

 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



2019

Vol.40 No.2
第40卷 第2期

目次

冬季山谷风和海陆风对京津冀地区大气污染分布的影响	李青春, 李炬, 郑祚芳, 王耀庭, 于淼 (513)
珠三角地区利用 PM _{2.5} 反演气溶胶数浓度谱方法	李菲, 谭浩波, 邓雪娇, 邹宇, 刘礼, 蔡明甫, 张芷言, 周声圳 (525)
广州冬季气溶胶中水溶性有机物和类腐殖质的吸光性和荧光光谱特性	范行军, 余旭芳, 操涛, 王艳, 肖新, 谢越, 李飞跃, 宋建中, 彭平安 (532)
扬州市 PM _{2.5} 中重金属来源及潜在健康风险评估	董世豪, 谢扬, 皇甫延琦, 史旭荣, 易睿, 史国良, 冯银厂 (540)
聊城市冬季 PM _{2.5} 中正构烷烃和糖类的污染特征及来源解析	刘晓迪, 孟静静, 侯战方, 衣雅男, 魏本杰, 伏梦璇 (548)
博斯腾湖流域大气多环芳烃污染特征、干沉降通量及来源	宋世杰, 黄韬, 赵留元, 毛潇萱, 穆熙, 高宏, 马建民 (558)
某集约化肉鸡饲养场 PM _{2.5} 中抗生素抗性基因的分布特征	刘菲, 许霞, 屠博文, 汪楚乔, 江晓栋, 王利平, 薛银刚 (567)
水汽源地和局地蒸发对大气降水氢氧稳定同位素组分的影响	胡勇博, 肖薇, 钱雨妃, 刘强, 谢成玉, 张秀芳, 张文庆, 温学发, 刘寿东, 李旭辉 (573)
滇池大气沉降氮磷形态特征及其入湖负荷贡献	任加国, 贾海斌, 焦立新, 王一茹, 杨苏文, 武倩倩, 高秋生, 崔志丹, 郝子峰 (582)
基于地统计学分析的太湖颗粒态和溶解态氮、磷营养盐时空分布特征及来源分析	吕伟伟, 姚昕, 张保华, 高光, 邵克强 (590)
湖泊蓝藻水华对连通河道水质的影响	余茂蕾, 洪国喜, 许海, 朱广伟, 朱梦圆, 权秋梅 (603)
异龙湖沉积物重金属人为污染与潜在生态风险	李小林, 刘恩峰, 于真真, 张恩楼, 王荣, 沈吉 (614)
珠江河口悬浮物中重金属时空变化特征及其影响因素	杜佳, 王永红, 黄清辉, 戴琦, 杨远东 (625)
北运河粪源微生物分布特征及健康风险评价	陈磊, 李蕾芳, 邱晓沙, 张普, 戴莹, 肖月晨, 沈珍瑶 (633)
氧化还原循环过程中沉积物磷的形态及迁移转化规律	郝文超, 王从锋, 杨正健, 刘德富, 纪道斌, 赵萍, 丹勇, 胡子龙 (640)
磁性铁改性膨润土添加对河道底泥磷迁移与形态转化的影响	王艳, 林建伟, 詹艳慧, 张宏华, 张志斌, 何思琪, 赵钰颖, 吴小龙, 俞阳 (649)
钙预处理对磁性铁改性膨润土吸附水中磷酸盐的影响	赵钰颖, 林建伟, 张宏华, 张志斌, 詹艳慧, 姜博汇, 何思琪, 俞阳, 吴小龙, 王艳, 陈璐, 李十盛 (658)
NH ₄ ⁺ 对镁改性生物炭除磷效果的影响	郭蒙蒙, 王鹏飞, 侯泽英, 曹晶, 储昭升, 杨永哲 (669)
3 种吸附剂对污水磷污染去除性能与机制比较	吴露, 刘锋, 龙睿, 罗沛, 肖润林, 陈向, 吴金水 (677)
硝酸纤维素膜光降解水中对硝基苯酚的机制	代志峰, 赵同谦, 阴永光, 余加平, 武俐, 邵超, 孙静阳, 罗玉俊 (685)
ZnTiO ₂ -TiO ₂ 复合光催化剂的制备及光催化降解有机污染物机制分析	张文海, 吉庆华, 兰华春, 李静 (693)
高指数晶面 TiO ₂ 对铬的吸附及光催化去除	钟德健, 张建峰, 李尧, 谢晓丹 (701)
Fe ⁰ /海藻酸钙微球还原-Fenton 氧化协同降解酸性红 B	张环, 李爽爽, 魏俊富, 傅敏, 李雪曦, 丁琦, 白蓉 (708)
不同滤料滤池启动期对铁锰离子的去除机制	蔡言安, 毕学军, 张嘉凝, 何静, 董杨, 王海港 (717)
SGO 改性复合纳滤膜的制备及分盐性能	张彦君, 张少峰, 赵长伟, 王军 (724)
一体式铝盐絮体-超滤膜净水效能与机制	薛文静, 李文江, 刘娟, 马百文 (730)
臭氧-CNT 膜改性联用工艺处理高盐废水及膜污染分析	王凯伦, 刘芳, 关羽琪, 祝学东, 董丹, 薛小雷, 马燕林, 栾桂荣, 郭瑾 (738)
多环芳烃及其衍生物在 SBR/MBBR 工艺中的分布与去除	刘淑惠, 周伟君, 周建仁, 赵婧, 王喆 (747)
微气泡曝气生物膜反应器处理低 C/N 比废水脱氮过程	刘春, 王聪聪, 陈晓轩, 张静, 张瑞娜, 张磊 (754)
从枝菌根强化型生态浮床处理煤化工模拟含盐废水	窦文清, 何皓, 宋文萍, 王曙光, 戴东伟 (761)
夏季高温下污水处理厂生物处理系统的硝化性能及强化方法	宋天伟, 盛晓琳, 王家德, 刘锐, 陈吕军 (768)
硝化包埋菌颗粒氨吸附性能及动力学特性	于德爽, 吕廷廷, 陈光辉, 王晓霞, 唐鹏, 黄硕, 刘诚诚, 杜世明 (774)
乙酸钠作为碳源不同污泥源短程反硝化过程亚硝酸盐积累特性	毕春雪, 于德爽, 杜世明, 王晓霞, 陈光辉, 王钧, 巩秀珍, 都叶奇 (783)
DPR-SNED 系统处理低 C/N 城市污水与硝酸盐废水的运行特性	杜世明, 于德爽, 毕春雪, 王晓霞, 陈光辉, 袁梦飞, 甄建国, 张帆, 吕廷廷 (791)
间歇曝气连续流反应器同步硝化反硝化除磷	赵智超, 黄剑明, 李健, 张为堂, 张力航, 吴雪晴, 陈永志 (799)
ABR-MBR 反硝化除磷工艺的启动及稳定运行	韦佳敏, 蒋志云, 程诚, 朱琳, 刘文如, 沈耀良 (808)
进水 C/N 对 SNEDPR 系统脱氮除磷的影响	都叶奇, 于德爽, 甄建国, 王晓霞, 陈光辉, 唐鹏, 王钧, 毕春雪, 巩秀珍, 黄硕, 刘诚诚 (816)
ABR 除碳-CANON 耦合工艺除碳脱氮特性	李田, 印雯, 王昕竹, 沈耀良, 吴鹏, 宋吟玲 (823)
不同曝气密度对 CANON 工艺启动的影响	李冬, 高雪健, 张杰, 曹正美, 郭跃洲, 李帅 (829)
调控温度和沉降时间实现 ANAMMOX 颗粒快速启动及其稳定运行	李海玲, 李冬, 张杰, 刘博, 李帅 (837)
C/N 和污泥浓度对以 pH 值调控的亚硝化系统影响	张敏, 韦佳敏, 黄慧敏, 姜滢, 郭萌蕾, 陈重军, 沈耀良 (845)
基于活性微生物特征的供水管壁生物膜生长特性	王杨, 朱斌, 童俊, 白晓慧 (853)
黄山土壤细菌群落和酶活性海拔分布特征	姚兰, 胡立煌, 张焕朝, 方炎明, 王良梅 (859)
基于高通量测序分析的生物修复石油污染土壤菌群结构变化	祁燕云, 吴蔓莉, 祝长成, 叶茜琼, 徐会宁 (869)
硝化作用对盐碱湿地 N ₂ O 排放的影响及其环境因子分析	杨曲, 高伟峰, 刘凤琴, 王文锋, 马建华, 徐卓, 梁红, 高大文 (876)
长期定位施用牛粪对夏玉米-冬小麦体系农田 N ₂ O 和 NO 排放的影响	聂皇华, 张家升, 和周明, 安梅, 杨学云, 顾江新 (885)
地膜覆盖和施氮对菜地 N ₂ O 排放的影响	倪雪, 郝庆菊, 陈世杰, 李晓茜, 石孝均, 江长胜 (893)
双季稻品种根际特征与甲烷排放差异及其关系	肖志祥, 傅志强, 徐华勤, 苏姗, 郭昱, 张浪, 唐剑武 (904)
多年施用生物炭对河南烤烟种植区土壤呼吸的影响	李亚森, 丁松爽, 殷全玉, 李佳轶, 周迪, 刘国顺 (915)
桂林毛村不同土地利用方式下土壤呼吸空间变异特征	丁梦凯, 胡晓农, 曹建华, 吴夏, 黄芬, 王奇岗, 闵佳 (924)
工业发达城市土壤重金属时空变异与源解析	李峰, 刘思源, 李艳, 史舟 (934)
膨润土对不同类型农田土壤重金属形态及生物有效性的影响	林海, 靳晓娜, 董颖博, 罗明科, 赵一鸣 (945)
缙云山不同林分下土壤有机碳及矿化特征	陈仕奇, 吕盛, 高明, 黄容 (953)
复杂地形条件下根系对土壤有机碳的贡献	张彦军, 郭胜利 (961)
不同水平外源碳在稻田土壤中转化与分配的微生物响应特征	王季斐, 童瑶瑶, 祝贞科, 陈珊, 邓扬悟, 葛体达, 吴金水 (970)
宝鸡市植被叶子重金属分布规律及生态风险评价	张俊辉, 林青, 姜珊, 刘滨, 李东兴, 王彦虎 (978)
生物炭对污泥堆肥及其利用过程重金属有效态的影响	周楫, 余亚伟, 蒋越, 杨雨滢, 张成 (987)
污泥停留时间对餐厨垃圾与剩余污泥中温厌氧混合发酵系统的影响	袁宏林, 马静, 邢保山, 温俊伟, 韩宇乐, 李倩, 王晓昌 (994)
热碱-分步酶水解-厌氧消化工艺处理秸秆畜禽粪混合物料及其甲烷高值化条件	卞爱琴, 远野, 张璐璐, 付强, 陈天明, 何磊, 丁成, 王爱杰 (1003)

