

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV
HUANJING KEXUE

经济快速发展区场地污染特征、源-汇关系与管控对策专辑

我国经济快速发展区工业VOCs排放特征及管控对策

孟博文, 李永波, 孟晶, 李倩倩, 史斌, 周喜斌, 李金灵, 苏贵金



制药



喷涂



橡胶

京津冀

长三角

珠三角

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2021年3月

第42卷 第3期

Vol.42 No.3

目次

经济快速发展区场地污染特征、源-汇关系与管控对策专辑

我国经济快速发展区工业 VOCs 排放特征及管控对策 孟博文, 李永波, 孟晶, 李倩倩, 史斌, 周喜斌, 李金灵, 苏贵金 (1023)

长江经济带湖北省人为源 VOCs 排放清单及变化特征 代伶文, 孟晶, 李倩倩, 史斌, 苏贵金, 黄利宏 (1039)

经济快速发展区六氯丁二烯的来源与分布特征 陶誉铭, 孟晶, 李倩倩, 史斌, 苏贵金, 郭立新 (1053)

近 20 年中国表层土壤中多环芳烃时空分布特征及源解析 马妍, 程芦, 阮子渊, 史鹏飞, 路超君, 运晓彤, 李璐嫣, 徐雁秋, 史怡 (1065)

电子废物拆解区微塑料与周围土壤环境之间的关系 柴炳文, 尹华, 魏强, 卢桂宁, 党志 (1073)

焦化场地内外土壤重金属空间分布及驱动因子差异分析 顾高铨, 万小铭, 曾伟斌, 雷梅 (1081)

典型石化工业城市土壤重金属源解析及空间分布模拟 孙雪菲, 张丽霞, 董玉龙, 朱林宇, 王政, 吕建树 (1093)

多功能区工业园土壤和地表灰尘重金属污染及生态风险差异分析 曾伟斌, 顾高铨, 万小铭, 雷梅 (1105)

龙岩市某铁锰矿区土壤重金属地球化学空间分布特征与来源分析 王蕊, 陈楠, 张二喜, 李小赛 (1114)

基于全周期场地概念模型的场地环境精准调查应用案例 李培中, 吴乃瑾, 王海见, 张骥, 荣立明, 李翔, 魏文侠, 宋云 (1123)

造纸厂土壤中短链和中链氯化石蜡的污染特征和风险评估 张佩萱, 高丽荣, 宋世杰, 乔林, 徐驰, 黄帝, 王爽, 蒋思静, 郑明辉 (1131)

典型再生铜冶炼厂周边土壤中 PCDD/Fs、PCBs 和 PCNs 的污染特征及健康风险评估 胡吉成, 郭静, 许晨阳, 金军 (1141)

柠檬酸与磷共存对土壤吸附镉的影响 宋子腾, 左继超, 胡红青 (1152)

两种能源草田间条件下对镉和锌的吸收累积 郑瑞伦, 石东, 刘文菊, 孙国新, 侯新村, 胡艳霞, 朱毅, 武菊英 (1158)

钒钛磁铁矿尾矿库复垦土地及周边土壤-玉米重金属迁移富集特征 孙厚云, 卫晓峰, 孙晓明, 贾凤超, 李多杰, 李健 (1166)

盐胁迫下八宝景天不同生态型对土壤中 Cd 积累特征 郭俊梅, 杨俊兴, 杨军, 万小铭, 孟晓飞, 陈同斌, 何孟轲, 周小勇, 徐铁兵 (1177)

水分条件对生物炭钝化水稻土铅镉复合污染的影响 汤家庆, 张绪, 黄国勇, 胡红青 (1185)

壳聚糖改性生物炭对水稻土甲基汞生成及其稻米积累的影响 杨雪玲, 王明星, 徐国敏, 王定勇 (1191)

铬污染对土壤细菌群落结构及其构建机制的影响 于皓, 安益君, 金德才, 靳拓, 王兴润 (1197)

研究报告

COVID-19 疫情期间京津冀大气污染物变化及影响因素分析 赵雪, 沈楠驰, 李令军, 武高峰, 陶静, 赵文吉 (1205)

2020 年初疫情管控对山东省空气质量影响的模拟 刘厚凤, 徐薇, 魏敏, 隋潇, 许鹏举, 李明燕, 张美根 (1215)

南京北郊 PM_{2.5} 中有机组分的吸光性质及来源 尚玥, 余欢, 茅宇豪, 王成, 谢鸣捷 (1228)

西安市大气棕碳污染特性及发色团种类 陈前, 陈庆彩 (1236)

淄博市道路尘颗粒物携带金属元素的来源与健康风险评价 郭清源, 白雯宇, 赵雪艳, 郭丽瑶, 王敬华, 耿春梅, 王晓雨, 王静, 杨文, 白志鹏 (1245)

北京市控制 PM_{2.5} 污染的健康效益评估 杜沛, 王建州 (1255)

西宁市大气污染来源和输送季节特征 刘娜, 余晔, 马学谦 (1268)

青岛近海不同污染过程下大气颗粒态氮磷浓度分布特征 袁刚, 祁建华, 丁雪 (1280)

基于走航监测的长三角工业园区周边大气挥发性有机物污染特征 王红丽, 高雅琴, 景盛翱, 楼晟荣, 胡馨遥, 安静宇, 吴宇航, 高伟, 朱亮, 黄成 (1298)

山地型城市冬季大气重污染过程特征及成因分析 刘伟诚, 牛月圆, 吴婧, 闫雨龙, 胡冬梅, 邱雄辉, 彭林 (1306)

兰-白城市群主要大气污染物网格化排放清单及来源贡献 王文鹏, 王占祥, 李继祥, 高宏, 黄韬, 毛潇萱, 马建民 (1315)

2012~2019 年北京市储油库 VOCs 去除及排放水平变化监测分析 华岚英, 崔彤, 李金香, 邹本东, 杨妍妍, 程刚 (1328)

生活垃圾无害化处理大气污染物排放清单 马占云, 姜显聪, 任佳雪, 张阳, 冯鹏, 高庆先, 孟丹 (1333)

长江口邻近海域表层沉积物中的细菌藎多醇及对低氧区的响应判别 尹美玲, 段丽琴, 宋金明, 张乃星 (1343)

鄱阳湖流域水体和水产品中苯酚的暴露特征及人体健康风险评估 徐倩云, 艾舜豪, 高祥云, 王晓南, 刘征涛, 赵师晴, 葛刚, 李霖 (1354)

衡水湖湿地水环境质量时空变化特征及污染源分析 刘魏魏, 郭子良, 王大安, 张曼胤, 张余广 (1361)

丹江口水库及其入库支流水体中微塑料组成与分布特征 潘雄, 林莉, 张胜, 翟文亮, 陶晶祥, 李丹文 (1372)

金盆水库暴雨径流时空演变过程及水质评价 黄诚, 黄廷林, 李扬, 李楠, 齐允之, 司凡, 华逢耀, 赵凌云 (1380)

汛期暴雨径流对饮用水水库溶解性有机质 (DOM) 光谱特征的影响 李程遥, 黄廷林, 温成成, 梁伟光, 林子深, 杨尚业, 李凯, 蔡晓春 (1391)

苏州古城区河道碳氮磷类污染物的分布特征 白冬锐, 张涛, 陈坦, 王洪涛, 金曦, 郑凯旋, 李忠磊, 杨婷, 金军 (1403)

娘子关泉群水化学特征及成因 唐春雷, 赵春红, 申豪勇, 梁永平, 王志恒 (1416)

过氧化钙重塑底泥对水中磷酸盐的吸附作用 徐楚天, 李大鹏, 王子良, 吴宇涵, 许鑫澎, 黄勇 (1424)

亚热带丘陵区绿狐尾藻人工湿地处理养猪废水氮磷去向 王丽莎, 李希, 李裕元, 张满意, 吴金水 (1433)

紫外/亚硫酸盐高级还原工艺加速降解水中难降解含碘造影剂 刘子奇, 仇付国, 赖曼婷, 李津, 董慧岭, 强志民 (1443)

太阳能热活化过硫酸盐降解染料罗丹明 B 的效能 马萌, 许路, 金鑫, 金鹏康 (1451)

一步法 La@MgFe₂O₄ 的制备及其吸附水中磷的性能 白润英, 宋博文, 张彧, 郝俊峰, 刘建明, 刘宇红 (1461)

工程规模长填龄渗滤液膜生物-纳滤组合设施各单元污染物去除效能 邵立明, 邓樱桃, 仇俊杰, 吕凡, 章骅, 何晶晶 (1469)

ANAMMOX 培养物中硫酸盐型氨氧化生物转化机制 毕贞, 董石语, 黄勇 (1477)

不同季节城市污水处理厂微生物群落特性 贺赞, 李魁晓, 王佳伟, 王慰, 樊鹏超, 陈行行, 王军静 (1488)

