

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第12期

Vol.39 No.12

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(卷终)

中国燃煤电厂大气污染物排放的健康影响特征	秦雨, 张强, 李鑫, 赵红艳, 同丹, 郑逸璇, 耿冠楠, 贺克斌	(5289)
基于 LUR 模型的中国 PM _{2.5} 时空变化分析	刘炳杰, 彭晓敏, 李继红	(5296)
长三角淳安地区二次颗粒物污染形成机制	黄丹丹, 周敏, 余传冠, 朱书慧, 王裕成, 乔利平, 楼晟荣, 陶士康, 杨强, 李莉	(5308)
春季沙尘过程北京市不同粒径大气气溶胶污染特征及来源分析	杨阳, 李杏茹, 陈曦, 刘水桥, 刘雨思, 徐静, 王莉莉, 陶明辉, 王格慧	(5315)
成都双流夏秋季环境空气中 VOCs 污染特征	邓媛元, 李晶, 李亚琦, 吴蓉蓉, 谢绍东	(5323)
佛山市典型铝型材行业表面涂装 VOCs 排放组成	李霞, 苏伟健, 黎碧霞, 龙森, 黎丽莉, 张洲, 于跃刚, 王云鹏, 王新明	(5334)
四川省人为源大气污染物排放清单及特征	周子航, 邓也, 谭钦文, 吴柯颖, 杨欣悦, 周小玲	(5344)
炼焦工序颗粒物排放特征	王彦辉, 赵亮, 孙文强, 叶竹, 蔡九菊	(5359)
小流域大气氮干湿沉降特征	王焕晓, 庞树江, 王晓燕, 樊彦波	(5365)
流域氮素主要输出途径及变化特征	李文超, 雷秋良, 翟丽梅, 刘宏斌, 胡万里, 刘申, 任天志	(5375)
生物炭配施缓控释肥对稻田田面水氮素动态变化及径流流失的影响	斯林林, 周静杰, 吴良欢, 胡兆平	(5383)
长江上游农业源溪流雨季中 N ₂ O 间接排放特征	田琳琳, 王正, 朱波	(5391)
不同氮污染特征河流 N ₂ O 浓度、释放通量与排放系数	王森, 李亚峰, 雷坤, 杨丽标	(5400)
多种同位素手段的硝酸盐污染源解析: 以会仙湿地为例	彭聪, 潘晓东, 焦友军, 任坤, 曾洁	(5410)
典型岩溶槽谷区土壤水 δD 和 δ ¹⁸ O 时空分布特征: 以重庆市中梁山岩溶槽谷为例	吴韦, 蒋勇军, 贾亚男, 彭学义, 段世辉, 刘九缠, 王正雄	(5418)
沁河冲洪积扇地下水水化学特征及成因分析	刘江涛, 蔡五田, 曹月婷, 蔡月梅, 边超, 吕永高, 陈远铭	(5428)
2017 年最大降水对再生水受水河道径流组成的影响	廖安然, 宋献方, 张应华, 杨丽虎, 卜红梅, 马英, 韩冬梅, 秦文婧, 杨胜天	(5440)
周村水库主库区水体热分层形成过程中沉积物间隙水 DOM 的光谱演变特征	周石磊, 张艺冉, 黄廷林, 李再兴, 罗晓	(5451)
三峡库区沉积物中镍污染特征评价	张伟杰, 殷淑华, 徐东昱, 高丽, 高博	(5464)
四面山大洪湖底泥/水界面汞的迁移转化规律	郭攀, 孙涛, 杨光, 马明	(5473)
大兴安岭南麓河湿地类型对土壤中甲基汞分布的影响	周心功, 刘玉荣, 李晶, 周志峰	(5480)
模拟三峡库区消落带土壤有机磷酸酯类水释放特征	杨婷, 何明靖, 杨志豪, 魏世强	(5487)
典型旅游城市河流水体及污水厂出水中全氟烷基酸类化合物的空间分布及其前体物的转化	王世亮, 孙建树, 杨月伟, 张敏	(5494)
4 种不同工况生物滤池净化效能与微生物特性分析	江肖良, 李孟, 张少辉, 张世羊	(5503)
微量元素锰对威氏海链藻生长及叶绿素荧光的影响	王木兰, 姜玥璐	(5514)
广东省水库拟柱胞藻 (<i>Cylindropermopsis raciborskii</i>) 的分布特征及影响因子分析	雷敏婷, 彭亮, 韩博平, 雷腊梅	(5523)
磁性壳聚糖接枝聚丙烯酰胺去除水体中腐殖酸	尤雯, 刘海成, 曹家玮, 沈耀良, 陈卫	(5532)
臭氧-生物活性炭对微污染原水中典型持久性有机物的去除效果	兰亚琼, 刘锐, 马正杰, 陈吕军	(5541)
水解酸化/AO 组合工艺处理印染废水色度去除与脱氮性能	顾梦琪, 尹启东, 刘爱科, 吴光学	(5550)
“异养-硫自养”组合工艺去除高浓度高氯酸盐特性	刘颖男, 陶华强, 宋圆圆, 张春青, 逯彩彩, 韩懿, 李海波, 郭建博	(5558)
静压快速启动亚硝酸盐依赖型甲烷厌氧氧化反应	王一因, 胡振, 茹东云, 姜丽萍, 刘华清	(5565)
多级 AO 耦合流离生化工艺流量分配比优化及脱氮机制	王帆, 李军, 边德军, 聂泽兵, 张莉, 孙艺齐	(5572)
主流条件下两级式 PN-ANAMMOX 工艺的高效能脱氮过程	刘文如, 杨殿海, 沈耀良, 王建芳, 吴鹏, 钱飞跃, 陈重军	(5580)
不同基质浓度对 ANAMMOX 菌短期储存的影响	高雪健, 张杰, 李冬, 曹正美, 郭跃洲, 李帅	(5587)
主流厌氧氨氧化工艺的优化及其微生物的群落变迁	付昆明, 李慧, 姜姗, 仇付国, 曹秀芹	(5596)
厌氧氨氧化污泥恢复过程中的颗粒特性	陈方敏, 顾澄伟, 胡羽婷, 黄勇, 李祥, 陆明羽, 方文辉, 金润	(5605)
低温反硝化菌——施氏假单胞菌 N3 的筛选及脱氮性能	路俊玲, 陈慧萍, 肖琳	(5612)
复垦工业场地土壤和周边河道沉积物重金属污染及潜在生态风险	吴健, 王敏, 张辉鹏, 黄宇驰, 徐志豪, 李青青, 陈昊, 黄沈发	(5620)
不同土地利用类型土壤重金属生态风险与人体健康风险	李春芳, 曹见飞, 吕建树, 姚磊, 吴泉源	(5628)
某大型神渣场土壤 As 污染特征及生态风险评价	刘庚, 石瑛, 田海金, 李豪, 张蕾, 牛俊杰, 郭观林, 张朝	(5639)
亚热带典型岩溶水库细菌丰度和细菌生产力及其与环境因子的关系	辛胜林, 梁月明, 彭文杰, 宋昂, 靳振江, 朱美娜, 李强	(5647)
岩溶区典型灌丛植物根系丛枝菌根真菌群落结构解析	梁月明, 苏以荣, 何寻阳, 陈香碧	(5657)
模拟氮沉降对干旱半干旱温带草原土壤细菌群落结构的影响	李宗明, 沈菊培, 张丽梅, 刘国平, 白文明, 贺纪正	(5665)
添加磷素对低磷稻田根际土壤固碳自养微生物数量的影响	柏菁, 李奕霏, 刘守龙, 祝贞科, 李科林, 彭佩钦, 吴小红, 葛体达, 吴金水	(5672)
长期不同施肥对稻田土壤有机碳矿化及激发效应的影响	马欣, 魏亮, 唐美玲, 徐福利, 祝贞科, 葛体达, 吴金水	(5680)
黄土丘陵区撂荒恢复过程中植物群落组成与土壤养分及酶活性变化的关系	乔文静, 戴银月, 张伟, 付淑月, 杨改河, 韩新辉, 陈正兴, 高德新, 冯永忠	(5687)
生活垃圾不同填埋阶段的富里酸对五氯苯酚的降解	刘思佳, 何小松, 张慧, 祖国峰, 席北斗, 李丹, 党秋玲	(5699)
CO ₂ 倍增条件下不同生育期水稻碳氮磷含量及其计量比特征	唐美玲, 肖谋良, 袁红朝, 王光军, 刘守龙, 祝贞科, 葛体达, 吴金水	(5708)
基于层次分析法的医疗废物处置技术评价	许晓芳, 谭全银, 刘丽丽, 李金惠	(5717)
中国农田畜禽粪尿氮负荷量及其还田潜力	刘晓永, 王秀斌, 李书田	(5723)
《环境科学》第 39 卷(2018 年)总目录		(5740)
《环境科学》征订启事(5343)		
《环境科学》征稿简则(5439)		
信息(5595, 5619, 5638)		

