

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.11

第40卷 第11期

目次

2018年中国长江三角洲地区气溶胶的垂直分布特征	沈吉, 曹念文(4743)
2018年石家庄市秋冬季典型霾污染特征	宿文康, 鲍晓磊, 倪爽英, 赵卫凤(4755)
武汉市PM _{2.5} 化学组分时空分布及聚类分析	张会涛, 田瑛泽, 刘保双, 杨佳美, 郁佳, 官攀, 吴建会, 张裕芬(4764)
郑州市某生活区大气PM _{2.5} 中重金属污染特征及生态、健康风险评估	何瑞东, 张轶舜, 陈永阳, 靳孟洁, 韩士杰, 赵金帅, 张瑞芹, 燕启社(4774)
厦门市降水中金属元素含量分布特征及来源解析	王珊珊, 程奕枫, 颜金培, 胡恭任(4783)
2015~2017年上海郊区大气新粒子生成特征	霍俊涛, 王新宁, 段玉森, 伏晴艳, 陈冰怡(4791)
太原市秋冬季大气污染特征和输送路径及潜在源区分析	闫世明, 王雁, 郭伟, 李莹, 张逢生(4801)
东北区域空气质量时空分布特征及重度污染成因分析	陈卫卫, 刘阳, 吴雪伟, 鲍秋阳, 高枳亭, 张学磊, 赵红梅, 张世春, 修艾军, 程天海(4810)
艾比湖流域气溶胶光学厚度时空演变及影响因素	陈香月, 丁建丽, 王敬哲, 葛翔宇, 梁静(4824)
中国住宅室内BTEX浓度水平及其影响因素	侯贝贝, 尹奕卉, 裴晶晶, 刘俊杰(4833)
石家庄地区芳香族化合物的污染特征及来源分析	杨阳, 李杏茹, 刘永桥, 杨玉磊, 赵清, 陈曦, 徐静(4841)
郑州市碳素行业无组织VOCs排放特征分析及健康风险评估	张轶舜, 王佳, 韩士杰, 何瑞东, 陈永阳, 靳孟洁, 赵庆炎, 张瑞芹, 燕启社(4847)
典型化工行业有害VOCs排放清单及长三角地区应用	鲁君, 黄奕玮, 黄成(4856)
2013~2017年江苏省人为源氨排放清单的建立及特征	侯新红, 于兴娜, 沈丽, 赵睿东, 王国祯, 张毓秀(4862)
焦化厂建构筑物和生产设施表面PAHs的赋存特征及健康风险	赵一澍, 廖晓勇, 李尤, 罗俊鹏, 龚雪刚, 侯艺璇(4870)
中国南海流沙湾中雄激素、糖皮质激素和孕激素的污染特征及其生态风险评价	杨雷, 张晋娜, 徐敏, 彭涛, 史文俊, 石义静, 应光国(4879)
岩溶流域洪水过程水化学动态变化及影响因素	原雅琼, 孙平安, 苏钊, 于爽, 钟丽华, 何师意, 徐茜(4889)
长江水体常量和微量元素的来源、分布与向海输送	吴文涛, 冉祥滨, 李景喜, 王昊, 李梦露, 刘军, 臧家业(4900)
望虞河西岸河网重金属污染特征及生态风险评价	徐晨, 王沛芳, 陈娟, 袁秋生, 胡斌(4914)
不同雨强对太湖河网河道入湖营养盐负荷影响	陈洁, 朱广伟, 许海, 詹旭, 朱梦圆, 宣文怡, 黄亚文(4924)
合肥市十八联圩湿地表层沉积物营养盐与重金属分布及污染评价	陈娜, 许凡, 谢三桃, 郭天星, 彭久赞, 雷琦, 张玮, 王丽卿(4932)
三峡库区不同河段支流丰水期叶绿素a和营养盐的空间分布特征	杨凡, 杨正健, 纪道斌, 苏青青, 龙良红, 刘心愿, 王耀耀, 赵冲(4944)
丹江口水库氮磷内源释放对比	王志齐, 刘新星, 姚志宏, 姚伦广, 常跃, 刘卓初, 曹连海(4953)
不同沉水植物净水能力与植株体细菌群落组成相关性	李琳, 岳春雷, 张华, 李贺鹏, 杨乐, 王琚(4962)
纳米氧化锌粒径对人工湿地性能及微生物群落的影响	王森, 任伶, 刘琳琳, 李颖, 张振, 孔范龙(4971)
水生植物生物炭去除水体中氮磷性能	刘舒蕾, 彭慧君, 杨佳怡, 肖琳(4980)
MgO改性莲蓬壳生物炭的制备及其磷吸附特性	王盛华, 朱丹晨, 邵敬爱, 向家涛, 杨海平, 易娟, 张世红, 陈汉平(4987)
微塑料对短流程膜工艺中膜污染的影响	王博东, 薛文静, 吕永涛, 苗瑞, 马百文(4996)
基于铁锰泥的除硝颗粒吸附剂制备及其比较	曾辉平, 于亚萍, 吕赛赛, 李冬, 张杰(5002)
氯氧铁非均相催化过氧化氢降解罗丹明B	张少朋, 陈瑞, 白淑琴, 刘锐平(5009)
天津市规模化奶牛养殖场废水中典型抗生素处理效果及生态风险评估	陈乾, 赵润, 牟美睿, 白鸽, 史宏伟, 刘海学, 吴惠惠(5015)
废水处理系统中抗生素抗性基因分布特征	姚鹏城, 陈嘉瑜, 张永明, 温东辉, 陈吕军(5024)
全程自养脱氮耦合反硝化除磷的启动及稳定运行	印雯, 陈亚, 张钰, 徐乐中, 吴鹏, 刘文如(5032)
FeCl ₃ -生化耦合技术调控未知诱因的污泥膨胀	魏东洋, 肖才林, 周雯, 李睿华, 曹茜(5040)
污泥龄对除磷亚硝化颗粒系统的影响	李冬, 刘博, 王文琪, 曹美忠, 李帅, 张杰(5048)
厌氧氨氧化耦合反硝化工艺的启动及微生物群落变化特征	宋壮壮, 吕爽, 刘哲, 时兴东, 潘傲, 张智(5057)
基质暴露水平对ANAMMOX微生物活性及生物量的影响	陈方敏, 高佳琦, 黄勇, 胡羽婷, 李祥, 顾澄伟, 谈新伟, 殷记强, 方文烨, 倪敏(5066)
太浦河流域农田土壤重金属污染特征与来源解析	李伟迪, 崔云霞, 曾撑撑, 朱永青, 彭月, 王凯, 李士俊(5073)
土壤重金属污染风险筛选值划分方法:以Cd为例	王锐, 张风雷, 徐姝姝, 张永文(5082)
半壁山金矿矿业活动区砷赋存的矿物特征及其对农田土壤砷累积的影响	温其谦, 阎秀兰, 申俊峰, 李鸣凤(5090)
土壤调理剂对镉污染稻田修复效果	周利军, 武琳, 林小兵, 王惠明, 刘晖, 张鸿燕, 胡敏, 石利萍, 张云, 黄欠如(5098)
改性蒙脱土对稻田土壤甲基汞的阻控修复	韩怡新, 何天容, 王祖波(5107)
铈锰改性生物炭对土壤As的固定效应	梁婷, 李莲芳, 朱昌雄, 叶婧(5114)
温和预氧化提高后续生物修复石油污染土壤	徐金兰, 王慧芳, 王荣, 章秋菊, 王杰(5124)
重金属污染农田生菜根际重金属固定细菌群落组成及其阻控效应	王铁军, 苏楠楠, 雷鹏, 邱明洋, 陈兆进, 姚伦广, 韩辉(5133)
双氰胺和3,4-二甲吡唑磷酸盐对蔬菜种植土壤氨氧化细菌和古菌的影响	郭俊丽, 刘毅, 魏文学, 葛体达, 王光军(5142)
不同再生水灌溉方式对土壤-辣椒系统中细菌群落多样性及病原菌丰度的影响	崔丙健, 高峰, 胡超, 李中阳, 樊向阳, 崔二革(5151)
黄土高原地区两种土地利用方式CO ₂ 和N ₂ O排放特征	韩佳乐, 郝珊, 刘振杰, 张曼, 张阿凤(5164)
生物炭对华北平原4种典型土壤N ₂ O排放的影响	张秀玲, 孙贇, 张水清, 岳克, 曹红亮, 林杉(5173)
优化施肥模式对我国热带地区水稻-豇豆轮作系统N ₂ O和CH ₄ 排放的影响	胡玉麟, 汤水荣, 陶凯, 何秋香, 田伟, 秦兴华, 伍延正, 孟磊(5182)
《环境科学》征订启事(4995)	《环境科学》征稿简则(5039)
信息(4782, 4979, 5056)	

纳米氧化锌粒径对人工湿地性能及微生物群落的影响

王森¹, 任伶¹, 刘琳琳², 李颖¹, 张振¹, 孔范龙^{1*}

(1. 青岛大学环境科学与工程学院, 青岛 266071; 2. 青岛大学附属医院, 青岛 266000)

摘要: 纳米颗粒 (nanoparticles, NPs) 具有较小的粒径 (1 ~ 100 nm), 其生物毒性与粒径的大小紧密相关. 在进水 COD 约 200.0 mg·L⁻¹, NH₄⁺-N 约 12.5 mg·L⁻¹ 和溶解性总磷约 4.0 mg·L⁻¹ 的条件下连续运行 28 d, 研究了 3 种不同粒径的纳米氧化锌 (ZnO NPs) 对水平潜流人工湿地微生物群落结构和多样性的影响, 同时结合湿地脱氮性能的变化, 探讨了湿地中微生物群落结构和多样性与其处理性能的相互关系. 结果表明, 3 种粒径 (15、50 和 90 nm) 的 ZnO NPs (10 mg·L⁻¹) 对 COD 的去除无明显差异, 而对脱氮则表现出明显的粒径效应. 高通量测序发现, 人工湿地系统中硝化菌属的丰度明显低于反硝化菌属, 硝化过程是制约湿地脱氮性能的关键因素. 暴露于不同粒径的 ZnO NPs 后, 微生物群落结构发生不同程度的变化, 与较大粒径 (50 nm 和 90 nm) 的 ZnO NPs 相比, 15 nm 的 ZnO NPs 对硝化菌属的抑制更为显著.

