

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第6期

Vol.39 No.6

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

北京市二次有机气溶胶生成潜势的日变化规律 刘俊, 楚碧武, 贺泓 (2505)

太原冬季 PM_{2.5} 影响霾污染的关键尺度谱特征 杨素英, 余欣洋, 赵秀勇, 李义宇, 孙洪娉, 田芷洁, 李岩, 吴尚, 王梓航 (2512)

盘锦市冬季 PM_{2.5} 水溶性离子特征及来源分析 张蕾, 姬亚芹, 王士宝, 赵静琦, 张军, 李越洋, 张伟 (2521)

广州市天河区 2016 年雨季挥发性有机物污染特征及来源解析 古颖纲, 虞小芳, 杨闻达, 田智林, 李梅, 程鹏 (2528)

热带树木燃烧颗粒物中脱水糖和醋非烯的排放特征 金诚妙, 崔敏, 韩勇, 陈颖军, 唐娇, 李军, 张干 (2538)

天津地区污染天气分析中垂直扩散指标构建及运用 蔡子颖, 韩素芹, 张敏, 姚青, 刘敬勇 (2548)

亚热带农田和林地大气氨湿沉降与混合沉降比较 朱潇, 王杰飞, 沈健林, 肖润林, 王娟, 吴金水, 李勇 (2557)

京津冀地区黄标车政策的总量减排效益评估 卢亚灵, 周佳, 程曦, 张伟, 蒋洪强 (2566)

北京北运河河流生态系统健康评价 顾晓昀, 徐宗学, 刘麟菲, 殷旭旺, 王汨 (2576)

长江武汉段丰水期水体和沉积物中多环芳烃及邻苯二甲酸酯类有机污染物污染特征及来源分析 董磊, 汤显强, 林莉, 邴超, 黎睿, 吴敏 (2588)

福建省敖江下游抗生素抗性基因分布特征 张丹丹, 郭亚平, 任红云, 周昕原, 黄福义, 张娴 (2600)

三峡库区支流河口沉积物重金属分布特征及风险评价 方志青, 陈秋禹, 尹德良, 王志康, 孙涛, 王永敏, 谢德体, 王定勇 (2607)

三峡水库蓄水至 175 m 后干流沉积物理化性质与磷形态分布特征 潘婵娟, 黎睿, 汤显强, 夏振尧, 李青云, 杨文俊, 许文年 (2615)

基于水化学和稳定同位素的白洋淀流域地表水和地下水硝酸盐来源 孔晓乐, 王仕琴, 丁飞, 梁慧雅 (2624)

天目湖沙河水库热分层变化及其对水质的影响 孙祥, 朱广伟, 笄文怡, 余茂蕾, 杨文斌, 朱梦圆, 许海, 国超旋, 余丽, 李恒鹏, 李慧贇 (2632)

重庆雪玉洞洞穴滴水水地球化学时空变化特征及其环境意义 曾泽, 蒋勇军, 吕现福, 曾思博, 胡刘焯, 雷佳琪 (2641)

岩溶地表河旱季有色溶解有机质组成及来源: 以金佛山碧潭河为例 刘跃, 贺秋芳, 刘宁坤, 刘九程, 王正雄, 段世辉 (2651)

托来河流域不同海拔降水稳定同位素的环境意义 李永格, 李宗省, 冯起, 肖莲桂, 吕越敏, 桂娟, 袁瑞丰, 张百娟 (2661)

五里峡水库初级生产力对水气界面二氧化碳和甲烷排放速率时空变化的影响 彭文杰, 李强, 宋昂, 靳振江 (2673)

西南山区典型河道型水库藻类功能群时空演替特征及其影响因素: 以紫坪铺水库为例 张耀文, 李洪, 李嘉, 宋洋, 张陵蕾, 李永, 蒲迅赤, 黄文典 (2680)

四明湖水库浮游植物功能类群的季节演替及其影响因子 郑诚, 陆开宏, 徐镇, 郑志明, 朱津永 (2688)

营养盐添加对水华蓝藻——卵孢金胞藻生长和竞争影响的原位实验 王梦梦, 张玮, 张军毅, 尚光霞, 杜彩丽, 王丽卿 (2698)

植物配置与进水碳氮比对沉水植物塘水质净化效果的影响 刘森, 陈开宁 (2706)

江汉平原水稻灌排单元沟渠中氮磷变化特征及其环境风险 华玲玲, 张富林, 翟丽梅, 刘宏斌, 范先鹏, 王洪霞 (2715)

冀西北典型北方小城镇污水处理厂中抗生素的分布和去除 柴玉峰, 张玉秀, 陈梅雪, 王瑞, 柳蒙蒙, 郑嘉熹, 魏源送 (2724)

臭氧-粉末炭联用作为预处理缓解膜污染的效果与机制 董秉直, 高昊旸, 胡孟柳 (2732)

中试 SAD-ASBR 系统处理含盐废水的启动与工艺特性 于德爽, 唐佳佳, 张军, 王晓霞, 赵红, 韩长民, 孙捷 (2740)

海藻酸钙/聚 N-异丙基丙烯酰胺半互穿网络凝胶球的除磷性能 曾学阳, 骆华勇, 张耀坤, 荣宏伟, 曾子君, 钟广汇 (2748)

玉米淀粉废水短程硝化快速启动及其稳定性 龙北生, 刘迅雷, 刘红波, 杨靖新, 袁树森 (2756)

硝化细菌的培养及包埋固定化中试 杨宏, 胡银龙 (2763)

不同运行策略下厌氧氨氧化的脱氮性能 安芳娇, 彭永臻, 董志龙, 邵兆伟, 赵智超, 黄剑明, 陈永志 (2770)

高含固污泥厌氧消化中蛋白质转化规律 詹瑜, 施万胜, 赵明星, 许之扬, 阮文权, 宋联, 朱葛 (2778)

污泥富磷堆肥前后重金属赋存形态及释放能力变化 李玉, 方文, 祁光霞, 魏勇红, 刘建国, 李润东 (2786)

丝状菌污泥膨胀对脱氮除磷功能菌群的影响 高晨晨, 游佳, 陈轶, 郑兴灿, 尚巍, 张文安 (2794)

同步去除并富集磷酸盐生物膜驯化过程中微生物种群分析 孟璇, 潘杨, 章豪, 廖恒弘, 徐林建, 冯鑫, 单捷 (2802)

四环素对人粪便好氧堆肥过程及微生物群落演替的影响 时红蕾, 王晓昌, 李倩, 刘源 (2810)

长期定位有机物料还田对关中平原夏玉米-冬小麦轮作土壤 NO 排放的影响 袁梦轩, 王晋峰, 谭跃慧, 魏静, 杨学云, 顾江新 (2819)

菌渣还田量对紫色水稻土净温室气体排放的影响 祁乐, 高明, 周鹏, 王富华, 高泳钦, 陈仕奇, 吴思琪, 邓静霖, 文婷 (2827)

¹³C 脉冲标记法定量冬小麦光合碳分配及其向地下的输入 孙昭安, 陈清, 韩笑, 吴文良, 孟凡乔 (2837)

西南喀斯特区植被恢复对土壤氮素转化通路的影响 杨怡, 欧阳运东, 陈浩, 肖孔操, 李德军 (2845)

江苏海岸带土壤重金属来源解析及空间分布 吕建树, 何华春 (2853)

黄河下游典型区域土壤重金属来源解析及空间分布 于元赫, 吕建树, 王亚梦 (2865)

典型小城市土壤重金属空间异质性及其风险评价: 以临安市为例 郑晴之, 王楚栋, 王诗涵, 林子也, 赵科理, 吴东涛, 傅伟军 (2875)

西南某铅锌矿区农田土壤重金属空间主成分分析及生态风险评价 周艳, 陈楠, 邓绍坡, 王金忠, 张胜田, 龙涛, 李群, 林玉锁, 吴运金 (2884)

典型山核桃产区土壤重金属空间异质性及其风险评价 张红桔, 赵科理, 叶正钱, 许斌, 赵伟明, 顾晓波, 张华锋 (2893)

生物炭添加对湿地植物生长及氧化应激响应的影响 黄磊, 陈玉成, 赵亚琦, 肖广全, 杨志敏 (2904)