多环芳烃及其衍生物在 SBR/MBBR 工艺中的分布与去除

刘淑惠¹, 田伟君^{1,2*}, 周建仁³, 赵婧¹, 王喆¹

(1. 中国海洋大学环境科学与工程学院, 青岛 266100; 2. 海洋环境与生态教育部重点实验室, 青岛 266100; 3. 山东省南水北调工程建设管理局, 济南 250014)

摘要: 多环芳烃(PAHs)是一类重要的持久性有毒有机污染物, 而其衍生物 SPAHs 的毒性更高. 通过对青岛市城阳污水处理厂采样, 分析在其 SBR/MBBR 工艺中 16 种 PAHs 及硝基 PAHs(NPAHs), 甲基 PAHs(MPAHs)以及氧基 PAHs(OPAHs)的分布与去除. 结果表明, 16 种 PAHs 及 13 种 SPAHs 均有检出, 进水中, PAHs 与 SPAHs 的总质量浓度分别为 3 835.14 ng·L⁻¹ 与 6 889.46 ng·L⁻¹, 其浓度远远高于其他地区的污水处理厂. 在出水中, PAHs 与 SPAHs 的总质量浓度为 1 148.18 ng·L⁻¹ 与 1 724.57 ng·L⁻¹, 去除率分别为 70.06% 与 74.97%, 可见 SBR/MBBR 工艺能有效去除 PAHs 与 SPAHs. 水相中 PAHs 的去除主要是针对低环多环芳烃(LMW-PAHs)的生物降解; 而颗粒相中 PAHs 的去除主要依靠初沉池对 LMW-PAHs 的吸附沉淀以及生物单元对高环多环芳烃(HMW-PAHs)的生物吸附. 对于 SPAHs, MPAHs 去除效果最好, 去除率达 89.15%, 颗粒吸附以及生物降解是其主要的去除机制; 其次是 OPAHs, 去除率为 63.36%, 在水相中主要依靠一级处理的颗粒吸附去除, 在颗粒相中则主要在二级处理的生物吸附去除; NPAHs 的去除率为 48.85%, 主要在生物池中去除. SPAHs 在 SBR/MBBR 工艺中的去除机制不尽相同, 污水处理厂应根据不同处理工段 PAHs 与 SPAHs 的分布特征采取相应控制措施, 而污泥中富集的 PAHs 与 SPAHs 远高于出水的排放量, 因此, 还应加强污泥中 PAHs 与 SPAHs 的管理.

关键词: 多环芳烃(PAHs); 多环芳烃衍生物(SPAHs); 污水处理厂; SBR/MBBR 工艺; 去除

中图分类号: X703.1 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2019)02-0747-07 DOI: 10.13227/j.hjxx.201807099

Distribution and Removal of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Their Derivatives in SBR/MBBR Process

LIU Shu-hui¹, TIAN Wei-jun^{1,2*}, ZHOU Jian-ren³, ZHAO Jing¹, WANG Zhe¹

(1. College of Environmental Science and Engineering, Ocean University of China, Qingdao 266100, China; 2. Key Laboratory of Marine Environmental Science and Ecology, Ministry of Education, Qingdao 266100, China; 3. South-to-North Water Diversion Project Construction Administration of Shandong Province, Ji'nan 250014, China)

Abstract: While polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) are an important persistent toxic organic contaminant, the toxicities of substituted polycyclic aromatic hydrocarbons (SPAHs) are much higher than PAHs. Water and sludge samples were collected from the Qingdao Chengyang Sewage Treatment Plant (STP). The distribution and removal of 16 PAHs and nitro-PAHs (NPAHs), methyl-PAHs (MPAHs), and oxy-PAHs (OPAHs) in the SBR/MBBR process were analyzed. The results showed that 16 PAHs and 13 SPAHs were detected. In the influent water, the total concentrations of PAHs and SPAHs were 3 835.14 ng·L⁻¹ and 6 889.46 ng·L⁻¹, respectively, which were much higher than those of STPs in other regions. In the effluent, the total concentrations of PAHs and SPAHs were 1 148.18 ng·L⁻¹ and 1 724.57 ng·L⁻¹, respectively, and the removal rates were up to 70.06% and 74.97%, respectively. The SBR/MBBR process presented a more effective removal capacity for PAHs and SPAHs. The removal of PAHs was mainly by the biodegradation of low-ring polycyclic aromatic hydrocarbons (LMW-PAHs) in the aqueous phase; while the removal of PAHs in the particle phase mainly relied on the adsorption and precipitation of LMW-PAHs in the primary sedimentation tank and the biosorption of high-ring polycyclic aromatic hydrocarbons (HMW-PAHs) in the bio-unit. For SPAHs, the removal efficiency of MPAHs (up to 89.15%) was the best under the functions of particle adsorption and biodegradation. The removal rate of OPAHs was 63.36%, which was mainly removed by the adsorption of primary particles in the aqueous phase and the biosorption from the biological treatment unit in the particle phase, and the removal rate of NPAHs was 48.85% and largely occurred in the biological treatment unit. The removal mechanism of SPAHs in SBR/MBBR process was not the same. Therefore, STPs should take adequate control measures according to the distribution characteristics of PAHs and SPAHs in different treatment units. Additionally, the concentrations of PAHs and SPAHs in sludge were higher than those in the effluent. Thus, the management of PAHs and SPAHs in sludge should be improved.