麻黄碱在斑马鱼体内的器官特异性蓄积及毒代动力学 殷行行, 郭昌胜, 邓洋慧, 邱紫雯, 张艳, 滕彦国, 徐建 (1496)

内蒙古白云鄂博矿区土壤稀土元素污染特征及评价 王哲, 赵莹晨, 骆逸飞, 郑春丽, 卞园, 张光宇 (1503)

广西典型岩溶区农田土壤-作物系统 Cd 迁移富集影响因素 马宏宏, 彭敏, 郭飞, 刘飞, 唐世琪, 杨峰, 张富贵, 周亚龙, 杨柯, 李括, 刘秀金 (1514)

超顺磁性纳米材料对镉污染稻田土壤微生物和酶的影响 方丹丹, 张立志, 王强 (1523)

水分管理与施硅对水稻根表铁膜及砷镉吸收的影响 陈佳, 赵秀兰 (1535)

四环素类抗生素对土壤-生菜系统的生物效应及其迁移降解特性 王卫中, 迟蕊琳, 徐卫红 (1545)

地膜覆盖对菜地垄沟 CH₄ 和 N₂O 排放的影响 熊维霞, 江长胜, 赵仲婧, 曾唯, 胡曼利, 涂婷婷, 陈俊江, 郝庆菊 (1559)

对比研究生物炭和秸秆对麦玉轮作系统 N₂O 排放的影响 唐占明, 刘杏认, 张晴雯, 李贵春 (1569)

流域生态空间管控下生境监测方法概述 阴琨, 刘海江, 王光, 金小伟 (1581)

《环境科学》征订启事 (1151) 《环境科学》征稿简则 (1342) 信息 (1402, 1415, 1580)

工程规模长填龄渗滤液膜生物-纳滤组合设施各单元污染物去除效能

邵立明^{1,2}, 邓樱桃^{1,2}, 仇俊杰^{1,2}, 吕凡^{1,2}, 章骅^{1,2}, 何晶晶^{1,2*}

(1. 上海污染控制与生态安全研究院, 上海 200092; 2. 同济大学固体废物处理与资源化研究所, 上海 200092)

摘要: 填埋场渗滤液性质复杂, 普遍采用生物处理与深度处理多单元串联工艺; 但是, 因缺乏对工程运行规模中各单元污染物处理贡献的评估数据, 使优化单元组合方式缺少理论依据。因此, 本文采用常规和荧光光谱指标结合的方法, 对以采用“膜生物反应器(membrane biological reactor, MBR) + 纳滤(nanofiltration, NF)”工艺、处理能力 $800 \text{ m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$ 的工程设施为对象, 分析该组合工艺各单元对长填龄渗滤液处理贡献; 同时, 利用三维荧光-平行因子分析方法(excitation emission matrix fluorescence spectroscopy-parallel factor, EEM-PARAFAC) 评估渗滤液中溶解性有机物(dissolved organic matters, DOM)性质的变化。结果表明, 生物处理阶段对溶解性氮(dissolved nitrogen, DN)去除贡献率为 74.7%, 其中一级反硝化单元对 DN 去除贡献率为 54.6%, 外置式超滤单元对溶解性化学需氧量(dissolved chemical oxygen demand, sCOD)和溶解性碳(dissolved organic carbon, DOC)降低贡献率分别为 92.2% 和 93.3%, 纳滤单元可有效去除重金属和盐分, 但能力有限。通过追踪长填龄渗滤液 DOM 变化发现, 一级反硝化单元可去除长填龄渗滤液中 75.4% 的类蛋白质物质, 超滤单元主要截留亲水性较高的 DOM, 而高芳香性的腐殖质主要通过纳滤截留, 腐殖化程度越高截留效果越好。研究结果提示, 处理长填龄渗滤液时, MBR 工艺生物处理单元可适当简化, 超滤单元则应预防堵塞。

关键词: 长填龄渗滤液; 溶解性有机物(DOM); 脱氮; 三维荧光-平行因子分析(EEM-PARAFAC); 除盐
中图分类号: X703.1 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2021)03-1469-08 DOI: 10.13227/j.hjkk.202007263

Pollutant Removal Efficiency of Different Units Along a Mature Landfill Leachate Treatment Process in a Membrane Biological Reactor-Nanofiltration Combined Facility

SHAO Li-ming^{1,2}, DENG Ying-tao^{1,2}, QIU Jun-jie^{1,2}, LÜ Fan^{1,2}, ZHANG Hua^{1,2}, HE Pin-jing^{1,2*}

(1. Shanghai Institute of Pollution Control and Ecological Security, Shanghai 200092, China; 2. Institute of Waste Treatment and Reclamation, Tongji University, Shanghai 200092, China)

Abstract: Properties of landfill leachate are complex. Therefore, leachate should be treated by combined processes with both biological and advanced methods. Due to the shortage of engineering-scale assessment data about the pollutant treatment contribution of individual process units, existing optimization methods still lack theoretical support. Here, a membrane biological reactor (MBR) + nanofiltration (NF) system with a capacity of $800 \text{ m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$ was examined. Conventional physiochemical parameters and fluorescent parameters were examined to analyze the contribution of each process unit to treating mature landfill leachate. Furthermore, the transformation of dissolved organic matter (DOM) was evaluated using excitation emission matrix fluorescence spectroscopy-parallel factor (EEMs-PARAFAC). Results showed that the biological treatment removed soluble nitrogen (dissolved nitrogen, DN) by 74.7%, 54.6% occurred in the first-stage denitrification unit. The external ultrafiltration unit reduced dissolved chemical oxygen demand (COD) and dissolved organic carbon (DOC) by 92.2% and 93.3%, respectively. The nanofiltration unit effectively removed heavy metals and salts. Based on the tracking of DOM using fluorescent parameters, the first-stage denitrification unit was found to remove 75.4% of protein-like substances. The ultrafiltration unit mainly retained DOM with high hydrophilicity, while humus with high aromaticity was mainly retained by nanofiltration. The higher the degree of humification, the better the interception effect that was obtained. This indicates that biological treatment using the MBR process can be simplified, and ultrafiltration should prove reliable at preventing clogging during the treatment of mature landfill leachate.

Key words: mature landfill leachate; dissolved organic matters (DOM); removal nitrogen; excitation emission matrix fluorescence spectroscopy-parallel factor (EEM-PARAFAC); desalination

生活垃圾填埋场渗滤液是一类组成复杂的污水, 其水质特征随填埋龄相应变化, 主要表现为: 随着填埋龄延长, 渗滤液的五日生化需氧量(biochemical oxygen demand after 5 Days, BOD_5)与化学需氧量(chemical oxygen demand, COD)的比值及碳氮的质量比值均会下降。因此, 长填(埋)龄(填

埋中后期)渗滤液可生物处理性降低, 其中, 特征性污染物为高浓度溶解性有机物和凯氏氮(Kjeldahl

收稿日期: 2020-07-28; 修订日期: 2020-08-28

基金项目: 国家重点研发计划项目(2018YFC1903700)

作者简介: 邵立明(1962~), 男, 教授, 博士生导师, 主要研究方向为固体废物处理与资源化, E-mail: slm0039@163.com

* 通信作者, E-mail: solidwaste@tongji.edu.cn

nitrogen, KN) 包括有机氮 (organic nitrogen, ON) 和氨氮 ($\text{NH}_4^+ - \text{N}$)^[1,2], 须经处理达标后才可排放到受纳水体。

目前, 已有大量研究探索生活垃圾填埋场渗滤液处理组合工艺及其处理效率^[3-5], 其中, 应用于工程规模的主流工艺主要为 MBR 与膜处理组合^[6-9]. MBR 可通过生物作用去除渗滤液中 90.3% ~ 99.5% 的 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ ^[3,10]. 此外, 由于长填龄渗滤液中的有机物以难生物降解物质为主^[2], 不适用于 MBR 处理. 膜处理可截留 MBR 不能去除的有机物、重金属及盐分^[11-14], 通常采用纳滤 (nanofiltration, NF)、反渗透 (reverse osmosis, RO) 或将二者串联, 其中 RO 处理效果最为显著, 但处理费用较高^[1]. 近期, 已有学者探究 MBR 与膜处理组合工艺的运行效果. Wang 等^[7] 的研究发现“MBR + NF”组合工艺对新鲜渗滤液总氮和 COD 的去除率分别为 90.4% 和 99.9%; Chen 等^[8] 的研究表明“MBR + RO”组合工艺对新鲜渗滤液和长填龄渗滤液混合污水的总氮和 COD 去除率均可达到 99% 以上. 但是, 现有工程规模的 MBR 和膜处理组合工艺存在处理流程复杂且冗长, 处理成本高等问题, 而已有研究注重组合工艺的整体处理能效, 却忽视了各单元处理效能, 或是只针对某类污染物去除效果而缺乏多指标的综合评估, 或只采用 COD 这类总量性的有机物指标. 而且, 针对长填龄渗滤液的处理效能评估更少. 因此, 为了提供长填龄渗滤液处理设施单元设计依据, 有必要开展对其工程规模设施各单元处理效能的评估研究。