厌氧条件水稻土铁对砷释放的影响 王欣, 钟松雄, 陈志良, 何宏飞, 董家华, 陈晓丽 (2911)

矿业活动影响区稻田土壤和稻米中重金属含量及健康风险 田美玲, 钟雪梅, 张云霞, 余元元, 庞瑞, 周浪, 宋波 (2919)

硅酸钙和生物腐殖肥复配对葱生长和镉吸收的影响 刘德玲, 尹光彩, 陈志良, 林亲铁, 刘千钧, 钟松雄, 黄玲, 张建强 (2927)

吉林四平设施土壤和蔬菜中重金属的累积特征 李莲芳, 朱昌雄, 曾希柏, 李红娜, 叶婧, 李峰, 吴翠霞 (2936)

喷施锌肥对油菜镉生物可给性的影响 王林, 谷朋磊, 李然, 徐应明, 孙约兵, 梁学峰, 代晶晶 (2944)

贵州草海底栖动物汞分布及其对沉积物汞的响应特征 许议元, 曾玲霞, 何天容, 陈梦瑜, 钱晓莉, 李振吉 (2953)

废旧轮胎翻新过程中多环芳烃排放及健康风险 付建平, 赵波, 黎玉清, 刘沙沙, 尹文华, 黄锦琼, 周长风, 张素坤, 贺德春, 韩静磊 (2963)

县级尺度的重庆市碳排放时空格局动态 孙秀峰, 施开放, 吴健平 (2971)

颗粒尺寸对纳米氧化物环境行为的影响 严玉鹏, 唐亚东, 万彪, 王小明, 刘凡, 冯雄汉 (2982)

防晒剂的海洋环境行为与生物毒性 朱小山, 黄静颖, 吕小慧, 杜永芬, 蔡中华 (2991)

《环境科学》征订启事 (2527) 《环境科学》征稿简则 (2723) 信息 (2826, 2852, 2910)

高含固污泥厌氧消化中蛋白质转化规律

詹瑜^{1,2}, 施万胜^{1,2}, 赵明星^{1,2}, 许之扬^{1,2}, 阮文权^{1,2*}, 宋联³, 朱葛³

(1. 江南大学环境与土木工程学院, 无锡 214122; 2. 江苏省厌氧生物技术重点实验室, 无锡 214122; 3. 无锡国联环保科技股份有限公司, 无锡 214131)

摘要: 采用剩余污泥在含固率(total solid, TS)为 12% 条件下进行中温(37℃)厌氧消化, 通过分析厌氧消化前后污泥蛋白质组分的变化情况, 研究了高含固污泥厌氧消化中蛋白质的转化规律, 探讨了高含固条件下污泥蛋白质转化效率较低的原因。结果表明, 经过 45 d 的厌氧消化处理, 污泥蛋白质的转化率为 34.26%。污泥蛋白质转化效率较低的原因主要表现在: ①高含固条件下污泥的传质较差; 同时, 污泥蛋白质经水解过程形成大量的氨氮, 反应结束后污泥总氨氮(total ammonia nitrogen, TAN)质量浓度达到 1201 mg·L⁻¹, 导致对厌氧消化过程, 尤其对蛋白质的分解表现出一定的抑制作用; ②三维荧光光谱(three-dimensional fluorescence spectroscopy, 3D-EEM)分析表明, 部分蛋白质向腐殖质类、富里酸类物质转化, 从而更难分解; ③通过二维电泳(two-dimensional electrophoresis, 2-DE)-质谱(mass spectrometry, MS)分析发现, 厌氧消化后污泥蛋白质的相对分子质量和等电点(isoelectric point, pI)降低; 最终, 污泥中残留的大部分蛋白质来源于微生物体内。由于微生物代谢能力随着厌氧消化过程的进行而减弱, 难以继续利用这些蛋白质, 或消化体系中不具备分解这些蛋白质的酶, 从而限制了污泥中蛋白质的分解效率。

关键词: 剩余污泥; 高含固; 厌氧消化; 蛋白质; 氨氮

中图分类号: X703 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)06-2778-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.201709250

Transformation of Protein in Sludge During High Solids Anaerobic Digestion

ZHAN Yu^{1,2}, SHI Wan-sheng^{1,2}, ZHAO Ming-xing^{1,2}, XU Zhi-yang^{1,2}, RUAN Wen-quan^{1,2*}, SONG Lian³, ZHU Ge³

(1. School of Environment and Civil Engineering, Jiangnan University, Wuxi 214122, China; 2. Jiangsu Key Laboratory of Anaerobic Biotechnology, Wuxi 214122, China; 3. Wuxi Guolian Environmental Science and Technology Co., Ltd., Wuxi 214131, China)

Abstract: Dewatered waste sludge with a total solid (TS) concentration of 12% was used for mesophilic (37°C) anaerobic digestion (AD). The biotransformation mechanism of protein and the reason for the low conversion efficiency of protein under high solids AD was investigated by analyzing the variation of protein composition in the sludge before and after AD. The results showed that the conversion rate of protein in the sludge was 34.26% after 45 days of AD. The reason for the low efficiency of protein conversion was the poor mass transfer efficiency under the condition of high solids content and the large amount of ammonia nitrogen produced with the hydrolysis. After 45 days of AD, the total ammonia nitrogen (TAN) concentration reached 1201 mg·L⁻¹, which resulted in the inhibition of the AD process, especially the decomposition of protein. Some of the protein converted to humic acid-like and fulvic acid-like substances, which are more difficult to decompose based on the three-dimensional fluorescence spectroscopy (3D-EEM) analysis. Two-dimensional electrophoresis (2-DE)-mass spectrometry (MS) was adopted for identifying the composition of protein in sludge before and after AD. It showed that the relative molecular weight and the isoelectric point (pI) of the protein in the sludge decreased after AD and most of the proteins left in the digested sludge came from the micro-organisms. These proteins cannot be further decomposed by the microbes because of the decreased microbial metabolic capacity at the end of the AD process or lack of specific enzymes for the hydrolysis of these proteins. This ultimately resulted in the low decomposition efficiency of the total protein in the sludge.

Key words: waste activated sludge; high solids; anaerobic digestion; protein; ammonia nitrogen

目前, 我国每年产生湿污泥(以 TS 为 20% 计)约 3000 万 t^[1], 污泥的处理与处置成为污水处理厂急需解决的问题。近年来, 高含固污泥厌氧消化技术被认为是一种环境友好且相对可持续的处理方法, 可将污泥中大量的有机物转化为沼气, 实现污泥减量化和资源化, 也便于污泥的运输和集中处理, 同时克服了传统厌氧消化处理过程中反应器占地面积大^[2], 建设、运行成本高等缺陷而更具有经济性^[3]。

但研究发现, 在高含固条件下, 污泥的厌氧消

化效率往往较低。Fujishima 等^[4]的研究结果表明, 当 TS 从 3% 升高至 11% 时, 挥发性固体(volatile solid, VS)的去除率由 45.6% 降至 33.8%。其中一个原因就是污泥蛋白质的分解率较低。据 Yang 等报道^[5], 在污泥 TS 为 28 767 mg·L⁻¹ 下, 蛋白质的分解率只有 32.2%。同时, 蛋白质的水解产生大量

收稿日期: 2017-09-27; 修订日期: 2017-12-14

基金项目: 中央高校基本科研业务费专项(JUSRP116025)

作者简介: 詹瑜(1992~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为废物资源化工程, E-mail: zhanyu9210@163.com

* 通信作者, E-mail: wqruanjin@gmail.com

的氨氮并累积在系统中, 当氨氮浓度达到一定值时就会对整个厌氧消化系统内的微生物生长产生抑制作用^[6]. 其中, 以游离氨 (free ammonia nitrogen, FAN) 的抑制尤为明显^[7]. FAN 浓度过高时会影响污泥厌氧消化系统的稳定性^[8], 甚至导致系统的崩溃. 因此, 研究高含固条件下蛋白质的转化规律对污泥厌氧消化系统的稳定性和高效性至关重要.