Key words: polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs); substituted polycyclic aromatic hydrocarbons (SPAHs); sewage treatment plant; SBR/MBBR process; removal

多环芳烃 (polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs) 是水环境中普遍存在的一类重要的持久性有毒有机污染物, 主要由化石燃料和木材的不完全燃

收稿日期: 2018-07-14; 修订日期: 2018-08-07

作者简介: 刘淑惠(1994~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为水生物处理, E-mail: 1593218464@qq.com

* 通信作者, E-mail: weijunas@ouc.edu.cn

烧形成,因具有“三致效应”而被广泛关注^[1,2].多环芳烃衍生物(substituted polycyclic aromatic hydrocarbons, SPAHs)除可由不完全燃烧直接排入环境,也可通过光化学或微生物作用由母体 PAHs 转化生成,具有比 PAHs 更高的毒性^[3].占洁等^[4]的研究指出 NPAH 的致突变性高于母体 PAHs 的 100 000 倍,致癌性高出近 10 倍,而 OPAH 则可引起过敏性疾病^[5].水环境中 PAHs 与 SPAHs 的来源主要为生活污水与工业废水,而污水处理厂能有效减少、阻断、控制进入水环境的 PAHs 与 SPAHs^[11],因此,污水处理厂的处理系统及其处理效率就显得格外重要.迄今为止,虽已有一些国家和地区对污水处理厂各工艺中 PAHs 及 SPAHs 的去除效果进行了探究调查,但大都集中于传统活性污泥法与 A²O 及倒置 A²O 工艺的研究^[6-9],尚无对 SBR 工艺的研究.

SBR 工艺具有反应效率高、净化效果好,特别是对难降解有机物降解性能好的特点^[10].而 SBR/MBBR 工艺是向 SBR 生物反应器中投加悬浮填料以进一步提高反应器的处理效率.为探明该组合工艺对 PAHs 及 SPAHs 的去除能力,本文以采用 SBR/MBBR 处理工艺的青岛城阳污水处理厂为研究对象,对其各工段进出水中的 PAHs 和 SPAHs 进行采样分析,通过明确其分布及去除行为,以期为污水处理厂 SBR/MBBR 工艺升级改造提供数据支持.

1 材料与方法

1.1 实验材料

16 种 PAHs 混合标准样品与 13 种 SPAHs 单标样品均购自 AccuStandard, Inc. (New Haven, 美国). 16 种 PAHs 质量浓度为 200 $\mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$, 包括萘(Nap)、蒽(An)、苊(Ace)、苊(Flu)、菲(Phe)、蒽(Ant)、荧蒽(Fluo)、芘(Pyr)、苯并[a]蒽(BaA)、䓛(Chry)、苯并[b]荧蒽(BbF)、苯并[k]荧蒽(BkF)、苯并[a]芘(BaP)、茚并[1,2,3-cd]芘(IcdP)、二苯并[a,h]蒽(DBA)和苯并[ghi]芘(BghiP); 13 种 SPAHs 包括 4 种甲基多环芳烃(MPAHs): 2-甲基萘(2-MN, 50 $\mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$)、1-甲基蒽(1-MF, 10 $\mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$)、2,6-二甲基萘(2,6-DMN, 50 $\mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$)、3,6-二甲基菲(3,6-DMP, 50 $\mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$); 4 种氧基多环芳烃(OPAHs): 9-茚酮(9-FL, 纯品)、蒽醌(AQ, 纯品)、2-甲基蒽醌(2-MAQ, 纯品)、苯[a]蒽-7,12-二酮(BA-7,12-D, 50 $\mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$); 5 种硝基多环芳烃(NPAHs): 2-硝基茚(2-NF, 100 $\mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$)、9-硝基蒽(9-NA, 100

$\mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$)、3-硝基荧蒽(3-NF, 100 $\mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$)、1-硝基茚(1-NP, 100 $\mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$)和 7-硝基苯[a]蒽(7-NBA, 100 $\mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$). 内标物质十氯联苯(PCB209)购自 Aldrich Chemical Co., Inc. (Gillingham, Dorset, 美国).

HPLC 级正己烷(HEX)、二氯甲烷(DCM)、甲醇(MeOH)购自国药集团化学试剂有限公司, C₁₈固相萃取柱(500 mg, 6 mL)购于 Supelco. 硅胶(80~100 目)和中性氧化铝(100~200 目)分别在 70℃ 和 450℃ 下活化 12 h 和 2 h 后使用, 无水硫酸钠和过滤器在 450℃ 下烘烤 4 h 后使用.

1.2 样品采集与前处理

青岛市城阳污水处理厂位于青岛市城阳区双元路以西、墨水河以东,服务面积达 198 km²,服务人口约 40 万人.该污水处理厂主要收集和来自周边街道的生活污水和工业废水,其中来自炼油厂、石油工业、化肥生产、橡胶公司和机械制造业的工业废水所占比例约为 70%.城阳污水处理厂采用两套平行工艺,即改良的 A²O 和 SBR/MBBR 工艺,其中 SBR/MBBR 工艺处理量为 5 万 t·d⁻¹,工艺包括一级处理的沉砂池与初沉池,二级处理的生物池(SBR + MBBR),以及三级处理的接触池与连续流沙滤池;其中生物池的水力停留时间为 24 h,污泥泥龄为 15 d.样品采集时间为 2017 年 6 月,按水力停留时间取样,每个取样点做 3 个平行样.进水采样点位于总进水口,出水采样点位于连续流沙滤池出水口,其余水样采样点均在各处理工段出水口;污泥采样点为初沉池出水口的初沉污泥,以及生物池出水口的剩余污泥.污水处理厂工艺及采样点详见图 1.

采集的水样在玻璃纤维滤膜上过滤,将水相与颗粒相分离,水相样品于棕色玻璃瓶中保存,一周内完成富集;颗粒相样品用锡箔纸包好放于冰箱 -20℃ 保存.水相样品加入内标物质 PCB209 后经活化好的 C₁₈柱在固相萃取仪装置上富集,然后用 2:1 的 HEX 与 DCM 洗脱 C₁₈柱;颗粒相和污泥样品经冷冻干燥机冷冻干燥后,滤膜剪碎,加入内标 PCB209,在 20℃,100 Hz 条件下超声萃取 3 次,每次 30 min,并加入 10 mL HEX 与 DCM 1:1 混合液,最后合并提取液,浓缩至 2 mL.制备好的样品过以氧化铝、硅胶、无水硫酸钠先后填充的净化柱净化,再以 HEX 与 DCM 混合液洗涤净化柱,接收洗脱液后浓缩定容至 1 mL 待测.

1.3 仪器分析

样品采用气相色谱-质谱仪(7890A GC-5975BMSD, Agilent, 美国)进行测定,使用 HP-5MS

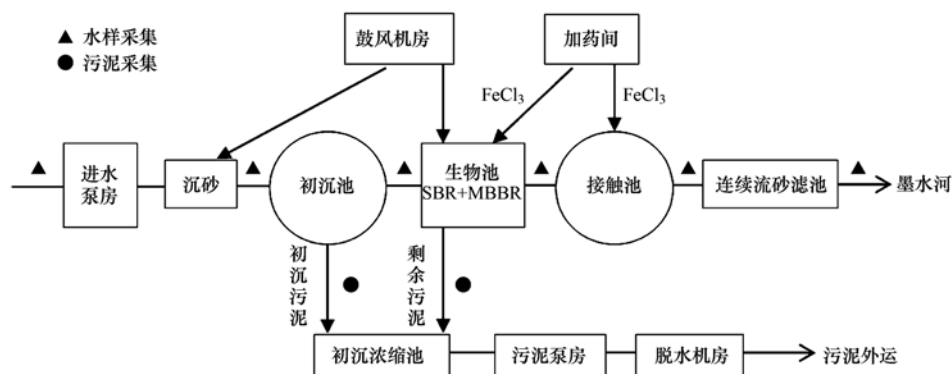


图1 污水处理厂 SBR/MBBR 工艺及采样点示意

Fig. 1 Sewage treatment plant process and sampling points

柱(30 m, 内径 0.25 mm, 膜厚 0.25 μm). 定量分析以选择性离子监测(SIM)模式进行. 进样口温度为 250 $^{\circ}\text{C}$, 检测器温度为 280 $^{\circ}\text{C}$. 升温程序: 初始温度为 40 $^{\circ}\text{C}$, 先以 8 $^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ 的速率增至 200 $^{\circ}\text{C}$, 然后以 8 $^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ 的速率升至 300 $^{\circ}\text{C}$ 并保持 10 min.

