

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV
HUANJING KEXUE

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心
■ 出版 科学出版社



2020

Vol.41 No.4
第41卷 第4期

目次

基于深度学习的华东地区 PM _{2.5} 浓度遥感反演	刘林钰, 张永军, 李彦胜, 刘欣怡, 万一 (1513)
秋冬季区域性大气污染过程对长三角北部典型城市的影响	李瑞, 李清, 徐健, 李亮, 葛朝军, 黄凌, 孙登红, 刘子义, 张坤, 周国柱, 王杨君, 胡子梅, 宋燕西, 陈勇航, 李莉 (1520)
基于 GAM 模型的西安市 O ₃ 浓度影响因素解析	黄小刚, 邵天杰, 赵景波, 曹军骥, 吕晓虎 (1535)
北京及周边 6 个城市大气 PM _{2.5} 中左旋葡聚糖及其异构体的时空分布特征	朱红霞, 陶雪梅, 王超, 张霖琳, 郑晓燕 (1544)
典型沿海城市采暖期细颗粒物组分特征及来源解析	李明燕, 杨文, 魏敏, 朱红晓, 刘厚凤 (1550)
成都地区黑碳气溶胶变化特征及其来源解析	王璐, 袁亮, 张小玲, 贾月涛 (1561)
天津夏季郊区 VOCs 对臭氧生成的影响	姚青, 韩素芹, 张裕芬, 毕晓辉, 王晓佳, 蔡子颖 (1573)
涂料制造行业挥发性有机物排放成分谱及影响	吴健, 高松, 陈曦, 杨勇, 伏晴艳, 车祥, 焦正 (1582)
典型超低排放燃煤电厂可凝结颗粒物特征和成因	邓建国, 王刚, 张莹, 李妍菁, 段雷, 蒋靖坤 (1589)
中国地表水硝酸盐分布及其来源分析	张鑫, 张妍, 毕直磊, 山泽萱, 任丽江, 李琦 (1594)
中、韩滨海城市化区域水体全氟化合物的空间特征及生态风险	杨洪法, 史斌, 周云桥, 杨璐, 孟晶, 陈礼强, 王铁宇 (1607)
小清河入海口近十年水质变化及驱动因素分析	范新风, 韩美, 王磊, 李秀萍, 周璟 (1619)
浙江省 H 市水処理及供水系统 4 种人工甜味剂的分布特征	马晓雁, 胡慧, 陆思嘉, 李青松, 薛乐飞, 李雪纯, 邓靖 (1629)
三峡库区支流梅溪河附石藻类群落变化及其与环境因子的关系	米文梅, 施军琼, 杨燕君, 杨宋琪, 何书哈, 吴忠兴 (1636)
骆马湖浮游植物演替规律及驱动因子	张庆吉, 王业宇, 王金东, 王日昕, 邓建明, 蔡永久, 彭凯, 陈业, 龚志军 (1648)
拉鲁湿地水生植物群落多样性与水环境因子的关系	王佳俊, 田瀚鑫, 周磊, 徐德福, 张建伟, 彭措次仁 (1657)
基于网络分析解析水源水库春季水体反硝化群落演变特征及驱动因素	周石磊, 孙悦, 张艺冉, 黄廷林, 张春华, 方凯开, 曾明正, 李再兴, 崔建升 (1666)
岱海水体氮、磷时空分布特征及其差异性分析	赵丽, 陈俊伊, 姜霞, 郑朔方, 王书航 (1676)
巢湖滨岸水塘洼地沉积物反硝化速率及对外源碳氮的响应	李如忠, 王莉, 刘超 (1684)
镁改性芦苇生物炭控磷效果及其对水体修复	丁玉琴, 李大鹏, 张帅, 陈丽媛, 徐楚天, 陈姝彤, 朱企, 黄勇 (1692)
氢氧化镁对水体内源磷释放的控制作用	杨春懿, 詹艳慧, 林建伟, 邱波, 徐文隆, 俞阳, 黄良君 (1700)
北京市道路雨水径流溶解性有机物化学组分特性	陈梦瑶, 杜晓丽, 于振亚, 朱英杰, 梁卉, 吴凡 (1709)
新型三维多孔光热材料制备及其高盐废水处理应用	黄乐, 徐颖峰, 谢茜青, 赵炯, 冯华军 (1716)
Ni 掺杂 Sb-SnO ₂ 瓷环粒子电极电催化氧化磺胺嘧啶	石秋俊, 刘安迪, 唐柏彬, 魏世强, 张进忠 (1725)
磁性 Fe ₃ O ₄ -CuO 非均相活化过碳酸钠降解 AO7	徐劫, 王琳, 陈家斌, 许芬, 王柯晴, 侯梓峰, 黄天寅 (1734)
赤泥活化过一硫酸盐降解环丙沙星: 性能和机制	史京转, 魏红, 周孝德, 李克斌, 史颖娟 (1743)
工业废水水质对微气泡臭氧氧化深度处理影响	张静, 张守敬, 刘春, 施佳泽, 陈晓轩, 张磊, 张瑞娜 (1752)
污泥水热炭对亚甲基蓝的吸附特性	陈丽媛, 李大鹏, 朱文娟, 徐楚天, 丁玉琴, 黄勇 (1761)
改性西瓜皮生物炭的制备及其对 Pb(II) 的吸附特性	毕景望, 单锐, 韩静, 袁浩然, 史月月, 张兴庆 (1770)
A ² /O 短程硝化耦合厌氧氨氧化系统构建与脱氮特性	刘小钗, 荣懿, 汶丽杰, 李党勇, 金鹏康 (1779)
基于甲烷氧化菌的城镇污水厂尾水极限脱氮系统构建及机制	杨娅男, 李彦澄, 李江, 吴攀, 杨钊, 向福亮 (1787)
HRT 对 CSTR 亚硝化颗粒污泥性能影响	王建芳, 齐泽坤, 钱飞跃, 刘文如, 张俊, 王伟, 沈聪 (1794)
低基质颗粒污泥反应器中亚硝化的实现过程及其污泥变化特征	朱琳, 程诚, 宋家俊, 郭凯成, 汪倩, 刘文如, 沈耀良 (1801)
不同 HRT 下污水中有机物在 ABR 中的转化过程及污泥形态特征	程诚, 朱琳, 郭凯成, 汪倩, 宋家俊, 刘文如, 沈耀良 (1808)
投加颗粒活性炭和二氧化锰对剩余污泥厌氧消化的影响	杨波, 贾丽娟, 徐辉, 李方, 刘艳彪 (1816)
中国 193 个城市规划区土壤微量元素污染与健康风险	李括, 彭敏, 杨峥, 杨柯, 刘飞, 赵传冬, 成晓梦, 马宏宏, 郭飞, 唐世琪, 刘应汉, 成杭新 (1825)
基于随机森林评价的兰州市主城区校园地表灰尘重金属污染	胡梦瑶, 王佳, 张亚云, 李春艳, 李娜娜 (1838)
扬州市不同功能区表层土壤中多环芳烃的含量、来源及其生态风险	姚成, 倪进治, 刘瑞, 杨柳明, 陈卫锋, 魏然 (1847)
桂西南土壤镉地质异常区水稻种植安全性评估	陈同斌, 庞瑞, 王佛鹏, 周浪, 宋波 (1855)
重庆市主要农耕地土壤 Cd 生物有效性及影响因素	王锐, 胡小兰, 张永文, 余飞, 朱海山, 李瑜 (1864)
棉秆炭对碱性水稻土壤-水稻中镉迁移转化的阻控作用	刘师豆, 朱新萍, 韩耀光, 赵一, 金航, 贾宏涛 (1871)
连续 4 a 施有机肥降低紫泥田镉活性与稻米镉含量	薛毅, 尹泽润, 盛浩, 马颖榴, 周清, 宋达清, 张杨珠 (1880)
纳米氢氧化镁对不同类型土壤镉形态的影响	邓继宝, 张春来, 徐卫红 (1888)
矿业废弃地复垦土壤-作物硒吸收特征及其对重金属拮抗效应	尹炳, 汪建飞, 师胜, 卜中原, 霍天满, 张世文 (1904)
不同生物炭对酸性农田土壤性质和作物产量的动态影响	杨彩迪, 宗玉统, 卢升高 (1914)
化肥减量有机替代对紫色土旱坡地土壤氮磷养分及作物产量的影响	朱浩宇, 高明, 龙翼, 徐国鑫, 王富华, 王子芳 (1921)
紫色土旱坡地氮流失通量对减肥施肥秸秆的响应	熊子怡, 王子芳, 龙翼, 严冬春, 徐国鑫, 高明 (1930)
浒苔生物炭对滨海盐碱土壤改良的效果及途径	吴丹, 孙萍, 路鹏展, 陈友媛, 郭嘉梦, 刘明, 王磊, 张彩杰 (1941)
极端干旱区咸水灌溉人工防护林土壤可溶性碳的垂直分布及其影响因素	孟天歌, 吴路遥, 张少磊, 徐燕莹, 李雄, 张建国 (1950)
红松人工林土壤酶活性与化学性质对氮添加的响应	吕来新, 宋蕾, 刘志理, 张金波, 金光泽 (1960)
稻田土壤 N ₂ O 消纳能力及 nosZ-I 型功能种群应答机制	郭俊丽, 田美洁, 葛体达, 魏文学, 王光军, 孙志龙, 刘毅 (1968)
京津冀电子废弃物回收利用潜力预测及环境效益评估	陈盼, 施晓清 (1976)
中国城市工业化发展与 PM _{2.5} 的关系: 兼论 EKC 曲线形成的内在机制	李雅男, 丁振民, 邓元杰, 侯孟阳, 姚顺波 (1987)
《环境科学》征订启事 (1618)	
《环境科学》征稿简则 (1635)	
信息 (1724, 1769, 1800)	