关键词: 纳米氧化锌; 粒径效应; 人工湿地; 脱氮性能; 微生物群落

中图分类号: X503.2 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2019)11-4971-09 DOI: 10.13227/j.hj.kx.201904054

Size-dependent Effects of Zinc Oxide Nanoparticles on Performance and Microbial Community Structure of a Constructed Wetland

WANG Sen¹, REN Ling¹, LIU Lin-lin², LI Ying¹, ZHANG Zhen¹, KONG Fan-long^{1*}

(1. School of Environmental Science and Engineering, Qingdao University, Qingdao 266071, China; 2. Affiliated Hospital of Qingdao University, Qingdao 266000, China)

Abstract: Nanoparticles (NPs) have increasingly been applied in consumer and industrial products because of their magnetic, optical, electronic, sensitive, antibacterial, disinfection, and UV shielding properties. The wide production and application of NPs has inevitably resulted in their release into the ecosystem through various channels and accumulation in organisms. NPs have a small particle size (1-100 nm), which is closely correlated with biotoxicity. To investigate the size-dependent effects of zinc oxide nanoparticles (ZnO NPs) on microbial community structure and diversity, as well as the nitrogen removal performance of a biological treatment system, laboratory scale horizontal subsurface flow constructed wetlands were operated for 28 days under the conditions of COD 200.0 mg·L⁻¹, NH₄⁺-N 12.5 mg·L⁻¹, and total dissolved phosphorus 4.0 mg·L⁻¹. The relationship between microbial community structure and its performance were discussed. The results indicated that three sized ZnO NPs (15, 50, and 90 nm) had no significant effect on COD removal at the concentration of 10 mg·L⁻¹ but showed obvious particle size effects on nitrogen removal. High throughput sequencing indicated that the abundance of nitrifying bacteria in constructed wetland system was significantly lower than that of denitrifying bacteria, suggesting that the nitrification process was the key factor restricting the denitrification performance of wetlands. After exposure to ZnO NPs, the structure of microbial communities in constructed wetlands changed, and 15 nm ZnO NPs had a stronger inhibitory effect on nitrifying bacteria than those of 50 nm and 90 nm ZnO NPs.

Key words: zinc oxide nanoparticles; size-dependent effect; constructed wetland; nitrogen removal; microbial community

ZnO NPs 的粒径介于 1 ~ 100 nm 之间, 具有优异的光、电、磁、敏感等特性, 在化妆品、医药和光触媒颜料等的生产中得到广泛的应用^[1,2]. 在 NPs 的生产、使用以及含 NPs 产品的处置、遗弃等过程中, 都可能导致 NPs 进入生态系统^[3,4]. 近年来, 在多处污水和污水厂污泥中检测到 ZnO NPs 的存在^[5,6]. 大量研究表明, ZnO NPs 会对污水生物处理系统的性能及微生物种群结构和多样性产生不利影响^[7~12].

对 NPs 生物毒性的影响因素包括粒径、表面积、表面修饰情况、暴露途径、实验对象、方法和浓度以及接触方式等^[13]. 其中, 粒径在影响 NPs 渗入细胞和组织过程中起着关键作用^[14]. NPs 粒径愈小, 比表面积愈大, 表面活性愈强, 生物毒性也愈

大^[15~17]. 有研究发现, Ag NPs 对硝化细菌的毒性具有明显的粒径效应, Ag NPs 比块状 Ag 的毒性高, 且 Ag NPs 粒径越小产生的毒性越强^[18]. 关于 NPs 对湿地生态系统的影响, 国内外的学者也进行了初步的探索. 然而, 目前关于 ZnO NPs 对人工湿地脱氮性能及微生物群落结构的粒径效应缺乏系统地深入研究.

本研究在实验室构建水平潜流人工湿地 (horizontal subsurface flow constructed wetland, HSFCW), 研究不同粒径 ZnO NPs (15、50 和 90

收稿日期: 2019-04-06; 修订日期: 2019-06-20

基金项目: 山东省高等学校科技计划项目 (J18KA108)

作者简介: 王森 (1981 ~), 男, 博士研究生, 讲师, 主要研究方向为人工湿地生态工程, E-mail: wangsen@qdu.edu.cn

* 通信作者, E-mail: kongfanlong@qdu.edu.cn

nm)对人工湿地 (constructed wetland, CW) 中微生物群落结构和多样性的影响, 同时结合 CW 脱氮性能的变化, 探讨 CW 中微生物群落结构与其处理性能的相互关系.

1 材料与方法

1.1 实验材料

15 nm 的 ZnO NPs, 白色粉末, 纯度 99.9%, 比表面积 $110\text{ m}^2\cdot\text{g}^{-1}$, 购自南京埃普瑞纳米材料有限公司; 50 nm 和 90 nm 的 ZnO NPs, 淡黄色到白色粉末, 纯度都为 99.8%, 比表面积分别为 $15\sim30\text{ m}^2\cdot\text{g}^{-1}$ 和 $10\sim20\text{ m}^2\cdot\text{g}^{-1}$, 购自于杭州万景新材料有限公司.

ZnO NPs 悬浊液: 称取 0.5 g NPs 加入 1 L 超纯水中, 磁力搅拌器搅拌 30 min 后, 转移至棕色试剂瓶, 在 25°C 、500 W 和 40 kHz 下超声 1 h^[19]. 在每次使用前, 先将 NPs 悬浊液超声 1 h.

香蒲植株高度 30 cm 左右, 生长状况基本一致. 为了保证实验结果的稳定、可靠性, 所有购买的香蒲先放入装有 1/4 浓度的霍格兰氏植物培养液的塑料箱中, 25°C 下驯化培养 10 d 左右.

1.2 接种污泥与实验用水

取青岛市李村河污水处理厂二沉池回流污泥作为接种污泥, 污泥呈黄褐色, 絮体状态良好.

实验用水为人工模拟废水, 分别以乙酸钠、氯化铵及磷酸二氢钾和磷酸氢二钾提供碳源、氮源和磷源. 配水中添加微量元素 $1\text{ mL}\cdot\text{L}^{-1}$, 具体成分见表 1. 用 $1\text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ 的盐酸或氢氧化钠调 pH 至 7.4 左右. 进水中包括 $\text{COD}(200.0\pm10.2)\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $\text{NH}_4^+-\text{N}(12.5\pm0.6)\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $\text{NO}_3^--\text{N}(0.05\pm0.01)\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $\text{TN}(13.0\pm2.5)\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和溶解性总磷 $(4.0\pm0.5)\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$. 采用连续进水方式, 水力停留时间约 3 d.

表 1 微量元素组成

Table 1 Microelement composition	
组分	浓度
KI/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	0.83
硼酸/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	6.20
MnSO ₄ / $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	22.30
ZnSO ₄ / $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	8.60
CuSO ₄ / $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	0.025
CoCl ₂ / $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	0.025
FeSO ₄ ·7H ₂ O/ $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$	5.56
EDTA/ $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$	7.46

1.3 实验装置

反应器为 PP 材质, 高 37.0 cm, 长 26.5 cm, 宽 26.5 cm, 有效容积 20 L (见图 1 和图 2). 自下往

上, 2.0 cm 细沙, 17.0 cm 砾石, 细丝网 (80 目), 8.0 cm 细沙.

