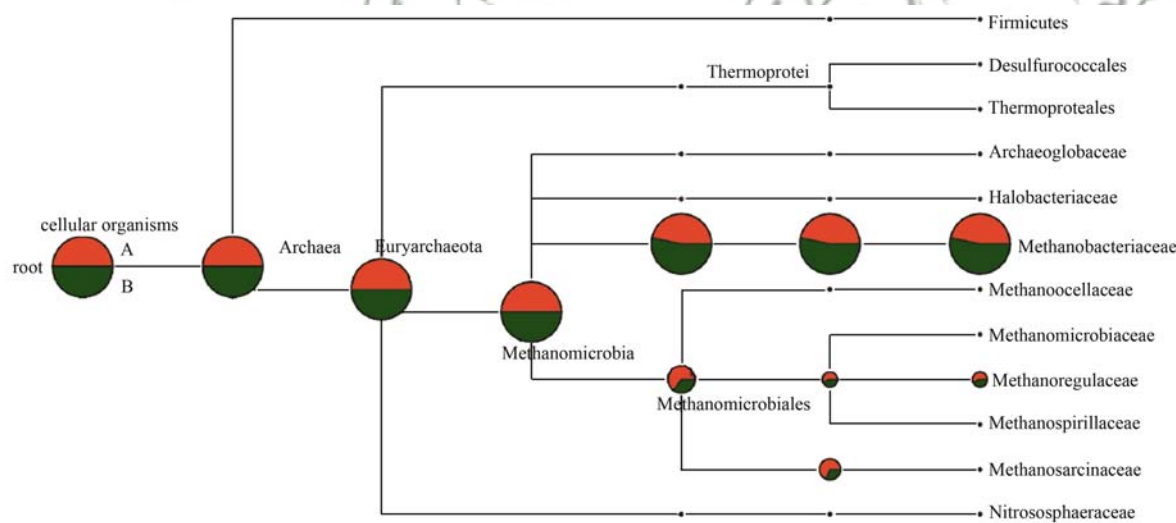


图 5 古细菌科水平系统进化树分析
Fig. 5 Phylogenetic tree analysis of the archaeal community at the family level

黏胶球形菌门 (*Lentisphaerae*) 和 *Verrucomicroba* 属于同一个簇, 进化关系较为接近。

为了更为全面地了解古细菌群落的变化情况, 如图 7 所示, 在古细菌属分类水平进行分析, 未投加和投加 Fe_3O_4 NPs 的样品中优势菌群主要为: 甲烷杆菌属 (*Methanobacterium*)、甲烷丝菌属 (*Methanothrix*) 与 *Methanosphaerula*。在投加 Fe_3O_4 NPs 后, *Methanobacterium* 所占比例从 76.15% 增至 86.76%, 而 *Methanothrix* 所占比例从 17.10% 降至

7.51%, *Methanothrix* 为乙酸型甲烷菌, *Methanobacterium* 为产氢型甲烷菌, 投加 Fe_3O_4 NPs 对乙酸型甲烷菌产生了一定的影响, 这也体现在 SMP 的 EEM 中有机酸的吸收峰增强。整体而言甲烷杆菌属仍为优势菌群, 确保了厌氧反应器的稳定运行。主要原因在于, Fe_3O_4 NPs 作为环境友好型材料投加入废水后, 即使在运行过程中, 出现铁离子的溶出, 由于溶出的铁离子是微生物生长所需的微量元素, 不会对微生物造成强烈的抑制, 表明采