渗滤液处理效能一般采用排放标准规定水质指标评价, 其中 COD 是一个关键指标. Bu 等^[4] 和 Liu 等^[5] 的研究发现渗滤液中 COD 的主要贡献者为溶解性有机物 (dissolved organic matters, DOM). 因分析便捷, 三维荧光光谱 (excitation emission matrix, EEM) 被广泛用于 DOM 分析^[13, 15, 16]. EEM 通过结合荧光区域积分或平行因子分析 (parallel factor analysis, PARAFAC) 等数据处理方法, 可实现 DOM 的快速识别 (如腐殖质、蛋白类和酚类化合物以及人造化学物等)^[17, 18]. 其中, EEMs-PARAFAC 已用于分析渗滤液处理过程中 DOM 变化^[6], 可为探讨长填龄渗滤液 DOM 的去除机制提供支撑。

据此, 本文以工程规模“MBR + NF”组合工艺设施为研究对象, 监测长填龄渗滤液在该设施各单元中主要水质指标变化情况; 同时, 采用 EEMs-PARAFAC 追踪分析长填龄渗滤液处理过程中 DOM 的转化, 通过评估处理工艺各单元对长填龄渗滤液中污染物的去除效能, 以为长填龄渗滤液处理及

同类工艺的优化应用提供理论依据。

1 材料与方法

1.1 样品采集

本文的研究对象为上海市某生活垃圾填埋场的渗滤液处理设施, 该填埋场已运行 11 a, 日均垃圾填埋量为 $2 \times 10^3 \sim 3 \times 10^3 \text{ t} \cdot \text{d}^{-1}$. 目前, 其处置垃圾的主要物理组分为有机垃圾 (22.3%), 纸类和塑料类分别占 23.6% 和 18.8%^[19]. 长填龄渗滤液处理设施设计规模为 $1000 \text{ m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$, 实际处理量约为 $800 \text{ m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$, 处理出水水质符合《GB/T 31962-2015 污水排入城镇下水道水质标准》要求. 渗滤液进行氨吹脱预处理, 调节氨氮浓度 $< 2500 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$; 而后进主体处理工艺“MBR + NF” (工艺流程, 如图 1), 其中生物反应工艺为两段反硝化-硝化, 膜生物反应器为外置式超滤. 为补充长填龄渗滤液反硝化碳源的不足, 该设施根据在线监测反硝化单元进水 COD/ ($\text{NH}_4^+ - \text{N} + \text{NO}_3^- - \text{N}$) 值, 投加甲醇、乙酸钠和葡萄糖的复合碳源, 由于渗滤液水质存在波动, 投加的碳源也相应变化, 本研究采样期间, 一级反硝化和二级反硝化平均的投加量分别为 $8.2 \text{ t} \cdot \text{d}^{-1}$ 和 $1.6 \text{ t} \cdot \text{d}^{-1}$. 除此之外, 为实现纳滤单元的高产水率, 一次纳滤处理后得到的浓缩液会进行二次纳滤浓缩。

在 2018 年 11 月、2019 年 1 月和 2019 年 3 月, 采集了 3 次水样, 每次采集 11 个水样 (S0 ~ S10), 取样点位置如图 1 所示, 该工艺进水 (S0) 水质如表 1 所示, 其 sCOD 和 DOC 浓度范围分别为 $2061 \sim 3083 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $685 \sim 1106 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 有机物含量高; B/C 为 $0.07 \sim 0.16$, 可生化性能差; 凯氮含量高 (KN 为 $1218 \sim 1883 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$), sCOD/DN 为 $1.10 \sim 1.59$, 与 Renou 等^[1] 归纳的长填龄渗滤液水质特征相符. 样品采集后, 在室温下经过 $0.45 \mu\text{m}$ 的聚醚砜膜过滤, 贮存于 4°C 冰箱中, 待进一步分析测试。

表 1 生物池进水渗滤液 (S0) 的水质理化特性

Table 1 Physical and chemical characteristics of landfill leachate (S0) before biological treatment

指标	波动范围	平均值
pH	8.40 ~ 8.85	8.57
$\text{BOD}_5 / \text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$	155 ~ 392	268
$\text{sCOD} / \text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$	2261 ~ 2788	2483
$\text{DOC} / \text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$	685 ~ 1106	841
$\text{NH}_4^+ - \text{N} / \text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$	1176 ~ 1839	1615
$\text{KN} / \text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$	1218 ~ 1883	1653
$\text{NO}_3^- - \text{N} / \text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$	77 ~ 182	141
$\text{DN} / \text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$	1424 ~ 2189	1858

1.2 基本理化性质分析

样品的水质分析指标包含 pH、 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 、KN、硝

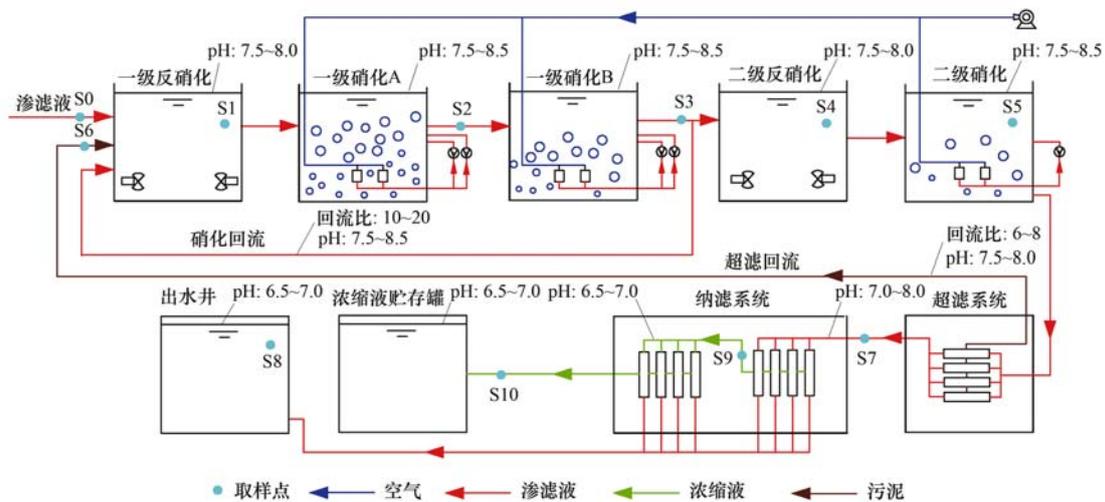


图1 长填龄渗滤液工程化处理流程示意

Fig. 1 Schematic diagram of engineering treatment of mature landfill leachate

态氮(NO_3^- -N)、溶解性氮(dissolved nitrogen, DN)、DOC、sCOD、 BOD_5 、盐分[包括电导率(electrical conductivity, EC)、 Cl^- 、 Na^+ 和 K^+]^[20]、重金属(As、Cr、Cd、Pb和Hg)、测试方法均参照美国水和废水标准分析方法^[21]。此外,本文中提及的有机氮(organic nitrogen, ON)为KN与 NH_4^+ -N的差值。

将样品的DOC浓度(以C计)稀释至 $10 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 以下,利用紫外分光光度计(UV-1800, SHIMADZU)测定254 nm的紫外吸收光度除以对应的DOC浓度得到特定波长紫外吸收指数(special UV absorbance, SUVA_{254})^[13]。

1.3 荧光光谱分析与数据处理

通过Cary Eclipse荧光分光光度计(Varian Inc., Palo, CA, USA)扫描水样,仪器运行操作参数设置,参考文献[22,23]的研究结果,激发波长(excitation, E_x)和发射波长(emission, E_m)范围分别调节至200~400 nm和280~520 nm,扫描步长分别为10 nm和5 nm。以超纯水(Milli-Q)作为空白对照扣除,通过除以对应样品DOC浓度对EEMs数据进行均一化^[23],利用DOMFlour toolbox^[18]进行PARAFAC分析。

生物指数(biological index, BIX)是指在 $E_x = 310 \text{ nm}$ 时, E_m 为380 nm和430 nm的荧光强度比值,该指标可以反映微生物活动所形成的溶解性有机物对总溶解性有机物的贡献^[24]。荧光指数(fluorescence index, FI)是指当 $E_x = 370 \text{ nm}$, E_m 为450 nm和500 nm荧光强度比值。FI指标可指示DOM与陆源、土壤源和水相生物源有机质的相似性^[25]。