基于甲烷氧化菌的城镇污水厂尾水极限脱氮系统构建及机制

杨娅男¹, 李彦澄^{1,2*}, 李江^{1,2*}, 吴攀^{1,2}, 杨钊¹, 向福亮¹

(1. 贵州大学资源与环境工程学院, 贵阳 550025; 2. 贵州喀斯特环境生态系统教育部野外科学观测研究站, 贵阳 550025)

摘要: 好氧甲烷耦合反硝化 (AME-D) 在城镇污水厂尾水深度脱氮方面具有巨大的应用潜力, 研究采用改良型反硝化生物滤池, 利用低浓度甲烷构建出 AME-D 极限脱氮系统. 研究发现该系统在间歇式运行方式下, 出水中总氮和氨氮的平均浓度能达到 $1.05 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $0.54 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 其平均去除率分别为 94.77% 和 93.30%. 拉曼光谱分析结果显示, 由 NO_3^- 对称伸缩引起的峰明显消失, 由醇 COH 面外弯曲或 C—H 面外弯曲振动吸收引起峰明显增强, 甲烷被氧化形成的中间产物可能主要为醇类物质. 16S rRNA 基因测序结果表明, 系统中的甲烷氧化菌主要为 *Methylocystis* (0.27%)、*Methylosarcina* (0.10%) 和 *Methyloparacoccus* (0.12%), 反硝化菌主要为 *Pseudomonas* (56.92%)、*Paenibacillus* (3.52%) 和 *Lysinibacillus* (3.00%), 硝化菌主要为 *Nitrospira* (0.1%), 说明 AME-D 极限脱氮系统的脱氮功能是由好氧甲烷氧化菌、反硝化菌和硝化菌协同实现.

关键词: 甲烷氧化菌; 城镇污水厂尾水; 极限脱氮; 拉曼光谱; 16S rRNA

中图分类号: X703 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2020)04-1787-07 DOI: 10.13227/j.hjxx.201910095

Construction and Mechanism of Methanotroph-based Ultimate Denitrification System for Tailwater of Urban Sewage Plants

YANG Ya-nan¹, LI Yan-cheng^{1,2*}, LI Jiang^{1,2*}, WU Pan^{1,2}, YANG Zhao¹, XIANG Fu-liang¹

(1. College of Resource and Environmental Engineering, Guizhou University, Guiyang 550025, China; 2. Field Scientific Observation and Research Station, Ministry of Education, Guiyang 550025, China)

Abstract: With great practical potential of aerobic methane coupled to denitrification (AME-D) in deep denitrification of tailwater in urban sewage plants, an AME-D extreme denitrification system with low concentration of methane, was established in an improved denitrification biofilter. The finding indicated that in an intermittent operation mode, the average concentration of total nitrogen and ammonia nitrogen in the effluent could reach $1.05 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ and $0.54 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, and the average removal rate was 94.77% and 93.30%, respectively. According to Raman spectral analysis, the crests formed by NO_3^- symmetric stretching disappeared, and crests formed by the vibration and absorption, where the outer alcohol COH plane or the C—H plane was bent, were significantly enhanced, so the intermediate products produced during which methane was oxidized may be alcohols. 16S rRNA gene sequencing results showed that dominant methanotrophs included *Methylocystis* (0.27%), *Methylosarcina* (0.10%), and *Methyloparacoccus* (0.12%), dominant denitrifying bacteria were *Pseudomonas* (56.92%), *Paenibacillus* (3.52%), and *Lysinibacillus* (3.00%), and the dominant nitrifying bacteria were *Nitrospira* (0.1%) in this system. Thus, it could be concluded that synergism of aerobic methanotrophs, denitrifying bacteria, and nitrifying bacteria could lead to extreme denitrification.

Key words: methanotrophs; tailwater of urban sewage plant; extreme denitrification; Raman spectroscopy; 16S rRNA

城镇污水厂尾水深度脱氮是废水处理领域的研究热点, 尾水中存在大量的氮污染物, 易造成水体富营养化, Yu 等^[1]的研究发现, 我国各省除西藏区域外均有流域污染问题, 京杭大运河在 1980 年、巢湖在 1985 年和滇池在 1981 年均已开始出现氮污染, 氮累积近 40 年. 目前常见的深度脱氮有生物法和物化法, 如离子交换法、膜分离法、反硝化生物滤池 (DNBF)、移动床生物膜反应器 (MBBR)^[2] 和人工湿地法等. 但深度脱氮技术均存在碳源不足的现象, 通常补充外加碳源, 例甲醇、葡萄糖、乙醇和乙酸钠等^[3], 然而外加碳源存在成本增加、资源浪费等问题. 有研究者于 1975 年在 Bardenpho 工艺基础上提出发展带有前置厌氧段的 Phoredox 系列同步脱氮除磷工艺^[4], 认为随着人们对污水处理生物原理认

识的加深, 完全可以设计出可靠的系统实现高标准出水, 即 $\text{TN} < 3 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$. 此外, 北京、昆明、巢湖和太湖等重点区域及流域将 TN 排放标准从 $20 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ (一级 B) 和 $15 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ (一级 A), 提升为 $10 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 甚至 $5 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ (昆明 A 标), 逐渐向极限脱氮迈进.

甲烷氧化菌能氧化甲烷并产生有机物, 并在氮存在时, 甲烷氧化菌氧化甲烷的过程伴随着氮污染物的去除, 该过程分别为好氧甲烷氧化耦合反硝化

收稿日期: 2019-10-15; 修订日期: 2019-11-25

基金项目: 贵州省科技计划项目 (黔科合基础 [2019] 1079 号); 贵州省教育厅青年科技人才成长项目 (黔教合 KY 字 [2018] 118); 贵州大学培育项目 (黔科合平台人才 [2017] 5788)

作者简介: 杨娅男 (1995 ~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为废水处理技术, E-mail: 1045932970@qq.com

* 通信作者, E-mail: yeli3@gzu.edu.cn; jli82@gzu.edu.cn

(AME-D)^[2] 和厌氧甲烷氧化耦合反硝化 (ANME-D)^[5]. 其中, 好氧甲烷氧化菌最早于 1906 年被发现^[6], 但 AME-D 过程最初是由 Harremoes 等于 20 世纪 70 年代发现^[7]. 此外, 1978 年 Rhee 等^[8]首次证实了好氧条件下的甲烷氧化耦合反硝化是由甲烷氧化菌和反硝化菌共同完成的, 即甲烷氧化过程中产生的有机物被反硝化菌利用进行反硝化; Sun 等^[9]利用膜生物反应器 (MBfR) 进行污水脱氮实验, 得到最大反硝化率为 97%; 李彦澄等^[10]采用生物膜反应器进行实验, 可实现硝酸盐氮去除率最高为 98.93%.