水解酸化/AO 组合工艺处理印染废水色度去除与脱氮性能

顾梦琪, 尹启东, 刘爱科, 吴光学*

(清华大学深圳研究生院, 深圳市环境微生物利用与安全控制重点实验室, 深圳 518055)

摘要: 偶氮染料是一种具有稳定化学结构的活性染料, 排放至环境中会损害人体健康和影响水生生物生长. 利用水解酸化/AO 组合工艺处理含偶氮染料活性艳红 X-3B(RR2)的印染废水, 重点考察了色度去除和脱氮性能. 组合工艺可有效去除色度、化学需氧量(COD)和氨氮, 去除率分别为 71.0%、92.2% 和 83.5%. 水解酸化反应器中主要偶氮染料降解菌为 *Desulfovibrio*; AO 反应器中硝化菌主要为 *Nitrospira*, 反硝化菌为 *Thauera* 和 *Dechloromonas*. 水解酸化温度从 25℃ 提高至 35℃, 色度去除率提高 141.2%; 25℃ 时 COD 浓度从 200 mg·L⁻¹ 提高至 800 mg·L⁻¹, 色度去除率提高 208.9%. AO 反应器出现亚硝酸盐积累现象, 亚硝化率为 73.8%. 染料 RR2 对硝化没有抑制作用, 而苯胺会抑制硝化; 当苯胺浓度超过 6 mg·L⁻¹ 时, 氨氮氧化速率最低.

关键词: 水解酸化; 缺氧/好氧; 色度; 硝化抑制; 印染废水

中图分类号: X703.1 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)12-5550-08 DOI: 10.13227/j.hjks.201804039

Color and Nitrogen Removal from Synthetic Dye Wastewater in an Integrated Hydrolysis/Acidification and Anoxic/Aerobic Process

GU Meng-qi, YIN Qi-dong, LIU Ai-ke, WU Guang-xue*

(Key Laboratory of Microorganism Application and Risk Control (MARC) of Shenzhen, Graduate School at Shenzhen, Tsinghua University, Shenzhen 518055, China)

Abstract: Azo dye is a type of reactive dyes with a stable structure. Its discharge into the environment affects the human health and growth of aquatic organisms. The color and nitrogen removal through an integrated hydrolysis/acidification and anoxic/aerobic (AO) process for the treatment of wastewater containing reactive red 2 (RR2) was investigated. The color, chemical oxygen demand (COD), and ammonia nitrogen were removed efficiently, with removal efficiencies of 71.0%, 92.2%, and 83.5%, respectively. The dominant azo dye degradation bacterium in the hydrolysis/acidification reactor was *Desulfovibrio*. The dominant nitrifying bacterium in the AO reactor was *Nitrospira*, while the denitrifying bacteria were *Thauera* and *Dechloromonas*. When increasing the hydrolysis/acidification temperature from 25℃ to 35℃, the color removal efficiency improved by 141.2%. When the concentration of COD increased from 200 mg·L⁻¹ to 800 mg·L⁻¹ at 25℃, the color removal efficiency improved by 208.9%. Nitrite accumulation occurred in the AO reactor with a nitrification efficiency of 73.8%. The RR2 did not inhibit the nitrification, while aniline inhibited the nitrification. At an aniline concentration of 6 mg·L⁻¹, the ammonia oxidation was the slowest.

Key words: hydrolysis/acidification; anoxic/aerobic; color; nitrification inhibition; dyeing wastewater

由于具有稳定的化学结构、简单的生产过程和低成本, 偶氮染料是被广泛应用于印染、造纸和皮革等行业的典型活性染料^[1]. 据统计每年生产的 7 万 t 染料中, 偶氮染料约占 70%, 且其中 10% ~ 15% 可能在生产过程中排放至水体^[2]. 偶氮染料具有致癌性, 不仅会导致人体肝脏和肾受损, 也会在水中积累并抑制水生生物的生长^[2,3]. 因此, 偶氮染料的有效控制是工业废水处理的重要组成部分.

相比化学和物理处理, 偶氮染料的生物处理具有环境友好、高效和污泥产量低等优势^[4]. 好氧生物处理条件下, 氧气比偶氮染料优先作为电子受体, 因此, 厌氧生物处理更适于偶氮染料降解. Li 等^[5]采用厌氧生物处理染料酸性橙 7, 得到脱色率

为 71.8% 和化学需氧量(COD)去除率为 50.6%. Reddy 等^[6]采用缺氧间歇式反应器处理染料酸性黑 10B, 得到脱色率为 49.5%. 生物降解过程中, 偶氮染料利用共基质降解释放的电子断裂—N=N—, 生成无色芳香胺类化合物. 芳香胺类化合物需要在好氧条件下利用非特异性酶实现完全矿化^[6]. 因此, 厌氧/好氧(AO)生物工艺常用于处理印染废水. Balapure 等^[7]采用序批式厌氧/微氧

收稿日期: 2018-04-05; 修订日期: 2018-06-11

基金项目: 国家水体污染控制与治理科技重大专项(2017ZX07205-01); 深圳市科技创新委员会战略性新兴产业和未来产业基础研究学科布局项目(JCYJ20170817161106801)

作者简介: 顾梦琪(1994~), 女, 硕士, 主要研究方向为强化厌氧处理印染废水技术, E-mail: 947781795@qq.com

* 通信作者, E-mail: wu.guangxue@sz.tsinghua.edu.cn

工艺处理印染废水, 脱色率可达到 99%, 其中厌氧段脱色率为 80%。Frindt 等^[8] 利用厌氧/好氧工艺处理含偶氮染料活性橙 107 废水, 厌氧脱色率为 97%, 而偶氮染料代谢产物芳香胺化合物在好氧条件下得到降解。

偶氮染料的生物降解主要依靠微生物酶作用实现。偶氮还原酶和虫漆酶是偶氮染料降解的主要作用酶, 能产生此两种酶的菌群包括 *Xenophilus azovorans* KF46F、*Pigmentiphaga kullae* K24、*Enterococcus faecalis*、*Staphylococcus aureus*、*Escherichia coli*、*Bacillus* sp. OY1-2 和 *Rhodobacter sphaeroides* 等^[9]。以上很多菌群可成为偶氮染料降解的优势菌种。Chen 等^[10] 采用填充床生物反应器处理含维多利亚蓝废水时, 得到优势菌种为 *Aeromonas hydrophila*。Xie 等^[4] 采用水解酸化处理染料活性黑 5 和活性艳蓝 19 印染废水, 发现 *Klebsiella*、*Lactococcus* 和 *Desulfovibrio* 可能是染料降解的优势菌, 且 *Dysgonomonas* sp. 和 *Prevotella* sp. 可能在染料代谢过程中起重要作用。

印染废水中氨氮($\text{NH}_4^+\text{-N}$)可通过硝化反硝化去除, 其中硝化反应是限制过程。硝化过程对有毒物质较为敏感, 而偶氮染料的代谢产物苯胺是一种有毒物质, 因此可能会影响硝化效率。Khin 等^[11] 发现苯胺浓度在 $3 \sim 250 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 之间, 硝化会受到不同程度的抑制, 仅当苯胺浓度低于 $0.5 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时, 才会发生完全硝化。Thanh 等^[12] 发现当苯胺浓度超过 $20 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时, 硝化反应完全受到抑制, 且苯胺抑制亚硝酸盐氮($\text{NO}_2^-\text{-N}$)氧化强于 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 氧化。而 Joel 等^[13] 证明苯胺降解和硝化可在污泥龄为 7 d 的活性污泥反应器中同时发生, 硝化菌会适应苯胺存在的环境。

本研究采用水解酸化/AO 工艺处理含有染料活性艳红 X-3B(RR2)的废水, 重点考察工艺运行性能。同时, 采用高通量测序方法检测水解酸化/AO 工艺中的菌群种类, 以解析其在染料去除或脱氮过程中的作用。此外, 本研究还分析了水解酸化过程中影响色度去除的关键因素以及硝化过程中染料及其代谢产物的影响, 以期为该工艺应用于实际印染废水生物处理提供理论指导和技术支持。