1.4 质量控制与质量保证

标准曲线: 每种目标化合物使用外标法定量, 设立 7 个不同浓度梯度的校准点, 建立 7 点标准曲线. 方法检出限与定量限: 使用 3 倍信噪比检测方法检测限, 29 种目标化合物的检出限为 0.02 ~ 8.30 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ (水相)、2.77 ~ 22.75 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ (颗粒相), 定量限为 0.10 ~ 13.83 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ (水相)、5.28 ~ 67.74 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ (颗粒相). 加标样品目标物回收率为 52.57% ~ 105.48% (水相)、47.72% ~ 101.48% (颗粒相).

2 结果与讨论

2.1 PAHs 及 SPAHs 的含量与分布

将 16 种 PAHs 按环数分为低环多环芳烃(LMW-PAHs, 2 ~ 4 环)与高环多环芳烃(HMW-PAHs, 5、6 环), SPAHs 分为甲基 PAHs(MPAHs)、氧基 PAHs(OPAHs)以及硝基 PAHs(NPAHs)来研究, 其在各工段的含量及分布如表 1 与图 2 所示. 在进水中, 16 种 PAHs 与 13 种 SPAHs 均有检出, 其中 PAHs 与 SPAHs 总质量浓度分别为 3 835.14

$\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 与 6 889.46 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$. 与其他地区的污水处理厂相比, 该污水处理厂进水中 PAHs 浓度较合肥某污水处理厂(5 758.8 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$)低, 但较泰安(1 150 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$)、日本广岛(219 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$)以及卡拉克省约旦中部的 3 个调查区(528 ~ 1 224 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$)要高^[11~14]. SPAHs 的含量也比其他地区要高出许多, 如浙江省一个化学工业区的污水处理厂 SPAHs 平均含量仅为 1 003.5 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ ^[15], 北京某污水处理厂 SPAHs 浓度为 1 814 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ ^[9]. 这样高浓度的 SPAHs 及 PAHs 可能与该污水处理厂进水以工业废水为主有关.

表 1 显示, 进水中 PAHs 主要以 LMW-PAHs 为主, 占到总 PAHs($\sum \text{PAHs}$)的 92.76%. 水相中 LMW-PAHs 含量要比颗粒相高许多, 其中 2 环的 Nap 占到 $\sum \text{PAHs}$ 的 50% 左右, 这可能是因为 Nap 是一种重要的化工原材料, 可用于制作合成树脂、无烟火药以及浴室产品, 并作为樟脑球的主要原材料被广泛应用^[16]. 而在颗粒相中, HMW-PAHs 含量较水相多, 可见低环 PAHs 更倾向于水相, 而高环 PAHs 更多地存在于颗粒相中, 这与 Ozaki 等^[13]的研究结果相似. 这种现象可能与它们的正辛醇/水分配系数有关. 对于 SPAHs, 进水中 MPAHs 的质量浓度最高, 达 4 246.61 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 其次为 NPAHs(2 036.51 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$), 而 OPAHs 质量浓度相对

表 1 PAHs 与 SPAHs 在水样与泥样中的含量¹⁾

Table 1 Concentrations of PAHs and SPAHs in water and sludge samples

项目	进水	沉砂池	初沉池	SBR	接触池	流砂滤池	初沉污泥	剩余污泥
LMW-PAHs	3 557.61 $\pm$ 433.82	4 793.82 $\pm$ 796.86	2 740.54 $\pm$ 542.99	1 141.95 $\pm$ 123.68	1 131.85 $\pm$ 119.85	999.51 $\pm$ 92.04	1 111.92 $\pm$ 100.67	1 578.78 $\pm$ 125.57
HMW-PAHs	277.53 $\pm$ 19.58	284.51 $\pm$ 26.36	202.36 $\pm$ 6.02	157.51 $\pm$ 5.54	159.72 $\pm$ 5.15	148.67 $\pm$ 4.53	145.60 $\pm$ 22.44	198.36 $\pm$ 37.79
$\sum \text{PAHs}$	3 835.14 $\pm$ 370.13	5 078.33 $\pm$ 654.12	2 942.90 $\pm$ 437.44	1 299.46 $\pm$ 105.46	1 291.58 $\pm$ 102.47	1 148.18 $\pm$ 80.64	1 257.51 $\pm$ 90.21	1 777.14 $\pm$ 117.61
NPAHs	2 036.51 $\pm$ 673.94	1 808.99 $\pm$ 637.12	2 547.23 $\pm$ 999.30	1 089.09 $\pm$ 405.26	998.55 $\pm$ 368.79	1 041.66 $\pm$ 391.62	4 982.31 $\pm$ 1 982.98	4 443.55 $\pm$ 1 342.48
OPAHs	606.34 $\pm$ 107.06	439.75 $\pm$ 90.36	412.53 $\pm$ 80.73	241.90 $\pm$ 47.13	270.79 $\pm$ 54.25	222.18 $\pm$ 37.05	756.69 $\pm$ 125.11	681.07 $\pm$ 112.40
MPAHs	4 246.61 $\pm$ 1 142.50	3 612.81 $\pm$ 783.96	1 885.81 $\pm$ 440.53	474.21 $\pm$ 87.05	488.03 $\pm$ 81.73	460.73 $\pm$ 83.94	1 124.19 $\pm$ 352.70	4 149.60 $\pm$ 936.99
$\sum \text{SPAHs}$	6 889.46 $\pm$ 792.98	5 861.56 $\pm$ 633.44	4 845.57 $\pm$ 646.74	1 805.19 $\pm$ 248.96	1 757.37 $\pm$ 225.95	1 724.57 $\pm$ 240.20	6 863.19 $\pm$ 1 223.02	9 274.22 $\pm$ 984.65

1) 水样中的单位 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 泥样中的单位 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$

较少, 仅为 $606.34 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$. 由图 2 可知, 随着 SBR/MBBR 各级工段的处理, PAHs 及 MPAHs 与 OPAHs 含量逐步降低, 但 NPAHs 的含量在初沉池及流砂滤池中却有所增加, 这可能是由于夏季的强光照导致了 PAHs 向 NPAHs 转化^[17]. 在污泥样品中, PAHs 与

MPAHs 在剩余污泥中的含量均要远高于初沉污泥, 而 NPAHs 与 OPAHs 在剩余污泥中的含量略低于初沉污泥. 可见, PAHs 与 MPAHs 主要依靠生物降解或生物吸附被去除, 而 NPAHs 与 OPAHs 则主要依靠颗粒吸附沉淀与生物降解或吸附共同作用被去除.

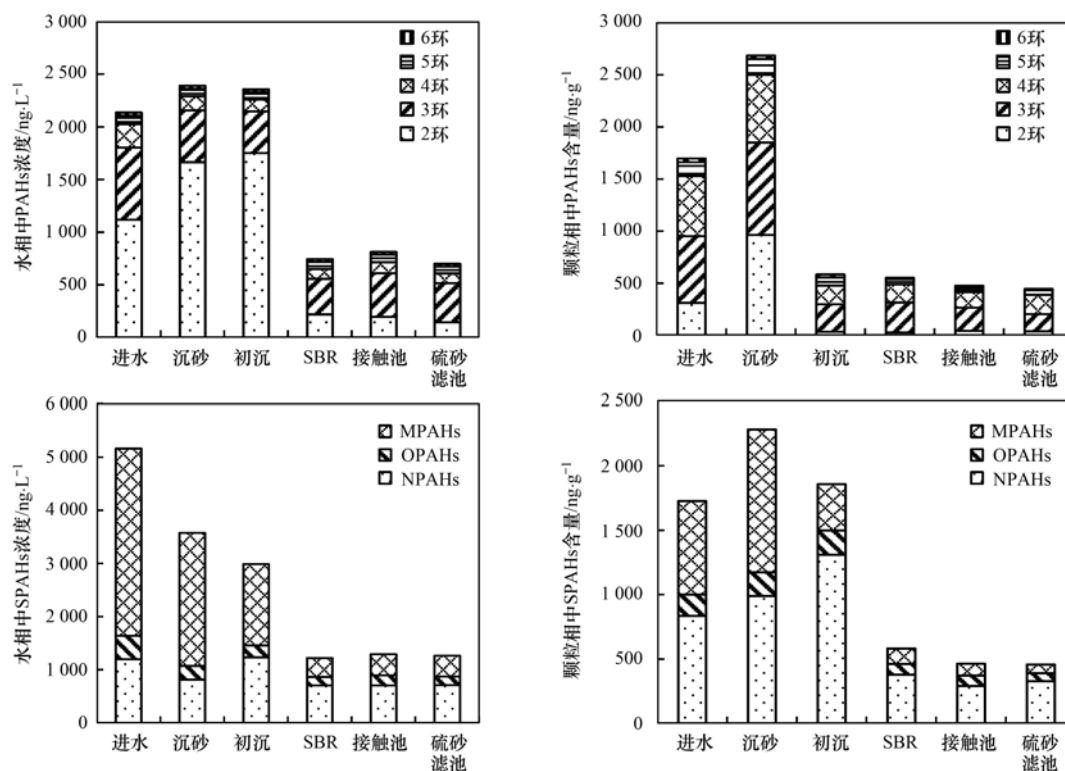


图 2 PAHs 与 SPAHs 在各处理工段水相与颗粒相中的含量

Fig. 2 Concentration of PAHs and SPAHs in aqueous and particle phases at various treatment stages