1.4 数据处理

本研究中“MBR + NF”组合工艺对长填龄渗滤液的处理效能中各单元对某污染物的去除依据遵守该单元的物料守恒原则,去除率公式如式(1)所示。

为了体现各单元对该组合工艺处理长填龄渗滤液的贡献,文中提及的去除贡献率如式(2)。对于各单元进出水浓度变化是否显著以及两单元之间某类污染物浓度变化是否显著,均采用 T 检验实现。

$$\text{去除率} = \frac{\text{单元进水污染物} - \text{单元出水污染物}}{\text{单元进水污染物}} \times 100\% \quad (1)$$

$$\text{去除贡献率} = \frac{\text{单元去除的污染物}}{\text{组合工艺去除总的污染物}} \times 100\% \quad (2)$$

2 结果与讨论

2.1 各处理单元除碳脱氮的效能

处理设施各单元进出水位置取样的sCOD、DOC和 BOD_5 的测试结果见表2,以整个处理设施进(S0)出(S8)水为依据(见表1),sCOD、DOC和 BOD_5 的去除率分别为93.4%、98.7%和91.8%。因存在回流,实际进入第一个处理单元(一级反硝化)的混合水质为 $S0_m$,相应地上述去除率为92.4%、98.7%和69.9%。以 $S0_m$ 为基准,S1~S5所代表的各生物处理单元出水sCOD、DOC和 BOD_5 没有统计意义的差异($P > 0.05$)。可见,处理设施的生物处理单元基本没有除碳效果,这与长填龄渗滤液可降解有机物含量低的特性一致^[2],同时,也说明硝酸盐氮的多点投加碳源方式中的碳源得到充分利用,没有对除碳的宏观指标产生影响。超滤和纳滤单元对sCOD、DOC和 BOD_5 去除率分别为69.0%、75.6%、66.7%和74.8%、94.4%、约为0,表明MBR外置超滤单元的超滤膜在污泥反滤层协同下对DOM去除效果良好,同时,纳滤单元对小分子有机物处理效率高;因少量生物易降解有机物(BOD_5 可测量)以更小的分子形态存在,使纳滤单元对 BOD_5 去除不显著。

表 2 不同处理单元 sCOD、DOC 和 BOD₅ 变化¹⁾/mg·L⁻¹Table 2 Changes in sCOD, DOCs and BOD₅ in different treatment units/mg·L⁻¹

指标	S0 _m	S1	S2	S3	S4	S5	S7	S8
sCOD	2 220 ± 664	2 202 ± 650	2 206 ± 648	2 222 ± 660	2 202 ± 636	2 188 ± 629	671 ± 79	169 ± 43
DOC	819 ± 246	801 ± 250	804 ± 251	807 ± 248	812 ± 248	808 ± 259	197 ± 25	11 ± 6
BOD ₅	73 ± 27	79 ± 25	72 ± 27	63 ± 30	75 ± 44	63 ± 35	21 ± 11	22 ± 8

1) S0_m 为根据渗滤液进水(S0)、一级硝化 B 回流(S5)以及超滤回流(S6)三者流量计算的混合浓度,表中数据格式均为平均值 ± 标准差

处理设施各单元进出水位置取样的不同形态氮测试结果见表 3,以整个处理设施进(S0)出(S8)水为依据(见表 1),DN、NH₄⁺-N、NO₃⁻-N 和 ON 的去除率分别为 98.4%、99.7%、87.4% 和 68.4%;以 S0_m 为基准则为 88.9%、97.5%、43.3% 和 85.5%。因回流液稀释,以 S0_m 为基准各形态氮的去除率一般低于 S0 基准,但是,因超滤回流泥水混合物(S8)中 ON 浓度(105 mg·L⁻¹)高于 S0(38 mg·L⁻¹),使 ON 的去除率变化相反。除此之外,经检测未检出 NO₂⁻-N,因生化阶段各单元进水 NH₄⁺-N 最高的仅为 160 mg·L⁻¹(S0_m),硝化充分,NO₂⁻-N 不易累积。

以 S0_m 为基准,生物处理各单元 NH₄⁺-N 浓度单调下降,按生物处理段浓度下降占比,一级反硝化 46.2%、一级硝化 A 32.6%,其它单元略有下降,但

没有显著性差异($P > 0.20$); NO₃⁻-N 浓度呈波动状态,上升最明显为一级硝化 A 30.4%,下降最明显为二级反硝化 44.4%; ON 浓度同样波动,一级反硝化下降具非常显著性($P < 0.001$)为 36.1%。根据一级反硝化和二级反硝化的脱氮效能,结合 S1 ~ S5 各点 sCOD 无明显变化($P > 0.972$)可知,投加的碳源已被脱氮充分利用。以 S0 为基准,生物处理 DN 的浓度降低 1 736 mg·L⁻¹,占处理设施浓度降低值的 93.4%;该组合工艺对 DN 去除贡献最大是一级反硝化(占 54.6%),MBR 超滤单元 DN 的浓度降低了 51 mg·L⁻¹,对该工艺 DN 去除贡献为 24.4%,两者皆主要去除氮形态为 ON 和 NH₄⁺-N,其中超滤单元可能依靠超滤膜拦截有机物和污泥反滤层吸附 NH₄⁺-N;而纳滤单元 DN 浓度显著降低($P < 0.001$),去除形态以 ON 为主。

表 3 不同处理单元不同种类的氮变化¹⁾/mg·L⁻¹Table 3 Changes in N of different types in different treatment units/mg·L⁻¹

指标	S0 _m	S1	S2	S3	S4	S5	S7	S8
NH ₄ ⁺ -N	160 ± 14	86 ± 14	58 ± 28	44 ± 16	39 ± 10	35 ± 10	8 ± 5	4 ± 1
NO ₃ ⁻ -N	30 ± 4	24 ± 4	29 ± 8	32 ± 6	17 ± 3	12 ± 6	21 ± 2	17 ± 2
ON	83 ± 23	53 ± 23	59 ± 13	71 ± 13	77 ± 23	62 ± 3	31 ± 14	12 ± 4
DN	271 ± 31	158 ± 34	135 ± 34	137 ± 35	123 ± 19	122 ± 9	71 ± 6	30 ± 2

1) S0_m 同上,上述各不同氮物质均为溶解态,表中数据格式均为平均值 ± 标准差

2.2 各单元对 DOM 组分处理的贡献

表 4 为各采样点水样 SUVA₂₅₄、FI 和 BIX 的分析结果,以整个处理设施进(S0)出(S8)水为依据,上述三者分别提高了 16.9%、19.7% 和 71.6%,表明最终处理出水的 DOM 主要由微生物代谢活动生成,该结果与 Qiu 等的描述相似^[26]。有研究发现与 S0 SUVA₂₅₄ 值相似的长填龄渗滤液中腐殖质类(腐殖酸和富里酸)占 DOM 比例约为 45%~66%^[12,13],同时,从 FI 和 BIX 的值可知,长填龄渗滤液中的 DOM 以微生物源有机物为主^[9,24],这表明在长时间填埋过程中微生物的作用使有机物腐殖化程度增加^[2,27]。

长填龄渗滤液经一级反硝化单元后,SUVA₂₅₄ 明显下降($P < 0.05$),FI 和 BIX 无明显变化($P > 0.05$);由于该单元 sCOD 实际去除率低(见表 2)、回流比大、污泥浓度高(约 28 000 mg·L⁻¹),单元出水 SUVA₂₅₄ 低于各股回流液(S6 和 S3)。这表明

SUVA₂₅₄ 下降主要受回流混合的影响,同时,回流污泥对出水中 DOM 的吸附也是改变 SUVA₂₅₄ 的因素^[8]。S1 ~ S5 的各生物处理单元水样的 SUVA₂₅₄ 等 3 项指标没有显著变化($P > 0.05$),与 sCOD 等宏观指标的变化浮动相似(见表 2)。在超滤单元中,与超滤回流(S6)比较,超滤出水(S7)的 SUVA₂₅₄、FI 和 BIX 都有增加,其中 SUVA₂₅₄ 增加了 1.46 L·(mg·m)⁻¹,表明超滤主要截留渗滤液中芳香度较低的 DOM,结合此单元 sCOD 和 DOC 浓度显著下降($P < 0.05$),推测此类 DOM 是长填龄渗滤液中主要的有机物类别。经过纳滤处理,最终出水(S8) DOM 的 SUVA₂₅₄ 降低了 26.1%,而 FI 和 BIX 分别增加了 20.0% 和 93.1%,具有微生物代谢产物的明显特征,而芳香度低于一次浓缩液(S9)和最终浓缩液(S10)的 DOM,表明针对高芳香性的 DOM,纳滤处理更为有效^[9,28]。

表 4 不同取样点的 SUVA₂₅₄、BIX 和 FI 变化¹⁾Table 4 Changes in SUVA₂₅₄, BIX, and FI at different sampling points