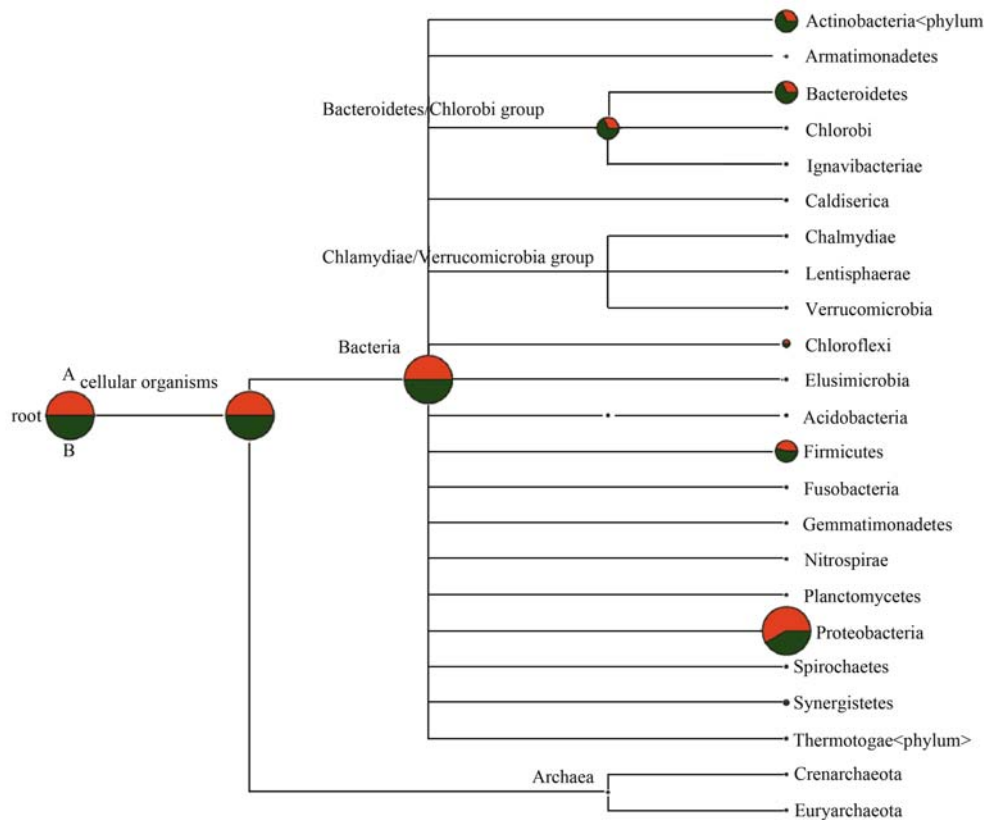


图 6 总细菌门水平系统进化树分析

Fig. 6 Phylogenetic tree analysis of the bacterial community at the phylum level

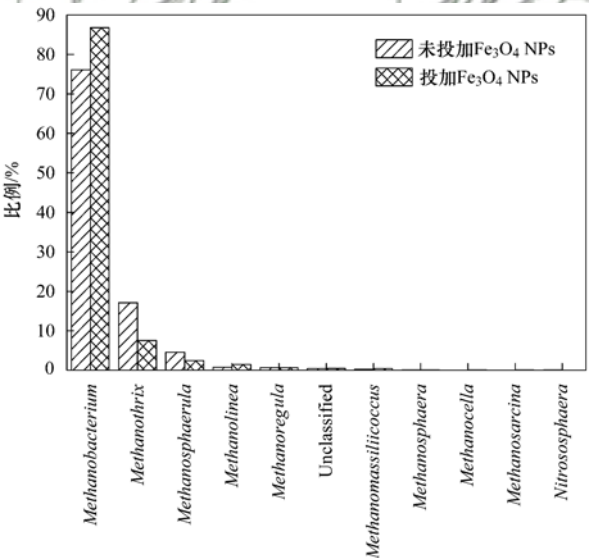


图 7 古细菌属水平菌群结构与分布

Fig. 7 Archaeal community structures and distribution at genus level

用 Fe_3O_4 NPs 多相类芬顿作为厌氧生物预处理是可行的。

如图 8 所示,对总细菌门分类水平不同菌群的具体比例进行分析,未投加(A)和投加 Fe_3O_4 NPs (B)的样品中优势菌群主要为:变形菌门(Proteobacteria)、放线菌门(Actinobacteria)、拟杆