2.2 SBR/MBBR 工艺对 PAHs 与 SPAHs 的去除

PAHs 及 SPAHs 在各工段的去除率见表 2. 从中可知, 水相与颗粒相最大的不同在于, 水相中 PAHs 含量的大幅降低是在二级处理生物池后, 主要以 LMW-PAHs 的去除为主, 其去除率可达 71.22%; 而颗粒相中 PAHs 的去除则主要发生于一级处理初沉池后, 其中 LMW-PAHs 去除率达 80.85%, HMW-PAHs 的去除率为 42.22%, 略高于接下来的生物处理工段. 可见, 水相中 PAHs 的去除主要依靠生物处理且主要是针对 LMW-PAHs 的生物降解; 而颗粒相中 PAHs 的去除主要依靠初沉池的颗粒吸附与沉淀, 其中 LMW-PAHs 主要以初沉池的吸附沉淀去除为主, HMW-PAHs 则需初沉池与生物池共同处理被去除.

就 SPAHs 而言, 水相中 SPAHs 的含量随一级、二级处理逐步减少; 而颗粒相中 SPAHs 的去除则主要发生在 SBR/MBBR 生物池, 表 1 中剩余污泥 SPAHs 的含量高于初沉污泥也证明了颗粒相中 SPAHs 的去除主要依靠生物吸附. 这可能是由于 SBR 生物池中添加了生物悬浮填料, 大大增加了微

生物的种类与数量, 从而增强了对难降解有机物吸附及进一步降解的性能. 此外, 表 2 显示, 在 3 种衍生物中, MPAHs 最易被去除, 其在生物池以及初沉池都有较高的去除率, 可见颗粒吸附以及生物降解对其均有较好的去除; NPAHs 主要依靠生物降解或生物吸附去除; 而 OPAHs 在水相中主要依靠一级处理中的颗粒吸附去除, 在颗粒相中则主要依靠二级处理的生物吸附去除. 另外, 表 2 中部分去除率为负值可能是由于目标污染物存在累积, 或者在夏季高温与强光照下发生了 PAHs 向 SPAHs 的转化.

进一步计算 MPAHs、OPAHs 以及 NPAHs 与相应 PAHs 的比值, 结果见图 3. 从中可知, 进水中 OPAHs 与其对应的 PAHs 比值小于 1, 可见 OPAHs 的含量低于 PAHs, 而部分 MPAHs 与 NPAHs 含量要高于 PAHs, 如 MPAHs 中的 3, 6-DMP/Nap 以及 NPAHs 中的 2-NF/Flu、7-NBA/BaA 的比值都要大于 1, 尤其是 2-NF/Flu 的比值达到了 8.39. 由于大气中 2-NF 的含量很低^[18, 19], 那么工厂排放的废水可能是造成进水中 NPAHs 各组分含量差异的主要原因. 从进出水中 SPAHs 与 PAHs 的含量比来看,

出水水相中 MPAHs 与 PAHs 的比值均小于或等同于进水相, 而 OPAHs 中的 BA-7, 12-D/BaA 以及 NPAHs 中的 2-NF/Flu 在出水中的值却要远远高于进水, 可见在污水处理过程中存在部分 PAHs 向 OPAHs 与 NPAHs 转化的现象. 已有研究证明 PAHs

在土壤或大气中可以通过白腐真菌、光化学作用以及在漆酶存在下转化为 OPAHs^[20~22], 进而在水相中, PAHs 也可能通过生物处理中微生物的作用转化成 OPAHs, 而强光照下的光化学反应也可促进 PAHs 转化成 NPAHs.

表 2 PAHs 及 SPAHs 在各工段水相与颗粒相中的去除率/%

位置	LMW-PAHs		HMW-PAHs		NPAHs		OPAHs		MPAHs	
	水相	颗粒相	水相	颗粒相	水相	颗粒相	水相	颗粒相	水相	颗粒相
沉砂	-13.03	-63.51	8.42	-9.60	31.89	-18.61	41.79	-10.49	28.89	-52.89
初沉	1.30	80.85	4.22	42.22	-51.13	-32.29	12.55	-2.69	39.01	67.67
SBR	71.22	-2.47	1.51	40.71	42.53	71.12	29.43	55.56	76.82	66.49
接触池	-9.92	15.21	-3.94	2.38	0.62	22.76	-20.86	4.90	-11.88	23.50
流砂滤池	14.81	6.33	6.97	6.85	-0.78	-12.85	15.57	23.67	0.74	26.52

出水中, PAHs 质量浓度为1 148.18 ng·L⁻¹, 去除率为 70.06%; SPAHs 质量浓度为1 724.57 ng·L⁻¹, 去除率达 74.97%. 而据已有报道, 约旦卡拉克省某污水处理厂^[14]以及北京某污水理厂^[9]利用传统活性污泥法对 PAHs 的去除率分别为 44% 以及 68%; 北京某污水处理厂^[9]利用 A²O 及倒置 A²O 工艺对 PAHs 及 SPAHs 分别有 60% 及 66% 的去除率. 与这些采用传统处理工艺的污水处理厂相比, SBR/MBBR 工艺对 PAHs 及其衍生物都有着更好的去除效果.

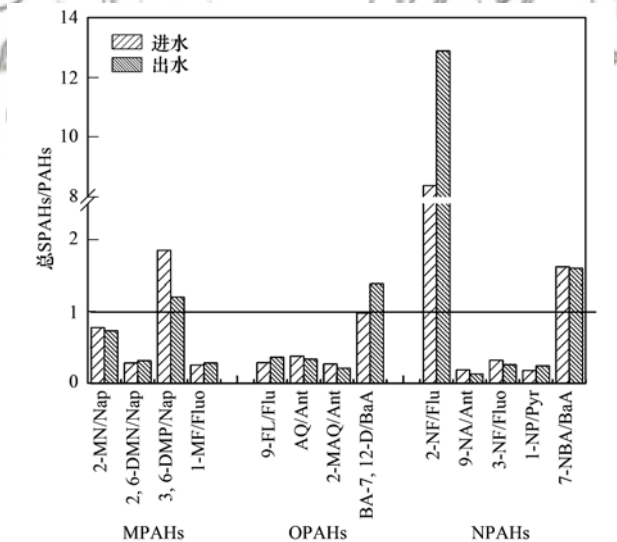


图 3 SPAHs 与 PAHs 的含量比
Fig. 3 Mass concentration ratios of SPAHs and PAHs

2.3 污水处理厂中 PAHs 及 SPAHs 的来源分析及生态风险

近年来, 常采用 PAHs 与其同分异构体的比例来判断其污染源^[23], 如 Ant/(Ant + Phe) 用于识别石油排放(低于 0.1)和燃烧来源(高于 0.1); Fluo/(Fluo + Pyr)用于识别木柴和煤的燃烧(大于 0.5)、石油燃烧(0.4~0.5)与石油排放(小于 0.4); 而 IcdP/(IcdP + BghiP) 在 0.5 以上, 0.2~0.5 以及

0.2 以下分别表示木材/煤燃烧, 石油燃烧和石油污染. 在此污水处理厂进水中, Ant/(Ant + Phe), Fluo/(Fluo + Pyr)以及 IcdP/(IcdP + BghiP)的比值见表 3, 它们分别大于 0.1、0.4~0.5 与 0.5 左右, 由此可知, 此污水处理厂的 PAHs 主要源于石油燃烧.