指标	S0	S1	S2	S3	S4	S5
SUVA ₂₅₄ /L·(mg·m) ⁻¹	1.71 ± 0.27	1.19 ± 0.11	1.24 ± 0.10	1.25 ± 0.11	1.24 ± 0.13	1.24 ± 0.10
FI	1.95 ± 0.17	1.91 ± 0.16	1.96 ± 0.03	2.01 ± 0.10	1.94 ± 0.32	1.91 ± 0.06
BIX	0.81 ± 0.06	0.68 ± 0.05	0.65 ± 0.04	0.67 ± 0.04	0.68 ± 0.01	0.68 ± 0.05
指标	S6	S7	S8	S9	S10	
SUVA ₂₅₄ /L·(mg·m) ⁻¹	1.26 ± 0.10	2.72 ± 0.15	2.01 ± 0.62	2.70 ± 0.10	2.90 ± 0.09	
FI	1.82 ± 0.11	1.95 ± 0.03	2.34 ± 0.41	1.82 ± 0.03	1.84 ± 0.06	
BIX	0.69 ± 0.04	0.72 ± 0.04	1.39 ± 0.20	0.71 ± 0.04	0.64 ± 0.04	

1) SUVA₂₅₄ 的单位为 L·(mg·m)⁻¹, 表中数据格式均为平均值 ± 标准差

通过 EEMs-PARAFAC 分析得到 5 个荧光组分 (C1 ~ C5) 如图 2 所示, 其中 C1 为类蛋白质^[29], C2 为类腐殖质物质^[16], C3、C4 和 C5 为腐殖质类物质^[17], 分析结果获得的组分最大荧光强度 (F_{\max}) 变

化, 可判断荧光组分的去除或转化情况^[15]. 各取样点组分 F_{\max} 相对丰度如图 3(a) 所示, 在 S0 中 C3、C4 和 C5 三者的相对丰度和达到了 67.9%, 表明长填龄渗滤液中的 DOM 以腐殖质类物质为主.

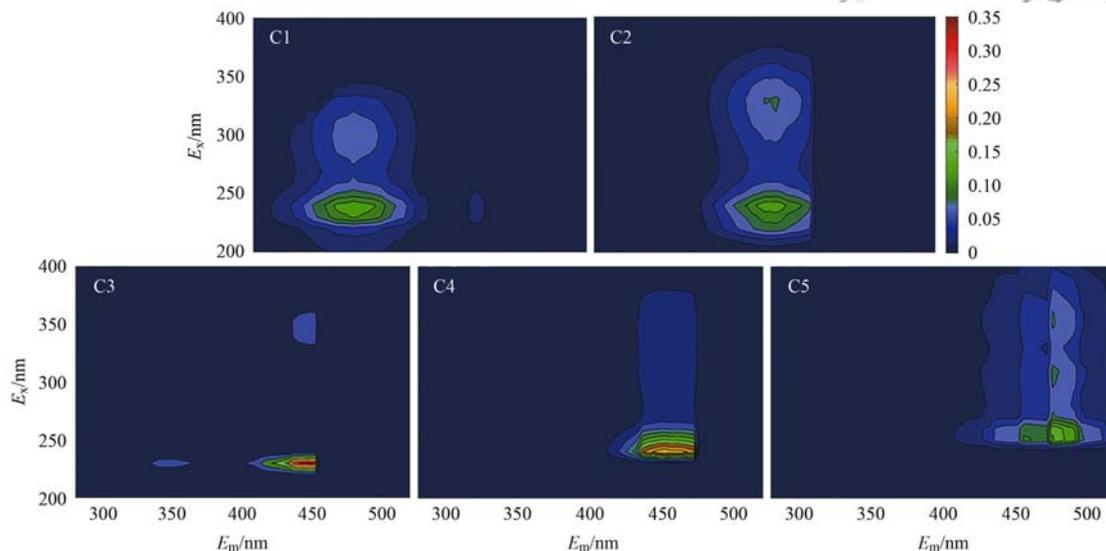


图 2 EEM-PARAFAC 获得的 5 个组分

Fig. 2 Five components acquired by EEM-PARAFAC

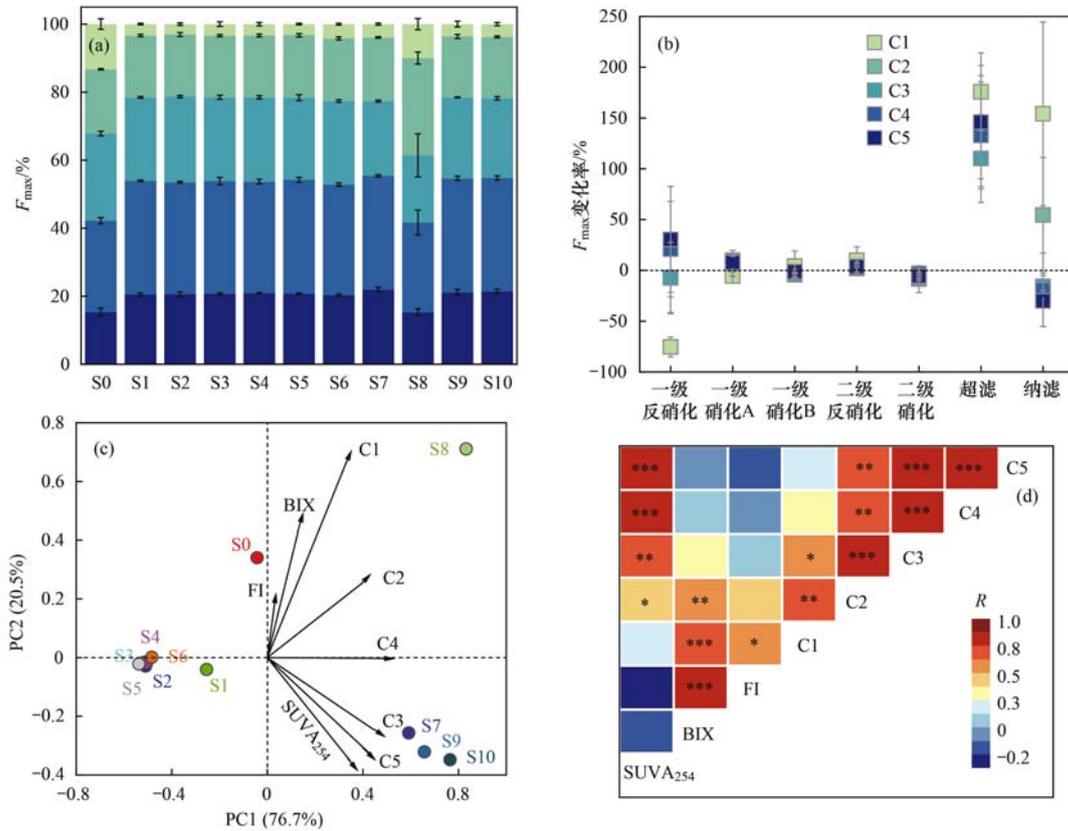
从图 3(b) 可见, 经过一级反硝化单元后, C4 和 C5 的荧光强度分别增加了 20.8% 和 30.4%, 表明它们可能是由微生物代谢转化形成的新腐殖质类化合物^[6], 而 C1 荧光强度降低了 75.4%, 可见该物质可被微生物利用^[29]. 同时, 在一级硝化 A 单元出水 (S2) 中, 腐殖化程度较高的 C2 ~ C5 均增加了 10% 左右, 从图 3(d) 可知, C2 ~ C5 与 SUVA₂₅₄ 呈正相关 ($R > 0.95, P < 0.05$), 可知通过一段缺氧和好氧处理渗滤液 DOM 芳香化程度加深.

超滤单元出水 (S7) 中 C1 ~ C5 的 F_{\max} 均显著增加, 而从图 3(c) 和图 3(d) 可见, C1 和 C2 与 BIX 呈正相关 ($R > 0.76, P < 0.01$), 同时 C1 还与 FI 呈正相关 ($R = 0.69, P = 0.02$), 可见超滤单元出水中的 DOM 主要为微生物生长代谢产物. C3 ~ C5 的 F_{\max} 增加, 表明超滤单元难以截留高芳香类化合物. 纳滤

单元出水 (S8) 中 C3、C4 和 C5 的荧光强度分别降低了 15.8%、19.1% 和 30.1%, 说明纳滤对腐殖化程度较强的 DOM 截留效果更佳. 但是, 纳滤对微生物代谢衍生的类蛋白质 C1 和类腐殖质 C2 没有截留效果^[30], 最终出水 DOM 主要是微生物代谢产物^[26].

2.3 各单元重金属及盐分变化

处理设施各单元进出水位置取样的重金属测试结果见表 5, 长填龄渗滤液中重金属浓度低^[1]. 各生物处理单元重金属浓度变化没有显著性 ($P > 0.05$). 超滤单元和纳滤单元对重金属均有一定的拦截作用, 这可能是由于膜上污泥和腐殖质胶体的吸附作用^[31]. 按测试均值计, 整个处理过程进出水的 As、Cr、Hg 和 Pb 去除率分别为 66.7%、99.4%、64.5% 和 88.9%.