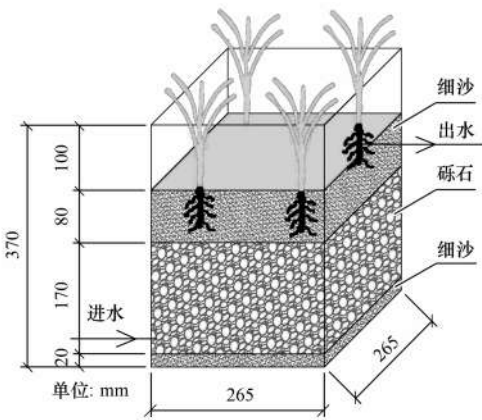


图 1 实验装置构造示意

Fig. 1 Schematic of CW



图 2 实验装置照片

Fig. 2 Picture of CWs

砾石装入反应器前先进行挂膜. 取 1.2 中的活性污泥作为接种污泥, 倒入放满砾石的 40 L 容器中 (淹没砾石), 先闷曝 3 d, 然后进行间歇曝气, 以人工配制的污水作为进水, 运行大约 10 d 后把表面带有一层黄色生物膜的砾石转移到反应器中, 顶部覆盖 8.0 cm 的细沙, 每个反应器种植 9 株香蒲, 每天投配一定量的人工污水. 再连续运行大约 10 d 后, 开始测定 COD、氨氮和 TN 等指标. COD、氨氮和 TN 的去除达到稳定 7 d 后, 加入不同粒径 ZnO NPs.

环境中 ZnO NPs 浓度较低, 环境本底在 $1\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 左右, 考虑到 ZnO NPs 使用量逐年增多及其不可降解的属性, 在环境中累积的数量不断增大, 因此有必要研究高浓度 ZnO NPs 可能产生的毒性效应. 本实验共设 2 个对照组 (不加 ZnO NPs, 对照), 3 个实验组 (ZnO NPs 浓度均为 $10\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, ZnO NPs 粒径分别为 15、50 和 90 nm). 投加 15、50 和 90 nm ZnO NPs 的反应器编号分别为 CW-15、CW-50 和 CW-90. 培养温度 $22\sim25^\circ\text{C}$, 光照/黑暗周期为 16 h/8 h.

1.4 指标测定及方法

1.4.1 常规指标

COD、氨氮、 NO_2^--N 和 NO_3^--N 的测定参照文献

[20].

1.4.2 生物膜的采集

挂膜成功以及暴露于不同粒径 ZnO NPs 28 d 后, 从每个反应器不同位置采集砾石共 300 g, 放入 3 L 磷酸盐缓冲溶液中 ($10 \text{ mmol} \cdot \text{L}^{-1} \text{ Na}_2\text{HPO}_4$, $8.5 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1} \text{ NaCl}$), 在暗处振荡 3 h ($100 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$, 30°C)^[21], 静置后倒掉上清液, 底部沉淀物即生物膜. 进行测序之前, 提取的生物膜样品在 -20°C 保存.

1.4.3 DNA 提取和 PCR 扩增

采用 MO BIO 公司的 PowerSoil DNA isolation Kit 提取 DNA, 并对 DNA 进行琼脂糖电泳, 验证 DNA 的浓度与完整性. 以稀释后的 DNA 为模板, 使用带 Barcode 的 16S rDNA V4 区特异引物 515F ($5'-\text{GTGCCAGCAGCCGCGTAA}-3'$) 和 806R ($5'-\text{GGACTACCAGGTATCTAAT}-3'$) 进行 PCR.

1.4.4 高通量测序及结果分析

PCR 产物使用 2% 浓度的琼脂糖胶电泳, 采用 GeneJET 胶回收试剂盒 (Thermo Scientific) 回收产物. 使用 Thermofisher 公司的 Ion Plus Fragment Library Kit 48 rxns 文库试剂盒进行文库的构建, 检测合格后, 使用 Thermofisher 的 Ion S5™ XL 进行上机测序 (诺禾致源生物信息科技有限公司, 北京).

测序完成后, 首先用 Cutadapt (V1.9.1, <http://cutadapt.readthedocs.io/en/stable/>) Barcode 和引物序列得到原始数据 (Raw reads), 去除嵌合体序列后得到最终的有效数据 (Clean Reads). 利用 Uparse 软件 (Uparse v7.0.1001, <http://drive5.com/uparse/>) 对所有样品的全部 Clean Reads 进行聚类,

将 97% 相似性的序列聚类成为 OTUs (Operational Taxonomic Units). 用 Mothur 方法与 SILVA (<http://www.arb-silva.de/>) 的 SSUrRNA 数据库进行物种注释分析 (设定阈值为 0.8 ~ 1), 获得分类学信息并分别在各个分类水平.

使用 Qiime 软件 (Version 1.9.1) 计算 Observed-OTUs、Chao1、Shannon、Simpson、ACE 和测序深度指数, 使用 R 软件 (Version 2.15.3) 进行 α 多样性指数组间差异分析.

2 结果与讨论

2.1 ZnO NPs 粒径对系统性能的影响

2.1.1 ZnO NPs 粒径大小对系统去除 COD 性能的影响

如图 3 所示, 进水 COD 浓度在 $205 \sim 220 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 对照、CW-15、CW-50 和 CW-90 对 COD 的平均去除率分别为 76.7%、75.9%、75.5% 和 74.2%. 稳定运行 7 d 后, 进水中投加 $10 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ZnO NPs. 投加 ZnO NPs 后, CW-15、CW-50 和 CW-90 对 COD 的去除率有不同程度地下降. 连续运行 28 d 后, 对照反应器对 COD 的去除率稳定在 70% 左右, 而 CW-15、CW-50 和 CW-90 对 COD 的去除率分别降至 56.9%、64.5% 和 68.3%. 上述结果表明, ZnO NPs 对 COD 的去除产生了抑制, 且粒径小的抑制作用更为明显. 原因可能是, 随着 NPs 粒径的变小, 其表面积呈指数增加, 增大了与微生物细胞的接触^[17,22], 从而增强了对异养菌的抑制作用, 导致有机物去除效果的恶化.

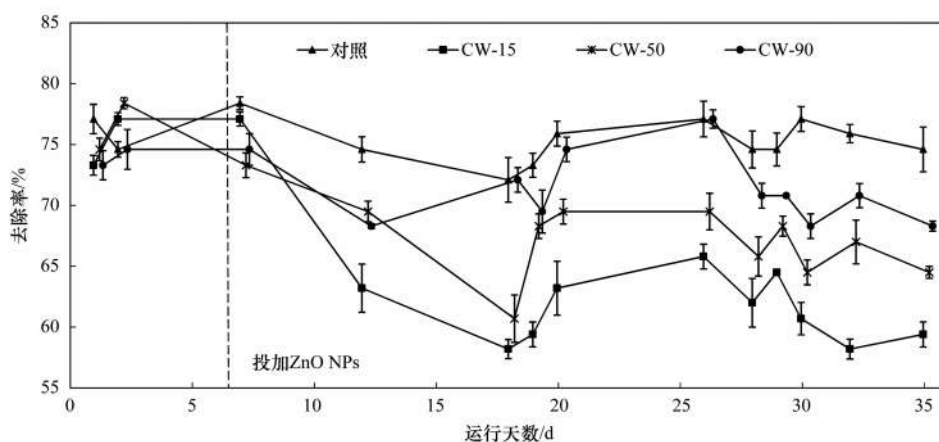


图3 不同粒径 ZnO NPs 对 CWs 去除 COD 效果的影响

Fig. 3 Effects of different sized ZnO NPs on removal efficiency of COD in CWs

2.1.2 ZnO NPs 粒径对系统脱氮性能的影响

如图 4 所示, 进水氨氮浓度在 $12.2 \sim 13.4 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 对照反应器、CW-15、CW-50 和 CW-90 对氨氮的平均去除率分别为 61.8%、62.4%、61.5%

和 61.4%. 投加 ZnO NPs 后, CW-15、CW-50 和 CW-90 对氨氮的去除率有不同程度地降低. 连续运行 28 d 后, CW-15、CW-50 和 CW-90 对氨氮的去除率都有不同程度地降低, 分别降至 36.8%、

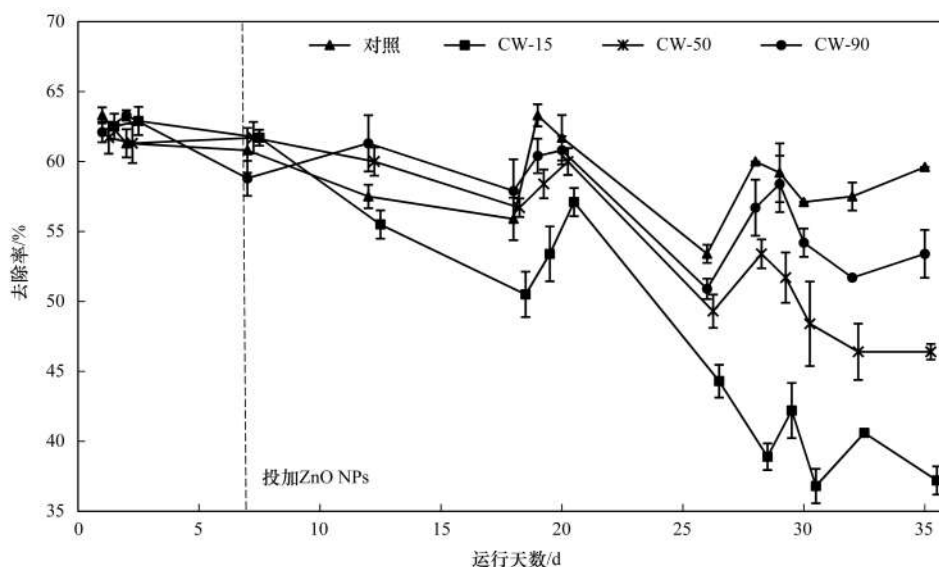


图4 不同粒径 ZnO NPs 对 CWs 去除氨氮效果的影响

Fig. 4 Effects of different sized ZnO NPs on removal efficiency of ammonia nitrogen in CWs

48.4% 和 54.2%. 实验过程中, 对照反应器对氨氮的去除率稳定在 60% 左右. 上述结果表明, 加入 15 nm 的 ZnO NPs 对系统去除氨氮的抑制作用最大, 50 nm 次之, 90 nm 的最小.