基于此, 本研究采用剩余污泥在 TS 为 12% 的条件下进行厌氧消化处理. 通过对污泥蛋白质的转化产物进行分析, 阐明厌氧消化过程中污泥蛋白质的转化规律, 揭示高含固污泥厌氧消化过程中蛋白质分解率较低的原因, 以期为提高高含固污泥厌氧消化效率奠定基础.

表 1 污泥特性

Table 1 Characteristics of sludge used in this study

项目	TS/%	VS/TS/%	TAN/mg·L ⁻¹	总蛋白质(TS)/%	碳氮比(C/N)
剩余污泥	19.19 ± 0.17	51.64 ± 1.85	7.28 ± 0.10	24.34 ± 0.13	7.56 ± 0.19
接种污泥	12.27 ± 0.14	46.05 ± 1.10	512.64 ± 5.57	20.11 ± 0.24	6.20 ± 0.16
混合污泥	12.00 ± 0.04	51.12 ± 0.46	54.92 ± 1.17	23.71 ± 0.13	7.36 ± 0.18

1.2 指标分析方法

pH 采用 pH 计 (FE28K, METTLER, Switzerland) 测定. TAN 测定采用纳氏试剂光度法^[9]. 污泥胞外聚合物 (extracellular polymeric substances, EPS) 分为外层溶解性胞外聚合物 (soluble EPS, SEPS) 和内层固着性胞外聚合物 (bound EPS, BEPS), 采用加热法提取^[10], 分别获得溶解性蛋白质 (SEPS 蛋白质) 和结合态蛋白质 (BEPS 蛋白质), 采用改进的 Lowry 法分析^[11]. 污泥总蛋白质质量分数通过测定污泥凯氏氮减去 TAN 后乘以 6.25 计算得到^[12]. FAN 质量浓度通过 TAN、pH 和温度之间的关系计算得到^[13], 计算公式如下:

$$[\text{FAN}] = [\text{TAN}] \times \left[1 + \frac{10^{-\text{pH}}}{10^{-(0.09018 + \frac{2.72992}{T})}} \right]^{-1}$$

式中, [FAN] 和 [TAN] 分别为 FAN 和 TAN 的质量浓度 (mg·L⁻¹); T 为热力学温度 (K).

1.3 三维荧光光谱分析

采用 F-7000 型荧光光度计 (HITACH, Japan) 对厌氧消化前后污泥组分的特性进行分析. 三维荧光光谱的激发波长和发射波长分别为 200 ~ 400 nm 和 250 ~ 500 nm, 激发和发射狭缝均为 5.0 nm.

1.4 蛋白质的二维电泳及质谱分析

采用土壤蛋白提取试剂盒 (MOBIO, United States) 提取污泥蛋白, 并通过非干扰蛋白测定试剂

1 材料与方法

1.1 实验内容

实验所采用的剩余污泥取自无锡市某污水处理厂, 接种污泥为经中温厌氧消化后的消化污泥. 污泥特性见表 1. 实验装置采用 Bioprocess 全自动甲烷潜力测试系统; 控制反应温度为 37℃, 甲烷体积由 AMPTS v5.0 软件统计. 实验采用序批式发酵法, 在 1 L 培养瓶中加入剩余污泥 297.5 g, 接种污泥 52.5 g 和蒸馏水 179 g, 使最终 TS 为 12%. 向培养瓶中通入 5 min 氮气以保证厌氧状态后进行厌氧消化, 直到甲烷产量不再变化时停止实验. 实验设置 3 组平行.

盒 (生工, 中国) 测量蛋白质质量浓度. 取 500 μg 蛋白质提取物进行 2-DE. 第一向等电聚焦使用 IPGphor 进行固相 pH 梯度胶条 (17 cm, pH 梯度为 3.0 ~ 10.0) 的水化和上样. 每个胶条在 10 mL 的平衡缓冲液 [0.05 mol·L⁻¹ 三(羟甲基)氨基甲烷, pH 8.8, 6 mol·L⁻¹ 尿素, 30% (质量分数) 甘油和 2% (质量分数) 十二烷基硫酸盐 (sodium dodecyl sulfate, SDS)] 中进行两次胶条平衡 (第一次添加 0.002% 溴酚蓝和 0.125 mol·L⁻¹ 二硫苏糖醇, 第二次添加 0.002% 溴酚蓝和 0.125 mol·L⁻¹ 碘乙酰胺). 然后在 Multiphor II 系统中进行第二向 SDS 电泳^[14]. 2-DE 结束, 用考马斯亮蓝 R250 对凝胶染色后进行下一步分析. 实验中通过手动目测分析差异蛋白点.

从聚丙烯酰胺凝胶上切下待分析的蛋白点, 进行酶解^[15]. 将酶解得到的干粉重新溶解于 5 μL 含 0.1% 三氟乙酸 (trifluoroacetic acid, TFA) 的溶液中, 然后按照 1:1 的比例与含 50% 乙腈和 1% TFA 的 α-氰基-4-羟基肉桂酸饱和溶液混合后取 1 μL 样品进行质谱点靶鉴定, 仪器为 Applied Biosystems 公司 ABI5800 串联飞行时间质谱仪. 采用正离子模式和自动获取数据的模式进行数据采集; 肽指纹图谱法的质谱扫描范围为 800 ~ 3500; 选择强度最大的 10 个峰进行二级质谱. 将一级和二级质谱数据整合并使用 Applied Biosystems 公司 GPS 3.6 和 Matrix

Science 的 Mascot 2.3 对质谱数据进行分析 and 蛋白鉴定.

2 结果与讨论

2.1 厌氧消化过程中污泥蛋白质的生物转化效率

图 1 为厌氧消化过程中污泥总蛋白质质量分数随消化时间的变化曲线. 初始时, 污泥总蛋白质质量分数为 23.71%; 消化前期, 随着易降解有机物的快速分解, 污泥中蛋白质分解为小分子有机物和氨氮, 蛋白质质量分数大幅降低. 到 33 d 后, 蛋白质的含量趋近于稳定; 到第 45 d 消化结束时, 污泥中总蛋白质的质量分数降低到 19.24%; 考虑到污泥的 TS 由 12.0% 降低到 9.72%, 此时, 污泥总蛋白质质量分数降低了 34.26%.

污泥中蛋白质在厌氧过程中首先进行水解成小分子和氨氮, 在厌氧消化前 15 d, TAN 质量浓度从初始的 $55 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 迅速上升至 $752 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ [图 2 (a)]; 然后, TAN 质量浓度上升速率有所放缓, 直到第 45 d 消化结束时, 污泥中 TAN 质量浓度达到最大值. 由于氮素是厌氧微生物生长所必需的营养元素^[16], 一般认为, TAN 质量浓度低于 $200 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时, 对厌氧消化过程是有利的^[17]. 何仕均等的研究发现^[18], 当 TAN 质量浓度大于 $800 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时开始表现抑制产甲烷作用, 抑制程度为 7%, 且抑制程度与 TAN 质量浓度呈正相关. 根据实验结果, 可知 TAN 质量浓度已超过对微生物无

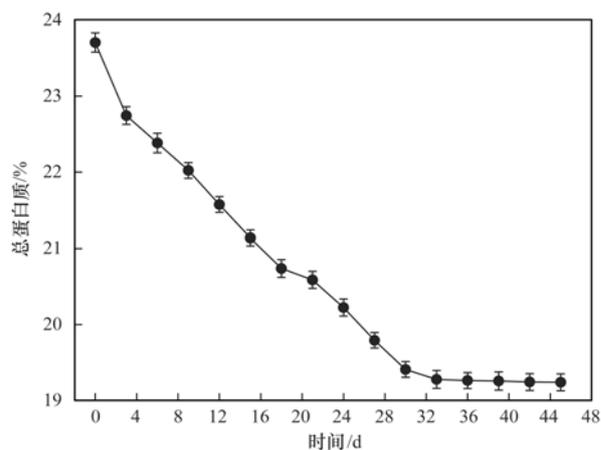


图 1 总蛋白质质量分数的变化曲线

Fig. 1 Variation of total protein in the sludge during the operation

影响的阈值, 因此这将可能导致对厌氧消化产生抑制. 由于 TAN 中的 FAN 具有细胞膜渗透性^[19], 可通过被动扩散进入细胞内, 破坏质子平衡, 导致 K^+ 流失, 从而对产甲烷微生物体系产生毒性^[20], 本实验同时对厌氧消化过程中的 pH 和 FAN 进行了监测, 其变化如图 2(b) 和图 2(c) 所示. 从图 2 中可知, 在反应的最初 9 d 内, pH 和 FAN 均上升较快, 这与微生物分解含氮化合物产生大量氨氮导致 pH 和 FAN 升高所对应. 第 9 ~ 12 d 时, pH 和 FAN 均有一定幅度的下降, 而在第 18 d 后, TAN 质量浓度达到 $821 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 可能对微生物活性产生抑制而减缓了 TAN 的产生. 第 12 ~ 39 d, pH 一直在 7.7 ~ 7.9 之间波动; FAN 则在第 12 ~ 30 d 内于 80