F_{max} 为该取样点某组分 F_{max} 除以 5 个组分 F_{max} 之和, F_{max} 变化率为后一处理阶段某组分 F_{max} 减去前一阶段对应组分的 F_{max} 之差除以前一阶段对应组分的 F_{max} ; R 为 Pearson 相关系数, *、** 和 *** 分别表示 $P < 0.05$ 、 $P < 0.01$ 和 $P < 0.001$; (a) 不同取样点荧光组分的相对丰度, (b) 不同处理单元的 F_{max} 变化率, (c) DOM 特征主成分分析以及 (d) DOM 各类指标与 DOM 指标间的 Pearson 相关性

图 3 不同处理单元中荧光组分的特征及转化情况

Fig. 3 Characteristics and transformation of fluorescence components in different treatment units

表 5 不同取样点重金属浓度变化¹⁾/mg·L⁻¹

Table 5 Changes in heavy metal concentrations at different sampling points units/mg·L⁻¹

元素	S0	S1	S2	S3	S4	S5
As	0.03 ± 0.04	0.11 ± 0.12	0.09 ± 0.10	0.09 ± 0.05	0.09 ± 0.03	0.08 ± 0.02
Cd	NA	NA	NA	NA	NA	NA
Cr	0.13 ± 0.04	0.10 ± 0.08	0.10 ± 0.08	0.09 ± 0.06	0.09 ± 0.07	0.10 ± 0.09
Hg	0.76 ± 0.16	0.30 ± 0.06	0.23 ± 0.05	0.38 ± 0.17	0.36 ± 0.21	0.40 ± 0.21
Pb	0.02 ± 0.01	0.01 ± 0.01	0.01 ± 0.01	0.01 ± 0.02	0.01 ± 0.01	0.01 ± 0.02
元素	S6	S7	S8	S9	S10	
As	0.09 ± 0.04	0.02 ± 0.02	0.01 ± 0.01	0.13 ± 0.08	0.68 ± 0.17	
Cd	NA	NA	NA	NA	NA	
Cr	0.21 ± 0.15	0.03 ± 0.03	NA	0.30 ± 0.22	1.24 ± 0.03	
Hg	0.43 ± 0.14	0.23 ± 0.03	0.27 ± 0.09	0.27 ± 0.09	0.41 ± 0.06	
Pb	0.01 ± 0.01	0.01 ± 0.00	0.00 ± 0.00	0.01 ± 0.01	0.01 ± 0.02	

1) NA 表示低于检测限, Hg 单位为 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$

处理设施各单元进出水位置取样的盐分测试结果见表 6, 长填龄渗滤液具有高盐分特征 EC 达 $16.9 \text{ mS}\cdot\text{cm}^{-1}$, 该工艺对 EC、 Na^+ 、 K^+ 和 Cl^- 去除率分别 49.7%、16.1%、18.0% 和 12.8%。盐分浓度主要在一级反硝化、超滤和纳滤环节变化。一级反硝化和超滤单元 EC 下降, 但 Na^+ 、 K^+ 和 Cl^- 没有明显变化 ($P > 0.05$), 主要机制可能是 pH 变化沉淀和污泥反滤层吸附去除了碱土金属离子^[31]; 纳滤单元 EC

和 Na^+ 、 K^+ 均有所降低, 但纳滤浓缩液 (S10 水量, 约占 S7 水量的 4%) 中 Na^+ 和 K^+ 明显富集 ($P < 0.001$)^[11]。

2.4 各单元污染物处理效能分析

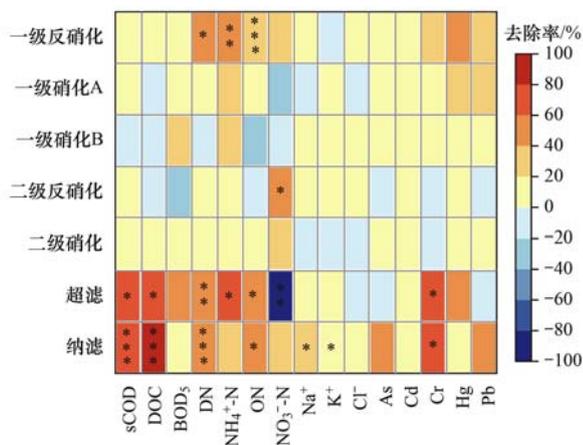
本研究中处理设施各单元污染物去除效能 (以 SO_m 为基准) 如图 4 所示。在脱氮除碳方面, 一级反硝化单元对长填龄渗滤液 DN 的去除率达到了 41.7%, 具有显著的脱氮能力 ($P < 0.05$), 去除的氮

表 6 不同取样点盐分含量变化¹⁾

Table 6 Changes in salinity concentration at different sampling points units

指标	S0	S1	S2	S3	S4	S5
EC/mS·cm ⁻¹	16.9 ± 2.2	9.4 ± 1.7	9.0 ± 1.4	9.1 ± 1.2	9.2 ± 1.1	9.1 ± 0.8
Na ⁺ /mg·L ⁻¹	604 ± 64	599 ± 55	606 ± 48	606 ± 47	598 ± 49	609 ± 43
K ⁺ /mg·L ⁻¹	657 ± 42	670 ± 63	661 ± 76	655 ± 60	646 ± 62	655 ± 60
Cl ⁻ /mg·L ⁻¹	2 563 ± 193	2 318 ± 53	2 382 ± 168	2 380 ± 194	2 295 ± 23	2 353 ± 94
指标	S6	S7	S8	S9	S10	
EC/mS·cm ⁻¹	10.0 ± 1.2	8.8 ± 0.4	8.5 ± 0.4	12.7 ± 2.5	35.8 ± 5.0	
Na ⁺ /mg·L ⁻¹	654 ± 61	608 ± 42	507 ± 85	785 ± 92	2 131 ± 298	
K ⁺ /mg·L ⁻¹	687 ± 81	618 ± 38	539 ± 52	891 ± 113	3 032 ± 251	
Cl ⁻ /mg·L ⁻¹	2 285 ± 55	2 307 ± 30	2 235 ± 25	3 472 ± 106	12 450 ± 1 325	

1) 表中数据格式均为平均值 ± 标准差



*、**和***分别表示 $P < 0.05$ 、 $P < 0.01$ 和 $P < 0.001$

图 4 在不同处理阶段污染物的去除效率及基于 T 检验污染物浓度变化

Fig. 4 Removal efficiency of contaminants in different treatment units analyzed using T -test

以 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 ON 为主, 该单元应存在反硝化和同步硝化. 依靠外加碳源, 二级反硝化单元对 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 去除显著 ($P < 0.05$); 同时, 超滤和纳滤单元对 DN 去除均具有显著性 ($P < 0.01$ 和 $P < 0.001$), 去除率分别为 41.8% 和 57.0%. sCOD 和 DOC 的主要去除单元为超滤和纳滤, 它们在这两个处理单元中的去除率分别为 69.7% 和 75.9% 以及 68.0% 和 74.7%, 但这两个单元易发生膜堵塞^[1,31]. 综上可知, 在工程化长填龄渗滤液处理过程中, 生物处理段的主要作用是脱氮, 主要贡献单元为反硝化, 而硝化单元作用相对不明显, 同时可能因处理流程过长, 污泥水解使 ON 累积而削弱脱氮作用. 超滤和纳滤是主要的除碳单元, 也对 DN 去除的具有一定的作用, 对于长填龄渗滤液处理不可或缺; 同时, 纳滤单元还可去除重金属和盐分, 但对于重金属而言, 因原水重金属浓度较低, 对出水达标没有影响. 可见, 长填龄渗滤液处理设施中生物处理段单元可简化, 建设时应设置超越管道, 根据填埋场渗滤液的阶段性特征灵活组合处理单元, 作为 MBR 工艺一部分的超滤单元污染

物去除负荷高, 但应设置充分的防堵塞措施.

3 结论

(1) 对 sCOD 、 DOC 和 BOD_5 的降低率分别为 93.4%、98.7% 和 91.8%, 其中超滤单元对 sCOD 和 DOC 的去除贡献最大分别为 92.2% 和 93.3%, 截留的 DOM 以亲水性低芳香类为主; 其次是一级反硝化单元对 sCOD 和 DOC 的去除贡献为 4.8% 和 6.0%, 去除的 DOM 主要为易降解物质如类蛋白质 C1 ; 纳滤单元对 sCOD 和 DOC 的去除贡献为 2.5% 和 2.5%, 截留芳香化程度较高的 DOM 如腐殖物质 $\text{C3} \sim \text{C5}$.

(2) 该工艺对 DN 、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 和 ON 的去除率分别为 98.4%、99.7%、87.4% 和 68.4%, 一级反硝化单元对 DN 的去除贡献最大达到了 54.6%, 其次是超滤单元为 24.4%, 而二级反硝化单元可显著去除 $\text{NO}_3^-\text{-N}$.