稳定条件下, 对照反应器与 CW-15、CW-50 和 CW-90 中总氮的平均出水浓度分别为 5.87、5.66、5.75 和 5.60 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ (图 5). 投加 ZnO NPs 后, CW-15、CW-50 和 CW-90 对总氮的去除率明显降低. 连续运行 28 d 后, CW-15、CW-50 和 CW-90 中出水总氮浓度分别增加至 10.7、8.2 和 7.3 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$. 上述结果表明, 加入小粒径 (15 nm) 的 ZnO NPs 对总氮的去除起抑制作用比大粒径 ZnO NPs 更为显著. 原因可能是, ZnO NPs 对反硝化菌有显著的抑制作用^[23], 而小粒径的抑制作用更为明显, 导致出水氨氮浓度增加, 亚硝酸盐和硝酸盐发生积累, 从而使出水总氮浓度增大.

2.2 ZnO NPs 粒径对微生物群落丰度和多样性的影响

利用 IonS5TMXL 测序平台, 检测不同粒径 ZnO NPs 下微生物的种群结构. 4 个样品中共得到 320 837 条高质量序列和 1 408 个 OTUs (按 97% 的相似度划分). 4 个样品中微生物群落的丰富度和多样性指数如表 2 所示. 基于处理后得到有效序列, 4 个样品的物种数目在 1 182 ~ 1 240 之间. 在相似度为 97% 的条件下, 样品的测序深度指数稳定在 0.998, 说明测序涵盖了样品中绝大部分的物种, 能够较准确地反映微生物的丰富度和多样性. ACE 和 Chao1 指数表征微生物群落的丰富度, 而 Shannon 和 Simpson 指数代表微生物的多样性. Chao1 和 ACE 指数越大, 说明群落丰富度越高. Shannon 和 Simpson 指数值越大, 说明群落多样性越高. 可以看出, ACE、Chao1、Shannon 和 Simpson

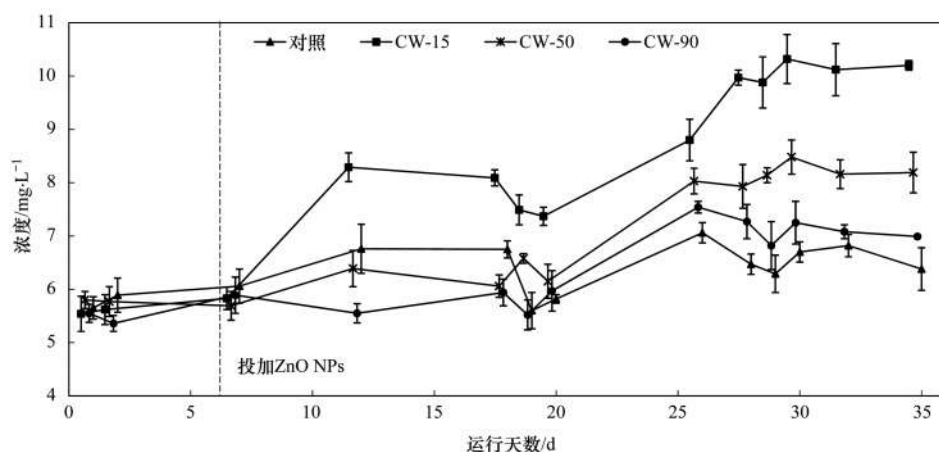


图5 不同粒径 ZnO NPs 对 CWs 去除总氮效果的影响

Fig. 5 Effects of different sized ZnO NPs on removal efficiency of total nitrogen in CWs

指数呈现出波动. 未投加 ZnO NPs 时, 样品的 ACE、Chao1、Shannon 和 Simpson 指数最小, 投加 ZnO NPs 后, ZnO NPs 颗粒促使微生物对外界影响和冲击做出反应, 因此微生物多样性都有不同程度地增大, 这与王未青^[24]研究纳米氧化锌对 SBR 中微生物群落的影响的研究结果一致, 且粒径越小增加越显著. 这说明暴露于 15 nm ZnO NPs 后微生物

群落多样性和丰富度最大, 50 nm 的样品次之, 而 90 nm 的样品增加得最小. 这归因于小粒径的 ZnO NPs 具有更大的比表面积, 更强的表面活性以及更容易穿透进入细胞内部, 从而比大粒径颗粒具有更强的毒性^[14,17,25], 而微生物群落多样性和丰富度越大, 系统的稳定性越强, 从而导致系统微生物群落产生不同的变化.

表 2 4 个样品中微生物群落的丰富度和多样性指数汇总

Table 2 Richness and diversity indices of the microbial communities in the four samples						
项目	物种指数	Shannon 指数	Simpson 指数	Chao1 指数	ACE 指数	测序深度指数
对照	1 182	7. 412	0. 980	1 221. 75	1227. 14	0. 998
CW-15	1 204	7. 470	0. 982	1 257. 59	1262. 70	0. 998
CW-50	1 201	7. 477	0. 981	1 235. 33	1246. 52	0. 998
CW-90	1 240	7. 642	0. 985	1 326. 78	1325. 15	0. 998

2.3 微生物群落差异性分析

为了更准确地研究群落结构差异, 本研究利用统计学方法主坐标分析 (principal coordinate analysis, PCoA). 如图 6 所示, 主成分 1 和主成分 2 分别能够解释微生物群落结构变异的 39.53% 和 31.93%. 对照、CW-15、CW-50 和 CW-90 分布较离散, 说明微生物群落结构间存在一定的差异. 其中 CW-50 和 CW-90 空间距离较近, 而与 CW-15 距离较远, 说明暴露于不同粒径 ZnO NPs 的微生物群落结构有明显差异.

如图 7 所示, Venn 图中展示的样品间共有和特有的 OTUs. 对照、CW-15、CW-50 和 CW-90 这 4 个样品的总 OTUs 是 1406 个, 其中 936 个为四者共有(占总 OTUs 的 68.5%), 这说明某些微生物种群在暴露于不同粒径 ZnO NPs 前后一直存在. 这 936 个共有 OTUs 中, 最优势菌门是 Proteobacteria(占总 OTUs 的 29.2%), Bacteroidetes 次之(24.4%). 对照、CW-15、CW-50 和 CW-90 4 个样品中独有的 OTUs 分别为 25 个、18 个、6 个和 25 个, 它们共占总 OTUs 的 5.26%. CW-50 和 CW-90 的 2 个样品间

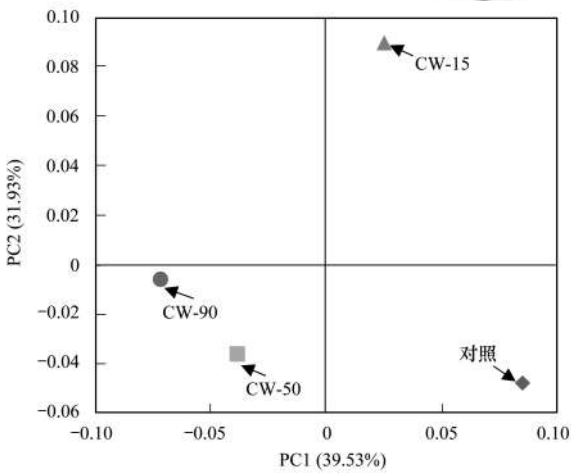


图 6 暴露于不同粒径 ZnO NPs 下微生物群落 PCoA 分析
Fig. 6 PCoA of unweighted UniFrac distances of microbial communities exposed to different sized ZnO NPs

具有最多相同的 OTUs(1107 个), 这与 PCoA 的结果一致.