1 材料与方法

1.1 试验装置及其运行

水解酸化序批式反应器(SBR)体积为 6 L, 运行过程中温度为 25°C 、挥发性悬浮固体浓度(VSS)

为 $(5.17 \pm 0.33) \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 。水解酸化 SBR 运行周期为 6 h, 包括 5 h 厌氧搅拌(含 10 min 进水), 50 min 静置沉淀和 10 min 出水。AO SBR 反应器有效体积为 5 L, 运行温度为 25°C 且 VSS 为 $(2.11 \pm 0.28) \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 。AO SBR 运行周期为 6 h, 包括 2 h 缺氧段(含 10 min 进水), 3 h 好氧段, 50 min 静置沉淀和 10 min 出水。反应器进出水通过定时器控制蠕动泵启闭实现。

印染废水以蛋白胨、淀粉和乙酸钠为混合碳源, 其 COD 浓度为 $400 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ (6:3:1); 其他进水组分包括 $114.6 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1} \text{NH}_4\text{Cl}$, $30 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 偶氮染料 RR2, $100 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1} \text{CaCl}_2\cdot 2\text{H}_2\text{O}$, $100 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1} \text{MgSO}_4\cdot 7\text{H}_2\text{O}$, $35.2 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1} \text{KH}_2\text{PO}_4$, $200 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1} \text{NaHCO}_3$ 以及 $1 \text{ mL}\cdot\text{L}^{-1}$ 微量元素($1 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1} \text{FeCl}_2\cdot 4\text{H}_2\text{O}$, $100 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1} \text{CoCl}_2\cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $200 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1} \text{NiCl}_2\cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $100 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1} \text{MnCl}_2\cdot 4\text{H}_2\text{O}$, $100 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1} \text{NaMoO}_4\cdot 2\text{H}_2\text{O}$, $100 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1} \text{H}_3\text{BO}_3$, $100 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1} \text{NaWO}_4\cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 和 $100 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1} \text{NaSe}_2\text{O}_3$)。水解酸化反应器每个运行周期进水 3 L, 其出水作为 AO 反应器进水, AO 反应器每个运行周期进水 2.5 L。两个反应器的水力停留时间均为 12 h。

反应器驯化稳定后, 测定两个反应器在运行周期内染料降解和氮浓度的变化。每隔一定时间, 从水解酸化反应器中取水样测定 COD、色度和 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 浓度变化, 从 AO 反应器中取水样测定 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 和硝酸盐氮($\text{NO}_3^-\text{-N}$)浓度变化。

1.2 碳源与温度对 RR2 脱色的影响

采用批处理试验, 考察了碳源种类、COD 浓度和温度对厌氧水解酸化强化 RR2 色度去除的影响。试验使用 250 mL 的丝口瓶, 反应体积为 200 mL, 取驯化稳定污泥 100 mL 与 100 mL 自配水进行混合。碳源种类试验中自配水分别以蛋白胨、淀粉和乙酸钠为碳源, COD 浓度均为 $400 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。COD 浓度影响试验采用混合碳源, 试验中蛋白胨、淀粉和乙酸钠比例为 6:3:1, COD 浓度分别为 200、400 和 $800 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。其他组分均与自配废水组分相同。以上碳源浓度和种类影响试验采用的温度分别为 25°C 和 35°C 。

试验开始前, 向反应瓶中通氮气 4 min 以保证反应处于厌氧状态。试验开始后, 采用摇床振荡, 其速度为 $170 \text{ r}\cdot\text{min}^{-1}$ 。反应时间为 12 h, 分别在反应的 0、1、2、3、4、6、8、10 和 12 h 时取水样, 测定反应过程中的 COD 浓度和色度。每个试验条件

设计两组平行试验,取平均值作为试验结果.

1.3 染料及其中间产物对 AO 硝化过程的抑制

对于硝化试验,重点考察了染料 RR2 及其典型中间产物苯胺对 AO 硝化效率的影响. 试验使用 250 mL 的锥形瓶,反应体积为 200 mL. 取驯化稳定污泥 100 mL 与 100 mL 不含有碳源的自配水进行混合. 染料抑制 AO 硝化试验中染料浓度分别为 0、4、8、16、32 和 64 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$,苯胺抑制 AO 硝化试验中苯胺浓度分别为 0、0.75、1.5、3.0、4.5、6.0 和 7.5 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$,其他组分均与水解酸化反应器出水组分相同.

试验采用磁力搅拌器(上海振荣磁力搅拌器 90-1)搅拌,保证泥水混合均匀. 曝气采用可调式气泵(海利双孔 9602),曝气流量为 $4.0\text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$,保证溶解氧(DO)大于 $4\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$. 反应时间为 120 min,反应开始后每隔 10 min 取水样,40 min 后每隔 20 min 取水样. 测定反应过程中 DO 、 NH_4^+-N 、 NO_2^--N 和 NO_3^--N 浓度的变化.

1.4 分析方法

COD 、 NH_4^+-N 、 NO_2^--N 、 NO_3^--N 、悬浮固体浓度(SS)和 VSS 依据国家规定的标准方法测定^[14]. 通过全波长扫描确定染料 RR2 在 512 nm 处吸光度最高,因此用此波长处的吸光度表征色度,并用来计算色度去除率. 苯胺测定方法依照 GB 11889-89 中 N -(1-萘基)乙二胺偶氮分光光度法. 分光光度计为哈希 DR3900.

取水解酸化反应器和 AO 反应器中污泥,采用 PowerSoil DNA Isolation Kit (Laboratories Inc., CA, USA)提取 DNA. 提取后的 DNA 样品在 V4 区进行特异性扩增,利用 Illumina Miseq 2500 测序平台,采用双末端测序 Paire-end 方法进行高通量测序. 利用 fastqc 软件进行质量评价后,进一步利用 perl 脚本进行质量控制. 利用 Flash 或 Mothur 将原始数据拼接成完整的目标片段,并进行质量评价和控制. 在相似性为 97% 条件下,将过滤后的目标片段聚类成操作分类单元(OTU),并选取代表性的序列与数据库比对,进行 OTU 物种注释. 根据 OTU 的绝对丰度及注释信息,统计样品在各分类学水平上序列构成情况.

2 结果与讨论

2.1 水解酸化/AO 工艺运行性能分析

水解酸化/AO 工艺稳定运行条件下水质关键参数见表 1. 进水 COD 为 $389.5\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,出水 COD 为 $30.4\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,其总去除率为 92.2%. 进水染料浓度为 $30\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,吸光度为 0.445 左右,出水吸光度为 0.129,色度总去除率为 71.0%. 进水 NH_4^+-N 浓度为 $31.74\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,水解酸化出水中 NH_4^+-N 浓度为 $37.42\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$;AO 反应器出水 NH_4^+-N 、 NO_2^--N 和 NO_3^--N 浓度分别为 5.23、11.03 和 $4.39\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,出现了明显的 NO_2^--N 积累现象.

表 1 水解酸化-AO 工艺稳定状态运行性能

Table 1 System performance of hydrolysis/acidification and AO process under steady conditions

项目	进水	水解酸化出水	AO 出水	去除率/%
$\text{COD}/\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	389.5 ± 29.9	195.8 ± 16.6	30.4 ± 12.4	92.2
色度	0.445 ± 0.014	0.123 ± 0.036	0.129 ± 0.043	71.0
$\text{NH}_4^+-\text{N}/\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	31.74 ± 1.11	37.42 ± 1.39	5.23 ± 4.29	83.5
$\text{NO}_2^--\text{N}/\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	1.54 ± 0.84	0.03 ± 0.04	11.03 ± 3.96	/
$\text{NO}_3^--\text{N}/\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	2.72 ± 0.49	0.48 ± 0.19	4.39 ± 5.72	/

工艺稳定运行条件下,水解酸化反应器出水 COD 为 $195.8\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ (表 1),COD 去除率为 49.7%. 其他相关研究也得到厌氧段 COD 去除率为 50% 左右的结论^[15]. 在水解酸化周期中 COD 浓度变化不明显[图 1(a)];AO 过程中存在硝化反硝化,反硝化和好氧过程均能消耗碳源,因此 AO 过程是 COD 去除的主要过程. Tomei 等^[16]也发现厌氧/好氧工艺处理实际印染废水时,厌氧阶段 COD 去除率仅为 11%~14%,好氧阶段结束后 COD 去除率为 59%~75%,说明 COD 主要通过好氧过程去除. Baëta 等^[17]发现厌氧/好氧工艺处理印染废

水时,好氧过程可有效去除厌氧过程中难降解的有机物、厌氧过程中生成的挥发酸(VFAs)和染料代谢产物芳香胺等物质. 因此,好氧过程 COD 去除率明显高于厌氧过程.