同时已有研究指出某些 NPAHs 与其对应 PAHs 的比值可指示其来源^[24], 如 1-NP/Pyr 与 7-NBA/BaA; 另外 9-NA/1-NP 的比值也可用于 NPAHs 的来源识别, 若比值大于 10, 则主要为生物质燃烧, 若比值小于 10, 则主要是尾气排放. 该污水处理厂中各判定值情况见表 3, 三相中的 1-NP/Pyr 值均大于 0.001, 7-NBA/BaA 值均大于 0.01, 表示 NPAHs 的主要来源为柴油车燃烧; 9-NA/1-NF 的值均小于 10, 说明 NPAHs 主要来源于尾气排放. Alves 等^[19]指出, NPAHs、OPAHs 与 MPAHs 具有相似的来源, 由此可知 SPAHs 主要源于石油等液体化石燃料的燃烧, 这也与 PAHs 主要来源结果一致. 另外, 已有研究在柴油机烟尘颗粒和汽油发动机烟尘中发现了 OPAHs^[25,26], 这也证实了其 NPAHs 同样主要来源于石油的燃烧.

表 3 污水处理厂中 PAHs 及 SPAHs 的污染源判定值

项目	SPAHS in sewage treatment plants		
	水相	颗粒相	总相
Ant/(Ant + Phe)	0.74	0.79	0.76
Fluo/(Fluo + Pyr)	0.40	0.47	0.45
IcdP/(IcdP + BghiP)	0.55	0.53	0.54
1-NP/Pyr	0.45	0.07	0.18
7-NBA/BaA	5.20	0.41	1.61
9-NA/1-NP	1.19	4.39	2.07

由此可见, 此污水处理厂中的 PAHs 及 SPAHs 主要源于石油等液体化石燃料的燃烧, 这与附近的工业如炼油厂、石油工业、橡胶公司等的发展密不

可分. 虽然经过 SBR/MBBR 工艺, 去除了大部分的 PAHs 及 SPAHs, 但在出水中仍存在不少目标污染物, 如在出水中 PAHs 及 SPAHs 的排放量为 $(143.64 \pm 16.04) \text{ g} \cdot \text{d}^{-1}$, 而初沉污泥中其排放量为 $(545.71 \pm 88.25) \text{ g} \cdot \text{d}^{-1}$, 剩余污泥中其排放量为 $(159.14 \pm 15.87) \text{ g} \cdot \text{d}^{-1}$, 它们在排入水环境后, 可随河流灌溉进入农田, 或积累在水生生物体内通过食物链对人体造成潜在危害; 也可沉降在河底污泥中进而对土壤造成危害. 因此, 仍需对污水处理厂中的 PAHs 及 SPAHs 进一步强化处理, 以提高其去除率, 尽量减少其排入环境中的含量; 而且, 污泥中 PAHs 及 SPAHs 的排出量要远高于出水中其排出量, 因此, 污泥中 PAHs 及 SPAHs 的去向及管理也应着重注意.

3 结论

(1) 该污水处理厂中 16 种 PAHs 及 13 种衍生物均有检出. 进水中, PAHs 与 SPAHs 的总质量浓度分别为 $3\ 835.14 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 与 $6\ 889.46 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 其质量浓度远远高于其他地区的污水处理厂, 可能与该污水处理厂进水主要为工业废水有关.

(2) SBR/MBBR 工艺对 PAHs 及 SPAHs 的去除率分别为 70.06% 与 74.97%, 明显高于其他地区运用传统活性污泥法、 A^2O 及倒置 A^2O 工艺对 PAHs 及 SPAHs 的去除. SBR/MBBR 工艺对 PAHs 及 SPAHs 的去除主要依靠生物降解/吸附以及颗粒吸附, 而且在污水处理厂中存在部分 PAHs 向 OPAHs 及 NPAHs 转化累积的现象.

(3) 此污水处理厂中 PAHs 及 SPAHs 主要源于石油等液体化石燃料的燃烧. 虽然此污水处理厂对 PAHs 及 SPAHs 有着较好的去除, 但其出水中仍存在不少目标污染物会对受纳河流、农田及人体产生潜在危害; 而且污泥中富集的 PAHs 与 SPAHs 比出水中其排放量要高得多. 因此, 污水处理厂应根据不同处理工段 PAHs 与 SPAHs 的分布特征采取相应控制措施, 加强污泥中 PAHs 与 SPAHs 的管理, 进一步改造升级工艺, 以更好地去除 PAHs 与 SPAHs.

参考文献:

- [1] 马路, 刘俊建, 王晓昌, 等. 污水处理厂各工艺阶段多环芳烃变化规律研究[J]. 环境工程学报, 2010, 4(9): 2037-2041.
Ma L, Liu J J, Wang X C, *et al.* A research of PAHs in water at different stages of a wastewater treatment plant[J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2010, 4(9): 2037-2041.
- [2] González D, Ruiz L M, Garralón G, *et al.* Wastewater polycyclic aromatic hydrocarbons removal by membrane bioreactor[J]. Desalination and Water Treatment, 2012, 42(1-3): 94-99.
- [3] Niederer M. Determination of polycyclic aromatic hydrocarbons and substitutes (nitro-, Oxy-PAHs) in urban soil and airborne particulate by GC-MS and NCI-MS/MS[J]. Environmental Science and Pollution Research, 1998, 5(4): 209-216.
- [4] 占洁, 杨颜, 柳杜鹃, 等. 大气中硝基多环芳烃的研究进展[J]. 中国科学: 地球科学, 2012, 42(1): 1-9.
Zhan J, Yang Y, Liu D J, *et al.* The research progress of nitrated polycyclic aromatic hydrocarbons in the atmosphere[J]. Scientia Sinica: Terrae, 2012, 42: 1-9.
- [5] Kojima Y, Inazu K, Hisamatsu Y, *et al.* Influence of secondary formation on atmospheric occurrences of oxygenated polycyclic aromatic hydrocarbons in airborne particles[J]. Atmospheric Environment, 2010, 44(24): 2873-2880.
- [6] 乔梦, 齐维晓, 赵旭, 等. 多环芳烃及其衍生物在北京典型污水处理厂中的存在及去除[J]. 环境科学, 2016, 37(4): 1451-1459.
Qiao M, Qi W X, Zhao X, *et al.* Occurrence and removal of polycyclic aromatic hydrocarbons and their derivatives in typical wastewater treatment plants in Beijing[J]. Environmental Science, 2016, 37(4): 1451-1459.
- [7] Bergqvist P A, Augulyte L, Jurioniene V. PAH and PCB removal efficiencies in Umeå (Sweden) and Šiauliai (Lithuania) municipal wastewater treatment plants[J]. Water, Air, and Soil Pollution, 2006, 175(1-4): 291-303.
- [8] Fatone F, Di Fabio S, Bolzonella D, *et al.* Fate of aromatic hydrocarbons in Italian municipal wastewater systems: an overview of wastewater treatment using conventional activated-sludge processes (CASP) and membrane bioreactors (MBRs)[J]. Water Research, 2011, 45(1): 93-104.
- [9] Qiao M, Qi W X, Liu H J, *et al.* Occurrence, behavior and removal of typical substituted and parent polycyclic aromatic hydrocarbons in a biological wastewater treatment plant[J]. Water Research, 2014, 52: 11-19.
- [10] 吴国栋. 论述 SBR 工艺在污水处理厂中的应用[J]. 广东科技, 2011, 20(14): 236-237.
- [11] Wang X W, Xi B D, Huo S L, *et al.* Characterization, treatment and releases of PBDEs and PAHs in a typical municipal sewage treatment plant situated beside an urban river, East China[J]. Journal of Environmental Sciences, 2013, 25(7): 1281-1290.
- [12] Tian W J, Bai J, Liu K K, *et al.* Occurrence and removal of polycyclic aromatic hydrocarbons in the wastewater treatment process[J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2012, 82: 1-7.
- [13] Ozaki N, Takamura Y, Kojima K, *et al.* Loading and removal of PAHs in a wastewater treatment plant in a separated sewer system[J]. Water Research, 2015, 80: 337-345.
- [14] Jiries A, Hussain H, Lintelmann J. Determination of polycyclic aromatic hydrocarbons in wastewater, sediments, sludge and plants in Karak province, Jordan[J]. Water, Air, and Soil Pollution, 2000, 121(1-4): 217-228.
- [15] Yao M, Zhang X W, Lei L C. Polycyclic aromatic hydrocarbons in the centralized wastewater treatment plant of a chemical industry zone; removal, mass balance and source analysis[J]. Science China Chemistry, 2012, 55(3): 416-425.
- [16] 曹巍, 乔梦, 张一心, 等. 典型污水处理厂对多环芳烃及其衍生物的去向及再生水健康风险研究[J]. 生态毒理学报, 2016, 11(3): 173-179.
Cao W, Qiao M, Zhang Y X, *et al.* Removal of parent and substituted polycyclic aromatic hydrocarbons in typical wastewater treatment plants and health risk assessment of reclaimed water[J]. Asian Journal of Ecotoxicology, 2016, 11(3): 173-