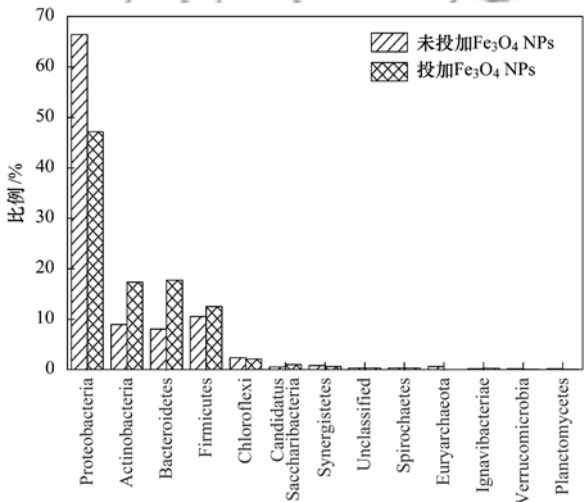


图 8 总细菌门水平菌群结构与分布

Fig. 8 Bacterial community structures and distribution at phylum level

菌门(Bacteroidetes)、厚壁菌门(Firmicutes)和绿弯菌门(Chloroflexi);投加 Fe_3O_4 NPs 后,变形菌门所占比例从 66.44% 降至 47.16%,放线菌门所占比例从 8.97% 增至 17.33%,拟杆菌门所占比例从 8.07% 增至 17.74%,厚壁菌门所占比例从 10.54% 增加到 12.50%。厚壁菌门可以通过水解酶降解糖类和蛋白质,而拟杆菌门在厌氧生物处理的

水解过程中起到关键性作用, 因此正如图 2 所示投加 Fe_3O_4 NPs 后 SMP 中的多糖与蛋白含量有所降低, 表明 Fe_3O_4 NPs 对于厌氧生物处理的产酸过程具有一定的促进作用^[28]。但变形菌门比例有所降低, 可能会对于反硝化及甲烷化带来一定的影响, 特别是当废水中氮含量较高时^[29]。

3 结论

(1) Fe_3O_4 NPs 作为催化剂对厌氧反应器去除 COD 未造成明显的抑制; 且长期投加 Fe_3O_4 NPs 后, 厌氧颗粒污泥 SMP 中多糖与蛋白含量降低。但 LB-EPS 中紫外光区类腐殖酸荧光峰消失, 产甲烷菌的活性受到了一定的影响。

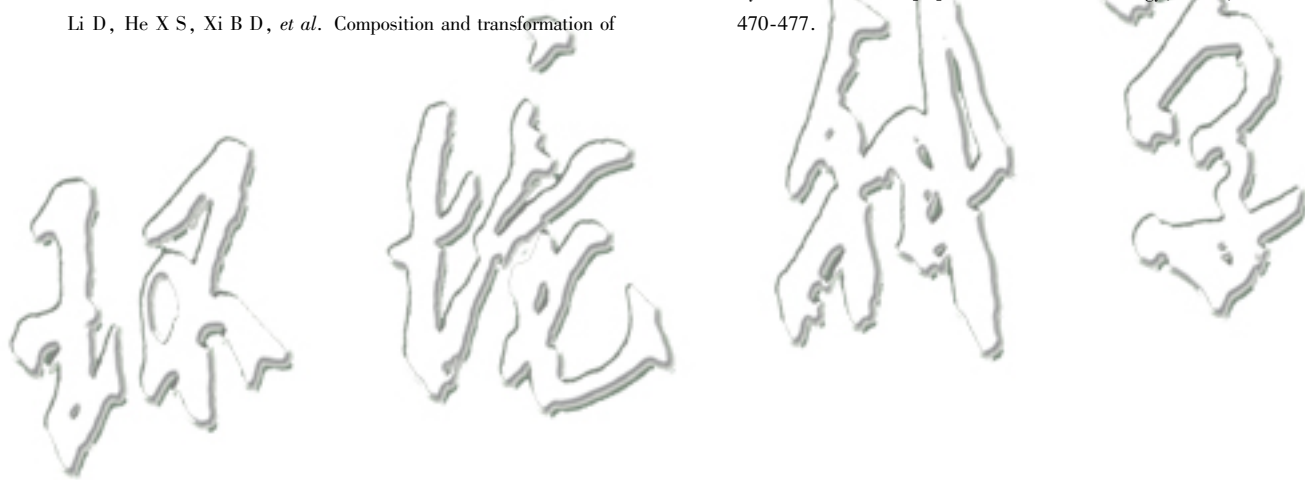
(2) 长期投加 Fe_3O_4 NPs 后, 甲烷杆菌属与甲烷丝菌属仍为优势菌种, 特别是甲烷杆菌属占 86.76%; 而拟杆菌门、厚壁菌门所占比例增加, 可保障厌氧生物处理产酸与产甲烷过程的顺利进行。