2.4 ZnO NPs 粒径对微生物群落结构的影响

为了研究不同粒径 ZnO NPs 对微生物群落结构的影响, 在门水平上进行分析(图 8). 测序结果

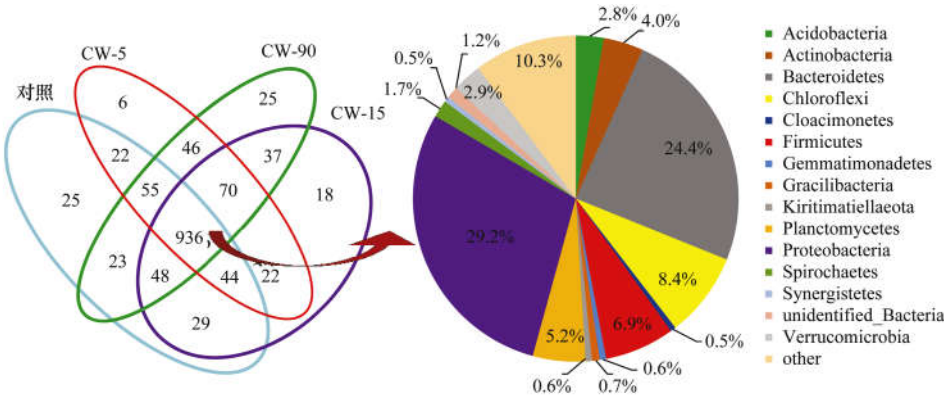


图 7 暴露于不同粒径 ZnO NPs 下微生物群落的 Venn 图(97% 相似度) 及其共有 OTUs 在门水平上的分类
Fig. 7 Venn diagram of microbial communities exposed to different sized ZnO NPs based on OTUs (97% similarity), and the taxonomic identities of the shared OTUs at the phylum level

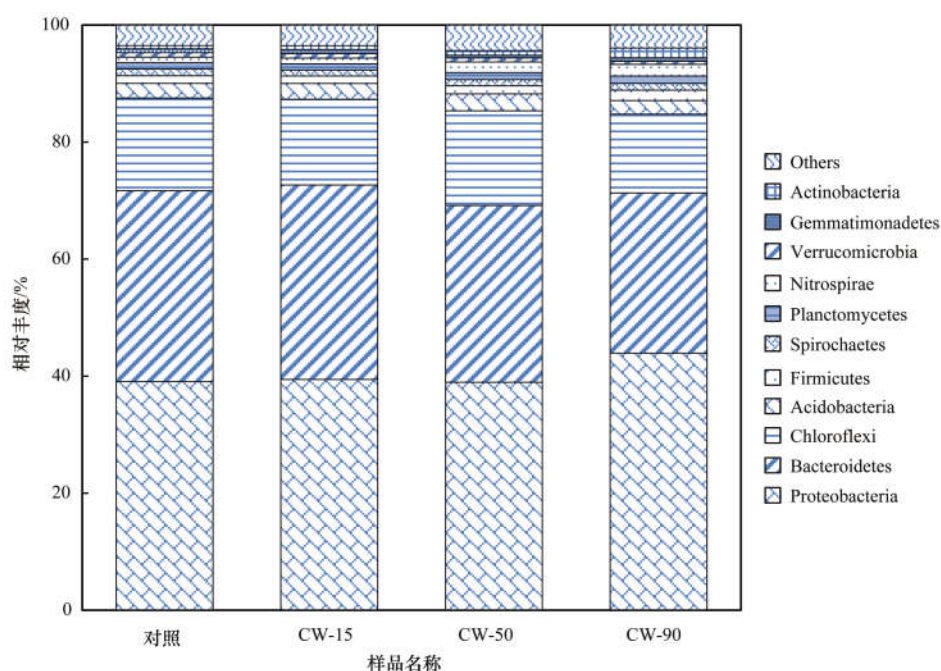


图8 不同粒径 ZnO NPs 下微生物群落在门水平上的分类

Fig. 8 Taxonomic classification of the microbial community exposed to different sized ZnO NPs at the phylum level

表明, 对照与 CW-15、CW-50 和 CW-90 中主要包括: 变形菌门 (Proteobacteria)、拟杆菌门 (Bacteroidetes)、绿弯菌门 (Chloroflexi)、酸杆菌门 (Acidobacteria)、硝化螺旋菌门 (Nitrospirae)、厚壁菌门 (Firmicutes)、放线菌门 (Actinobacteria) 及浮霉菌门 (Planctomycetes) 等 52 个菌门的微生物。其中, Proteobacteria、Bacteroidetes、Chloroflexi、Acidobacteria、Nitrospirae 和 Firmicutes 是 4 个反应器中的优势微生物种群, 分别占对照、CW-15、CW-50 和 CW-90 中微生物总量的 92.3%、92.3%、91.4% 和 90.9%。有研究表明, 人工湿地底泥优势菌种以 Proteobacteria、Chloroflexi 和 Acidobacteria 为主, 所占比例高于 80%^[26]。4 个反应器中 Proteobacteria 都是最多的菌门, 占微生物总量的比例依次为 39.1%、39.4%、38.9% 和 43.9%, 作为活性污泥系统中最重要的一类细菌, 其在系统中所占比例的增加一定程度上可以理解为活性污泥系统对投加纳米污染物这一外界冲击表现出的适应与抗性^[27]; Bacteroidetes 次之, 分别为 32.6%、33.2%、30.2% 和 27.4%, 这与其他学者的研究结果一致^[28]。上述变化表明, 暴露于不同粒径的 ZnO NPs 后, CW 的微生物群落结构受到了不同程度的影响, Proteobacteria、Bacteroidetes、Chloroflexi、Acidobacteria、Nitrospirae 和 Firmicutes 能够很好适应投加 ZnO NPs 的环境。

为进一步阐明不同粒径 ZnO NPs 对 CW 中微生物群落的影响, 在属水平上选取优势菌属进行分析

(对于占微生物总量的比例小于 0.5% 的物种统一用“other”表示)。如图 9 所示, 加入 ZnO NPs 前后, 4 个反应器中的菌属都发生了不同程度的变化。对照反应器中, 占微生物总量的比例较高的菌属 (占微生物总量的比例 $\geq 2\%$) 依次为 *Anaerolinea* (13.17%)、*Lewinella* (6.71%)、*Methylothera* (6.69%)、*Ignavibacterium* (5.85%)、*Dechloromonas* (5.14%)、*Terrimonas* (3.41%)、*Thauera* (2.57%) 和 *Acidovorax* (2.19%)。加入 ZnO NPs 后, CW-15、CW-50 和 CW-90 中 *Anaerolinea* 占微生物总量的比例有所下降, 但依然是最优势菌属, 而 *Lewinella* 占微生物总量的比例分别增至 7.22%、8.23% 和 7.85%。*Methylothera* 和 *Ignavibacterium* 在 CW-15 中占微生物总量的比例有轻微增加, 而在 CW-50 和 CW-90 中明显降低。*Dechloromonas* 占微生物总量的比例分别降至 4.66%、4.86% 和 4.80%, 而 *Terrimonas* 则无明显变化。*Thauera* 和 *Acidovorax* 占微生物总量的比例都有显著增加, 分别增至 2.57%、2.75%、4.09% 和 2.22%、2.45%、2.77%。

Anaerolinea 属于 Anaerolinaceae 科, 为常见的发酵菌群, 可将有机物水解转化为能被产甲烷菌直接利用的小分子有机物^[29]。*Lewinella*, 一种水解相关的异养菌, 能够在低温条件下去除有机物^[30,31]。*Terrimonas* 于 2006 年发现于以甲醇为碳源的反硝化系统, 然而它们的功能还需进一步确认^[32,33]。

人工湿地中含氮污染物的去除机制主要有硝化

作用、反硝化作用以及氨氧化作用等^[34]。硝化菌属主要是 *unidentified_Nitrospiraceae*、*Nitrosomonas* 和 *unidentified_Nitrosomonadaceae*, 在 4 个系统(对照、CW-15、CW-50 和 CW-90)中所占比例分别为 2.41%、2.44%、3.66% 和 4.44%。而反硝化菌属主要包括 *Methylothera*、*Ignavibacterium*、*Dechloromonas*、*Thauera*、*Acidovorax*, 4 个系统中反硝化菌属序列数所占比例分别为 22.38%、22.35%、17.72% 和 18.19%。硝酸盐存在的条件下, 会刺激 *Methylothera* 的生长, 而且有研究指出 *Methylothera* 对甲醇代谢可能与反硝化有关^[35]。*Thauera* 是广泛存在于废水处理系统自养和/或异养

反硝化菌^[36], 而 *Ignavibacterium* 通常存在于自养脱氮系统^[37]。在缺氧条件且存在硝酸盐和容易获得的碳源条件下, *Dechloromonas* 快速增长繁殖^[38]。有研究发现, *Acidovorax* 能够氧化乙酸钠和 H_2 进行反硝化^[39]。

4 个系统中反硝化菌属丰度均明显高于硝化菌属, 这说明硝化过程可能是制约 CW 脱氮效果的关键因素, 这归因于 HSFCW 中的缺氧或厌氧环境更适合反硝化细菌生存所致, 这与其他学者的研究结果一致^[28]。与 CW-50 和 CW-90 相比, CW-15 中硝化菌属的丰度最低, 这也是其脱氮性能相对较差的主要原因。