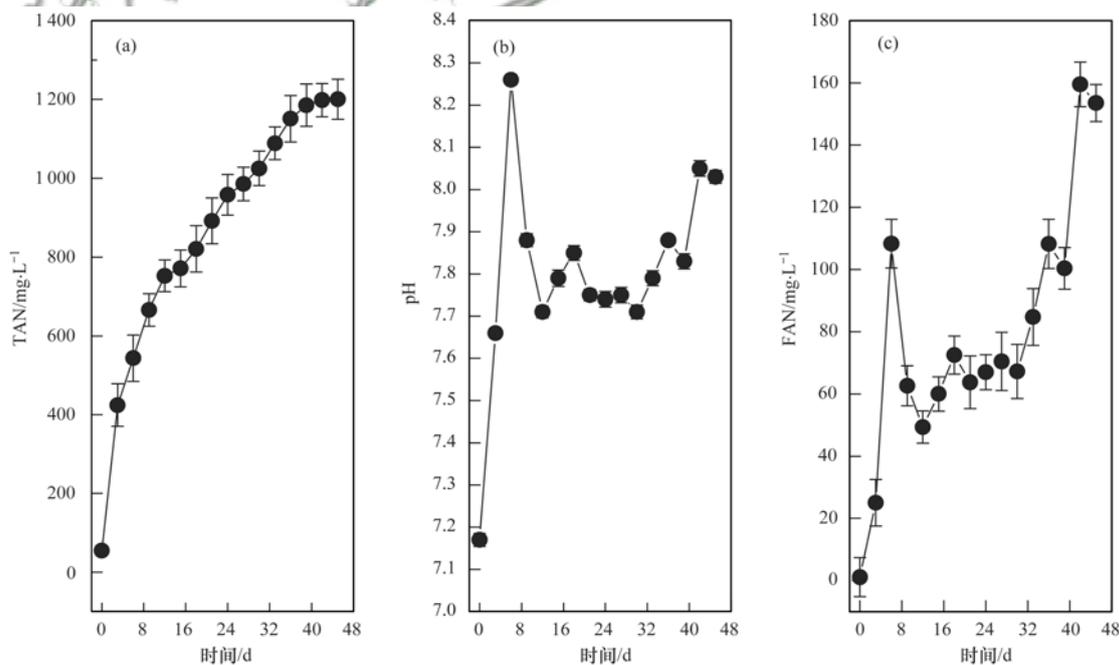


图 2 TAN 质量浓度、pH 与 FAN 质量浓度的变化曲线

Fig. 2 Variation of TAN, pH, and FAN in the sludge during the operation

$\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 以下波动. 之后, pH 与 FAN 均呈现出上升趋势, FAN 的质量浓度逐渐对产甲烷微生物体系产生抑制作用.

消化实验结束时, 最终 TAN 质量浓度、pH 和 FAN 质量浓度分别上升至 $1201 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、8.12 和 $154 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$. 因此, 在 12% 含固率条件下, 厌氧消化过程中产生的 TAN 和 FAN 已达到较高质量浓度, 对蛋白质的生物分解产生了一定的抑制作用. 此外, 高含固率导致的传质困难也可能影响到蛋白质的分解. 而这种较低的蛋白质转化效率可能是导致污泥厌氧消化中有机物转化效率不高的一个重要原因.

2.2 厌氧消化过程中污泥 EPS 蛋白质形态的变化

图 3 为污泥不同结合状态的 EPS 蛋白质在厌氧消化过程中的变化情况. 厌氧消化开始时, 溶解态蛋白质 (SEPS 蛋白质) 质量浓度较低, 为 $774 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 结合态蛋白质 (BEPS 蛋白质) 质量分数较高, 占污泥干重的 2.99%. 随着厌氧消化的进行,

SEPS 蛋白质质量浓度随时间不断波动, 呈先降低后升高的趋势, 在第 18 d 达到最低, 说明污泥在厌氧消化过程中部分微生物细胞破壁, 胞内物质流出^[21], 同时又在不停地被分解. 随后, SEPS 蛋白质质量浓度大幅上升, 在第 45 d 达到 $1223 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 并留在污泥液相中难以分解.

污泥 BEPS 蛋白质质量分数在消化前 9 d 大幅下降, 在实验第 9 d 降至最低. 随后, BEPS 蛋白质质量分数开始在一定范围内波动, 说明胞外聚合物中结合态蛋白质的形态转化与分解作用主要发生在前 9 d, 之后蛋白质从结合态向溶解态的转化速度减缓, 到第 15 d, 结合态蛋白质已基本被分解, 污泥中剩余某些难消化或不能被消化的蛋白质使得 BEPS 蛋白质质量分数趋于稳定, 反应后期稳定在 0.94 ~ 1.68%. 因此, 污泥 EPS 中蛋白质在厌氧消化过程中不断由结合态向溶解态转化, 并进行微生物转化, 部分难以被微生物分解的蛋白质残留在污泥中.

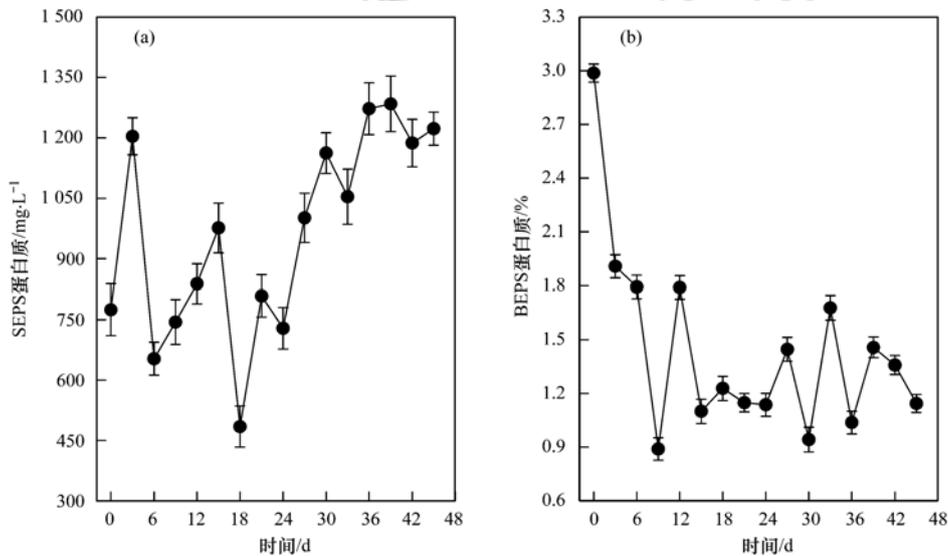


图 3 SEPS 蛋白质质量浓度与 BEPS 蛋白质质量分数的变化曲线

Fig. 3 Variation of SEPS protein and BEPS protein in the sludge during the operation

2.3 厌氧消化过程中污泥组分的 3D-EEM 分析

为了明确厌氧消化中污泥蛋白质的转化过程和转化产物, 采用 3D-EEM 对厌氧消化前后污泥组分的变化进行分析. 如图 4 所示, 峰 a 为酪氨酸蛋白类物质, 峰 b 为色氨酸蛋白类物质, 峰 c 为溶解性微生物代谢产物, 峰 d 为腐殖酸类物质, 峰 e 为富里酸类物质^[22]. 图 4(a)、图 4(b) 分别为污泥厌氧消化前后 SEPS 中有机物的变化情况, 从中可以看出, 厌氧消化反应前后污泥液相中有机物的变化较大; 除峰 a 的峰强减弱外, 峰 b、峰 c 的峰强均大幅

增强, 同时形成了峰 d、峰 e, 说明除酪氨酸蛋白类物质浓度有所下降外, 色氨酸蛋白类物质、溶解性微生物代谢产物、腐殖酸类及富里酸类物质浓度均有上升. 原因可能是由于厌氧消化的水解作用, 污泥中 EPS 在消化过程中被分解, 使得污泥絮体解体^[23], 污泥细胞溶胞释放出胞内有机物, 大分子有机物溶出或分解为小分子有机物有利于后面微生物利用^[24]. 其中溶解性微生物代谢产物占了有机物的主要部分, 同时形成了较多的色氨酸蛋白类、腐殖酸类和富里酸类物质.