(3) Fe_3O_4 NPs 作为一种环境友好纳米材料, 在本实验中投加量小于 $150 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时, 未对厌氧颗粒污泥特性造成明显影响, 因此采用 Fe_3O_4 NPs 多相类芬顿作为预处理单元, 处理含有毒物质或难生物降解工业废水时, 其本身不会对后续的厌氧生物处理单元造成不利影响。

参考文献:

- [1] Kong Q, Wang Z B, Shu L, *et al.* Characterization of the extracellular polymeric substances and microbial community of aerobic granulation sludge exposed to cefalexin[J]. *International Biodeterioration & Biodegradation*, 2015, **102**: 375-382.
- [2] 薛雨, 陈宇瑛. 头孢菌素类抗生素的最新研究进展[J]. *中国抗生素杂志*, 2011, **36**(2): 86-92.
Xue Y, Chen Y Y. New development of cephalosporin antibiotics[J]. *Chinese Journal of Antibiotics*, 2011, **36**(2): 86-92.
- [3] Meng L W, Li X K, Wang S T, *et al.* The long-term impact of cefalexin on organic substrate degradation and microbial community structure in EGSB system[J]. *Chemosphere*, 2017, **184**: 215-223.
- [4] Lin B K, Lyu J, Lyu X J, *et al.* Characterization of cefalexin degradation capabilities of two *Pseudomonas* strains isolated from activated sludge[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2015, **282**: 158-164.
- [5] 李再兴, 张非非, 左剑恶, 等. SPE-UFLC-MS/MS 法测定制药废水中四环素类抗生素[J]. *环境科学与技术*, 2013, **36**(7): 139-142.
Li Z X, Zhang F F, Zuo J E, *et al.* Determination of tetracyclines in pharmaceutical wastewater by solid phase extraction-ultra fast liquid chromatography-tandem mass spectrometry[J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, **36**(7): 139-142.
- [6] Li H Y, Li Y L, Xiang L J, *et al.* Heterogeneous photo-Fenton decolorization of Orange II over Al-pillared Fe-smectite: response surface approach, degradation pathway, and toxicity evaluation[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2015, **287**: 32-41.
- [7] Gan P P, Li S F Y. Efficient removal of Rhodamine B using a rice hull-based silica supported iron catalyst by Fenton-like process[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2013, **229**: 351-363.
- [8] Gao Y Y, Gan H H, Zhang G K, *et al.* Visible light assisted Fenton-like degradation of rhodamine B and 4-nitrophenol solutions with a stable poly-hydroxyl-iron/sepiolite catalyst[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2013, **217**: 221-230.
- [9] Pouran S R, Raman A A A, Wan Daud W M A. Review on the application of modified iron oxides as heterogeneous catalysts in Fenton reactions[J]. *Journal of Cleaner Production*, 2014, **64**: 24-35.
- [10] 李冬梅, 徐光亮. 制备超顺磁性 Fe_3O_4 纳米粒子的研究进展[J]. *中国粉体技术*, 2008, **14**(4): 55-58.
Li D M, Xu G L. Research progress on preparation of superparamagnet Fe_3O_4 nano-particles [J]. *China Powder Science and Technology*, 2008, **14**(4): 55-58.
- [11] 文德, 刘妙丽, 李强林. 超顺磁性 Fe_3O_4 纳米粒子的制备和表征[J]. *四川师范大学学报(自然科学版)*, 2011, **34**(3): 385-387.
Wen D, Liu M L, Li Q L. Preparation and characterization of super-paramagnetic Fe_3O_4 nanoparticles[J]. *Journal of Sichuan Normal University (Natural Science)*, 2011, **34**(3): 385-387.
- [12] Ma B R, Wang S, Li Z W, *et al.* Magnetic Fe_3O_4 nanoparticles induced effects on performance and microbial community of activated sludge from a sequencing batch reactor under long-term exposure[J]. *Bioresource Technology*, 2017, **225**: 377-385.
- [13] Li W C, Chen H, Jin Y, *et al.* Treatment of 3, 4, 5-trimethoxybenzaldehyde and Di-bromo-aldehyde manufacturing wastewater by the coupled Fenton pretreatment and UASB reactor with emphasis on optimization and chemicals analysis [J]. *Separation and Purification Technology*, 2015, **142**: 40-47.
- [14] Xu P, Han H J, Zhuang H F, *et al.* Advanced treatment of biologically pretreated coal gasification wastewater by a novel integration of heterogeneous Fenton oxidation and biological process[J]. *Bioresource Technology*, 2015, **182**: 389-392.
- [15] He J, Yang X F, Men B, *et al.* Heterogeneous Fenton oxidation of catechol and 4-chlorocatechol catalyzed by nano- Fe_3O_4 : role of the interface[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2014, **258**: 433-441.
- [16] Ni S Q, Ni J Y, Yang N, *et al.* Effect of magnetic nanoparticles on the performance of activated sludge treatment system [J]. *Bioresource Technology*, 2013, **143**: 555-561.
- [17] Zhang W J, Cao B D, Wang D S, *et al.* Influence of wastewater sludge treatment using combined peroxyacetic acid oxidation and inorganic coagulants re-flocculation on characteristics of extracellular polymeric substances (EPS)[J]. *Water Research*, 2016, **88**: 728-739.
- [18] Zhu L, Zhou J H, Lv M L, *et al.* Specific component comparison of extracellular polymeric substances (EPS) in flocs and granular sludge using EEM and SDS-PAGE [J]. *Chemosphere*, 2015, **121**: 26-32.