(3) 同时, 该工艺对重金属 As 、 Cr 、 Hg 和 Pb 去除率分别为 66.7%、99.4%、64.5% 和 88.9%, 而对 EC 、 Na^+ 、 K^+ 和 Cl^- 去除率分别为 49.7%、16.1%、18.0% 和 12.8%, 纳滤单元为重金属和盐分去除的主要贡献者.

(4) 对于长填龄渗滤液处理而言, 反硝化是主要的脱氮单元, 对于设置多段硝化的处理设施, 可适当减小硝化单元的段数. 对于除碳而言, 超滤和纳滤单元是必不可少的环节; 超滤除碳负荷最高, 但应预防堵塞.

参考文献:

- [1] Renou S, Givaudan J G, Poulain S, et al. Landfill leachate treatment: review and opportunity [J]. Journal of Hazardous Materials, 2008, 150(3): 468-493.
 - [2] 肖骁, 何小松, 席北斗, 等. 垃圾填埋水溶性有机物组成、演化及络合重金属特征[J]. 环境科学, 2017, 38(9): 3705-3712.
- Xiao X, He X S, Xi B D, et al. Composition, evolution, and complexation of dissolved organic matter with heavy metals in

- landfills[J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(9): 3705-3712.
- [3] Li H S, Zhou S Q, Sun Y B, *et al.* Advanced treatment of landfill leachate by a new combination process in a full-scale plant[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2009, **172**(1): 408-415.
- [4] Bu L, Wang K, Zhao Q L, *et al.* Characterization of dissolved organic matter during landfill leachate treatment by sequencing batch reactor, aeration corrosive cell-Fenton, and granular activated carbon in series[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2010, **179**(1-3): 1096-1105.
- [5] Liu Z P, Wu W H, Shi P, *et al.* Characterization of dissolved organic matter in landfill leachate during the combined treatment process of air stripping, Fenton, SBR and coagulation [J]. *Waste Management*, 2015, **41**: 111-118.
- [6] Yang X F, Meng L, Meng F G. Combination of self-organizing map and parallel factor analysis to characterize the evolution of fluorescent dissolved organic matter in a full-scale landfill leachate treatment plant[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **654**: 1187-1195.
- [7] Wang H, Cheng Z W, Sun Z Y *et al.* Molecular insight into variations of dissolved organic matters in leachates along China's largest A/O-MBR-NF process to improve the removal efficiency [J]. *Chemosphere*, 2020, **243**, doi: 10.1016/j.chemosphere.2019.125354.
- [8] Chen W M, Zhuo X C, He C, *et al.* Molecular investigation into the transformation of dissolved organic matter in mature landfill leachate during treatment in a combined membrane bioreactor-reverse osmosis process [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2020, **397**, doi: 10.1016/j.jhazmat.2020.122759.
- [9] Campagna M, Çakmakçı M, Yaman F B, *et al.* Molecular weight distribution of a full-scale landfill leachate treatment by membrane bioreactor and nanofiltration membrane[J]. *Waste Management*, 2013, **33**(4): 866-870.
- [10] 王凡, 陆明羽, 殷记强, 等. 反硝化-短程硝化-厌氧氨氧化工艺处理晚期垃圾渗滤液的脱氮除碳性能[J]. *环境科学*, 2018, **39**(8): 3782-3788.
- Wang F, Lu M Y, Yin J Q, *et al.* Treatment of old landfill leachate via a denitrification-partial nitrification-ANAMMOX process[J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(8): 3782-3788.
- [11] Trebouet D, Schlumpf J P, Jaouen P, *et al.* Stabilized landfill leachate treatment by combined physicochemical-nanofiltration processes[J]. *Water Research*, 2001, **35**(12): 2935-2942.
- [12] Wang H W, Wang Y N, Li X Y, *et al.* Removal of humic substances from reverse osmosis (RO) and nanofiltration (NF) concentrated leachate using continuously ozone generation-reaction treatment equipment [J]. *Waste Management*, 2016, **56**: 271-279.
- [13] Zhang Q Q, Tian B H, Zhang X, *et al.* Investigation on characteristics of leachate and concentrated leachate in three landfill leachate treatment plants[J]. *Waste Management*, 2013, **33**(11): 2277-2286.
- [14] Calabrò P S, Gentili E, Meoni C, *et al.* Effect of the recirculation of a reverse osmosis concentrate on leachate generation: a case study in an Italian landfill [J]. *Waste Management*, 2018, **76**: 643-651.
- [15] Cheng C, Wu J, You L D, *et al.* Novel insights into variation of dissolved organic matter during textile wastewater treatment by fluorescence excitation emission matrix [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2018, **335**: 13-21.
- [16] Tang G, Zheng X, Li X L, *et al.* Variation of effluent organic matter (EfOM) during anaerobic/anoxic/oxic (A²O) wastewater treatment processes[J]. *Water Research*, 2020, **178**, doi: 10.1016/j.watres.2020.115830.
- [17] Chen W, Westerhoff P, Leenheer J A, *et al.* Fluorescence excitation-emission matrix regional integration to quantify spectra for dissolved organic matter [J]. *Environmental Science & Technology*, 2003, **37**(24): 5701-5710.
- [18] Stedmon C A, Bro R. Characterizing dissolved organic matter fluorescence with parallel factor analysis: a tutorial [J]. *Limnology and Oceanography: Methods*, 2008, **6**(11): 572-579.
- [19] Feng S J, Gao K W, Chen Y X, *et al.* Geotechnical properties of municipal solid waste at Laogang Landfill, China [J]. *Waste Management*, 2017, **63**: 354-365.
- [20] Lončar M, Zupančič M, Bukovec P, *et al.* Fate of saline ions in a planted landfill site with leachate recirculation[J]. *Waste Management*, 2010, **30**(1): 110-118.
- [21] APHA AWWA, WPCF. Standard methods for the examination of water and wastewater[M]. Washington, DC, USA: American Public Health Association (APHA), 2005. 100-508.
- [22] Lu F, Chang C H, Lee D J, *et al.* Dissolved organic matter with multi-peak fluorophores in landfill leachate [J]. *Chemosphere*, 2009, **74**(4): 575-582.
- [23] Wu J, Zhang H, He P J, *et al.* Insight into the heavy metal binding potential of dissolved organic matter in MSW leachate using EEM quenching combined with PARAFAC analysis [J]. *Water Research*, 2011, **45**(4): 1711-1719.
- [24] Huguet A, Vacher L, Relexans S, *et al.* Properties of fluorescent dissolved organic matter in the Gironde Estuary [J]. *Organic Geochemistry*, 2009, **40**(6): 706-719.
- [25] Mcknight D M, Boyer E W, Westerhoff P K, *et al.* Spectrofluorometric characterization of dissolved organic matter for indication of precursor organic material and aromaticity [J]. *Limnol Oceanogr*, 2001, **46**(1): 38-48.
- [26] Qiu J J, Lü F, Zhang H, *et al.* Persistence of native and bio-derived molecules of dissolved organic matters during simultaneous denitrification and methanogenesis for fresh waste leachate[J]. *Water Research*, 2020, **175**, doi: 10.1016/j.watres.2020.115705.
- [27] Comstock S E H, Boyer T H, Graf K C, *et al.* Effect of landfill characteristics on leachate organic matter properties and coagulation treatability[J]. *Chemosphere*, 2010, **81**(7): 976-983.
- [28] Zhang B L, Shan C, Hao Z N, *et al.* Transformation of dissolved organic matter during full-scale treatment of integrated chemical wastewater: molecular composition correlated with spectral indexes and acute toxicity [J]. *Water Research*, 2019, **157**: 472-482.
- [29] Henderson R K, Baker A, Murphy K R, *et al.* Fluorescence as a potential monitoring tool for recycled water systems: a review [J]. *Water Research*, 2009, **43**(4): 863-881.
- [30] Francisco N C, Caixach J. Molecular characterization of dissolved organic matter through a desalination process by high resolution mass spectrometry [J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, **47**(17): 9619-9627.
- [31] Meng F G, Chae S R, Drews A, *et al.* Recent advances in membrane bioreactors (MBRs): membrane fouling and membrane material[J]. *Water Research*, 2009, **43**(6): 1489-1512.