从表 1 得到水解酸化阶段色度去除率为 72.3%,说明水解酸化/AO 工艺中水解酸化过程是染料 RR2 降解的主要过程. 水解酸化过程中色度去除符合一级反应动力学[图 1(a)],染料降解速率约为 $2.55\text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{h})^{-1}$. Jonstrup 等^[18]也发现印染废水脱色主要发生于厌氧过程,当温度为 37°C ,水力停留时间为 3 d,偶氮染料浓度为 100~2 000

$\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时, 厌氧过程脱色率可以达到 98% 以上. 本研究水解酸化过程脱色率为 72.3%, 可能由于水解酸化温度为 25°C , 水力停留时间为 12 h, 由此导致脱色率低于 Jonstrup 等^[18] 的 98%.

根据图 1(b) 中 NO_2^- -N 和 NO_3^- -N 浓度变化, AO 反应过程中在 20 min 内完成反硝化; 硝化过程中, NO_3^- -N 浓度较低, 出现明显的 NO_2^- -N 积累, 亚硝化率为 73.8%. 由图 1(c) 可知, 苯胺浓度随染料降解而增加, 因此染料及其代谢产物苯胺等可能对硝化菌活性有抑制作用, 导致 NO_2^- -N 积累, 总氮的去除率仅为 34.9%. 根据 Singh 等^[9] 的研究, 水解酸

化脱色率为 72.3%, 可以推测理论上苯胺的生成量为 $3.28 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$. 在虫漆酶等酶的作用下, 偶氮染料不能完全降解为苯胺, 因此测出的苯胺浓度约为 $1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$. 晋玉亮等^[19] 的研究发现在进水苯胺浓度超过 $3 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时, 活性污泥的硝化能力丧失, 且苯胺对硝化的抑制是可恢复的; 当苯胺浓度低于 $0.5 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时, NH_4^+ -N 去除率可以恢复至正常水平.

2.2 菌群分析

水解酸化反应器中主要的门级菌群, 包括相对丰度为 50.98% 的拟杆菌门 Bacteroidetes、15.27% 的 SR1、10.78% 的 OP11 和 5.57% 的厚壁菌门 Firmicutes [图 2(a)]. 厌氧染料降解工艺中, Bacteroidetes 和 Firmicutes 多为优势菌种, 其中 Bacteroidetes 可降解复杂结构偶氮染料有机物^[4,20]. Bacteroidetes 门中的 *Paludibacter* 是一种碳水化合物发酵菌^[20]. *Paludibacter* 是水解酸化反应器中相对丰度最高的菌种, 其丰度为 39.18% [图 2(b)]. 这说明 *Paludibacter* 是水解酸化反应器中主要碳源代谢菌种. Firmicutes 门中的 *Clostridia* 可利用乙酸、乙醇和丁酸等生成氢气^[21], 在水解酸化反应器中相对丰度为 3.75%. SR1 的碱基序列与 *Prostheco bacter algae* strain EBT104 和 *Prostheco bacter de jone ii* strain FC1 相似度为 97%, OP11 的碱基序列与 *Victivallis vadensis* strain Cello 相似度为 87%, 但这两类菌群的作用尚不明晰. 在水解酸化反应器中相对丰度前 10 的菌群中, 其他菌种没有研究证明具有偶氮染料降解能力, 只有 Proteobacteria 门中的 *Desulfovibrio* 由于含有偶氮还原酶, 可将偶氮染料降解成芳香胺类物质^[4]. *Desulfovibrio* 在水解酸化反应器中相对丰度为 2.23%, 这说明 *Desulfovibrio* 是水解酸化反应器中主要的偶氮染料降解菌.

AO 反应器中主要的门级菌群为相对丰度为 54.0% 的 Proteobacteria、28.4% 的 Bacteroidetes、以及在 1% ~ 3.5% 之间的 OD1、Acidobacteria、SR1、Spirochaetes、Chlorobi、Chloroflexi 和 Verrucomicrobia. AO 反应器中主要的硝化菌为 *Nitrospira*, 相对丰度为 0.28%, 是一种常见的硝化菌^[22]. 本研究反硝化菌中相对丰度最高的为 Rhodocyclaceae 中 *Thauera*, 相对丰度为 13.35%. *Thauera* 不仅是常见的反硝化菌, 还具有降解芳香胺类物质的能力^[23]. 在 NO_2^- -N 积累条件下, *Thauera* 可成为反硝化菌中优势菌种^[24]; 这与 AO

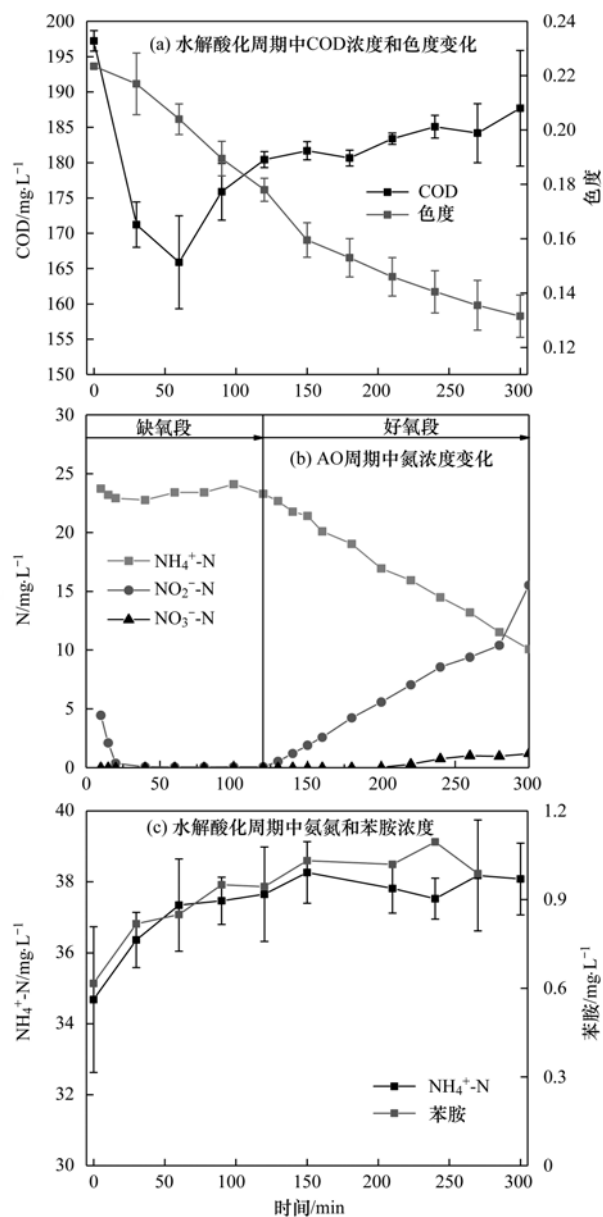


图1 水解酸化和AO周期中COD、色度、氮和苯胺浓度变化

Fig. 1 Variations of the concentrations of COD, color, nitrogen and aniline in the hydrolysis/acidification reactor and nitrogen in the AO reactor during typical reaction cycles