- [19] Wang Z P, Zhang T. Characterization of soluble microbial products (SMP) under stressful conditions[J]. *Water Research*, 2010, **44**(18): 5499-5509.
- [20] Zhen G Y, Lu X Q, Li Y Y, *et al.* Innovative combination of electrolysis and Fe(II)-activated persulfate oxidation for improving the dewaterability of waste activated sludge [J]. *Bioresource Technology*, 2013, **136**: 654-663.
- [21] Ma Q, Qu Y Y, Shen W L, *et al.* Bacterial community compositions of coking wastewater treatment plants in steel industry revealed by Illumina high-throughput sequencing [J]. *Bioresource Technology*, 2015, **179**: 436-443.
- [22] Chen K, Wang X H, Li X F, *et al.* Impacts of sludge retention time on the performance of submerged membrane bioreactor with the addition of calcium ion [J]. *Separation and Purification Technology*, 2011, **82**: 148-155.
- [23] Li K, Wei D, Yan T, *et al.* Responses of soluble microbial products and extracellular polymeric substances to the presence of toxic 2,6-dichlorophenol in aerobic granular sludge system [J]. *Journal of Environmental Management*, 2016, **183**: 594-600.
- [24] 李丹, 何小松, 席北斗, 等. 生活垃圾堆肥渗滤液污染物组成与演化规律研究 [J]. *环境科学*, 2013, **34**(7): 2918-2924.
- Li D, He X S, Xi B D, *et al.* Composition and transformation of leachates during municipal solid waste composting [J]. *Environmental Science*, 2013, **34**(7): 2918-2924.
- [25] Luo J H, Hao T W, Wei L, *et al.* Impact of influent COD/N ratio on disintegration of aerobic granular sludge [J]. *Water Research*, 2014, **62**: 127-135.
- [26] Dong F, Zhao Q B, Zhao J B, *et al.* Monitoring the restart-up of an upflow anaerobic sludge blanket (UASB) reactor for the treatment of a soybean processing wastewater [J]. *Bioresource Technology*, 2010, **101**(6): 1722-1726.
- [27] Suanon F, Sun Q, Li M Y, *et al.* Application of nanoscale zero valent iron and iron powder during sludge anaerobic digestion: impact on methane yield and pharmaceutical and personal care products degradation [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2017, **321**: 47-53.
- [28] Jang H M, Ha J H, Park J M, *et al.* Comprehensive microbial analysis of combined mesophilic anaerobic-thermophilic aerobic process treating high-strength food wastewater [J]. *Water Research*, 2015, **73**: 291-303.
- [29] Luo G, Li J, Li Y, *et al.* Performance, kinetics behaviors and microbial community of internal circulation anaerobic reactor treating wastewater with high organic loading rate: role of external hydraulic circulation [J]. *Bioresource Technology*, 2016, **222**: 470-477.