目前, 好氧甲烷氧化耦合反硝化 (AME-D) 的机制有两种解释: ① 好氧甲烷氧化菌单独脱氮, 有关研究从基因组和转录方面分析, 发现好氧甲烷氧化菌中存在 *nirS*、*nirK* 和 *norB* 等能产生脱氮过程的基因, 但至今仍未发现 1 株具有全部反硝化功能基因的好氧甲烷氧化菌, 由于好氧甲烷氧化菌体内的反硝化功能基因广泛分布, 其在高硝酸盐氮或亚硝酸盐氮的环境中具有生存优势^[11]; ② 协同脱氮, 甲烷氧化菌氧化过程中会产生中间产物 (有机物), 如甲醇、柠檬酸盐和乙酸盐等, 反硝化菌会利用中间产物作为碳源进行反硝化脱氮^[12].

好氧甲烷耦合反硝化 (AME-D) 在城镇污水厂尾水深度脱氮方面具有巨大的应用潜力, 所需甲烷为可再生能源, 可由污水处理厂的厌氧处理工艺产生. 本研究采用改良型反硝化生物滤池, 在人工模拟城镇污水厂尾水的情况下, 构建出 AME-D 极限脱氮系统, 考察了运行方式对系统效能的影响, 对出水中

有机物的官能团进行拉曼光谱分析, 并采用 16S rRNA 基因测序技术分析微生物群落结构, 以期为城镇污水厂尾水深度脱氮提供技术支持和理论支撑.

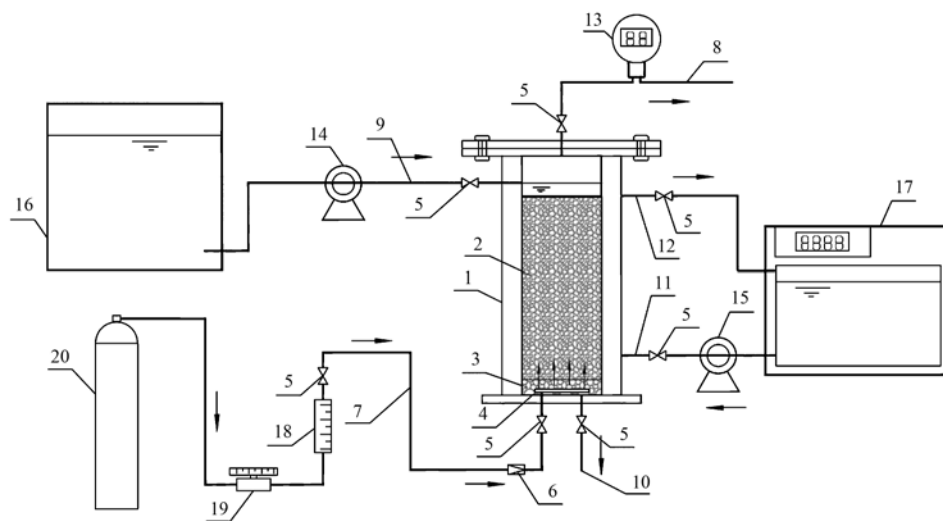
1 材料与方法

1.1 实验水质

本研究采用人工模拟城镇污水厂尾水, 模拟废水水质参数分别为: COD $20 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 、总氮 $20 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 、硝酸盐氮 $12 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 、氨氮 $8 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和总磷 $1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$. 其中硝氮采用 NaNO_3 模拟, 氨氮采用 NH_4Cl 模拟, COD 采用葡萄糖模拟, 总磷采用 KH_2PO_4 模拟. 为保证微生物的正常生长, 添加微生物必需的微量元素, 微量元素的浓度分别为 ($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$)^[13]: $\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$, 1 000; $\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, 200; Fe-EDTA , 0.38; $\text{Na}_2\text{MoO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$, 0.26; $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$, 0.90; $\text{MnCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$, 0.02; $\text{CoCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, 0.05; H_3BO_3 , 0.015; Na-EDTA , 0.25; $\text{ZnSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$, 0.40; $\text{NiCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, 0.01; $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$, 1.25.

1.2 实验装置

本实验所采用生物膜反应器如图 1 所示, 该反应器与反硝化生物滤池构造类似, 主体为双层构造, 反应器内层的有效体积为 2 L, 底部设置曝气管, 并铺设鹅卵石 (6~8 mm) 垫层 5 cm, 采用填料为石英砂 (2~4 mm), 外层为水浴保温层, 通过循环水控制温度, 反应器可分为连续式和间歇式两种运行方式. 本实验所需气体为甲烷 (3%) 与空气 (97%) 形成的



1. 反应器主体; 2. 填料 (2~4 mm 石英砂); 3. 垫层 (6~8 mm 鹅卵石); 4. 曝气管或曝气头; 5. 阀门; 6. 单向阀; 7. 进气管; 8. 出气管; 9. 废水进水管; 10. 废水出水管; 11. 热水进水管; 12. 热水出水管; 13. 甲烷在线监测仪; 14. 进水蠕动泵; 15. 热水循环泵; 16. 进水箱; 17. 恒温水箱; 18. 气体流量计; 19. 气体流量调节阀; 20. 混合气体

图 1 实验装置示意

Fig. 1 Experimental reactor

混合气体,并在反应器出气管上设置甲烷在线监测仪。

1.3 实验方法

反应器启动时接种贵阳市某污水处理厂浓缩池污泥,污泥接种浓度为 $7.92 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$,温度控制为 $(30 \pm 1)^\circ\text{C}$ 。反应器运行初期采用下方进水上方的出水连续式运行方式,采用蠕动泵控制进水流量,流量控制为 $5 \text{ L} \cdot \text{d}^{-1}$ 。通过气体流量调节阀调节混合气体进气流量,不间断进气,进气流量为 $30 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$ 。反应器运行过程中采用甲烷在线监测仪监测出气中甲烷浓度比,定期检测出水中的温度、DO、pH、氨氮、亚硝酸盐氮、硝酸盐氮和 COD 等水质指标。

连续式运行结束后,采用上方进水下方的间歇式运行方式,温度仍控制为 $(30 \pm 1)^\circ\text{C}$,运行周期为进水 $0.5 \text{ h} \rightarrow$ 运行 $23 \text{ h} \rightarrow$ 出水 0.5 h ,每个周期结束后更换反应器内部所有液体,其水量为 $1.2 \text{ L} \cdot \text{d}^{-1}$ 。进水和出水时停止进气,运行时进气流量为 $30 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$ 。反应器运行过程中采用甲烷在线监测仪监测出气中甲烷浓度比,定期检测出水中的温度、DO、pH、氨氮、亚硝酸盐氮、硝酸盐氮和 COD 等水质指标。

1.4 分析测试方法

1.4.1 理化指标分析

氨氮的分析采用水杨酸分光光度法 (HJ 536-2009),亚硝酸盐氮的分析采用 *N*-(1-萘基)-乙二胺光度法 (GB 7493-87),硝酸盐氮的分析采用紫外可见分光光度法 (HJ/T 346-2007),COD 采用 HACH-COD 快速消解分析法^[14],pH、DO 分别用 pH 便携式分析仪和 DO 便携式分析仪,甲烷的监测采用 SK-600-CH₄ 型甲烷在线监测仪。