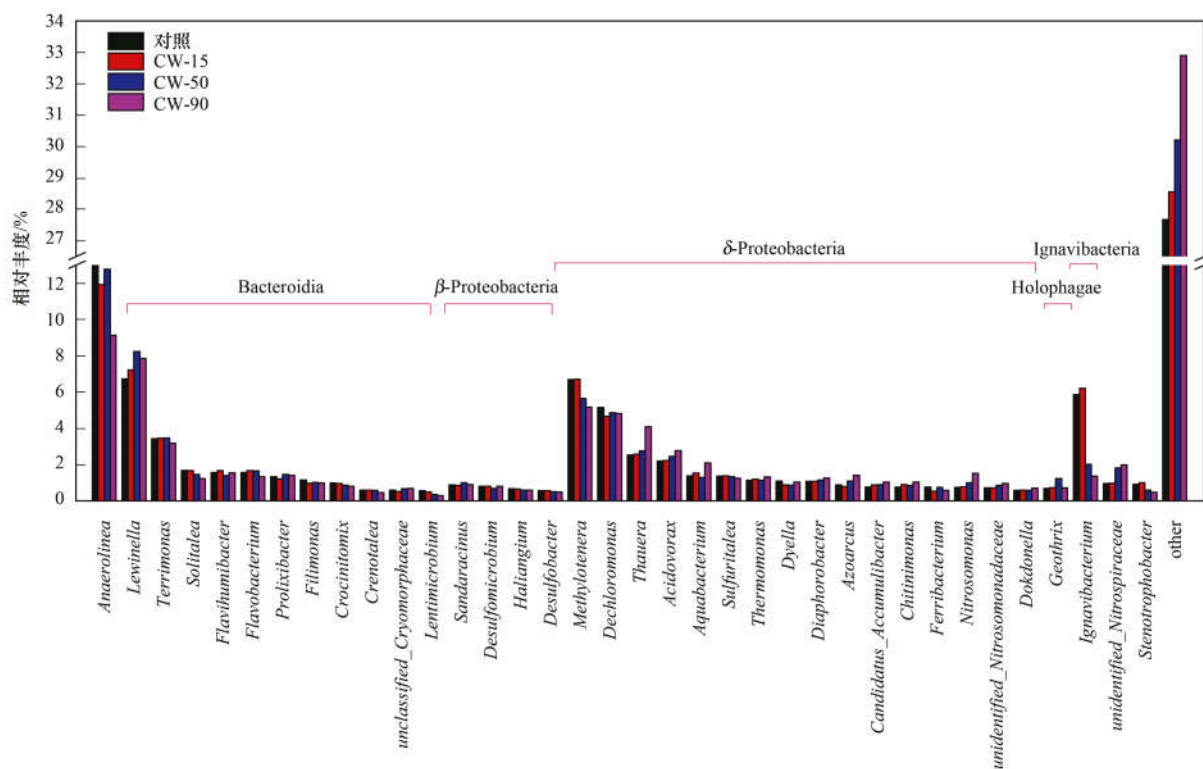


图9 不同粒径 ZnO NPs 下微生物群落在属水平上的分类

Fig. 9 Taxonomic classification of the microbial community exposed to different sized ZnO NPs at the genus level

3 结论

(1) ZnO NPs ($10 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$) 的粒径 (15、50 和 90 nm) 对 COD 去除无明显影响, 而对脱氮则表现出明显的粒径效应。

(2) 暴露于不同粒径 ZnO NPs 后, CW 中微生物群落多样性和丰富度增大, 而且 ZnO NPs 粒径越小, 多样性和丰富度增加更加显著。

(3) 暴露于不同粒径的 ZnO NPs 后, CW 中微生物群落结构发生变化, 尤其是小粒径 ZnO NPs 更为显著。

参考文献:

[1] Wan B, Yan Y P, Huang R X, et al. Formation of Zn-Al layered

double hydroxides (LDH) during the interaction of ZnO nanoparticles (NPs) with $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ [J]. Science of the Total Environment, 2019, **650**: 1980-1987.

[2] 景新新, 苏志忠, 邢红恩, 等. 不同磷水平下丛枝菌根真菌对纳米氧化锌生物效应的影响[J]. 环境科学, 2016, **37** (8): 3208-3215.

Jing X X, Su Z Z, Xing H E, et al. Biological effects of ZnO nanoparticles as influenced by arbuscular mycorrhizal inoculation and phosphorus fertilization [J]. Environmental Science, 2016, **37** (8): 3208-3215.

[3] Zhang Z Z, Cheng Y F, Xu L Z J, et al. Transient disturbance of engineered ZnO nanoparticles enhances the resistance and resilience of anammox process in wastewater treatment [J]. Science of the Total Environment, 2018, **622-623**: 402-409.

[4] 刘林, 赵群芬, 金凯星, 等. 纳米氧化锌对斑马鱼肝脏的毒性效应[J]. 环境科学, 2015, **36** (10): 3884-3891.

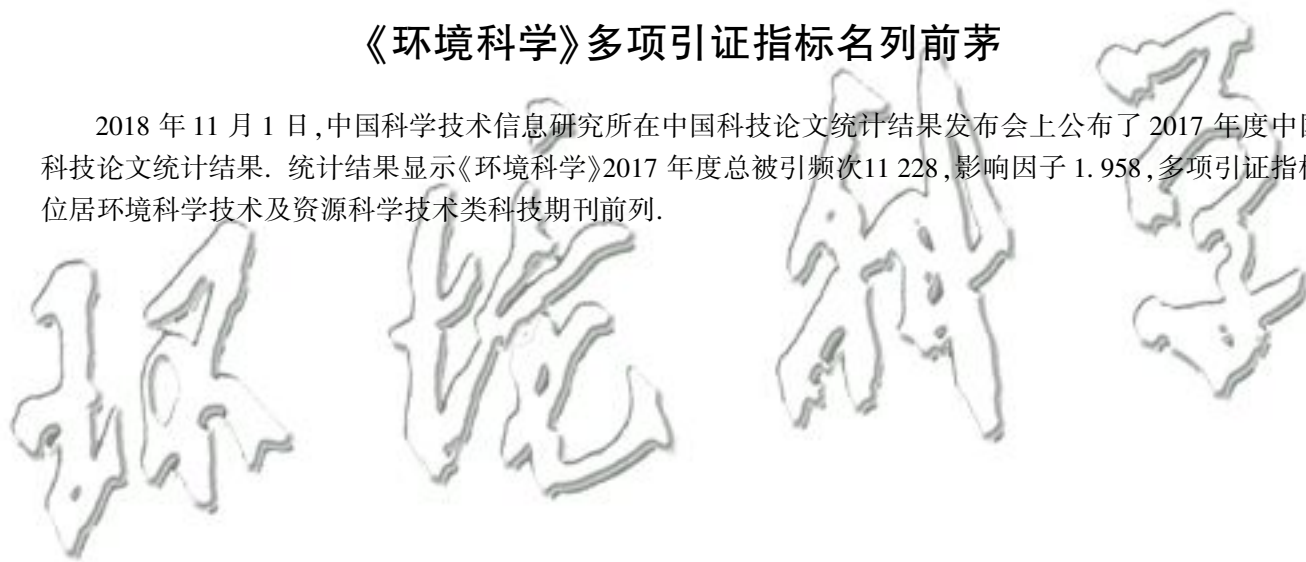
Liu L, Zhao Q F, Jin K X, et al. Toxic effect of nano-ZnO in