CONTENTS

Characterization and Variation of Organic Carbon (OC) and Elemental Carbon (EC) in PM _{2.5} During the Winter in the Yangtze River Delta Region, China	KANG Hui, ZHU Bin, WANG Hong-lei, <i>et al.</i> (961)
Important Effect of Secondary Inorganic Salt Extinction on Visibility Impairment in the Northern Suburb of Nanjing	YU Chao, YU Xing-na, ZHAO Tian-liang, <i>et al.</i> (972)
Day-Night Differences and Source Apportionment of Inorganic Components of PM _{2.5} During Summer-Winter in Changzhou City	LIU Jia-shu, GU Yuan, MA Shuai-shuai, <i>et al.</i> (980)
Characteristics of Elements in PM _{2.5} and PM ₁₀ in Road Dust Fall During Spring in Tianjin	WANG Shi-bao, JI Ya-qin, LI Shu-li, <i>et al.</i> (990)
Particle Size Distribution and Human Health Risk Assessment of Heavy Metals in Atmospheric Particles from Beijing and Xinxiang During Summer	ZHANG Xin, ZHAO Xiao-man, MENG Xue-jie, <i>et al.</i> (997)
Ecological and Health Risks of Trace Heavy Metals in Atmospheric PM _{2.5} Collected in Wuxiang Town, Shanxi Province	GUO Zhao-xia, GENG Hong, ZHANG Jin-hong, <i>et al.</i> (1004)
Characteristics of Particulate and Inorganic Elements of Motor Vehicles Based on a Tunnel Environment	LI Feng-hua, ZHANG Yan-jie, ZHANG Jing, <i>et al.</i> (1014)
A 2013-based Atmospheric Ammonia Emission Inventory and Its Characteristic of Spatial Distribution in Henan Province	WANG Chen, YIN Sha-sha, YU Shi-jie, <i>et al.</i> (1023)
Emission Characteristics of Wind Erosion Dust from Topsoil of Urban Roadside-Tree Pool	LI Bei-bei, QIN Jian-ping, QI Li-rong, <i>et al.</i> (1031)
Particulate Component Emission Characteristic from a Diesel Bus with DOC and CDPF	LOU Di-ming, GENG Xiao-yu, SONG Bo, <i>et al.</i> (1040)
Water Quality in the Henan Intake Area of the South-to-North Water Diversion Project	HUANG Piao-yi, XU Bin, GUO Dong-liang (1046)
Spatio-Temporal Patterns and Environmental Risk of Endocrine Disrupting Chemicals in the Liuxi River	FAN Jing-jing, WANG Sai, TANG Jin-peng, <i>et al.</i> (1053)
Fate and Origin of Major Ions in River Water in the Lhasa River Basin, Tibet	ZHANG Qing-hua, SUN Ping-an, HE Shi-yi, <i>et al.</i> (1065)
Identification of Nitrate Sources and the Fate of Nitrate in Downstream Areas: A Case Study in the Taizi River Basin	LI Yan-li, YANG Zi-rui, YIN Xi-jie, <i>et al.</i> (1076)
Sources, Distribution of Main Controlling Factors, and Potential Ecological Risk Assessment for Heavy Metals in the Surface Sediment of Hainan Island North Bay, South China	ZENG Wei-te, YANG Yong-peng, ZHANG Dong-qiang, <i>et al.</i> (1085)
Characteristics of Heavy Metals Pollution of Farmland and the Leaching Effect of Rainfall in Tianjin	XU Meng-meng, LIU Ai-feng, SHI Rong-guang, <i>et al.</i> (1095)
Seasonal Difference in Water Quality Between Lake and Inflow/Outflow Rivers of Lake Taihu, China	ZHA Hui-ming, ZHU Meng-yuan, ZHU Guang-wei, <i>et al.</i> (1102)
Characteristics of Nitrogen Release at the Sediment-Water Interface in the Typical Tributaries of the Three Gorges Reservoir During the Sensitive Period in Spring	LI Xin, SONG Lin-xu, JI Dao-bin, <i>et al.</i> (1113)