1.4.2 拉曼光谱分析

样品预处理:取约 15 mL 样品放于离心管中,冷冻成冰,利用真空冷冻干燥机将样品制成干燥的粉末并冷藏保存。采用 LRS-8 共焦显微拉曼光谱仪对干燥的样品进行分析。具体分析如下:用硅片放入载物台进行波长校正,干燥的粉末放入硅片后放入载物台,开启监视器推入显微镜上部的观察镜,开启控制箱上白光光源,调节电压旋钮到合适光强,根据不同样品选择显微物镜,上下左右调整载物台,使硅片在显示屏上得到清晰像,调节电压旋钮到 0,关闭白光光源,打入激光光源再微调载物台,使光源在 TV 显示屏上得到点像,再拔出观察镜,使用 50 倍物镜,激发波长为 520 cm^{-1} ,“狭缝”值为 $200 \mu\text{m}$,扫描范围 $100 \sim 3000 \text{ cm}^{-1}$,仪器开始运行测量,并记录光谱图像。

1.4.3 微生物多样性分析

采集接种污泥和构建完成后系统的微生物进行

16S rRNA 基因测序分析,将采集的混合液置于离心管中进行离心 1 min ,转速 $5000 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$,去除上清液后立即储存于 -20°C 条件下冷冻,然后送至上海美吉生物医药科技有限公司 (Majorbio) 进行 16S rRNA 基因测序分析,进行 V3-V4 高变区测序^[15],选用细菌通用引物为:338F ($5'-\text{ACTCCTACGGGAGGCAGCAG}-3'$) 和 806R ($5'-\text{GGACTACHVGGGTWTCTAAT}-3'$),分析测试方法与李彦澄等^[10]的研究方法相同。

2 结果与讨论

2.1 AME-D 极限脱氮系统构建

反应器接种污泥后,在连续进出水的方式下运行,由图 2 可知,反应器启动初期对甲烷的消耗量呈上升趋势,并在从第 20 d 开始趋于稳定,其平均甲烷消耗量为 1.22% ,但系统对总氮的去除率较低,其平均去除率仅为 6.47% (图 3),对氨氮的平均去除率为 92.11% ,说明该系统能在 20 d 内富集得到甲烷氧化菌和自养硝化菌,系统中能发生硝化作用,但不能发生反硝化作用,连续运行的方式不利于氮污染的去除。

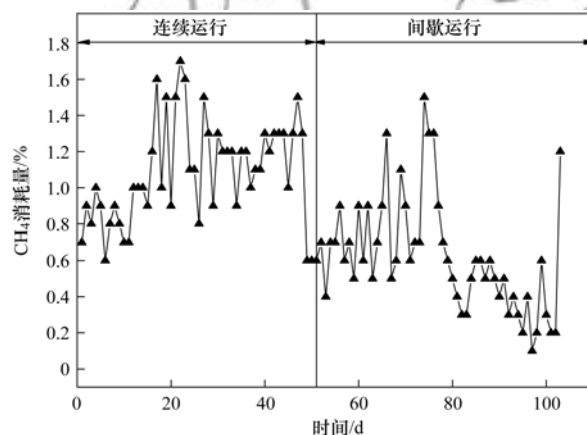


图2 甲烷消耗量日变化

Fig. 2 Daily variation of the methane consumption

从第 49 d 开始,调整为间歇运行的方式,停留时间变长,两种运行方式下出水的 pH 值、DO 和 COD 如表 1 所示,系统出水均呈中性,pH 值相差不大,出水中 COD 值均比进水高,主要由于甲烷被氧化过程中会产生中间产物,而间歇运行方式的 DO 比连续运行方式的 DO 低 $1.34 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,更有利于反硝化菌的生长繁殖。由图 2 和图 3 可知,经过 10 d 左右,系统趋于稳定,其平均甲烷消耗量为 0.62% ,总氮和氨氮的平均去除率分别为 94.77% 和 93.30% ,出水中总氮和氨氮的平均浓度分别为 $1.05 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $0.54 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,说明在该运行方式下能构建出 AME-D 极限脱氮系统。田宇心等^[16]通过模型

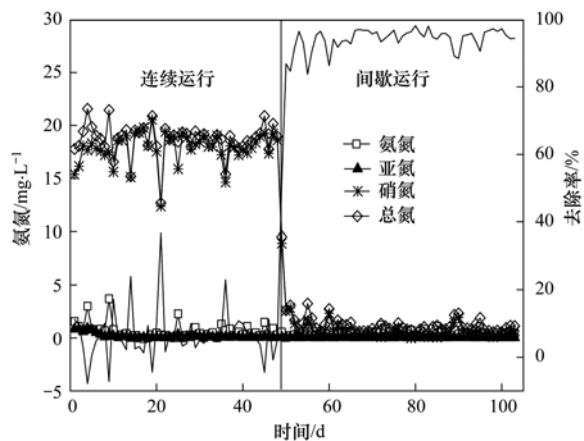


图3 不同运行条件下反应器出水 TN、NH₄⁺-N、NO₃⁻-N、NO₂⁻-N和去除率

Fig. 3 TN, NH₄⁺-N, NO₃⁻-N, and NO₂⁻-N concentration and efficiency of the effluent under the different methods of operation

模拟与情景分析方法,探讨了改良 Bardenpho 工艺的极限脱氮效果,在低 C/N 进水条件下,提高碳源(甲醇)加药量为 3.0 m³·d⁻¹,出水的 TN 低于极限脱氮目标的 3 mg·L⁻¹,系统 TN 去除率达 96%. 美国应用极限脱氮技术的污水厂中位于佛罗里达州的 Bay point 污水厂利用 MLE 活性污泥工艺,升级曝气和化学处理,将 TN 出水平均浓度从 6.33 mg·L⁻¹改造为 3.99 mg·L⁻¹,宾夕法尼亚的 Hempden Twp 污水厂采用序列间歇式活性污泥(CSR)进行结构、流程优化,将 TN 出水浓度从 4.66 mg·L⁻¹改造到 3.64 mg·L⁻¹. 通过对比可知,所构建出的 AME-D 极限脱氮系统具有较高的出水水质.

表1 系统出水的 pH、DO 和 COD

Table 1 The pH, DO, and COD of the effluent in the methanotrophic system

指标	运行方式	
	连续	间歇
pH	7.65 ± 0.10	7.23 ± 0.11
DO/mg·L ⁻¹	3.64 ± 0.31	2.30 ± 0.44
COD/mg·L ⁻¹	35.03 ± 29.72	31.22 ± 11.59

2.2 进出水拉曼光谱分析

采集间歇运行方式下的进出水进行拉曼光谱分析,其图谱如图 4 所示,拉曼光谱图解析如表 2 所示,通过比对图谱可知,进水中波数为 416.46 cm⁻¹和出水中波数为 421.25 cm⁻¹的峰,该峰由 PO₄³⁻ 的 PO₄ 对称变角振动引起,主要是由于实验用水中含有磷酸盐等营养物质. 进水经过处理后,波数为 1 051.57 cm⁻¹的峰明显消失,而该峰由 NO₃⁻ 对称伸缩引起,进一步说明系统对硝酸盐氮具有较高的去除能力. 出水中明显增强的峰为 497.94 cm⁻¹,说明系统中产生了具有官能团 P—Cl 的物质. 此外,

出水中明显增强的峰分别为 608.81、623.46 和 672.90 cm⁻¹,醇 COH 面外弯曲或 C—H 面外弯曲振动吸收引起,说明甲烷被氧化形成的中间产物可能主要为醇类物质. Kauffmann 等^[17]用拉曼光谱测定硝酸盐溶液,在 1 047 cm⁻¹波长处得到特定 NO₃⁻ 的阴离子. 占新华等^[18]进行水溶性有机物和多环芳烃结合特征的红外光谱研究,得到在 610 ~ 690 cm⁻¹吸收峰之间含有酚基功能团的结论.