图 4(c)、图 4(d) 分别为污泥厌氧消化前后 BEPS 中有机的变化情况, 从中可以看出, 污泥厌氧消化反应后, 峰 a、b、c 的强度均有不同程度的减弱, 峰 d 的强度稍有增强, 同时形成了峰 e, 即酪氨酸、色氨酸蛋白类物质及溶解性微生物代谢产物浓度有一定幅度的下降, 而腐殖酸类及富里酸类物质浓度有所上升. 说明污泥经过厌氧消化后大量

有机物发生了分解或溶出到液相中, 导致酪氨酸蛋白类、色氨酸蛋白类物质及溶解性微生物代谢产物在 BEPS 中大大降低, 而腐殖酸类、富里酸类物质在 SEPS 与 BEPS 中均有大幅增加, 说明经过厌氧消化, 污泥中有大量腐殖酸类、富里酸类物质生成, 这些物质不仅更难分解, 而且对污泥的厌氧消化过程产生一定的抑制作用^[25].

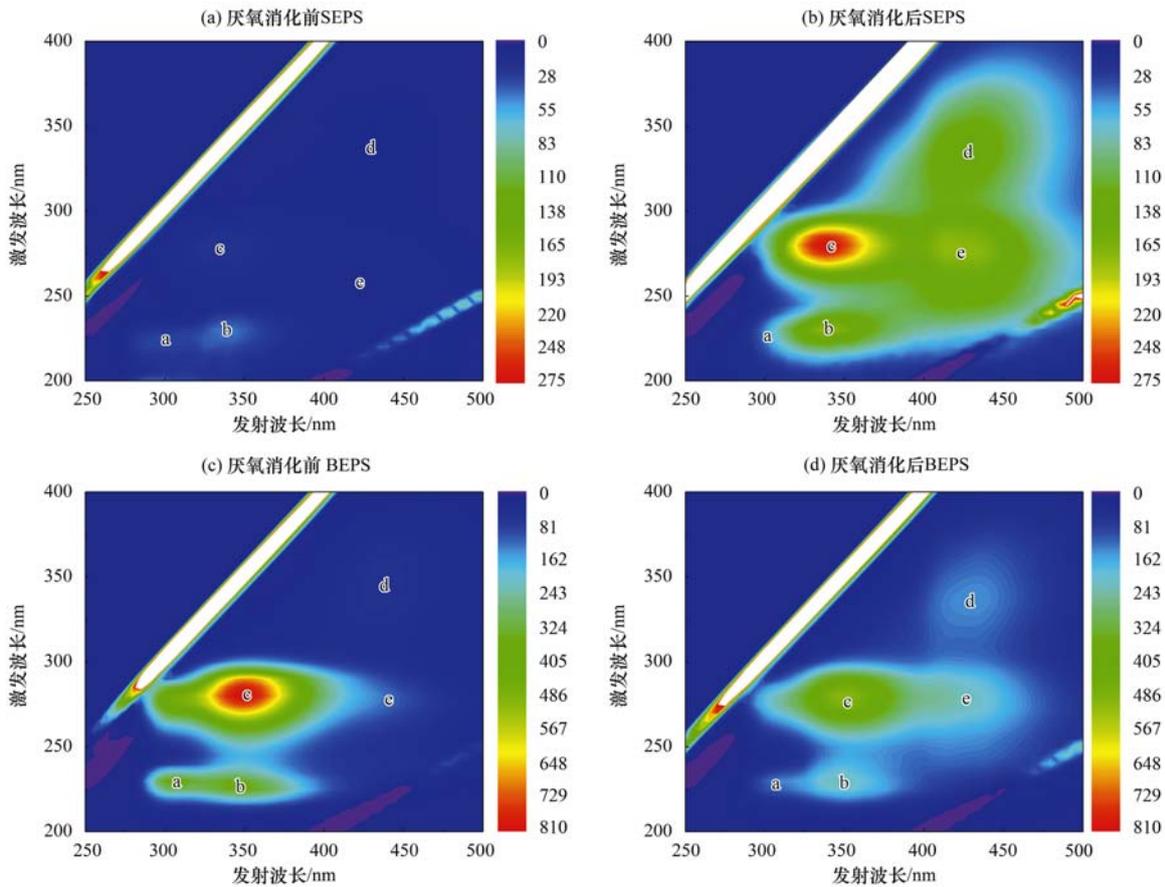


图 4 厌氧消化前后 EPS 的 3D-EEM 图谱

Fig. 4 3D-EEM spectra of EPS before and after anaerobic digestion

2.4 2-DE 及 MS 分析厌氧消化前后污泥中蛋白质的变化

为了深入了解厌氧消化前后污泥中蛋白质组成的变化情况, 本研究采用 2-DE 对污泥厌氧消化前后蛋白质组分进行分离, 然后对分离的蛋白质进行 MS 分析. 污泥蛋白质的 2-DE 结果如图 5 所示. 从中可以发现污泥中的蛋白质经过消化后呈现显著差异, 部分蛋白质被分解. 从 pI 梯度方向蛋白质分布变化可以发现, 厌氧消化后污泥中蛋白质的 pI 降低. 从相对分子质量分布来看, 消化前污泥中的蛋白质主要分布在 18 400 ~ 45 000, 消化后的污泥蛋白质主要集中在 14 400 ~ 18 400 和 25 000 ~ 40 000.

这意味着经过厌氧消化后, 蛋白质的相对分子质量下降, 趋向小分子化.

为了进一步了解厌氧消化前后污泥蛋白质的性质, 将凝胶上的蛋白质点经过手动切割后进行 MS 分析, 结果如表 2 所示. 从中可以看出, 污泥中大部分的蛋白质来自于微生物. 其中剩余污泥中的蛋白质主要来自于活性污泥微生物, 例如硝化细菌 (*Nitrospirae bacterium*)、变形菌 (*Burkholderiales bacterium*、*Rhodocyclales bacterium*、*Gallionellales bacterium*、*Gilliamella apicola*)、除磷细菌 (*Candidatus Accumulibacter aalborgensis*) 等体内的蛋白质, 还有部分来自人体的蛋白质, 例如血清蛋白