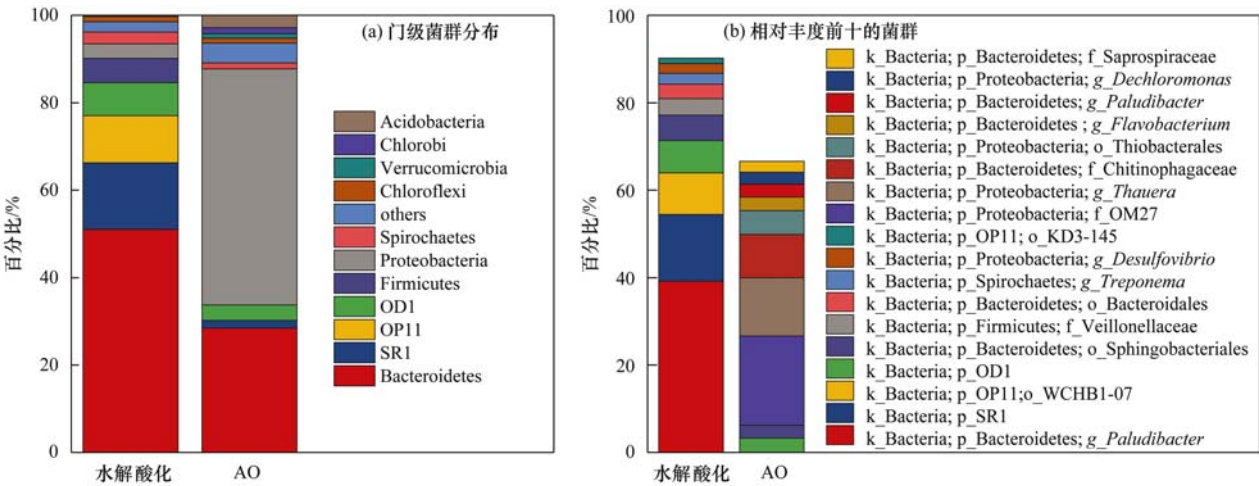


图2 水解酸化和AO反应器中的菌群分布

Fig. 2 Microbial community distribution in the hydrolysis acidification and AO reactors

反应器中出现NO₂⁻-N积累现象一致. 由于AO进水为水解酸化出水, 因此含有RR2代谢产物芳香胺等物质, 可被*Thauera*降解. 同属于Rhodocyclaceae的*Dechloromonas*相对丰度为2.73%, 也是一种高效的反硝化菌^[25]. AO反应器中检测到的相对丰度较高的OD1, 其碱基序列与*Lactobacillus paracollinoides* strain DSM 15502和*Lactobacillus collinoides* strain JCM1123有95%的相似度, 因此可能具有乳酸菌*Lactobacillus*发酵的功能^[26], 可将碳源降解用于反硝化.

2.3 碳源及温度对RR2脱色的影响

偶氮染料的降解是通过—N=N—的断裂实现

的. 偶氮染料作为电子受体时, 偶氮键—N=N—断裂需要4个电子, 第一步需要2个电子使偶氮键断裂为—N—N—, 第二步需要2个电子使偶氮键完全断裂^[12]. 淀粉和蛋白胨等碳源作为电子供体, 在降解过程中可以提供偶氮染料降解所需电子. 经过预试验发现乙酸钠作为碳源时, 染料RR2降解速率最慢, 仅为淀粉降解速率的1/3左右, 表明乙酸钠不是RR2脱色的主要碳源. 以蛋白胨、淀粉和混合碳源为碳源, 在不同条件下染料RR2降解试验结果如图3, 计算得到各条件下RR2的降解一级反应动力学参数如表2.

表2 染料降解试验一级反应动力学拟合方程及降解速率

Table 2 First kinetic equation of azo dye degradation and its degradation rate

温度/℃	碳源种类	COD /mg·L ⁻¹	一级反应动力学 拟合方程	R ²	降解速率 /mg·(L·h) ⁻¹	COD去除率 /%
25	混合碳源	200	$y = 0.9538e^{-0.039x}$	0.9526	1.35	57.86
	混合碳源	400	$y = 0.9545e^{-0.079x}$	0.9839	2.55	59.99
	混合碳源	800	$y = 1.0103e^{-0.141x}$	0.9845	4.17	57.46
	淀粉	400	$y = 1.044e^{-0.102x}$	0.993	2.91	63.64
	蛋白胨	400	$y = 1.0565e^{-0.127x}$	0.9916	3.63	44.01
35	混合碳源	200	$y = 0.9139e^{-0.133x}$	0.9627	4.47	26.31
	混合碳源	400	$y = 1.0163e^{-0.208x}$	0.9962	6.15	54.02
	混合碳源	800	$y = 1.0587e^{-0.256x}$	0.9941	7.35	45.05

在COD = 400 mg·L⁻¹、25℃条件下, 以蛋白胨为碳源时, RR2的降解速率最快, 为3.63 mg·(L·h)⁻¹, 其次为淀粉2.91 mg·(L·h)⁻¹, 而混合碳源条件下最慢, 仅为2.55 mg·(L·h)⁻¹ (图3). 因此, 以蛋白胨和淀粉为单一碳源时染料RR2降解速率高于混合碳源. Rasool等^[27]研究了以乳酸、葡萄糖和乙醇为碳源时印染废水处理效果, 结果表明与以葡萄糖为碳源相比, 以乳酸和葡萄糖作为碳

源时色度去除率提高. Cirik等^[28]处理含有Cr的印染废水时也发现, 乙醇作为碳源时色度去除率比葡萄糖作为碳源时高. 因此碳源种类影响偶氮染料降解的效果.

由表2中RR2降解速率可知在本研究中, 25℃条件下, COD浓度由200 mg·L⁻¹提高至400 mg·L⁻¹和800 mg·L⁻¹, RR2降解速率分别提高了88.9%和208.9%. 在35℃条件下, COD浓度由

200 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 提高至 400 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 800 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$, RR2 降解速率分别提高了 37.6% 和 64.4%。Rasool 等^[27] 处理含有偶氮染料直接红 80 的废水, 发现分别将碳源乳酸盐、葡萄糖和乙醇 COD 浓度从 3000 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 降至 500 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时, 色度去除率从 98.23% 降至 78.46%、63.37% 和 69.10%, 指出高 COD 浓度能够提供充足电子, 有利于偶氮染料降解。Cui 等^[29] 也发现降解染料酸性橙 7, 当乙酸盐和葡萄糖为碳源时电子供体不足会导致脱色率降低。因此当

COD 浓度提高时, 电子供体数量充足, 偶氮染料降解速率明显高于电子供体不足条件。

当 COD 浓度分别为 200、400 和 800 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时, 温度由 25℃ 提高到 35℃, RR2 降解速率分别提高了 231.1%、141.2% 和 76.25%, 高温下染料 RR2 降解速率提高的比例远高于 COD 浓度增加时降解速率提高的比例, 说明 COD 浓度对 RR2 降解速率的影响没有温度的影响明显。因此, 维持一定温度是强化偶氮染料 RR2 降解的关键因素之一。

2.4 染料及其中间产物对硝化活性的影响

图 4(a) 显示染料 RR2 浓度在 0 ~ 64 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 范围内, NO_3^- -N 生成速率基本一致, 且随染料浓度增加, NO_3^- -N 生成速率没有变化, 说明染料 RR2 对硝化过程没有影响, 在 0 ~ 64 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 浓度范围内不影响硝化菌的活性。Sarvajith 等^[30] 的研究发现相较于好氧条件, 微氧 ($\text{DO} < 0.5 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$) 条件下利用颗粒污泥处理含有活性黄 15 的废水时, 可以有效提高 NH_4^+ -N 去除率, 且在 8 h 内出现 NO_2^- -N 积累。本研究中染料 RR2 对氮去除率没有影响, 可能是由于试验过程中 DO 为 7 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 因此 RR2 对硝化过