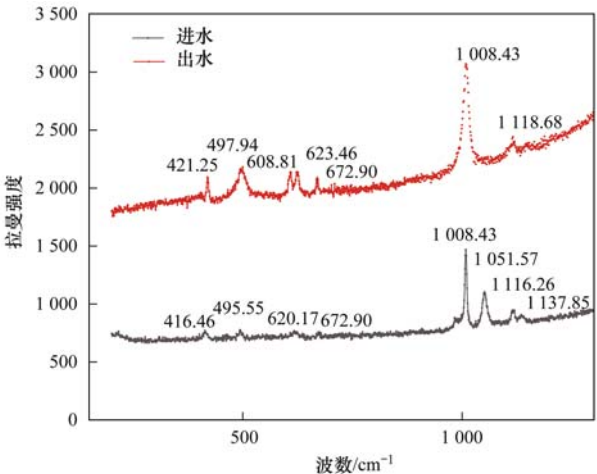


图4 系统进出水拉曼光谱图

Fig. 4 Raman spectrum of the inflow and effluent in the methanotrophic system

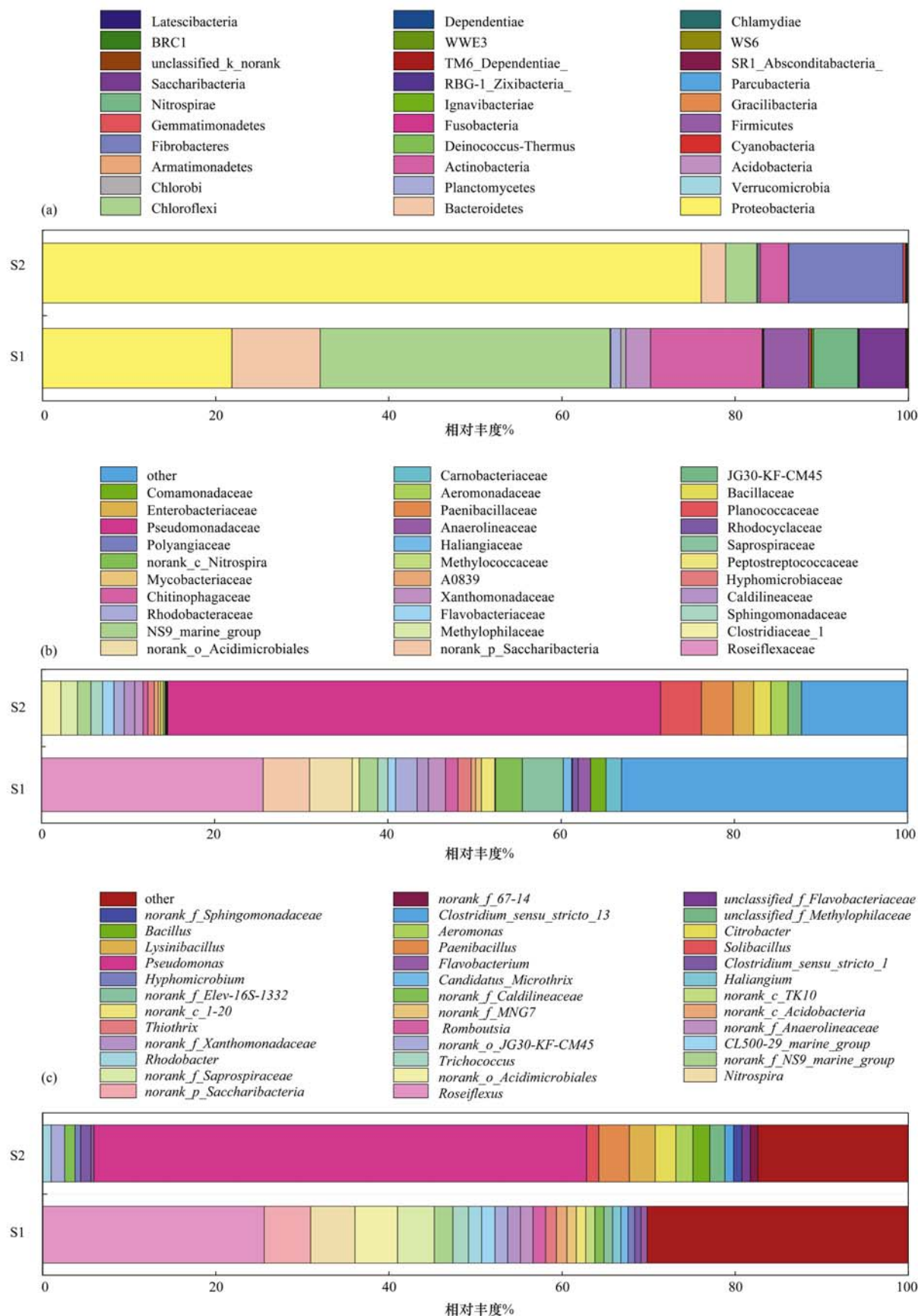
表2 拉曼光谱图解析

Table 2 Results of Raman spectroscopic analysis

吸收峰波数/cm ⁻¹	基团振动
416.46、421.25	PO ₄ ³⁻ 的 PO ₄ 对称变角振动
495.55、497.94	P—Cl 伸缩
608.81、620.17、623.46、672.90	C—H 面外弯曲振动吸收或醇 COH 面外弯曲
1 008.43	亚硫酸酯 R ¹ O-SO-OR ² 的 O—S—O 反对称伸缩
1 051.57	NO ₃ ⁻ 对称伸缩
1 116.26、1 118.68、1 137.85	碳酸根 CO ₃ ²⁻ 对称伸缩或仲胺 R ¹ -NH-R ² 的 C—N 伸缩

2.3 微生物多样性分析

对接种污泥和 AME-D 极限脱氮系统中的微生物进行 16S rRNA 基因测序分析,如图 5 所示,在门水平上[图 5(a)],接种污泥中检测出 26 门,AME-D 极限脱氮系统中检测出 17 门. 接种污泥中的优势门分别为变形菌门(Proteobacteria, 21.88%)、绿弯菌门(Chloroflexi, 33.48%)、拟杆菌门(Bacteroidetes, 10.19%)、硝化螺旋菌门(Nitrospirae, 5.11%)和浮霉菌门(Planctomycetes, 1.15%). AME-D 极限脱氮系统中优势门分别为变形菌门(Proteobacteria, 76.10%)、绿弯菌门(Chloroflexi, 3.59%)、拟杆菌门(Bacteroidetes, 2.81%)、硝化螺旋菌门(Nitrospirae, 0.10%)和浮霉菌门(Planctomycetes,



S1:接种污泥; S2:AME-D 极限脱氮系统; (a) 门水平; (b) 科水平; (c) 属水平

图 5 门、科和属水平上的微生物分类

Fig. 5 Respective microbial classification at the phylum, family, and genus level

0.17%),其中,丰度变化最大的为变形菌门,1994年就有研究者发现微生物用于水处理方面最主要的为变形菌门^[19],且大部分反硝化细菌和甲烷氧化菌均属于变形菌门.说明该系统对变形菌门生长有促进作用,而对绿弯菌门、拟杆菌门、浮霉菌门和硝化螺旋菌门有抑制作用.