- 179.
- [17] Bandowe B A M, Meusel H, Huang R J, *et al.* PM_{2.5}-bound oxygenated PAHs, nitro-PAHs and parent-PAHs from the atmosphere of a Chinese megacity: seasonal variation, sources and cancer risk assessment [J]. *Science of the Total Environment*, 2014, **473-474**: 77-87.
- [18] Albinet A, Leoz-Garziandia E, Budzinski H, *et al.* Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs), nitrated PAHs and oxygenated PAHs in ambient air of the Marseilles area (south of France): concentrations and sources [J]. *Science of the Total Environment*, 2007, **384**(1-3): 280-292.
- [19] Alves C A, Vicente A M, Custódio D, *et al.* Polycyclic aromatic hydrocarbons and their derivatives (nitro-PAHs, oxygenated PAHs, and azaarenes) in PM_{2.5} from southern European cities [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, **595**: 494-504.
- [20] Lundstedt S, White P A, Lemieux C L, *et al.* Sources, fate, and toxic hazards of oxygenated polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) at PAH-contaminated sites [J]. *Ambio: A Journal of the Human Environment*, 2007, **36**(6): 475-485.
- [21] Bamford H A, Baker J E. Nitro-polycyclic aromatic hydrocarbon concentrations and sources in urban and suburban atmospheres of the Mid-Atlantic region [J]. *Atmospheric Environment*, 2003, **37**(15): 2077-2091.
- [22] Cañas A I, Alcalde M, Plou F, *et al.* Transformation of polycyclic aromatic hydrocarbons by laccase is strongly enhanced by phenolic compounds present in soil [J]. *Environmental Science & Technology*, 2007, **41**(8): 2964-2971.
- [23] Yunker M B, Macdonald R W, Vingarzan R, *et al.* PAHs in the Fraser River basin: a critical appraisal of PAH ratios as indicators of PAH source and composition [J]. *Organic Geochemistry*, 2002, **33**(4): 489-515.
- [24] Chuesaard T, Chetiyakornkul T, Kameda T, *et al.* Influence of biomass burning on the levels of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons and their nitro derivatives in Chiang Mai, Thailand [J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2014, **14**(4): 1247-1257.
- [25] Rogge W F, Hildemann L M, Mazurek M A, *et al.* Sources of fine organic aerosol. 2. Noncatalyst and catalyst-equipped automobiles and heavy-duty diesel trucks [J]. *Environmental Science & Technology*, 1993, **27**(4): 636-651.
- [26] Rogge W F, Hildemann L M, Mazurek M A, *et al.* Sources of fine organic aerosol. 8. Boilers burning no. 2 distillate fuel oil [J]. *Environmental Science & Technology*, 1997, **31**(10): 2731-2737.