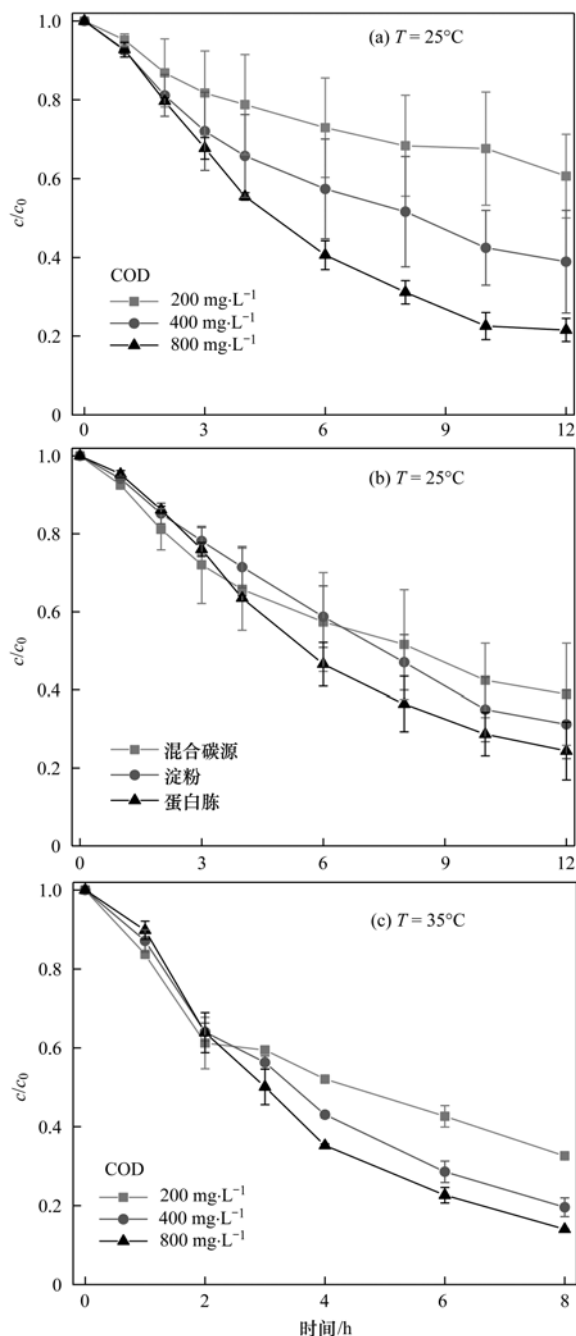


图 3 不同 COD 浓度和碳源种类条件下 RR2 浓度变化

Fig. 3 Concentration of RR2 for different COD contents and carbon sources

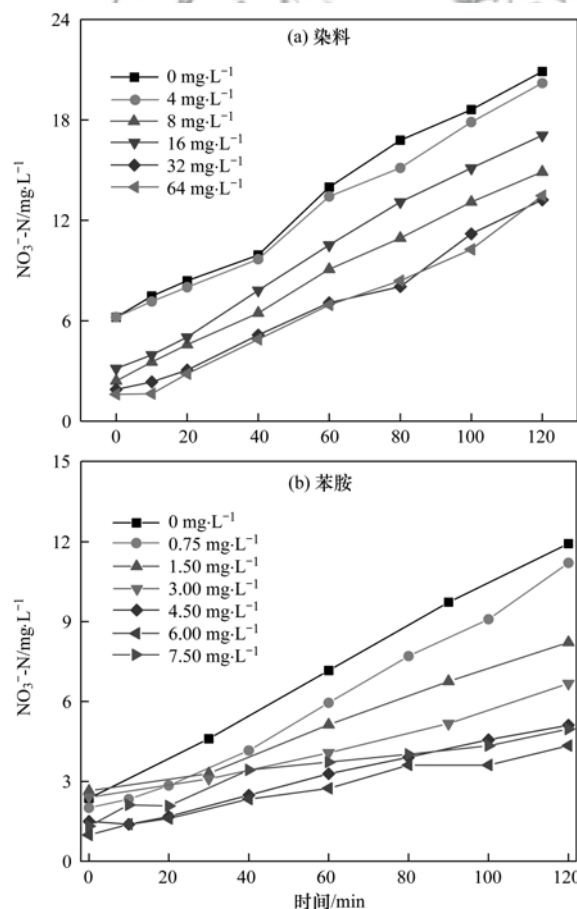


图 4 染料和苯胺抑制硝化试验

Fig. 4 Nitrification inhibition with azo dye RR2 and aniline

程影响不大.

由图 4(b)可知,苯胺浓度从 0 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 增加到 7.5 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时, NO_3^- -N 生成速率减小,说明苯胺对硝化过程有抑制作用. Shabbir 等^[31]的研究表明当进水苯胺浓度高于 250 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时,亚硝酸盐氮氧化菌(NO_B)活性被完全抑制且不能恢复;当初始苯胺浓度为 100 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时,硝化菌活性会被抑制,但将苯胺浓度降至 4 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 以下时,硝化菌活性可以恢复.

根据反应速率计算结果(表 3),当苯胺浓度从 0 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 增加到 6 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时,氨氮氧化速率从 1.38 $\text{mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{h})^{-1}$ 减小到 0.53 $\text{mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{h})^{-1}$, NO_3^- -N 生成速率和氨氮氧化速率趋势一致,且没有

出现 NO_2^- -N 积累,说明本试验中苯胺主要对氨氮氧化菌(AOB)活性有抑制作用,而对 NO_B 活性没有抑制作用. 当苯胺浓度增加到 7.5 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时,氨氮氧化速率没有进一步降低,说明苯胺浓度超过 6 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时,硝化反应被抑制到最低反应速率,为 0.53 $\text{mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{h})^{-1}$ 左右. 该结果与长期运行过程中 NO_B 活性被抑制不一致,可能是由于试验接种污泥为 AO 反应器长期驯化污泥,NO_B 活性较低,因此加入低浓度苯胺后,AOB 首先出现了明显的抑制作用. 试验中的反应时间仅为 2 h,反应时间较短,因此没有出现 NO_B 抑制作用. Khin 等^[11]的研究中也发现周期试验中,反应 8 h 左右后抑制 NO_B 活性,且进水苯胺浓度超过 250 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 后 NO_B 活性不能恢复.

表 3 苯胺抑制硝化试验反应速率

Table 3 Reaction rate of the nitrification inhibition with aniline				
苯胺浓度 / $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	NH_4^+ -N 浓度 拟合方程	NH_4^+ -N 反应速率 / $\text{mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{h})^{-1}$	NO_3^- -N 浓度 拟合方程	NO_3^- -N 反应速率 / $\text{mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{h})^{-1}$
0	$y = -0.076x + 27.41$	1.38	$y = 0.078x + 3.41$	1.42
0.75	$y = -0.085x + 27.03$	1.31	$y = 0.098x + 1.88$	1.51
1.5	$y = -0.054x + 28.19$	0.98	$y = 0.054x + 2.66$	0.98
3.0	$y = -0.050x + 28.66$	0.92	$y = 0.042x + 2.37$	0.75
4.5	$y = -0.047x + 27.24$	0.74	$y = 0.042x + 1.54$	0.64
6.0	$y = -0.034x + 26.71$	0.53	$y = 0.035x + 1.39$	0.53
7.5	$y = -0.037x + 28.65$	0.57	$y = 0.035x + 2.18$	0.55

3 结论

(1)水解酸化/AO 工艺处理含有 RR2 的印染废水时,可以有效去除色度、COD 和 NH_4^+ -N,去除率分别为 71.0%、92.2% 和 83.5%.

(2)水解酸化反应器中主要偶氮染料降解菌为 *Desulfovibrio*, AO 反应器中硝化菌主要为 *Nitrospira*,反硝化菌为 *Thauera* 和 *Dechloromonas*.

(3)水解酸化过程中 COD 浓度为 400 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时,温度由 25℃ 提高至 35℃,色度去除率提高 141.2%;温度为 25℃ 时,COD 浓度从 200 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 提高至 800 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$,色度去除率提高 208.9%.

(4)AO 反应器中苯胺浓度为 1 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时,出现 NO_2^- -N 积累,亚硝化率为 73.8%. 染料 RR2 对硝化过程没有抑制作用,苯胺对硝化过程有抑制作用. 苯胺浓度超过 6 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时氨氮氧化速率达到最低值 0.53 $\text{mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{h})^{-1}$.

参考文献:

[1] Khorram A G, Fallah N. Treatment of textile dyeing factory wastewater by electrocoagulation with low sludge settling time; optimization of operating parameters by RSM [J]. Journal of Environmental Chemical Engineering, 2018, 6(1): 635-642.

[2] Zhao T Q, Li P, Tai C, *et al.* Efficient decolorization of typical azo dyes using low-frequency ultrasound in presence of carbonate and hydrogen peroxide [J]. Journal of Hazardous Materials, 2018, 346: 42-51.

[3] Srinivasan S, Sadasivam S K. Exploring docking and aerobic-microaerophilic biodegradation of textile azo dye by bacterial systems [J]. Journal of Water Process Engineering, 2018, 22: 180-191.

[4] Xie X H, Liu N, Ping J, *et al.* Illumina MiSeq sequencing reveals microbial community in HA process for dyeing wastewater treatment fed with different co-substrates [J]. Chemosphere, 2018, 201: 578-585.

[5] Li S Y, Cao Y, Bi C C, *et al.* Promoting electron transfer to enhance anaerobic treatment of azo dye wastewater with adding $\text{Fe}(\text{OH})_3$ [J]. Bioresource Technology, 2018, 245: 138-144.

[6] Reddy C N, Kumar A N, Mohan S V. Metabolic phasing of anoxic-PDBR for high rate treatment of azo dye wastewater [J]. Journal of Hazardous Materials, 2018, 343: 49-58.