在科水平上[图5(b)],AME-D 极限脱氮系统中出现新的假单胞菌科(*Pseudomonadaceae*)和芽孢杆菌科(*Bacillaceae*),其相对丰度分别为56.92%和1.99%,同时嗜甲基菌科(*Methylophilaceae*)、甲基球菌科(*Methylococcaceae*)和甲基囊孢菌科(*Methylocystaceae*)的相对丰度分别从接种污泥中的0.01%、0.08%和0.01%增长为1.91%、0.21%和0.27%.其中,甲基球菌科和甲基囊孢菌科均属于好氧甲烷氧化菌^[20],具有氧化甲烷的能力^[21],是该系统中的主要甲烷氧化菌.而嗜甲基菌科是一种甲基营养菌,不能直接氧化甲烷^[22],但能以甲醇和甲基胺类为生长基质^[23],嗜甲基菌科在系统中明显增长可能是甲烷氧化过程的中间产物主要为醇类等有机物^[3]. Kalyuzhnaya 等^[24]发现嗜甲基菌科在湖泊沉积物中的反硝化脱氮时具有一定作用. Xia 等^[25]在富集培养甲烷氧化菌时,分离出的主要微生物属于嗜甲基菌科,同时表明甲烷氧化菌氧化甲烷时产生的中间有机物能被其他微生物利用^[23].其他相对丰度变化较大的为腐螺旋菌科(*Saprospiraceae*)、多囊粘菌科(*Polyangiaceae*)和厌氧绳菌科(*Anaerolineaceae*)分别从4.73%、0.10%和1.45%下降为0.09%、0.06%和0%.

在属水平上[图5(c)],接种污泥中相对丰度较高的为 *Roseiflexus* (25.59%) 和 *Nitrospira* (5.11%),其中 *Nitrospira* 属于硝化菌,而反硝化菌属占优势的分别为 *Hyphomicrobium* (0.75%)、*Pseudomonas* (0.24%) 和 *Paracoccus* (0.30%). AME-D 极限脱氮系统中相对丰度高的为 *Pseudomonas* (56.92%)、*Paenibacillus* (3.52%) 和 *Lysinibacillus* (3.00%),均属于反硝化菌,其脱氮性能被广泛关注^[26],是主要的生物脱氮微生物,系统中并还出现其他丰度较小的反硝化菌,如 *Hyphomicrobium* (0.65%) 和 *Bacillus* (1.92%). 此外,AME-D 极限脱氮系统中的硝化细菌主要为 *Nitrospira*,其相对丰度为0.1%.

此外,接种污泥中检测出的甲烷氧化菌属分别为 *Methylobacteriaceae_norank* (0.18%)、*Methyloparacoccus* (0.04%) 和 *Methylosarcina* (0.04%). AME-D 极限脱氮系统中检测出的甲烷氧化菌属分别为 *Methyloparacoccus* (0.12%)、*Methylosarcina* (0.10%)

和 *Methylocaldum* (0.09%)^[27],属于兼性甲烷氧化菌属的为 *Methylocystis* (0.27%),经过富集培养后,系统中的甲烷氧化菌的种类增多,且相对丰度升高,其中, *Methylocaldum*、*Methylosarcina* 和 *Methyloparacoccus* 属于甲基球菌科,而 *Methylocystis* 属于甲基囊孢菌科, Belova 等^[28]发现 *Methylocystis* 的其他嗜酸甲烷氧化菌能够利用甲烷和乙酸生长,并且具有 sMMO 和 pMMO 功能基因.而属于嗜甲基菌科的微生物主要为 *Methylophilaceae_unclassified* (1.75%) 和 *Methylophilus* (0.12%).

由上述可知,AME-D 极限脱氮系统中同时存在硝化菌、反硝化菌和好氧甲烷氧化菌,主要的甲烷氧化菌为 *Methylocystis*、*Methylosarcina* 和 *Methyloparacoccus*,主要的反硝化菌为 *Pseudomonas*、*Paenibacillus* 和 *Lysinibacillus*,主要的硝化菌为 *Nitrospira*.说明 AME-D 极限脱氮系统的脱氮作用是由好氧甲烷氧化菌、反硝化菌和硝化菌协同实现的,其中,好氧甲烷氧化菌氧化甲烷所产生的醇类等中间物质可能为反硝化细菌提供所需的碳源.

3 结论

(1)在间歇式运行方式下,构建出 AME-D 极限脱氮系统,其总氮和氨氮的平均去除率分别为94.77%和93.30%,出水中总氮和氨氮的平均浓度分别为 $1.05 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $0.54 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$.

(2)通过拉曼光谱分析可知,由 NO_3^- 对称伸缩引起的峰(1051.57 cm^{-1})明显消失,由醇 COH 面外弯曲或 C—H 面外弯曲振动吸收引起峰(608.81 、 623.46 和 672.90 cm^{-1})明显增强,系统对硝酸盐氮具有较高的去除能力,此外,甲烷被氧化成的中间产物可能主要为醇类物质.

(3)16S rRNA 基因测序结果表明,AME-D 极限脱氮系统同时存在硝化菌、反硝化菌和好氧甲烷氧化菌,其中,甲烷氧化菌主要为 *Methylocystis* (0.27%)、*Methylosarcina* (0.10%) 和 *Methyloparacoccus* (0.12%),反硝化菌主要为 *Pseudomonas* (56.92%)、*Paenibacillus* (3.52%) 和 *Lysinibacillus* (3.00%),硝化菌主要为 *Nitrospira* (0.1%).

参考文献:

- [1] Yu C Q, Huang X, Chen H, et al. Managing nitrogen to restore water quality in China[J]. *Nature*, 2019, **567** (7749): 516-520.
- [2] Buitrón G, Moreno-Andrade I. Biodegradation kinetics of a mixture of phenols in a sequencing batch moving bed biofilm reactor under starvation and shock loads[J]. *Journal of Chemical Technology and Biotechnology*, 2011, **86**(5): 669-674.
- [3] Zhu J, Wang Q, Yuan M D, et al. Microbiology and potential