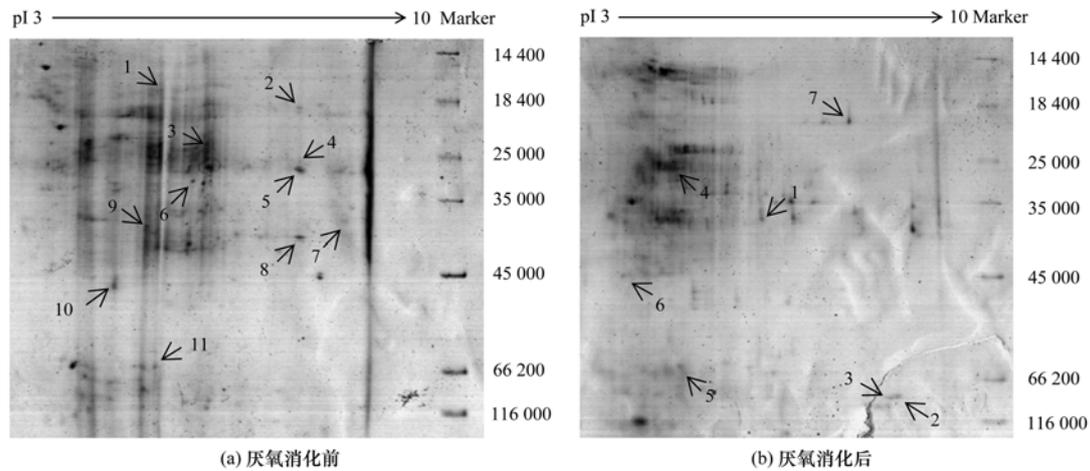


图 5 污泥厌氧消化前后的 2-DE 图

Fig. 5 2-DE of protein before and after anaerobic digestion

表 2 污泥中蛋白质的鉴定

Table 2 List of identified proteins in the sludge

类别	编号	蛋白得分	相对分子质量	pI	蛋白匹配到的肽段数(匹配到 Expect 值小于 0.05 的肽段数)	蛋白匹配到的非冗余肽段数(匹配到 Expect 值小于 0.05 的肽段数)	蛋白丰度值	蛋白名称[物种来源]
剩余污泥	1	79	15612	5.45	1(1)	1(1)	0.36	rubrerythrin [Nitrospirae bacterium]
	2	70	23321	8.22	1(1)	1(1)	0.24	chain A, solution structure of domain 3 from human serum albumin complexed to an anti-apoptotic ligand directed against Bcl-Xl and Bcl-2
	3	85	24933	6.91	2(2)	1(1)	0.57	hypothetical protein A2V62-09280 [Nitrospirae bacterium]
	4	80	26544	8.5	1(1)	1(1)	0.23	electron transporter RnFB [Burkholderiales bacterium]
	5	155	28777	8.76	2(2)	2(2)	0.42	hypothetical protein [Nitrospira sp.]
	6	180	30026	6.43	2(2)	2(2)	0.41	pancreatic protease E precursor [Homo sapiens]
	7	80	40513	9.44	1(1)	1(1)	0.16	branched chain amino acid ABC transporter substrate-binding protein [Vogesella sp.]
	8	75	44328	8.61	1(1)	1(1)	0.12	extracellular ligand-binding receptor [Candidatus Accumulibacter aalborgensis]
	9	282	43437	5.34	3(3)	3(3)	0.48	translation elongation factor Tu [Rhodocyclales bacterium]
	10	168	45702	4.67	2(2)	2(2)	0.29	phosphopyruvate hydratase [Gallionellales bacterium]
	11	113	57462	5.43	1(1)	1(1)	0.11	chaperonin GroL [Rhizobiales bacterium]
消化污泥	1	168	42555	6.14	2(2)	2(2)	0.31	hypothetical protein MCON-1853 [Methanosaeta concilii]
	2	73	83137	9.35	1(1)	1(1)	0.07	primosomal protein N' [Gilliamella apicola]
	3	46	68694	8.02	1(1)	1(1)	0.05	hypothetical protein AN188-01595 [Arc I group archaeon ADurb1013-Bin02101]
	4	45	30601	5.08	4(1)	1(1)	0.11	hypothetical protein XD82-0997, partial [Methanoculleus marisnigri]
	5	57	66995	5.4	1(1)	1(1)	0.05	Chaperone protein DnaK
	6	67	53142	4.63	1(1)	1(1)	0.11	hypothetical protein N838-01890 [uncultured Thiohalocapsa sp.]
	7	71	23321	8.22	1(1)	1(1)	0.23	chain A, solution structure of domain 3 from human serum albumin complexed to an anti-apoptotic ligand directed against Bcl-Xl and Bcl-2

(serum albumin)等。消化后污泥中的蛋白质主要来自于经过厌氧消化产生的大量厌氧微生物,例如产甲烷菌(*Methanosaeta concilii*、*Methanoculleus marisnigri*)等,而同时也发现如血清蛋白(serum

albumin)等来自人体的蛋白质并未被分解,残留了下来。实验结果表明,污泥中存在的大部分蛋白质为微生物体内的酶等蛋白质,而随着厌氧消化的进行,底物被逐渐消耗,微生物代谢及分泌酶的能力

降低^[26];同时,有害中间产物氨氮和腐殖酸类物质的产生会进一步抑制蛋白酶的活性^[27],最终微生物无法继续利用该部分蛋白质或厌氧消化体系中不具备分解这些蛋白质的酶而导致污泥蛋白质分解的停滞,使得这些蛋白质残留在污泥中而难以继续分解,从而制约了污泥中蛋白质的分解效率。

3 结论

(1)在 TS 为 12% 条件下的污泥厌氧消化过程中,污泥蛋白质的存在形态发生了转变,逐渐由结合态向溶解态转化,表现为污泥絮体解体,细胞破壁,蛋白质流出后再被分解的过程。同时形成了大量氨氮,导致的高氨氮浓度对厌氧消化效率,尤其对蛋白质的分解表现出一定的抑制作用。

(2)污泥中的部分蛋白质向腐殖质类、富里酸类物质转化而腐殖化,变得更加难分解。

(3)总体来看,经过厌氧消化后污泥中蛋白质的相对分子质量降低,污泥蛋白质由大分子向小分子转化。由于污泥中残留的大部分蛋白质来源于微生物体内;而随着厌氧消化过程的进行,微生物代谢能力及酶活性随之降低,或厌氧消化体系中不具备分解这些蛋白质的酶,导致微生物最终无法继续利用该部分蛋白质,从而限制了污泥中蛋白质的分解效率。

参考文献:

- [1] Duan N N, Dong B, Wu B, *et al.* High-solid anaerobic digestion of sewage sludge under mesophilic conditions: feasibility study [J]. *Bioresource Technology*, 2012, **104**: 150-156.
- [2] Hidaka T, Wang F, Togari T, *et al.* Comparative performance of mesophilic and thermophilic anaerobic digestion for high-solid sewage sludge [J]. *Bioresource Technology*, 2013, **149**: 177-183.
- [3] Devlin D C, Esteves S R R, Dinsdale R M, *et al.* The effect of acid pretreatment on the anaerobic digestion and dewatering of waste activated sludge [J]. *Bioresource Technology*, 2011, **102** (5): 4076-4082.
- [4] Fujishima S, Miyahara T, Noike T. Effect of moisture content on anaerobic digestion of dewatered sludge: ammonia inhibition to carbohydrate removal and methane production [J]. *Water Science and Technology: A Journal of the International Association on Water Pollution Research*, 2000, **41**(3): 119-127.
- [5] Yang G, Zhang P Y, Zhang G M, *et al.* Degradation properties of protein and carbohydrate during sludge anaerobic digestion [J]. *Bioresource Technology*, 2015, **192**: 126-130.
- [6] Rajagopal R, Massé D I, Singh G. A critical review on inhibition of anaerobic digestion process by excess ammonia [J]. *Bioresource Technology*, 2013, **143**: 632-641.
- [7] Li N, Xue Y G, Chen S S, *et al.* Methanogenic population dynamics regulated by bacterial community responses to protein-rich organic wastes in a high solid anaerobic digester [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2017, **317**: 444-453.
- [8] 陈思思,戴晓虎,薛勇刚,等.影响高含固厌氧消化性能的主要因素研究进展[J].*化工进展*, 2015, **34**(3): 831-839, 856.
- Chen S S, Dai X H, Xue Y G, *et al.* Research progress of the main factors influencing properties of high-solid anaerobic digestion [J]. *Chemical Industry and Engineering Progress*, 2015, **34**(3): 831-839, 856.
- [9] 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,2002.279-281.
- [10] Li X F, Zhang L N, Du G C. Influence of sludge discharge on sludge settleability and membrane flux in a membrane bioreactor [J]. *Environmental Technology*, 2010, **31**(11): 1289-1294.
- [11] Lowry O H, Rosebrough N J, Farr A L, *et al.* Protein measurement with the Folin phenol reagent [J]. *The Journal of Biological Chemistry*, 1951, **193**(1): 265-275.
- [12] Miron Y, Zeeman G, Van Lier J B, *et al.* The role of sludge retention time in the hydrolysis and acidification of lipids, carbohydrates and proteins during digestion of primary sludge in CSTR systems [J]. *Water Research*, 2000, **34**(5): 1705-1713.
- [13] Hansen K H, Angelidaki I, Ahring B K. Anaerobic digestion of swine manure: inhibition by Ammonia [J]. *Water Research*, 1998, **32**(1): 5-12.
- [14] Laemmli U K. Cleavage of structural proteins during the assembly of the head of bacteriophage T4 [J]. *Nature*, 1970, **227**(5259): 680-685.
- [15] Katayama H, Nagasu T, Oda Y. Improvement of in-gel digestion protocol for peptide mass fingerprinting by matrix-assisted laser desorption/ionization time-of-flight mass spectrometry [J]. *Rapid Communications in Mass Spectrometry*, 2001, **15**(16): 1416-1421.
- [16] Wang J L, Yan D L, Dixon R, *et al.* Deciphering the principles of bacterial nitrogen dietary preferences: a strategy for nutrient containment [J]. *mBio*, 2016, **7**(4): e00792-16.
- [17] Liu T, Sung S. Ammonia inhibition on thermophilic aceticlastic methanogens [J]. *Water Science and Technology: A Journal of the International Association on Water Pollution Research*, 2002, **45**(10): 113-120.
- [18] 何仕均,王建龙,赵璇.氨氮对厌氧颗粒污泥产甲烷活性的影响 [J]. *清华大学学报(自然科学版)*, 2005, **45**(9): 1294-1296.
- He S J, Wang J L, Zhao X. Effect of ammonium concentration on the methanogenic activity of anaerobic granular sludge [J]. *Journal of Tsinghua University (Science & Technology)*, 2005, **45**(9): 1294-1296.
- [19] 戴晓虎,何进,严寒,等.游离氨调控对污泥高含固厌氧消化反应器性能的影响 [J]. *环境科学*, 2017, **38**(2): 679-687.
- Dai X H, He J, Yan H, *et al.* Effects of free ammonia regulation on the performance of high solid anaerobic digesters with dewatered sludge [J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(2): 679-687.
- [20] Elbeshbishy E, Nakhla G, Hafez H. Biochemical methane potential (BMP) of food waste and primary sludge: influence of inoculum pre-incubation and inoculum source [J]. *Bioresource Technology*, 2012, **110**: 18-25.