[7] Balapure K, Jain K, Bhatt N, *et al.* Exploring bioremediation strategies to enhance the mineralization of textile industrial wastewater through sequential anaerobic-microaerophilic process [J]. International Biodeterioration & Biodegradation, 2016, 106: 97-105.

[8] Frindt B, Mattusch J, Reemtsma T, *et al.* Multidimensional monitoring of anaerobic/aerobic azo dye based wastewater treatments by hyphenated UPLC-ICP-MS/ESI-Q-TOF-MS techniques [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2017, 24(12): 10929-10938.

- [9] Singh R L, Singh P K, Singh R P. Enzymatic decolorization and degradation of azo dyes-a review [J]. International Biodeterioration & Biodegradation, 2015, **104**: 21-31.
- [10] Chen C Y, Wang G H, Tseng I H, *et al.* Analysis of bacterial diversity and efficiency of continuous removal of Victoria Blue R from wastewater by using packed-bed bioreactor [J]. Chemosphere, 2016, **145**: 17-24.
- [11] Khin T, Gheewala S H, Annachhatre A P. Modeling of nitrification inhibition with aniline in suspended-growth processes [J]. Water Environment Research, 2002, **74**(6): 531-540.
- [12] Thanh N P. An assessment of effect of inhibitor aniline on the biological nitrification process[J]. Asian Journal of Experimental Biological Sciences, 2010, **1**(3): 503-512.
- [13] Joel A R, Grady C P L Jr. Inhibition of nitrification-effects of aniline after biodegradation [J]. Journal of Water Pollution Control Federation, 1977, **49**(5): 778-788.
- [14] 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. 100-124.
- [15] Cui D Z, Zhang H, He R B, *et al.* The comparative study on the rapid decolorization of azo, anthraquinone and triphenylmethane dyes by anaerobic sludge [J]. International Journal of Environmental Research and Public Health, 2016, **13**(11): E1053.
- [16] Tomei M C, Angelucci D M, Daugulis A J. Sequential anaerobic-aerobic decolorization of a real textile wastewater in a two-phase partitioning bioreactor [J]. Science of the Total Environment, 2016, **573**: 585-593.
- [17] Baêta B E L, Lima D R S, Silva S Q, *et al.* Evaluation of soluble microbial products and aromatic amines accumulation during a combined anaerobic/aerobic treatment of a model azo dye [J]. Chemical Engineering Journal, 2015, **259**: 936-944.
- [18] Jonstrup M, Kumar N, Murto M, *et al.* Sequential anaerobic-aerobic treatment of azo dyes: decolourisation and amine degradability[J]. Desalination, 2011, **280**(1-3): 339-346.
- [19] 晋玉亮, 王旭, 杨冲, 等. 苯胺对氨氮硝化反应抑制作用的实证研究[J]. 中国给水排水, 2016, **32**(23): 85-87.
- [20] 岳秀, 唐嘉丽, 于广平, 等. 双氧水协同生化法强化处理印染废水[J]. 环境科学, 2017, **38**(9): 3769-3780.
- [21] Yue X, Tang J L, Yu G P, *et al.* Enhanced treatment of printing and dyeing wastewater using H_2O_2 -biochemical method [J]. Environmental Science, 2017, **38**(9): 3769-3780.
- [22] Chen H B, Chang S. Impact of temperatures on microbial community structures of sewage sludge biological hydrolysis[J]. Bioresource Technology, 2017, **245**: 502-510.
- [23] 李卫华, 孙英杰, 刘子梁, 等. 序批式生物反应器填埋场脱氮微生物多样性分析[J]. 环境科学, 2016, **37**(1): 342-349.
- [24] Li W H, Sun Y J, Liu Z L, *et al.* Analysis on diversity of denitrifying microorganisms in sequential batch bioreactor landfill [J]. Environmental Science, 2016, **37**(1): 342-349.
- [25] Zhou J, Li H S, Chen X L, *et al.* Cometabolic degradation of low-strength coking wastewater and the bacterial community revealed by high-throughput sequencing [J]. Bioresource Technology, 2017, **245**: 379-385.
- [26] Cao S B, Du R, Li B K, *et al.* High-throughput profiling of microbial community structures in an anammox-UASB reactor treating high-strength wastewater[J]. Applied Microbiology and Biotechnology, 2016, **100**(14): 6457-6467.
- [27] Zhang Y Q, Frankenberger W T Jr. Supplementing *Bacillus* sp. RS1 with *Dechloromonas* sp. HZ for enhancing selenate reduction in agricultural drainage water [J]. Science of the Total Environment, 2007, **372**(2-3): 397-405.
- [28] Quijada N M, De Filippis F, Sanz J J, *et al.* Different *Lactobacillus* populations dominate in "Chorizo de león" manufacturing performed in different production plants[J]. Food Microbiology, 2018, **70**: 94-102.
- [29] Rasool K, Mahmoud K A, Lee D S. Influence of co-substrate on textile wastewater treatment and microbial community changes in the anaerobic biological sulfate reduction process[J]. Journal of Hazardous Materials, 2015, **299**: 453-461.
- [30] Cirik K, Dursun N, Sahinkaya E, *et al.* Effect of electron donor source on the treatment of Cr(VI)-containing textile wastewater using sulfate-reducing fluidized bed reactors (FBRs) [J]. Bioresource Technology, 2013, **133**: 414-420.
- [31] Cui M H, Cui D, Gao L, *et al.* Azo dye decolorization in an up-flow bioelectrochemical reactor with domestic wastewater as a cost-effective yet highly efficient electron donor source[J]. Water Research, 2016, **105**: 520-526.
- [32] Sarvajith M, Reddy G K K, Nanchaiah Y V. Textile dye biodecolorization and ammonium removal over nitrite in aerobic granular sludge sequencing batch reactors [J]. Journal of Hazardous Materials, 2018, **342**: 536-543.
- [33] Gheewala S H, Annachhatre A P. Biodegradation of aniline[J]. Water Science and Technology, 1997, **36**(10): 53-63.