- applications of aerobic methane oxidation coupled to denitrification (AME-D) process: a review [J]. *Water Research*, 2016, **90**: 203-215.
- [4] 刘智晓. 生物除磷理论及实践新突破——从主流 EBPR 到侧流 EBPR[J]. *中国给水排水*, 2018, **34**(24): 19-25.
- Liu Z X. New breakthrough in the theory and practice of biological phosphorus removal: from mainstream EBPR to side-stream EBPR[J]. *China Water & Wastewater*, 2018, **34**(24): 19-25.
- [5] Haroon M F, Hu S H, Shi Y, *et al.* Anaerobic oxidation of methane coupled to nitrate reduction in a novel archaeal lineage [J]. *Nature*, 2013, **500**(7464): 567-570.
- [6] Söhngen N L. Über bakterien, welche methan als kohlenstoffnahrung und energiequelle gebrauchen[J]. *Zentralblatt Bakteriologie Parasitenkunde Infektionskrankheiten*, 1906, **15**: 513-517.
- [7] Harremoës P, Christensen M H. Denitrification with methane denitrification med methane[J]. *Vand*, 1971, **1**: 7-11.
- [8] Rhee G Y, Fuhs G W. Wastewater denitrification with one-carbon compounds as energy source [J]. *Journal (Water Pollution Control Federation)*, 1978, **50**(9): 2111-2119.
- [9] Sun F Y, Dong W Y, Shao M F, *et al.* Aerobic methane oxidation coupled to denitrification in a membrane biofilm reactor: treatment performance and the effect of oxygen ventilation [J]. *Bioresource Technology*, 2013, **145**: 2-9.
- [10] 李彦澄, 杨娅男, 刘邓平, 等. 基于好氧甲烷氧化菌的反硝化效能及微生物群落研究[J]. *中国环境科学*, 2019, **39**(10): 4387-4393.
- Li Y C, Yang Y N, Liu D P, *et al.* Denitrification efficiency and microbial community research in an aerobic methanotroph-based system[J]. *China Environmental Science*, 2019, **39**(10): 4387-4393.
- [11] Stein L Y, Klotz M G. Nitrifying and denitrifying pathways of methanotrophic bacteria[J]. *Biochemical Society Transactions*, 2011, **39**(6): 1826-1831.
- [12] 周祥玉, 赵云飞, 李东, 等. 微氧条件下以甲烷为碳源的反硝化实验研究[J]. *环境科学学报*, 2017, **37**(5): 1704-1710.
- Zhou X Y, Zhao Y F, Li D, *et al.* Experimental study on denitrification using methane as carbon source under microaerobic condition[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2017, **37**(5): 1704-1710.
- [13] Whittenbury R, Phillips K C, Wilkinson J F. Enrichment, isolation and some properties of methane-utilizing bacteria[J]. *Journal of General Microbiology*, 1970, **61**(2): 205-218.
- [14] 吉芳英, 杨琴, 罗固源. 实验室自配 HACH-COD 替代试剂研究[J]. *给水排水*, 2003, **29**(1): 17-20.
- Ji F Y, Yang Q, Luo G Y. Laboratory prepared substitutes for HACH-COD meter[J]. *Water & Wastewater Engineering*, 2003, **29**(1): 17-20.
- [15] Xu N, Tan G C, Wang H Y, *et al.* Effect of biochar additions to soil on nitrogen leaching, microbial biomass and bacterial community structure [J]. *European Journal of Soil Biology*, 2016, **74**: 1-8.
- [16] 田宇心, 李冰, 胡志荣, 等. 改良 Bardenpho 污水处理工艺优化设计与极限脱氮分析[A]. 见: 2017 中国环境科学学会科学与技术年会论文集(第二卷)[C]. 北京: 中国环境科学学会, 2017.
- [17] Kauffmann T H, Fontana M D. Inorganic salts diluted in water probed by Raman spectrometry: data processing and performance evaluation[J]. *Sensors and Actuators B: Chemical*, 2015, **209**: 154-161.
- [18] 占新华, 周立祥, 杨红, 等. 水溶性有机物与多环芳烃结合特征的红外光谱学研究[J]. *土壤学报*, 2007, **44**(1): 47-53.
- Zhan X H, Zhou L X, Yang H, *et al.* Infrared spectroscopy of Dom-PAHs complexes [J]. *Acta Pedologica Sinica*, 2007, **44**(1): 47-53.
- [19] Manz W, Wagner M, Amann R, *et al.* *In situ* characterization of the microbial consortia active in two wastewater treatment plants [J]. *Water Research*, 1994, **28**(8): 1715-1723.
- [20] 贡娟莉, 王艳芬, 张洪勋. 好氧甲烷氧化菌生态学研究进展[J]. *生态学报*, 2013, **33**(21): 6774-6785.
- Yun J L, Wang Y F, Zhang H X. Ecology of aerobic methane oxidizing bacteria (methanotrophs) [J]. *Acta Ecologica Sinica*, 2013, **33**(21): 6774-6785.
- [21] Kalyuzhnaya M G, Puri A W, Lidstrom M E. Metabolic engineering in methanotrophic bacteria [J]. *Metabolic Engineering*, 2015, **29**: 142-152.
- [22] Doronina N, Kaparullina E, Trotsenko Y. The family methylphilaceae[A]. In: Rosenberg E, DeLong E F, Lory S, *et al.* (Eds.). *The Prokaryotes: Alphaproteobacteria and Betaproteobacteria* (4th ed.) [M]. Berlin: Springer, 2014. 869-880.
- [23] Beck D A C, McTaggart T L, Setboonsang U, *et al.* The expanded diversity of methylphilaceae from lake washington through cultivation and genomic sequencing of novel ecotypes [J]. *PLoS One*, 2014, **9**(7): e102458.
- [24] Kalyuzhnaya M G, Martens-Habben W, Wang T S, *et al.* Methylphilaceae link methanol oxidation to denitrification in freshwater lake sediment as suggested by stable isotope probing and pure culture analysis [J]. *Environmental Microbiology Reports*, 2009, **1**(5): 385-392.
- [25] Xia F, Zou B, Shen C, *et al.* Complete genome sequence of *Methylphilus* sp. TWE2 isolated from methane oxidation enrichment culture of tap-water [J]. *Journal of Biotechnology*, 2015, **211**: 121-122.
- [26] 周晓黎, 孙迎雪, 沈丹丹, 等. 反硝化生物滤池反冲洗前后的生物膜特征研究[J]. *环境科学与技术*, 2015, **38**(S1): 26-29, 65.
- Zhou X L, Sun Y X, Shen D D, *et al.* Characteristics of biofilm in a denitrification biological filter before and after backwashing [J]. *Environmental Science and Technology*, 2015, **38**(S1): 26-29, 65.
- [27] Bowman J P. The family methylcocaceae[A]. In: Rosenberg E, DeLong E F, Lory S, *et al.* (Eds.). *The Prokaryotes: Alphaproteobacteria and Betaproteobacteria* (4th ed.) [M]. Berlin: Springer, 2014. 411-440.
- [28] Belova S E, Baani M, Suzina N E, *et al.* Acetate utilization as a survival strategy of peat-inhabiting *Methylocystis* spp. [J]. *Environmental Microbiology Reports*, 2011, **3**(1): 36-46.