- [21] Du H X, Li F S. Characteristics of dissolved organic matter formed in aerobic and anaerobic digestion of excess activated sludge[J]. *Chemosphere*, 2017, **168**: 1022-1031.
- [22] Zhang Z S, Guo L, Wang Y, *et al.* Degradation and transformation of extracellular polymeric substances (EPS) and dissolved organic matters (DOM) during two-stage anaerobic digestion with waste sludge [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2017, **42**(15): 9619-9629.
- [23] 崔伟莎. 污泥流变特性变化规律及其影响因素的研究[D]. 北京: 北京建筑大学, 2014. 16.
Cui W S. Research on the variation regulation of rheological properties of sludge and its influencing factors [D]. Beijing: Beijing University of Civil Engineering and Architecture, 2014. 16.
- [24] 邢立群, 彭永臻, 金宝丹, 等. 盐度强化剩余污泥碱性发酵产酸[J]. *中国环境科学*, 2015, **35**(6): 1771-1779.
- Xing L Q, Peng Y Z, Jin B D, *et al.* Enhanced production of short-chain fatty acids from waste activated sludge alkaline fermentation; the effect of salinity [J]. *China Environmental Science*, 2015, **35**(6): 1771-1779.
- [25] Fernandes T V, Van Lier J B, Zeeman G. Humic acid-like and fulvic acid-like inhibition on the hydrolysis of cellulose and tributyrin[J]. *Bioenergy Research*, 2015, **8**(2): 821-831.
- [26] Huang Y, Yang L L, Ruan W Q, *et al.* Evaluation of the hydrolysis performance in the kitchen waste and excess sludge anaerobic co-digestion process [J]. *Environmental Technology Reviews*, 2015, **4**(1): 149-157.
- [27] 郝晓地, 唐兴, 曹亚莉. 腐殖质对污泥厌氧消化的影响及其屏蔽方法[J]. *环境科学学报*, 2017, **37**(2): 407-418.
Hao X D, Tang X, Cao Y L. Effects of Humic substances on anaerobic digestion of excess sludge and their blocked approaches [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2017, **37**(2): 407-418.