Spatial Distributions of Transferable Nitrogen Forms and Influencing Factors in Sediments from Inflow Rivers in Different Lake Basins	ZHOU Rui, YUAN Xu-yin, Marip Ja Bawk, <i>et al.</i> (1122)
Effects of Hydrological and Meteorological Conditions on Diatom Proliferation in Reservoirs	SUN Xiang, ZHU Guang-wei, DA Wen-yi, <i>et al.</i> (1129)
Vertical Distribution of Fungal Community Composition and Water Quality During the Deep Reservoir Thermal Stratification	SHANG Pan-lu, CHEN Sheng-nan, HUANG Ting-lin, <i>et al.</i> (1141)
Community Structure and Influencing Factors of Bacterioplankton in Spring in Zhushan Bay, Lake Taihu	XUE Yin-gang, LIU Fei, SUN Meng, <i>et al.</i> (1151)
Characteristics of Sediment Oxygen Demand in a Drinking Water Reservoir	SU Lu, HUANG Ting-lin, LI Nan, <i>et al.</i> (1159)
Effects of Wastewater Nitrogen Concentrations and NH ₄ ⁺ /NO ₃ ⁻ on Nitrogen Removal Ability and the Nitrogen Component of <i>Myriophyllum aquaticum</i> (Vell.) Verde	MA Yong-fei, YANG Xiao-zhen, ZHAO Xiao-hu, <i>et al.</i> (1167)
Effect of Nutrient Loadings on the Regulation of Water Nitrogen and Phosphorus by <i>Vallisneria natans</i> and Its Photosynthetic Fluorescence Characteristics	ZHOU Yi-wen, XU Xiao-guang, HAN Rui-ming, <i>et al.</i> (1180)
Removal of Organic Matter from Water by Chemical Preoxidation Coupled with Biogenic Manganese Oxidation	JIAN Zhi-yu, CHANG Yang-yang, WANG Li-xin, <i>et al.</i> (1188)
Treating Simulated Dye Wastewater by an <i>In Situ</i> Copper Ferrite Process	HAN Zhi-yong, HAN Kun, HAO Hao-tian, <i>et al.</i> (1195)
Experiment to Enhance Catalytic Activity of α -FeOOH in Heterogeneous UV-Fenton System by Addition of Oxalate	MIAO Xiao-zeng, DAI Hui-wang, CHEN Jian-xin, <i>et al.</i> (1202)
Fabrication of a Biomass-Based Hydrous Zirconium Oxide Nanocomposite for Advanced Phosphate Removal	QIU Hui, QIN Zhi-feng, LIU Feng-ling, <i>et al.</i> (1212)
Characteristic of Nitrate Adsorption in Aqueous Solution by Iron and Manganese Oxide/Biochar Composites	ZHENG Xiao-qing, WEI An-lei, ZHANG Yi-xuan, <i>et al.</i> (1220)
Preparation of PAAm/HACC Semi-Interpenetrate Network Hydrogel and Its Adsorption Properties for Humic Acid from Aqueous Solution	LIU Ze-jun, ZHOU Shao-qi, MA Fu-zhen (1233)
Groundwater Arsenic and Silicate Adsorption on TiO ₂ and the Regeneration of TiO ₂	MA Wen-jing, YAN Li, ZHANG Jian-feng (1241)
Removal Efficiency and Mechanism of Removal by Humic Acid of the Integrated Flocc-ultrafiltration Process	LI Wen-jiang, YU Li-fang, MIAO Rui, <i>et al.</i> (1248)
Emission Inventory of Greenhouse Gas from Urban Wastewater Treatment Plants and Its Temporal and Spatial Distribution in China	YAN Xu, QIU De-zhi, GUO Dong-li, <i>et al.</i> (1256)
Start-up and Operation of Biofilter Coupled Nitrification and CANON for the Removal of Iron, Manganese and Ammonia Nitrogen	LI Dong, CAO Rui-hua, YANG Hang, <i>et al.</i> (1264)
Analysis of CANON Process Start-up with Fiber Carrier	GU Cheng-wei, CHEN Fang-min, LI Xiang, <i>et al.</i> (1272)
Characteristics of Biofilm During the Transition Process of Complete Nitrification and Partial Nitrification	ZHAO Qing, BIAN Wei, LI Jun, <i>et al.</i> (1278)