- liver of zebrafish[J]. *Environmental Science*, 2015, **36**(10): 3884-3891.
- [5] Martín-Pozo L, de Alarcón-Gómez B, Rodríguez-Gómez R, *et al.* Analytical methods for the determination of emerging contaminants in sewage sludge samples. A review[J]. *Talanta*, 2019, **192**: 508-533.
- [6] Wu S B, Wu H M, Button M, *et al.* Impact of engineered nanoparticles on microbial transformations of carbon, nitrogen, and phosphorus in wastewater treatment processes-A review[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **660**: 1144-1154.
- [7] Hou J, Miao L Z, Wang C, *et al.* Inhibitory effects of ZnO nanoparticles on aerobic wastewater biofilms from oxygen concentration profiles determined by microelectrodes[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2014, **276**: 164-170.
- [8] Tan M, Qiu G L, Ting Y P. Effects of ZnO nanoparticles on wastewater treatment and their removal behavior in a membrane bioreactor[J]. *Bioresource Technology*, 2015, **185**: 125-133.
- [9] He Q L, Gao S X, Zhang S L, *et al.* Chronic responses of aerobic granules to zinc oxide nanoparticles in a sequencing batch reactor performing simultaneous nitrification, denitrification and phosphorus removal[J]. *Bioresource Technology*, 2017, **238**: 95-101.
- [10] Chen L, Hu Q Z, Zhang X, *et al.* Effects of ZnO nanoparticles on the performance of anaerobic membrane bioreactor: An attention to the characteristics of supernatant, effluent and biomass community[J]. *Environmental Pollution*, 2019, **248**: 743-755.
- [11] Zhang D Q, Eng C Y, Stuckey D C, *et al.* Effects of ZnO nanoparticle exposure on wastewater treatment and soluble microbial products (SMPs) in an anoxic-aerobic membrane bioreactor[J]. *Chemosphere*, 2017, **171**: 446-459.
- [12] 李帅, 刘雪琴, 王发园, 等. 纳米氧化锌、硫酸锌和AM真菌对玉米生长的影响[J]. *环境科学*, 2015, **36**(12): 4615-4622.
- Li S, Liu X Q, Wang F Y, *et al.* Effects of ZnO nanoparticles, ZnSO₄ and arbuscular mycorrhizal fungus on the growth of maize[J]. *Environmental Science*, 2015, **36**(12): 4615-4622.
- [13] Du J, Tang J H, Xu S D, *et al.* A review on silver nanoparticles-induced ecotoxicity and the underlying toxicity mechanisms[J]. *Regulatory Toxicology and Pharmacology*, 2018, **98**: 231-239.
- [14] Elder A, Vidyasagar S, DeLouise L. Physicochemical factors that affect metal and metal oxide nanoparticle passage across epithelial barriers[J]. *WIRS-Nanomedicine and Nanobiotechnology*, 2009, **1**(4): 434-450.
- [15] Milani Z M, Charbgo F, Darroudi M. Impact of physicochemical properties of Cerium oxide nanoparticles on their toxicity effects[J]. *Ceramics International*, 2017, **43**(17): 14572-14581.
- [16] 严玉鹏, 唐亚东, 万彪, 等. 颗粒尺寸对纳米氧化物环境行为的影响[J]. *环境科学*, 2018, **39**(6): 2982-2990.
- Yan Y P, Tang Y D, Wan B, *et al.* Impact of size on environmental behavior of metal oxide nanoparticles[J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(6): 2982-2990.
- [17] Sharifi S, Behzadi S, Laurent S, *et al.* Toxicity of nanomaterials[J]. *Chemical Society Reviews*, 2012, **41**(6): 2323-2343.
- [18] Choi O, Hu Z Q. Size dependent and reactive oxygen species related nanosilver toxicity to nitrifying bacteria[J]. *Environmental Science & Technology*, 2008, **42**(12): 4583-4588.
- [19] Keller A A, Wang H T, Zhou D X, *et al.* Stability and aggregation of metal oxide nanoparticles in natural aqueous matrices[J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, **44**(6): 1962-1967.
- [20] 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.
- [21] Weber K P, Legge R L. Method for the detachment of culturable bacteria from wetland gravel[J]. *Journal of Microbiological Methods*, 2010, **80**(3): 242-250.
- [22] Scown T M, Van Aerle R, Tyler C R. Review: do engineered nanoparticles pose a significant threat to the aquatic environment?[J]. *Critical Reviews in Toxicology*, 2010, **40**(7): 653-670.
- [23] Zheng X, Wu R, Chen Y G. Effects of ZnO nanoparticles on wastewater biological nitrogen and phosphorus removal[J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, **45**(7): 2826-2832.
- [24] 王未青. 纳米氧化锌对污水生物除磷作用及微生物群落的影响[D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2015.
- Wang W Q. Impacts of zinc oxide nanoparticles on sewage biological phosphorus removal and microbial community[D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 2015.
- [25] Nel A, Xia T, Mädler L, *et al.* Toxic potential of materials at the nanolevel[J]. *Science*, 2006, **311**(5761): 622-627.
- [26] Chen Y, Wen Y, Tang Z R, *et al.* Effects of plant biomass on bacterial community structure in constructed wetlands used for tertiary wastewater treatment[J]. *Ecological Engineering*, 2015, **84**: 38-45.
- [27] 宿程远, 郑鹏, 卢宇翔, 等. 磁性纳米铁对厌氧颗粒污泥特性及其微生物群落的影响[J]. *环境科学*, 2018, **39**(3): 1316-1324.
- Su C Y, Zheng P, Lu Y X, *et al.* Effects of magnetic Fe₃O₄ nanoparticles on the characteristics of anaerobic granular sludge and its interior microbial community[J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(3): 1316-1324.
- [28] 李振灵, 丁彦礼, 白少元, 等. 潜流人工湿地基质结构与微生物群落特征的相关性[J]. *环境科学*, 2017, **38**(9): 3713-3720.
- Li Z L, Ding Y L, Bai S Y, *et al.* Correlations between substrate structure and microbial community in subsurface flow constructed wetlands[J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(9): 3713-3720.
- [29] Zhu X Y, Kougias P G, Treu L, *et al.* Microbial community changes in methanogenic granules during the transition from mesophilic to thermophilic conditions[J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2017, **101**(3): 1313-1322.
- [30] Ju F, Guo F, Ye L, *et al.* Metagenomic analysis on seasonal microbial variations of activated sludge from a full-scale wastewater treatment plant over 4 years[J]. *Environmental Microbiology Reports*, 2014, **6**(1): 80-89.
- [31] Zhou H X, Li X K, Chu Z R, *et al.* Effect of temperature downshifts on a bench-scale hybrid A/O system: process performance and microbial community dynamics[J]. *Chemosphere*, 2016, **153**: 500-507.
- [32] Lu H J, Chandran K, Stensel D. Microbial ecology of denitrification in biological wastewater treatment[J]. *Water Research*, 2014, **64**: 237-254.
- [33] Niu W Y, Guo J B, Lian J, *et al.* Effect of fluctuating hydraulic retention time (HRT) on denitrification in the UASB reactors[J]. *Biochemical Engineering Journal*, 2018, **132**: 29-37.
- [34] Van Niftrik L, Jetten M S M. Anaerobic ammonium-oxidizing bacteria: unique microorganisms with exceptional properties[J]. *Microbiology and Molecular Biology Reviews*, 2012, **76**(3): 585-596.

- [35] Kalyuzhnaya M G, Martens-Habbena W, Wang T S, *et al.* *Methylophilaceae* 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.
- [36] Mao Y J, Zhang X J, Yan X, *et al.* Development of group-specific PCR-DGGE fingerprinting for monitoring structural changes of *Thauera* spp. in an industrial wastewater treatment plant responding to operational perturbations [J]. *Journal of Microbiological Methods*, 2008, **75**(2): 231-236.
- [37] Zhang J B, Zhou J, Han Y, *et al.* Start-up and bacterial communities of single-stage nitrogen removal using anammox and partial nitrification (SNAP) for treatment of high strength ammonia wastewater[J]. *Bioresource Technology*, 2014, **169**: 652-657.
- [38] Zhu Y, Zhang X Y, Wu X G, *et al.* Carbon-driven enrichment of the crucial nitrate-reducing bacteria in limed peat soil microcosms[J]. *Letters in Applied Microbiology*, 2017, **65**(2): 159-164.
- [39] Nalcaci O O, Böke N, Ovez B. Potential of the bacterial strain *Acidovorax avenae* subsp. *avenae* LMG 17238 and macro algae *Gracilaria verrucosa* for denitrification [J]. *Desalination*, 2011, **274**(1-3): 44-53.

《环境科学》多项引证指标名列前茅

2018 年 11 月 1 日,中国科学技术信息研究所在中国科技论文统计结果发布会上公布了 2017 年度中国科技论文统计结果. 统计结果显示《环境科学》2017 年度总被引频次 11 228,影响因子 1.958,多项引证指标位居环境科学技术及资源科学技术类科技期刊前列.