CONTENTS

Influence of Mountain Valley Breeze and Sea Land Breeze in Winter on Distribution of Air Pollutants in Beijing-Tianjin-Hebei Region	LI Qing-chun, LI Ju, ZHENG Zuo-fang, <i>et al.</i> (513)
A Method of Aerosol Particle Number Size Distribution Inversed by PM _{2.5} Mass Concentration in PRD	LI Fei, TAN Hao-bo, DENG Xue-jiao, <i>et al.</i> (525)
Light Absorption and Fluorescence Characteristics of Atmospheric Water-soluble Organic Compounds and Humic-like Substances During the Winter Season in Guangzhou	FAN Xing-jun, YU Xu-fang, CAO Tao, <i>et al.</i> (532)
Source Apportionment and Heath Risk Quantification of Heavy Metals in PM _{2.5} in Yangzhou, China	DONG Shi-hao, XIE Yang, HUANGFU Yan-qi, <i>et al.</i> (540)
Pollution Characteristics and Source Analysis of <i>n</i> -alkanes and Saccharides in PM _{2.5} During the Winter in Liaocheng City	LIU Xiao-di, MENG Jing-jing, HOU Zhan-fang, <i>et al.</i> (548)
Pollution Characteristics, Dry Deposition Fluxes, and Sources for Atmospheric Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Bosten Lake Watershed	SONG Shi-jie, HUANG Tao, ZHAO Liu-yuan, <i>et al.</i> (558)
Distribution Characteristics of Antibiotic Resistance Genes in PM _{2.5} of a Concentrated Broiler Feeding Operation	LIU Fei, XU Xia, TU Bo-wen, <i>et al.</i> (567)
Effects of Water Vapor Source and Local Evaporation on the Stable Hydrogen and Oxygen Isotopic Compositions of Precipitation	HU Yong-bo, XIAO Wei, QIAN Yu-fei, <i>et al.</i> (573)
Characteristics of Nitrogen and Phosphorus Formation in Atmospheric Deposition in Dianchi Lake and Their Contributions to Lake Loading ...	REN Jia-guo, JIA Hai-bin, JIAO Li-xin, <i>et al.</i> (582)
Temporal-spatial Distribution of Nitrogen and Phosphorus Nutrients in Lake Taihu Based on Geostatistical Analysis	LÜ Wei-wei, YAO Xin, ZHANG Bao-hua, <i>et al.</i> (590)
Effects of Cyanobacterial Blooms in Eutrophic Lakes on Water Quality of Connected Rivers	YU Mao-lei, HONG Guo-xi, XU Hai, <i>et al.</i> (603)
Contamination and Potential Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in the Sediments of Yilong Lake, Southwest China	LI Xiao-lin, LIU En-feng, YU Zhen-zhen, <i>et al.</i> (614)
Temporal and Spatial Characteristics of Heavy Metals in Suspended Particulate Matter in Pearl River Estuary and Its Influencing Factors	DU Jia, WANG Yong-hong, HUANG Qing-hui, <i>et al.</i> (625)
Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of Microorganism Pollutions in the Beiyun River	CHEN Lei, LI Lei-fang, ZHI Xiao-sha, <i>et al.</i> (633)
Speciation and Transformation of Phosphorus in Sediments During the Redox Cycle	HAO Wen-chao, WANG Cong-feng, YANG Zheng-jian, <i>et al.</i> (640)
Effect of Magnetic Zirconium/Iron-Modified Bentonite Addition on Phosphorus Mobilization and Species Transformation in River Sediments	WANG Yan, LIN Jian-wei, ZHAN Yan-hui, <i>et al.</i> (649)
Influence of Calcium Ion Pre-treatment on Phosphate Adsorption onto Magnetic Zirconium/Iron-modified Bentonite	ZHAO Yu-ying, LIN Jian-wei, ZHANG Hong-hua, <i>et al.</i> (658)
Effect of Nitrogen on Magnesium Modified Biochar Adsorption to Phosphorus	ZHI Meng-meng, WANG Peng-fei, HOU Ze-ying, <i>et al.</i> (669)
Removal Performance and Mechanism for Treating Phosphorus in Agricultural Wastewater by Three Adsorbents	WU Lu, LIU Feng, LONG Rui, <i>et al.</i> (677)
Photolysis Mechanism of <i>p</i> -Nitrophenol by Nitrocellulose Membrane in Aqueous Solution	DAI Zhi-feng, ZHAO Tong-qian, YIN Yong-guang, <i>et al.</i> (685)
Preparation of ZnTiO ₃ /TiO ₂ Photocatalyst and Its Mechanism on Photocatalytic Degradation of Organic Pollutants	ZHANG Wen-hai, JI Qing-hua, LAN Hua-chun, <i>et al.</i> (693)
Adsorption and Photocatalytic Removal of Chromium on High-index TiO ₂ Facet	ZHONG De-jian, ZHANG Jian-feng, LI Yao, <i>et al.</i> (701)
Reduction Cooperated Fenton Oxidation of Zero-valent Iron (ZVI) Immobilized in Alginate Microsphere for Degradation of Acid Red B	ZHANG Huan, LI Shuang-shuang, WEI Jun-fu, <i>et al.</i> (708)
Mechanism of Removing Iron and Manganese from Drinking Water Using Manganese Ore Sand and Quartz Sand as Filtering Material	CAI Yan-an, BI Xue-jun, ZHANG Jia-ning, <i>et al.</i> (717)
Preparation of Sulfonated Graphene Oxide Modified Composite Nanofiltration Membrane and Application in Salts Separation	ZHANG Yan-jun, ZHANG Shao-feng, ZHAO Chang-wei, <i>et al.</i> (724)
Purification Efficiency and Mechanism of Integrated Al Salt Flocculation-ultrafiltration Membrane Process	XUE Wen-jing, LI Wen-jiang, LIU Juan, <i>et al.</i> (730)
Threshold Flux and Membrane Fouling Analysis of the Hybrid Pre-ozonation and CNTs Membrane Modification Process	WANG Kai-lun, LIU Fang, GUAN Yu-qi, <i>et al.</i> (738)
Distribution and Removal of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Their Derivatives in SBR/MBBR Process	LIU Shu-hui, TIAN Wei-jun, ZHOU Jian-ren, <i>et al.</i> (747)
Biological Nitrogen Removal Process in a Microbubble-aerated Biofilm Reactor Treating Low C/N Wastewater	LIU Chun, WANG Cong-cong, CHEN Xiao-xuan, <i>et al.</i> (754)
Treatment of Simulated Saline Wastewater from the Coal Chemical Industry Using Ecological Floating Beds Enhanced with Arbuscular Mycorrhiza	DOU Wen-qing, HE Hao, SONG Wen-ping, <i>et al.</i> (761)
Nitrification and Bioaugmentation of Biological Treatment System of Sewage Treatment Plant at High Temperature in Summer	SONG Tian-wei, SHENG Xiao-lin, WANG Jia-de, <i>et al.</i> (768)
Characteristics of Ammonia Adsorption and Kinetics by Nitrifying Sludge Immobilized Pellets	YU De-shuang, LÜ Ting-ting, CHEN Guang-hui, <i>et al.</i> (774)
Nitrite Accumulation Characteristics of Partial Denitrification in Different Sludge Sources Using Sodium Acetate as Carbon Source	BI Chun-xue, YU De-shuang, DU Shi-ming, <i>et al.</i> (783)
Operating Characteristics of a DPR-SNED System Treating Low C/N Municipal Wastewater and Nitrate-containing Sewage	DU Shi-ming, YU De-shuang, BI Chun-xue, <i>et al.</i> (791)
Simultaneous Nitrification and Denitrifying Phosphorus Removal in Continuous Flow Reactor with Intermittent Aeration	ZHAO Zhi-chao, HUANG Jian-ming, LI Jian, <i>et al.</i> (799)
Start-up and Stable Operation of ABR-MBR Denitrifying Phosphorus Removal Process	WEI Jia-min, JIANG Zhi-yun, CHENG Cheng, <i>et al.</i> (808)
Effect of Influent C/N Ratio on the Nutrient Removal Characteristics of SNEDPR Systems	DU Ye-qi, YU De-shuang, ZHEN Jian-yuan, <i>et al.</i> (816)
Carbon and Nitrogen Removal Characteristics of ABR Decarbonization-CANON Coupling Process	LI Tian, YIN Wen, WANG Xin-zhu, <i>et al.</i> (823)
Effect of Aeration Density on Start-up of CANON Process	LI Dong, GAO Xue-jian, ZHANG Jie, <i>et al.</i> (829)
Adjusting Temperature and Settling Time to Achieve ANAMMOX Particles Rapid Start-up and Stable Operation	LI Hai-ling, LI Dong, ZHANG Jie, <i>et al.</i> (837)
Effect of C/N and Sludge Concentration on the pH-Regulated Nitrosation System	ZHANG Min, WEI Jia-min, HUANG Hui-min, <i>et al.</i> (845)
Growth Features of Water Supply Pipeline Biofilms Based on Active Microorganisms	WANG Yang, ZHU Bin, TONG Jun, <i>et al.</i> (853)
Elevational Distribution Characteristics of Soil Bacterial Community and Enzyme Activities in Mount Huangshan	YAO Lan, HU Li-huang, ZHANG Huan-chao, <i>et al.</i> (859)
Microbial Community Structure Shift during Bioremediation of Petroleum Contaminated Soil Using High Throughput Sequencing	QI Yan-yun, WU Man-li, ZHU Chang-cheng, <i>et al.</i> (869)
Effect of Nitrification on N ₂ O Emissions and Their Environmental Factors in Saline-alkali Wetlands	YANG Qu, GAO Wei-feng, LIU Feng-qin, <i>et al.</i> (876)
Effect of Long-term Dairy Manure Amendment on N ₂ O and NO Emissions from Summer Maize-Winter Wheat Cropping Systems	NIE Huang-hua, ZHANG Jia-sheng, HE Zhou-ming, <i>et al.</i> (885)
Effects of Plastic Film Mulching and Nitrogen Fertilizer Application on N ₂ O Emissions from a Vegetable Field	NI Xue, HAO Qing-ju, CHEN Shi-jie, <i>et al.</i> (893)
Differences and Relationship Between Rhizosphere Characteristics and Methane Emissions of Double-cropping Rice Variety	XIAO Zhi-xiang, FU Zhi-qiang, XU Hua-qin, <i>et al.</i> (904)
Effect of Long-Term Biochar Application on Soil Respiration in Flue-Cured Tobacco Planting Fields in Henan Province	LI Ya-sen, DING Song-shuang, YIN Quan-yu, <i>et al.</i> (915)
Spatial Variability in Soil Respiration Under Different Land Use Patterns in Maocun Village, Guilin	DING Meng-kai, HU Xiao-nong, CAO Jian-hua, <i>et al.</i> (924)
Spatiotemporal Variability and Source Apportionment of Soil Heavy Metals in a Industrially Developed City	LI Feng, LIU Si-yuan, LI Yan, <i>et al.</i> (934)
Effects of Bentonite on Chemical Forms and Bioavailability of Heavy Metals in Different Types of Farmland Soils	LIN Hai, JIN Xiao-na, DONG Ying-bo, <i>et al.</i> (945)
Characteristics of Soil Organic Carbon and Mineralization with Different Stands in Jinyun Mountain	CHEN Shi-qi, LÜ Sheng, GAO Ming, <i>et al.</i> (953)
Contribution of Root Biomass to Soil Organic Carbon Under Complex Landforms Conditions	ZHANG Yan-jun, GUO Sheng-li, <i>et al.</i> (961)
Transformation and Distribution of Soil Organic Carbon and the Microbial Characteristics in Response to Different Exogenous Carbon Input Levels in Paddy Soil	WANG Ji-fei, TONG Yao-yao, ZHU Zhen-ke, <i>et al.</i> (970)
Analysis of Heavy Metal Pollution and Ecological Risk Assessment on Vegetation Leaves in Baoji City	ZHANG Jun-hui, LIN Qing, JIANG Shan, <i>et al.</i> (978)
Effect of Biochar on Available Heavy Metals During Sewage Sludge Composting and Land Application of Compost	ZHOU Ji, YU Ya-wei, JIANG Yue, <i>et al.</i> (987)
Influence of Sludge Retention Time on the Performance and Stability of Mesophilic Anaerobic Co-digestion of Food Waste with Waste Activated Sludge	YUAN Hong-lin, MA Jing, XING Bao-shan, <i>et al.</i> (994)
Performance of Treating Straw and Animal Manure Mixture by an Integrated Process of Thermo-alkali-bi-enzyme Hydrolysis-anaerobic Digestion and Conditions of High Methane Yield	BIAN Ai-qin, YUAN Ye, ZHANG Lu-lu, <i>et al.</i> (1003)