Effect of Intermediate-Setting Aeration on the CANON Granular Sludge Process in the AUSB Reactor	CHENG Shuo, LI Dong, ZHANG Jie, <i>et al.</i> (1286)
Effect of Organic Carbon Source on Start-up and Operation of the CANON Granular Sludge Process	LI Dong, WANG Yan-ju, LU Yu-feng, <i>et al.</i> (1294)
Start-Up and Regional Characteristics of a Pilot-scale Integrated PN-ANAMMOX Reactor	ZHOU Zheng, WANG Fan, LIN Xing, <i>et al.</i> (1301)
Effect of NO _x ⁻ -N Recycling Ratio on Denitrifying Phosphorus Removal Efficiency in the ABR-MBR Combined Process	LÜ Liang, YOU Wen, ZHANG Min, <i>et al.</i> (1309)
Effects of Magnetic Fe ₃ O ₄ Nanoparticles on the Characteristics of Anaerobic Granular Sludge and Its Interior Microbial Community	SU Cheng-yuan, ZHENG Peng, LU Yu-xiang, <i>et al.</i> (1316)
Characterization Composition of Soluble Microbial Products in an Aerobic Granular Sludge System	YANG Dan, LIU Dong-fang, DU Li-qiong, <i>et al.</i> (1325)
Influence of Ciprofloxacin on the Microbial Community and Antibiotics Resistance Genes in a Membrane Bioreactor	DAI Qi, LIU Rui, LIANG Yu-ting, <i>et al.</i> (1333)
Analysis of Low C/N Wastewater Treatment and Structure by the CEM-UF Combined Membrane-Nitrification/Denitrification System	XING Jin-liang, ZHANG Yan, CHEN Chang-ming, <i>et al.</i> (1342)
Effects of Phosphorus on the Activity and Bacterial Community in Mixotrophic Denitrification Sludge	WANG Pei-qi, ZHOU Wei-li, HE Sheng-bing, <i>et al.</i> (1350)
Acclimatization and Community Structure Analysis of the Microbial Consortium in Nitrate-Dependent Anaerobic Methane Oxidation	XUE Song, ZHANG Meng-zhu, LI Lin, <i>et al.</i> (1357)
Diffusion of Microorganism and Main Pathogenic Bacteria During Municipal Treated Wastewater Discharged into Sea	XU Ai-ling, NIU Cheng-jie, SONG Zhi-wen, <i>et al.</i> (1365)
Oxytetracycline Wastewater Treatment in Microbial Fuel Cells and the Analysis of Microbial Communities	YAN Wei-fu, XIAO Yong, WANG Shu-hua, <i>et al.</i> (1379)
Spatial and Temporal Variability of Soil C-to-N Ratio of Yugan County and Its Influencing Factors in the Past 30 Years	JIANG Ye-feng, ZHONG Shan, LI Jie, <i>et al.</i> (1386)
Spatial Heterogeneity of Soil Carbon and its Fractions in the Wolfberry Field of Zhongning County	WANG You-qi, ZHAO Yun-peng, BAI Yi-ru, <i>et al.</i> (1396)
Response of Soil Enzyme Activities and Their Relationships with Physicochemical Properties to Different Aged Coastal Reclamation Areas, Eastern China	XIE Xue-feng, PU Li-jie, WANG Qi-qi, <i>et al.</i> (1404)
Distribution, Sources, and Ecological Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Soils of the Central and Eastern Areas of the Qinghai-Tibetan Plateau	ZHOU Wen-wen, LI Jun, HU Jian, <i>et al.</i> (1413)
Source Apportionment of Heavy Metals in Farmland Soils Around Mining Area Based on UNMIX Model	LU Xin, HU Wen-you, HUANG Biao, <i>et al.</i> (1421)
Stabilization Effects of Fe-Mn Binary Oxide on Arsenic and Heavy Metal Co-contaminated Soils Under Different pH Conditions	FEI Yang, YAN Xiu-lan, LI Yong-hua (1430)
Concentration and Distribution of Novel Brominated Flame Retardants in Human Serum from Three Chinese Cities	WANG Qing-hua, YUAN Hao-dong, JIN Jun, <i>et al.</i> (1438)