CONTENTS

Characteristics of Aerosol Vertical Distribution over the Yangtze River Delta Region of China in 2018	SHEN Ji, CAO Nian-wen (4743)
Characteristics of Haze Pollution Episodes During Autumn and Winter in 2018 in Shijiazhuang	SU Wen-kang, BAO Xiao-lei, NI Shuang-ying, <i>et al.</i> (4755)
Spatial Temporal Characteristics and Cluster Analysis of Chemical Components for Ambient PM _{2.5} in Wuhan	ZHANG Hui-tao, TIAN Ying-ze, LIU Bao-shuang, <i>et al.</i> (4764)
Heavy Metal Pollution Characteristics and Ecological and Health Risk Assessment of Atmospheric PM _{2.5} in a Living Area of Zhengzhou City	HE Rui-dong, ZHANG Yi-shun, CHEN Yong-yang, <i>et al.</i> (4774)
Distribution Characteristics and Sources of Metal Elements in Rainwater in Xiamen	WANG Shan-shan, CHENG Yi-feng, YAN Jin-pei, <i>et al.</i> (4783)
First Long-Term Study of Atmospheric New Particle Formation in the Suburb of Shanghai from 2015 to 2017	HUO Jun-tao, WANG Xin-ning, DUAN Yu-sen, <i>et al.</i> (4791)
Characteristics, Transportation, Pathways, and Potential Sources of Air Pollution During Autumn and Winter in Taiyuan	YAN Shi-ming, WANG Yan, GUO Wei, <i>et al.</i> (4801)
Spatial and Temporal Characteristics of Air Quality and Cause Analysis of Heavy Pollution in Northeast China	CHEN Wei-wei, LIU Yang, WU Xue-wei, <i>et al.</i> (4810)
Spatiotemporal Evolution and Driving Mechanism of Aerosol Optical Depth in the Ebinur Lake Basin	CHEN Xiang-yue, DING Jian-li, WANG Jing-zhe, <i>et al.</i> (4824)
Concentration Levels and Impact Factors of Benzene Series in Chinese Residential Building	HOU Bei-bei, YIN Yi-hui, PEI Jing-jing, <i>et al.</i> (4833)
Pollution Characteristics and Source Analysis of Aromatic Compounds in Shijiazhuang	YANG Yang, LI Xing-ru, LIU Shui-qiao, <i>et al.</i> (4841)
Emission Characteristics Analysis and Health Risk Assessment of Unorganized VOCs in the Carbon Industry, Zhengzhou	ZHANG Yi-shun, WANG Jia, HAN Shi-jie, <i>et al.</i> (4847)
Hazardous Volatile Organic Compound Emission Inventory Study and Its Application in a Typical Chemical Industry in the Yangtze River Delta	LU Jun, HUANG Yi-wei, HUANG Cheng (4856)
Establishment and Characteristics of an Artificial Ammonia Emissions Inventory in Jiangsu Province from 2013 to 2017	HOU Xin-hong, YU Xing-na, SHEN Li, <i>et al.</i> (4862)
Occurrence Characteristics and Health Risks of PAHs on the Surface of Buildings and Devices in the Coking Plant	ZHAO Yi-shu, LIAO Xiao-yong, LI You, <i>et al.</i> (4870)
Contamination Characteristics and Ecological Risk Assessment of Androgens, Glucocorticoids, and Progesterone in the Liusha Bay, South China Sea	YANG Lei, ZHANG Jin-na, XU Min, <i>et al.</i> (4879)
Dynamic Changes in Hydrochemical Characteristics and Influencing Factors in the Karst Watershed Flood Process	YUAN Ya-qiong, SUN Ping-an, SU Zhao, <i>et al.</i> (4889)
Sources, Distribution, and Fluxes of Major and Trace Elements in the Yangtze River	WU Wen-tao, RAN Xiang-bin, LI Jing-xi, <i>et al.</i> (4900)
Contaminant Characteristics and Ecological Risk Assessments of Heavy Metals from River Networks in the Western Area of the Wangyu River	XU Chen, WANG Pei-fang, CHEN Juan, <i>et al.</i> (4914)
Influence of Rainfall Intensity on the Nutrient Loading from an Inflowing River in the Plain River Network of the Taihu Catchment	CHEN Jie, ZHU Guang-wei, XU Hai, <i>et al.</i> (4924)
Distribution and Pollution Assessment of Nutrients and Heavy Metals in Surface Sediments from Shibalianwei Wetland in Hefei, Anhui Province, China	CHEN Shan, XU Fan, XIE San-tao, <i>et al.</i> (4932)
Spatial Distribution Characteristics of Chlorophyll-a and Nutrient Salts in Tributaries of Different River Sections in the Three Gorges Reservoir Area During the Flood Season	YANG Fan, YANG Zheng-jian, JI Dao-bin, <i>et al.</i> (4944)
Endogenous Release of Nitrogen and Phosphorus in the Danjiangkou Reservoir	WANG Zhi-qi, LIU Xin-xing, YAO Zhi-hong, <i>et al.</i> (4953)
Correlation Between Water Purification Capacity and Bacterial Community Composition of Different Submerged Macrophytes	LI Lin, YUE Chun-lei, ZHANG Hua, <i>et al.</i> (4962)
Size-dependent Effects of Zinc Oxide Nanoparticles on Performance and Microbial Community Structure of a Constructed Wetland	WANG Sen, REN Ling, LIU Lin-lin, <i>et al.</i> (4971)
Removal of Nitrogen and Phosphorus from Water by Biomass Carbon of Aquatic Plants	LIU Shu-lei, PENG Hui-jun, YANG Jia-yi, <i>et al.</i> (4980)
Preparation of MgO Modified Lotus Shell Biochar and Its Phosphorus Adsorption Characteristics	WANG Sheng-hua, ZHU Dan-chen, SHAO Jing-ai, <i>et al.</i> (4987)
Effects of Microplastics on Membrane Fouling During a Shortened Ultrafiltration Membrane Process	WANG Bo-dong, XUE Wen-jing, LÜ Yong-tao, <i>et al.</i> (4996)
Preparation and Comparison of Arsenic Removal Granular Adsorbent Based on Iron-Manganese Sludge	ZENG Hui-ping, YU Ya-ping, LÜ Sai-sai, <i>et al.</i> (5002)
Catalytic Degradation of Rhodamine B by FeOCl Activated Hydrogen Peroxide	ZHANG Shao-peng, CHEN Yu, BAI Shu-qin, <i>et al.</i> (5009)
Treatment Effect and Ecological Risk Assessment of Typical Antibiotics in Wastewater from Large-scale Dairy Farms in Tianjin	CHEN Qian, ZHAO Run, MOU Mei-rui, <i>et al.</i> (5015)
Distribution Characteristics of Antibiotic Resistance Genes in Wastewater Treatment Plants	YAO Peng-cheng, CHEN Jia-yu, ZHANG Yong-ming, <i>et al.</i> (5024)
Start-up and Stable Operation of CANON Coupled with Denitrifying Phosphorus Removal	YIN Wen, CHEN Ya, ZHANG Yu, <i>et al.</i> (5032)
Control of Sludge Bulking Caused by Unknown Reason Through FeCl ₃ Coupled with Biochemical Methods	WEI Dong-yang, XIAO Cai-lin, ZHOU Wen, <i>et al.</i> (5040)
Effects of Solid Retention Time on the Phosphorus Removal and Nitrosation Granules System	LI Dong, LIU Bo, WANG Wen-qi, <i>et al.</i> (5048)
Start-up of Simultaneous ANAMMOX and Denitrification Process and Changes in Microbial Community Characteristics	SONG Zhuang-zhuang, LÜ Shuang, LIU Zhe, <i>et al.</i> (5057)
Influence of Substrate Exposure Level on ANAMMOX Microbial Activity and Biomass	CHEN Fang-min, GAO Jia-qi, HUANG Yong, <i>et al.</i> (5066)
Pollution Characteristics and Source Analysis of Heavy Metals in Farmland Soils in the Taige Canal Valley	LI Wei-di, CUI Yun-xia, ZENG Cheng-cheng, <i>et al.</i> (5073)
Method of Dividing the Value of Soil Heavy Metal Pollution Risk Screening: Using Cd as an Example	WANG Rui, ZHANG Feng-lei, XU Shu-shu, <i>et al.</i> (5082)
Mineral Characteristics of Arsenic in the Active Area of the Banbishan Gold Mine and Its Effect on Arsenic Accumulation in Farmland Soil	WEN Qi-qian, YAN Xiu-lan, SHEN Jun-feng, <i>et al.</i> (5090)
Remediation of Cadmium Contaminated Paddy Fields Using Soil Conditioners	ZHOU Li-jun, WU Lin, LIN Xiao-bing, <i>et al.</i> (5098)
Inhibition and Remediation of Methylmercury Contaminated Soil by Use of Modified Montmorillonite	HAN Yi-xin, HE Tian-rong, WANG Zu-bo (5107)
Cerium-manganese Modified Biochar Immobilizes Arsenic in Farmland Soils	LIANG Ting, LI Lian-fang, ZHU Chang-xiong, <i>et al.</i> (5114)
Improving Bioremediation of Crude Oil-contaminated Soil by Mild Pre-oxidation	XU Jin-lan, WANG Hui-fang, WANG Rong, <i>et al.</i> (5124)
Community Structure of Heavy Metal Immobilized Bacteria in the Lettuce (<i>Lactuca sativa</i> L.) Rhizosphere in Soil Polluted by Heavy Metals and Its Effects on Reducing Heavy Metal Accumulation in Lettuce	WANG Tie-jun, SU Nan-nan, LEI Peng, <i>et al.</i> (5133)
Impact of Dicyandiamide (DCD) and 3,4-Dimethylpyrazole Phosphate (DMPP) on Ammonia-oxidizing Bacteria and Archaea in a Vegetable Planting Soil	GUO Jun-li, LIU Yi, WEI Wen-xue, <i>et al.</i> (5142)
Effect of Different Reclaimed Water Irrigation Methods on Bacterial Community Diversity and Pathogen Abundance in the Soil-Pepper Ecosystem	CUI Bing-jian, GAO Feng, HU Chao, <i>et al.</i> (5151)
Characteristics of CO ₂ and N ₂ O Emissions Under Two Land Use Types in the Loess Plateau of China	HAN Jia-le, HAO Shan, LIU Zhen-jie, <i>et al.</i> (5164)
Effects of Biochar on N ₂ O Emission from Four Typical Soils in the North China Plain	ZHANG Xiu-ling, SUN Yun, ZHANG Shui-qing, <i>et al.</i> (5173)
Effects of Optimizing Fertilization on N ₂ O and CH ₄ Emissions in a Paddy-Cowpea Rotation System in the Tropical Region of China	HU Yu-lin, TANG Shui-rong, TAO Kai, <i>et al.</i> (5182)