CONTENTS

PM _{2.5} Inversion Using Remote Sensing Data in Eastern China Based on Deep Learning	LIU Lin-yu, ZHANG Yong-jun, LI Yan-sheng, <i>et al.</i> (1513)
Regional Air Pollution Process in Winter over the Yangtze River Delta and Its Influence on Typical Northern Cities	LI Rui, LI Qing, XU Jian, <i>et al.</i> (1520)
Influencing Factors of Ozone Concentration in Xi'an Based on Generalized Additive Models	HUANG Xiao-gang, SHAO Tian-jie, ZHAO Jing-bo, <i>et al.</i> (1535)
Spatial and Temporal Distribution Characteristics of Levoglucosan and Its Isomers in PM _{2.5} in Beijing and Six Surrounding Cities	ZHU Hong-xia, TAO Xue-mei, WANG Chao, <i>et al.</i> (1544)
Characteristics and Sources Apportionment of Fine Particulate Matter in a Typical Coastal City During the Heating Period	LI Ming-yan, YANG Wen, WEI Min, <i>et al.</i> (1550)
Characteristics and Source Apportionment of Black Carbon in Chengdu	WANG Lu, YUAN Liang, ZHANG Xiao-ling, <i>et al.</i> (1561)
Effects of VOCs on Ozone Formation in the Tianjin Suburbs in Summer	YAO Qing, HAN Su-qin, ZHANG Yu-fen, <i>et al.</i> (1573)
Source Profiles and Impact of Volatile Organic Compounds in the Coating Manufacturing Industry	WU Jian, GAO Song, CHEN Xi, <i>et al.</i> (1582)
Characteristics of Condensable Particulate Matter in Ultra-low Emission Coal-Fired Power Plants	DENG Jian-guo, WANG Gang, ZHANG Ying, <i>et al.</i> (1589)
Distribution and Source Analysis of Nitrate in Surface Waters of China	ZHANG Xin, ZHANG Yan, BI Zhi-lei, <i>et al.</i> (1594)
Spatial Characteristics and Ecological Risks of Perfluoroalkyl Substances in Coastal Urbanized Areas of China and South Korea	YANG Hong-fa, SHI Bin, ZHOU Yun-qiao, <i>et al.</i> (1607)
Analysis of Water Quality Change and Its Driving Factors of the Xiaoqing River Estuary in Recent Ten Years	FAN Xin-feng, HAN Mei, WANG Lei, <i>et al.</i> (1619)
Distribution of Four Artificial Sweeteners in Water Treatment and Water Supply System in City H of Zhejiang Province	MA Xiao-yan, HU Hui, LU Si-jia, <i>et al.</i> (1629)
Changes in Epilithic Algae Community and Its Relationship with Environmental Factors in the Meixi River, a Tributary of the Three Gorges Reservoir	MI Wen-mei, SHI Jun-qiong, YANG Yan-jun, <i>et al.</i> (1636)
Succession Pattern of Phytoplankton and Its Drivers in Lake Luoma, Jiangsu Province	ZHANG Qing-ji, WANG Ye-yu, WANG Jin-dong, <i>et al.</i> (1648)
Relationship Between Diversity of Aquatic Plant Communities and Water Environmental Factors in Lhalu Wetland	WANG Jia-jun, TIAN Han-xin, ZHOU Lei, <i>et al.</i> (1657)
Evolution Characteristics and Driving Factors of Denitrification Community Based on Network Analysis in the Process of Spring Thermal Layer Formation in Zhoucun Reservoir	ZHOU Shi-lei, SUN Yue, ZHANG Yi-ran, <i>et al.</i> (1666)
Temporal and Spatial Distribution Characteristics and Difference Analysis of Nitrogen and Phosphorus in Daihai Lake	ZHAO Li, CHEN Jun-yi, JIANG Xia, <i>et al.</i> (1676)
Sediment Denitrification Rate and Its Response to Exogenous Carbon and Nitrogen in the Ponds and Bottomland of the Chaohu Lakeshore Zone	LI Ru-zhong, WANG Li, LIU Chao (1684)
Phosphate Control Effect and Water Body Remediation of Magnesium Modified Reed Biochar	DING Yu-qin, LI Da-peng, ZHANG Shuai, <i>et al.</i> (1692)
Efficiency of Magnesium Hydroxide Capping and Amendment to Control Phosphorus Release from Sediments	YANG Chun-yi, ZHAN Yan-hui, LIN Jian-wei, <i>et al.</i> (1700)
Characteristics of Chemical Fractions of Dissolved Organic Matter in Road Runoff in Beijing	CHEN Meng-yao, DU Xiao-li, YU Zhen-ya, <i>et al.</i> (1709)
3D Porous Photothermal Materials for High Salt Wastewater Treatment	HUANG Le, XU Ying-feng, XIE Qian-qing, <i>et al.</i> (1716)
Electrocatalytic Oxidation of Sulfadiazine with Ni-Doped Sb-SnO ₂ Ceramic Ring Particle Electrode	SHI Qiu-jun, LIU An-di, TANG Bo-bin, <i>et al.</i> (1725)
Degradation of A07 with Magnetic Fe ₃ O ₄ -CuO Heterogeneous Catalyzed Sodium Percarbonate System	XU Jie, WANG Lin, CHEN Jia-bin, <i>et al.</i> (1734)
Red Mud-activated Peroxymonosulfate for Ciprofloxacin Degradation: Efficiency and Mechanism	SHI Jing-zhuan, WEI Hong, ZHOU Xiao-de, <i>et al.</i> (1743)
Influence of Industrial Wastewater Quality on Advanced Treatment of Microbubble Ozonation	ZHANG Jing, ZHANG Shou-jing, LIU Chun, <i>et al.</i> (1752)
Adsorption Properties of Sludge-hydrochar for Methylene Blue	CHEN Li-yuan, LI Da-peng, ZHU Wen-juan, <i>et al.</i> (1761)
Preparation of Modified Watermelon Biochar and Its Adsorption Properties for Pb(II)	BI Jing-wang, SHAN Rui, HAN Jing, <i>et al.</i> (1770)
Construction and Denitrification Performance of A ² /O Based on Partial Nitrification Coupled with an ANAMMOX System	LIU Xiao-chai, RONG Yi, WEN Li-jie, <i>et al.</i> (1779)
Construction and Mechanism of Methanotroph-based Ultimate Denitrification System for Tailwater of Urban Sewage Plants	YANG Ya-nan, LI Yan-cheng, LI Jiang, <i>et al.</i> (1787)
Impact of Hydraulic Retention Time on Performance of Partial Nitrification Granular Sludge in Continuous Stirred-Tank Reactor	WANG Jian-fang, QI Ze-kun, QIAN Fei-yue, <i>et al.</i> (1794)
Realization Process of Nitrification and Changes in Sludge Characteristics in Granular Sludge Reactor for Low Strength Sewage Treatment	ZHU Lin, CHENG Cheng, SONG Jia-jun, <i>et al.</i> (1801)
Characteristics of Organics Transformation and Sludge Morphology in an ABR for Sewage Treatment with Different HRTs	CHENG Cheng, ZHU Lin, GUO Kai-cheng, <i>et al.</i> (1808)
Effect of Adding Granular Activated Carbon (GAC)/Manganese Dioxide (MnO ₂) for the Anaerobic Digestion of Waste Activated Sludge	YANG Bo, JIA Li-juan, XU Hui, <i>et al.</i> (1816)
Trace Metals Pollution and Health Risks for Planning Area Soils of 193 Chinese Cities	LI Kuo, PENG Min, YANG Zheng, <i>et al.</i> (1825)
Assessment of Heavy Metal Pollution in Surface Dust of Lanzhou Schools Based on Random Forests	HU Meng-jun, WANG Jia, ZHANG Ya-yun, <i>et al.</i> (1838)
Contents, Sources, and Ecological Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Surface Soils of Various Functional Zones in Yangzhou City, China	YAO Cheng, NI Jin-zhi, LIU Rui, <i>et al.</i> (1847)
Safety Assessment of Rice Planting in Soil Cadmium Geological Anomaly Areas in Southwest Guangxi	CHEN Tong-bin, PANG Rui, WANG Fo-peng, <i>et al.</i> (1855)
Bioavailability and Influencing Factors of Soil Cd in the Major Farming Areas of Chongqing	WANG Rui, HU Xiao-lan, ZHANG Yong-wen, <i>et al.</i> (1864)
Control of Cadmium Migration and Transformation in Alkaline Paddy Soil-Rice Using Cotton Stalk Biochar	LIU Shi-dou, ZHU Xin-ping, HAN Yao-guang, <i>et al.</i> (1871)
Reduction of Soil Cadmium Activity and Rice Cadmium Content by 4-year-consecutive Application of Organic Fertilizer	XUE Yi, YIN Ze-run, SHENG Hao, <i>et al.</i> (1880)
Effects of Nano-magnesium Hydroxide on the Forms of Cadmium in Different Types of Soil	DENG Ji-bao, ZHANG Chun-lai, XU Wei-hong (1888)
Selenium Uptake Characteristics of Reclaimed Soil-Crop from Mining Wasteland and Its Antagonistic Effects on Heavy Metals	YIN Bing, WANG Jian-fei, SHI Sheng, <i>et al.</i> (1904)
Dynamic Effects of Different Biochars on Soil Properties and Crop Yield of Acid Farmland	YANG Cai-di, ZONG Yu-tong, LU Sheng-gao (1914)
Effects of Fertilizer Reduction and Application of Organic Fertilizer on Soil Nitrogen and Phosphorus Nutrients and Crop Yield in a Purple Soil Sloping Field	ZHU Hao-yu, GAO Ming, LONG Yi, <i>et al.</i> (1921)
Response of Nitrogen Loss Flux in Purple Soil Sloping Field to Reduced Fertilizer and Combining Straw	XIONG Zi-yi, WANG Zi-fang, LONG Yi, <i>et al.</i> (1930)
Effect and Approach of <i>Enteromorpha prolifera</i> Biochar to Improve Coastal Saline Soil	WU Dan, SUN Ping, LU Peng-zhan, <i>et al.</i> (1941)
Vertical Distribution of Soil Dissolved Carbon and Its Influencing Factors in the Artificial Shelterbelt Irrigated with Saline Water in an Extreme Drought Desert	MENG Tian-ge, WU Lu-yao, ZHANG Shao-lei, <i>et al.</i> (1950)
Response of Soil Enzyme Activity and Chemical Properties to Nitrogen Addition in a Korean Pine Plantation	LÜ Lai-xin, SONG Lei, LIU Zhi-li, <i>et al.</i> (1960)
Consumption Capacity of N ₂ O in Paddy Soil and the Response Mechanism of <i>nosZ-I</i> -containing Communities	GUO Jun-li, TIAN Mei-jie, GE Ti-da, <i>et al.</i> (1968)
Predicting the Recycling Potential and Evaluating the Environmental Benefits of Waste Electrical and Electronic Equipment in Beijing-Tianjin-Hebei	CHEN Pan, SHI Xiao-qing (1976)
Relationship Between Urban Industrialization and PM _{2.5} Concentration in China and the Internal Mechanism of EKC	LI Ya-nan, DING Zhen-min, DENG Yuan-jie, <i>et al.</i> (1987)