CONTENTS

Patterns of Mortality from Air Pollutant Emissions in China's Coal-fired Power Plants	QIN Yu, ZHANG Qiang, LI Xin, <i>et al.</i> (5289)
Analysis of the Temporal and Spatial Variation of PM _{2.5} in China Based on the LUR Model	LIU Bing-jie, PENG Xiao-min, LI Ji-hong (5296)
Physicochemical Properties of the Aerosol Particles and Their Impacts on Secondary Aerosol Formation at the Background Site of the Yangtze River Delta	 HUANG Dan-dan, ZHOU Min, YU Chuan-guan, <i>et al.</i> (5308)
Analysis of Different Particle Sizes, Pollution Characteristics, and Sources of Atmospheric Aerosols During the Spring Dust Period in Beijing	YANG Yang, LI Xing-ru, CHEN Xi, <i>et al.</i> (5315)
Characteristics of Ambient VOCs at the Shuangliu Site in Chengdu, China, During Summer and Autumn	DENG Yuan-yuan, LI Jing, LI Ya-qi, <i>et al.</i> (5323)
Source Profiles and Chemical Reactivity of Volatile Organic Compounds from Surface Coating of Aluminum Products in Foshan, China	LI Xia, SU Wei-jian, LI Bi-xia, <i>et al.</i> (5334)
Emission Inventory and Characteristics of Anthropogenic Air Pollutant Sources in the Sichuan Province	ZHOU Zi-hang, DENG Ye, TAN Qin-wen, <i>et al.</i> (5344)
Characteristics of Particulate Matter Emissions from the Coking Process	WANG Yan-hui, ZHAO Liang, SUN Wen-qiang, <i>et al.</i> (5359)
Dry and Wet Deposition of Atmospheric Nitrogen in Small Catchments	WANG Huan-xiao, PANG Shu-jiang, WANG Xiao-yan, <i>et al.</i> (5365)
Seasonal Changes of the Pathways of Nitrogen Export from an Agricultural Watershed in China	LI Wen-chao, LEI Qiu-liang, ZHAI Li-mei, <i>et al.</i> (5375)
Dynamics and Runoff Losses of Nitrogen in Paddy Field Surface Water Under Combined Application of Biochar and Slow/Controlled-Release Fertilizer	 SI Lin-lin, ZHOU Jing-jie, WU Liang-huan, <i>et al.</i> (5383)
Indirect Nitrous Oxide Emissions from an Agricultural Headwater Stream During the Rainy Season in the Upper Reach of the Yangtze River	TIAN Lin-lin, WANG Zheng, ZHU Bo (5391)
Concentration, Flux, and Emission Factor of N ₂ O in Rivers with Different Nitrogen Pollution Features	WANG Miao, LI Ya-feng, LEI Kun, <i>et al.</i> (5400)
Identification of Nitrate Pollution Sources Through Various Isotopic Methods: A Case Study of the Huixian Wetland	PENG Cong, PAN Xiao-dong, JIAO You-jun, <i>et al.</i> (5410)
Temporal and Spatial Distribution of the Soil Water δD and $\delta^{18}O$ in a Typical Karst Valley: A Case Study of the Zhongliang Mountains, Chongqing City	 WU Wei, JIANG Yong-jun, JIA Ya-nan, <i>et al.</i> (5418)
Hydrochemical Characteristics of Groundwater and the Origin in Alluvial-proluvial Fan of Qinhe River	LIU Jiang-tao, CAI Wu-tian, CAO Yue-ting, <i>et al.</i> (5428)
Impact of Maximum Precipitation in 2017 on the Runoff Component of Reclaimed Water-Intaking River	LIAO An-ran, SONG Xian-fang, ZHANG Ying-hua, <i>et al.</i> (5440)
Spectral Evolution Characteristics of DOM in Sediment Interstitial Water During the Formation Stage of Thermal Stratification in the Main Reservoir Area of the Zhoucun Reservoir	 ZHOU Shi-lei, ZHANG Yi-ran, HUANG Ting-lin, <i>et al.</i> (5451)
Pollution Characteristic of Ni in Sediments in the Three Gorges Reservoir	ZHANG Wei-jie, YIN Shu-hua, XU Dong-yu, <i>et al.</i> (5464)
Migration and Transformation of Mercury at Sediment-Water Interface of the Dahong Lake Reservoir in the Simian Mountains	GUO Pan, SUN Tao, YANG Guang, <i>et al.</i> (5473)
Effects of Wetland Types on Distribution of Soil Methylmercury Based on the Region of Nanweng River in the Greater Xing'an Mountains	ZHOU Xin-quan, LIU Yu-rong, LI Jing, <i>et al.</i> (5480)
Simulation of the Migration and Release Characteristics of Organophosphate Esters in Fluctuation Zone Soil of the Three Gorges Reservoir During Flooding	 YANG Ting, HE Ming-jing, YANG Zhi-hao, <i>et al.</i> (5487)
Spatial Distribution of Perfluoroalkyl Acids and Transformation of Their Precursors in River Water Samples and Effluents of Wastewater Treatment Plants in a Typical Tourism City	 WANG Shi-liang, SUN Jian-shu, YANG Yue-wei, <i>et al.</i> (5494)
Purification Efficiency and Microbial Characteristics of Four Biofilters Operated Under Different Conditions	JIANG Xiao-liang, LI Meng, ZHANG Shao-hui, <i>et al.</i> (5503)
Effects of Manganese on the Growth and Fluorescence Induction Kinetics of <i>Conticribra weisflogii</i>	WANG Mu-lan, JIANG Yue-lu (5514)
Distribution and Factors Affecting <i>Cylindrospermopsis raciborskii</i> in Guangdong Reservoirs	LEI Min-ting, PENG Liang, HAN Bo-ping, <i>et al.</i> (5523)
Removal of Humic Acid from Water by Magnetic Chitosan-Grafted Polyacrylamide	YOU Wen, LIU Hai-cheng, CAO Jia-wei, <i>et al.</i> (5532)
Ozone-Biological Activated Carbon for Advanced Removal of Typical Persistent Organic Pollutants from Micro-Polluted Source Water in the Yangtze Delta Region	 LAN Ya-qiong, LIU Rui, MA Zheng-jie, <i>et al.</i> (5541)
Color and Nitrogen Removal from Synthetic Dye Wastewater in an Integrated Hydrolysis/Acidification and Anoxic/Aerobic Process	GU Meng-qi, YIN Qi-dong, LIU Ai-ke, <i>et al.</i> (5550)
Removal Characteristics of High Concentrations of Perchlorate Using a "Heterotrophic Sulfur Autotrophic" Combination Process	LIU Ying-nan, TAO Hua-qiang, SONG Yuan-yuan, <i>et al.</i> (5558)
Rapid Start-up of a Nitrite-Dependent Methane Anaerobic Oxidation Reaction Under Static Pressure Conditions	WANG Yi-nan, HU Zhen, RU Dong-yun, <i>et al.</i> (5565)
Optimization of the Flow Distribution Ratio and Mechanism of Nitrogen Removal in a Multi-level AO Coupled Flow Biochemical Process	WANG Fan, LI Jun, BIAN De-jun, <i>et al.</i> (5572)
High-rate Nitrogen Removal in a Two-stage Partial Nitrification-ANAMMOX Process Under Mainstream Conditions	LIU Wen-ru, YANG Dian-hai, SHEN Yao-liang, <i>et al.</i> (5580)
Effects of Different Substrate Concentrations on the Short-term Storage of ANAMMOX Bacteria	GAO Xue-jian, ZHANG Jie, LI Dong, <i>et al.</i> (5587)
Optimization of the Mainstream Anaerobic Ammonia Oxidation Process and Its Changes of the Microbial Community	FU Kun-ming, FU Chao, LI Hui, <i>et al.</i> (5596)
Granular Characteristics of Anaerobic Ammonia Oxidation Sludge During the Recovery Process	CHEN Fang-min, GU Cheng-wei, HU Yu-ting, <i>et al.</i> (5605)
Characterization of a Newly Isolated Strain <i>Pseudomonas</i> sp. N3 for Denitrification at Low Temperature	LU Jun-ling, CHEN Hui-ping, XIAO Lin (5612)
Heavy Metal Pollution and Potential Ecological Risk of Soil from Reclaimed Industrial Sites and Surrounding River Sediments	WU Jian, WANG Min, ZHANG Hui-peng, <i>et al.</i> (5620)
Ecological Risk Assessment of Soil Heavy Metals for Different Types of Land Use and Evaluation of Human Health	LI Chun-fang, CAO Jian-fei, LÜ Jian-shu, <i>et al.</i> (5628)
Soil Pollution Characteristics and Ecological Risk Assessment of As at a Large-scale Arsenic Slag-contaminated Site	LIU Geng, SHI Ying, TIAN Hai-jin, <i>et al.</i> (5639)
Relationship Between the Bacterial Abundance and Production with Environmental Factors in a Subtropical Karst Reservoir	XIN Sheng-lin, LIANG Yue-ming, PENG Wen-jie, <i>et al.</i> (5647)
Structure Analysis of Arbuscular Mycorrhizal in Roots from Different Shrubs in Karst Regions	LIANG Yue-ming, SU Yi-rong, HE Xun-yang, <i>et al.</i> (5657)
Effects of Stimulated Nitrogen Deposition on the Bacterial Community Structure of Semiarid Temperate Grassland	LI Zong-ming, SHEN Ju-pei, ZHANG Li-mei, <i>et al.</i> (5665)
Effect of Phosphorus Addition on the Abundance of Autotrophic CO ₂ -Fixation Microorganisms in Rhizospheric Soil from a Phosphorus-Limited Paddy Field	 BAI Jing, LI Yi-fei, LIU Shou-long, <i>et al.</i> (5672)
Effects of Varying Long-term Fertilization on Organic Carbon Mineralization and Priming Effect of Paddy Soil	MA Xin, WEI Liang, TANG Mei-liang, <i>et al.</i> (5680)
Relationship Between the Vegetation Community and Soil Nutrient and Enzyme Activity During the Restoration of Abandoned Land in the Loess Hilly Region	 QIAO Wen-jing, DAI Yin-yue, ZHANG Wei, <i>et al.</i> (5687)
Degradation of Pentachlorophenol by Fulvic Acid in a Municipal Solid Waste Landfill	LIU Si-jia, HE Xiao-song, ZHANG Hui, <i>et al.</i> (5699)
Effect of CO ₂ Doubling and Different Plant Growth Stages on Rice Carbon, Nitrogen, and Phosphorus and Their Stoichiometric Ratios	 TANG Mei-ling, XIAO Mou-liang, YUAN Hong-zhao, <i>et al.</i> (5708)
Assessment of Medical Waste Disposal Technologies Based on the AHP	XU Xiao-fang, TAN Quan-yin, LIU Li-li, <i>et al.</i> (5717)
Livestock and Poultry Faeces Nitrogen Loading Rate and Its Potential Return to Farmland in China	LIU Xiao-yong, WANG Xiu-bin, LI Shu-tian (5723)