CONTENTS

Diurnal Variation of SOA Formation Potential from Ambient Air at an Urban Site in Beijing	LIU Jun, CHU Bi-wu, HE Hong (2505)
Characteristics of Key Size Spectrum of PM _{2.5} Affecting Winter Haze Pollution in Taiyuan	YANG Su-ying, YU Xin-yang, ZHAO Xiu-yong, <i>et al.</i> (2512)
Characteristics and Source Apportionment of Water-soluble Ions in PM _{2.5} During Winter in Panjin	ZHANG Lei, JI Ya-qin, WANG Shi-bao, <i>et al.</i> (2521)
Characteristics and Source Apportionment of Volatile Organic Compounds in the Rainy Season of Guangzhou City	GU Ying-gang, YU Xiao-fang, YANG Wen-da, <i>et al.</i> (2528)
Emission Characteristics of Dehydrated Sugar and Acephenanthrylene in Particles from Tropical Forest Burning	JIN Cheng-miao, CUI Min, HAN Yong, <i>et al.</i> (2538)
Construction and Application of Vertical Diffusion Index for Analyzing Weather During Pollution Events in Tianjin	CAI Zi-ying, HAN Su-jin, ZHANG Min, <i>et al.</i> (2548)
Comparison Between Atmospheric Wet-only and Bulk Nitrogen Depositions at Two Sites in Subtropical China	ZHU Xiao, WANG Jie-fei, SHEN Jian-lin, <i>et al.</i> (2557)
Emission Reduction Benefits When Eliminating Yellow-label Vehicles in the Jing-jin-ji Region	LU Ya-ling, ZHOU Jia, CHENG Xi, <i>et al.</i> (2566)
Health Assessment of the Stream Ecosystem in the North Canal River Basin, Beijing, China	GU Xiao-yun, XU Zong-xue, LIU Lin-fei, <i>et al.</i> (2576)
Pollution Characteristics and Source Identification of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Phthalic Acid Esters During High Water Level Periods in the Wuhan Section of the Yangtze River, China	DONG Lei, TANG Xian-qiang, LIN Li, <i>et al.</i> (2588)
Characteristics of Antibiotic Resistance Genes in Downstream Areas of the Aojiang River, Fujian Province	ZHANG Dan-dan, GUO Ya-ping, REN Hong-yun, <i>et al.</i> (2600)
Distribution Characteristics and Risk Assessment of Heavy Metals in the Sediments of the Estuary of the Tributaries in the Three Gorges Reservoir, SW China	FANG Zhi-qing, CHEN Qiu-yu, YIN De-liang, <i>et al.</i> (2607)
Assessment of Physico-chemical Properties and Phosphorus Fraction Distribution Characteristics in Sediments after Impounding of the Three Gorges Reservoir to 175 m	PAN Chan-juan, LI Rui, TANG Xian-qiang, <i>et al.</i> (2615)
Source of Nitrate in Surface Water and Shallow Groundwater Around Baiyangdian Lake Area Based on Hydrochemical and Stable Isotopes	KONG Xiao-le, WANG Shi-qin, DING fei, <i>et al.</i> (2624)
Thermal Stratification and Its Impacts on Water Quality in Shahe Reservoir, Liyang, China	SUN Xiang, ZHU Guang-wei, DA Wen-yi, <i>et al.</i> (2632)
Spatial and Temporal Variation Characteristics of Drip Water Hydrogeochemistry in the Xueyu Cave of Chongqing and Its Implications for Environmental Research	ZENG Ze, JIANG Yong-jun, LÜ Xian-fu, <i>et al.</i> (2641)
Distinguishing the Compositions and Sources of the Chromophoric Dissolved Organic Matter in a Typical Karst River During the Dry Season; A Case Study in Bitan River, Jinfo Mountain	LIU Yue, HE Qiu-fang, LIU Ning-kun, <i>et al.</i> (2651)
Environmental Significance of the Stable Isotopes in Precipitation at Different Altitudes in the Tuolai River Basin	LI Yong-ge, LI Zong-xing, FENG Qi, <i>et al.</i> (2661)
Spatial-Temporal Variations of CO ₂ and CH ₄ Flux Through a Water-air Interface Under the Effect of Primary Productivity in Wulixia Reservoir	PENG Wen-jie, LI Qiang, SONG Ang, <i>et al.</i> (2673)
Spatiotemporal Succession Characteristics of Algal Functional Groups and Its Impact Factors for a Typical Channel-Type Reservoir in a Southwest Mountainous Area	ZHANG Yao-wen, LI Hong, LI Jia, <i>et al.</i> (2680)
Seasonal Succession of Phytoplankton Functional Groups and Their Driving Factors in the Siminghu Reservoir	ZHENG Cheng, LU Kai-hong, XU Zhen, <i>et al.</i> (2688)
Effects of Nutrient Addition on the Growth and Competition of Bloom Forming Cyanobacterium <i>Chrysochloris ovalisporum</i> ; An In-situ Experiment	WANG Meng-meng, ZHANG Wei, ZHANG Jun-yi, <i>et al.</i> (2698)
Purification Effect of Submerged Macrophyte System with Different Plants Combinations and C/N Ratios	LIU Miao, CHEN Kai-ning (2706)
Characteristics of Nitrogen and Phosphorus Concentration Dynamics in Natural Ditches Under an Irrigation-Drainage Unit in the Jiangnan Plain	HUA Ling-ling, ZHANG Fu-lin, ZHAI Li-mei, <i>et al.</i> (2715)
Distribution and Treatment of Antibiotics in Typical WWTPs in Small Towns in China	CHAI Yu-feng, ZHANG Yu-xiu, CHEN Mei-xue, <i>et al.</i> (2724)
Effects and Mechanism of the Combination of Ozone-PAC as a Pretreatment for the Reduction of Membrane Fouling	DONG Bing-zhi, GAO Hao-yang, HU Meng-liu (2732)
Start-up and Process Characteristics of Simultaneous ANAMMOX and Denitrification (SAD) in a Pilot-scale Anaerobic Sequencing Batch Reactor (ASBR)	YU De-shuang, TANG Jia-jia, ZHANG Jun, <i>et al.</i> (2740)
Phosphate Removal on Zirconium Alginate/Poly(<i>N</i> -isopropyl acrylamide) Hydrogel Beads with a Semi-interpenetrating Network	ZENG Xue-yang, LUO Hua-yong, ZHANG Yao-kun, <i>et al.</i> (2748)
Shortcut Nitrification Rapid Start and Stability of Corn Starch Wastewater	LONG Bei-sheng, LIU Xun-lei, LIU Hong-bo, <i>et al.</i> (2756)
Nitrifying Bacteria Culture in Entrapment Immobilization	YANG Hong, HU Yin-long (2763)
Performance of the Removal of Nitrogen During Anaerobic Ammonia Oxidation Using Different Operational Strategies	AN Fang-jiao, PENG Yong-zhen, DONG Zhi-long, <i>et al.</i> (2770)
Transformation of Protein in Sludge During High Solids Anaerobic Digestion	ZHAN Yu, SHI Wan-sheng, ZHAO Ming-xing, <i>et al.</i> (2778)
Changes in Heavy Metal Speciation and Release Behavior Before and After Sludge Composting Under a Phosphate-rich Atmosphere	LI Yu, FANG Wen, QI Guang-xia, <i>et al.</i> (2786)
Effect of Denitrification and Phosphorus Removal Microorganisms in Activated Sludge Bulking Caused by Filamentous Bacteria	GAO Chen-chen, YOU Jia, CHEN Yi, <i>et al.</i> (2794)
Microbial Population Dynamics During Domestication and Cultivation of Biofilm to Remove and Enrich Phosphate	MENG Xuan, PAN Yang, ZHANG Hao, <i>et al.</i> (2802)
Effects of Elevated Tetracycline Concentrations on Aerobic Composting of Human Feces: Composting Behavior and Microbial Community Succession	SHI Hong-lei, WANG Xiao-chang, LI Qian, <i>et al.</i> (2810)
Effect of Long-term Organic Amendments on Nitric Oxide Emissions from the Summer Maize-Winter Wheat Cropping System in Guanzhong Plain	YUAN Meng-xuan, WANG Jin-feng, TAN Yue-hui, <i>et al.</i> (2819)
Effects of Mushroom Residue Application Rates on Net Greenhouse Gas Emissions in the Purple Paddy Soil	QI Le, GAO Ming, ZHOU Peng, <i>et al.</i> (2827)
Estimation of Winter Wheat Photosynthesized Carbon Distribution and Allocation Belowground via ¹³ C Pulse-labeling	SUN Zhao-an, CHEN Qing, HAN Xiao, <i>et al.</i> (2837)
Effects of Vegetation Restoration on Soil Nitrogen Pathways in a Karst Region of Southwest China	YANG Yi, OUYANG Yun-dong, CHEN Hao, <i>et al.</i> (2845)
Identifying the Origins and Spatial Distributions of Heavy Metals in the Soils of the Jiangsu Coast	LÜ Jian-shu, HE Hua-chun (2853)
Source Identification and Spatial Distribution of Heavy Metals in Soils in Typical Areas Around the Lower Yellow River	YU Yuan-he, LÜ Jian-shu, WANG Ya-meng (2865)
Spatial Variation of Soil Heavy Metals in Lin'an City and Its Potential Risk Evaluation	ZHENG Jing-zhi, WANG Chu-dong, WANG Shi-han, <i>et al.</i> (2875)
Principal Component Analysis and Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in Farmland Soils around a Pb-Zn Mine in Southwestern China	ZHOU Yan, CHEN Qiang, DENG Shao-po, <i>et al.</i> (2884)
Spatial Variation of Heavy Metals in Soils and Its Ecological Risk Evaluation in a Typical <i>Carya cathayensis</i> Production Area	ZHANG Hong-ju, ZHAO Ke-li, YE Zheng-qian, <i>et al.</i> (2893)
Influence of Biochar Application on Growth and Antioxidative Responses of Macrophytes in Subsurface Flow Constructed Wetlands	HUANG Lei, CHEN Yu-cheng, ZHAO Ya-qi, <i>et al.</i> (2904)
Effect of Iron on the Release of Arsenic in Flooded Paddy Soils	WANG Xin, ZHONG Song-xiong, CHEN Zhi-liang, <i>et al.</i> (2911)
Concentrations and Health Risk Assessments of Heavy Metal Contents in Soil and Rice of Mine Contaminated Areas	TIAN Mei-ling, ZHONG Xue-mei, ZHANG Yun-xia, <i>et al.</i> (2919)
Effect of Calcium Silicate-biological Humus Fertilizer Composite on Uptake of Cd by Shallots from Contaminated Agricultural Soil	LIU De-ling, YIN Guang-cai, CHEN Zhi-liang, <i>et al.</i> (2927)
Accumulation Characteristics of Heavy Metals in Greenhouse Soil and Vegetables in Siping City, Jilin Province	LI Lian-fang, ZHU Chang-xiong, ZENG Xi-hai, <i>et al.</i> (2936)
Effect of Foliar Zinc Application on Bioaccessibility of Cadmium and Zinc in Pakchoi	WANG Lin, GU Peng-lei, LI Ran, <i>et al.</i> (2944)
Mercury Distribution of Benthonic Animals and Response to Mercury in Sediments in Caohai Wetland, Guizhou Province	XU Yi-yuan, ZENG Ling-xia, HE Tian-rong, <i>et al.</i> (2953)
Discussion of Emissions and Health Risk of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) from the Retreading Process of Waste Tires	FU Jian-ping, ZHAO Bo, LI Yu-qing, <i>et al.</i> (2963)
Spatiotemporal Dynamics of CO ₂ Emissions in Chongqing: An Empirical Analysis at the County Level	SUN Xiu-feng, SHI Kai-fang, WU Jian-ping (2971)
Impact of Size on Environmental Behavior of Metal Oxide Nanoparticles	YAN Yu-peng, TANG Ya-dong, WAN Biao, <i>et al.</i> (2982)
Fate and Toxicity of UV Filters in Marine Environments	ZHU Xiao-shan, HUANG Jing-ying, LÜ Xiao-hui, <i>et al.</i> (2991)