CONTENTS

Industrial Emission Characteristics and Control Countermeasures of VOCs in Chinese Rapid Economic Development Areas	MENG Bo-wen, LI Yong-bo, MENG Jing, <i>et al.</i>	(1023)
VOCs Emission Inventory and Variation Characteristics of Artificial Sources in Hubei Province in the Yangtze River Economic Belt	DAI Ling-wen, MENG Jing, LI Qian-qian, <i>et al.</i>	(1039)
Sources and Distribution Characteristics of HCBd in Rapid Economic Development Areas	TAO Yu-ming, MENG Jing, LI Qian-qian, <i>et al.</i>	(1053)
Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Surface Soil of China (2000-2020): Temporal and Spatial Distribution, Influencing Factors	MA Yan, CHENG Lu, RUAN Zi-yuan, <i>et al.</i>	(1065)
Relationships Between Microplastic and Surrounding Soil in an E-Waste Zone of China	CHAI Bing-wen, YIN Hua, WEI Qiang, <i>et al.</i>	(1073)
Analysis of the Spatial Distribution of Heavy Metals in Soil from a Coking Plant and Its Driving Factors	GU Gao-quan, WAN Xiao-ming, ZENG Wei-bin, <i>et al.</i>	(1081)
Source Apportionment and Spatial Distribution Simulation of Heavy Metals in a Typical Petrochemical Industrial City	SUN Xue-fei, ZHANG Li-xia, DONG Yu-long, <i>et al.</i>	(1093)
Heavy Metal Contents of Soil and Surface Dust and Its Ecological Risk Analysis in a Multifunctional Industrial Park	ZENG Wei-bin, GU Gao-quan, WAN Xiao-ming, <i>et al.</i>	(1105)
Geochemical Patterns and Source Analysis of Soil Heavy Metals in an Iron and Manganese Ore Area of Longyan City	WANG Rui, CHEN Nan, ZHANG Er-xi, <i>et al.</i>	(1114)
Application Case of Accurate Site Investigation with Life-Cycle Conceptual Site Model Development	LI Pei-zhong, WU Nai-jin, WANG Hai-jian, <i>et al.</i>	(1123)
Levels and Risk Assessment of Short and Medium-Chain Chlorinated Paraffins in Soil from Paper Mill Area	ZHANG Pei-xuan, GAO Li-rong, SONG Shi-jie, <i>et al.</i>	(1131)
Characterization and Health Risks of PCDD/Fs, PCBs, and PCNs in the Soil Around a Typical Secondary Copper Smelter	HU Ji-cheng, WU Jing, XU Chen-yang, <i>et al.</i>	(1141)
Effect of Citric Acid and Phosphorus Coexistence on Cadmium Adsorption by Soil	SONG Zi-teng, ZUO Ji-chao, HU Hong-qing, <i>et al.</i>	(1152)
Uptake and Accumulation of Cadmium and Zinc by Two Energy Grasses; A Field Experiment	ZHENG Rui-lun, SHI Dong, LIU Wen-ju, <i>et al.</i>	(1158)
Bioaccumulation and Translocation Characteristics of Heavy Metals in a Soil-Maize System in Reclaimed Land and Surrounding Areas of Typical Vanadium-Titanium Magnetite Tailings	SUN Hou-yun, WEI Xiao-feng, SUN Xiao-ming, <i>et al.</i>	(1166)
Cd Accumulation Characteristics in Different Populations of <i>Hylotelephium spectabile</i> Under Salt Stress	GUO Jun-mei, YANG Jun-xing, YANG Jun, <i>et al.</i>	(1177)
Effect of Water Regimes on Pb and Cd Immobilization by Biochar in Contaminated Paddy Soil	TANG Jia-qing, ZHANG Xu, HUANG Guo-yong, <i>et al.</i>	(1185)
Effects of Chitosan-modified Biochar on Formation of Methylmercury in Paddy Soils and Its Accumulation in Rice	YANG Xue-ling, WANG Ming-xing, XU Guo-min, <i>et al.</i>	(1191)
Effects of Chromium Pollution on Soil Bacterial Community Structure and Assembly Processes	YU Hao, AN Yi-jun, JIN De-cai, <i>et al.</i>	(1197)
Analysis of Changes and Factors Influencing Air Pollutants in the Beijing-Tianjin-Hebei Region During the COVID-19 Pandemic	ZHAO Xue, SHEN Nan-chi, LI Ling-jun, <i>et al.</i>	(1205)
Impact of Pollutant Emission Reduction on Air Quality During the COVID-19 Pandemic Control in Early 2020 Based on RAMS-CMAQ	LIU Hou-feng, XU Wei, WEI Min, <i>et al.</i>	(1215)
Light-absorbing Properties and Sources of PM _{2.5} Organic Components at a Suburban Site in Northern Nanjing	SHANG Yue, YU Huan, MAO Yu-hao, <i>et al.</i>	(1228)
Pollution Characteristics and Chromophore Types of Brown Carbon in Xi'an	CHEN Qian, CHEN Qing-cai, <i>et al.</i>	(1236)
Source and Health Risk Assessment of PM _{2.5} -Bound Metallic Elements in Road Dust in Zibo City	GUO Qing-yuan, BAI Wen-yu, ZHAO Xue-yun, <i>et al.</i>	(1245)
Health Benefit Assessment of PM _{2.5} Pollution Control in Beijing	DU Pei, WANG Jian-zhou, <i>et al.</i>	(1255)
Seasonal Characteristics of Air Pollutant Sources and Transport Pathways in Xining City	LIU Na, YU Ye, MA Xue-qian, <i>et al.</i>	(1268)
Concentrations and Patterns of Atmospheric Particulate Nitrogen and Phosphorus During Different Weather Conditions in Qingdao Coastal Region	YUAN Gang, QI Jian-hua, DING Xue, <i>et al.</i>	(1280)
Characterization of Volatile Organic Compounds (VOCs) Using Mobile Monitoring Around the Industrial Parks in the Yangtze River Delta Region of China	WANG Hong-li, GAO Ya-qin, JING Sheng-ao, <i>et al.</i>	(1298)
Characteristics and Cause Analysis of Heavy Air Pollution in a Mountainous City During Winter	LIU Zhuo-cheng, NIU Yue-yuan, WU Jing, <i>et al.</i>	(1306)
Gridded Emission Inventories of Major Criteria Air Pollutants and Source Contributions in Lan-Bai Metropolitan Area, Northwest China	WANG Wen-peng, WANG Zhan-xiang, LI Ji-xiang, <i>et al.</i>	(1315)
VOCs Removal and Emission Monitoring of Beijing Bulk Gasoline Terminals in 2012-2019	HUA Lan-ying, CUI Tong, LI Jin-xiang, <i>et al.</i>	(1328)
Emission Inventory of Air pollutants for the Harmless Treatment of Municipal Solid Waste	MA Zhan-yun, JIANG Yu-cong, REN Jia-xue, <i>et al.</i>	(1333)
Response of Bacteriophage-polysylls to Hypoxic Conditions in the Surface Sediments of the Yangtze Estuary and Its Adjacent Areas	YIN Mei-ling, DUAN Li-qin, SONG Jin-ming, <i>et al.</i>	(1343)
Human Health Risk Assessment of Phenol in Poyang Lake Basin	XU Qian-yun, AI Shun-hao, GAO Xiang-yun, <i>et al.</i>	(1354)
Spatial-Temporal Variation of Water Environment Quality and Pollution Source Analysis in Hengshui Lake	LIU Wei-wei, GUO Zi-liang, WANG Da-an, <i>et al.</i>	(1361)
Composition and Distribution Characteristics of Microplastics in Danjiangkou Reservoir and Its Tributaries	PAN Xiong, LIN Li, ZHANG Sheng, <i>et al.</i>	(1372)
Temporal and Spatial Evolution of Storm Runoff and Water Quality Assessment in Jinpen Reservoir	HUANG Cheng, HUANG Ting-lin, LI Yang, <i>et al.</i>	(1380)
Influence of Storm Runoff on the Spectral Characteristics of Dissolved Organic Matter (DOM) in a Drinking Water Reservoir During the Flood Season	LI Cheng-yao, HUANG Ting-lin, WEN Cheng-cheng, <i>et al.</i>	(1391)
Distribution Characteristics of Carbon, Nitrogen, and Phosphorus Bearing Pollutants in the Ancient Town Rivers of Suzhou	BAI Dong-rui, ZHANG Tao, CHEN Tan, <i>et al.</i>	(1403)
Chemical Characteristics and Causes of Groups Water in Niangziguan Spring	TANG Chun-lei, ZHAO Chun-hong, SHEN Hao-yong, <i>et al.</i>	(1416)
Adsorption Behavior of Phosphate by CaO ₂ Remolded Sediment	XU Chu-tian, LI Da-peng, WANG Zi-liang, <i>et al.</i>	(1424)
Nitrogen and Phosphorus Removal in Surface Flow Constructed Wetland Planted with <i>Myriophyllum elatinooides</i> Treating Swine Wastewater in Subtropical Central China	WANG Li-sha, LI Xi, LI Yu-yuan, <i>et al.</i>	(1433)
Accelerated Degradation of Aqueous Recalcitrant Iodinated Contrasting Media Using a UV/SO ₃ ²⁻ Advanced Reduction Process	LIU Zi-qi, QIU Fu-guo, LAI Man-ting, <i>et al.</i>	(1443)
Degradation of Dye Rhodamine B by Solar Thermally Activated Persulfate	MA Meng, XU Lu, JIN Xin, <i>et al.</i>	(1451)
One-step Preparation of Lanthanum-Magnesium Ferrite and Its Phosphate Adsorption Capacity in Aqueous Solutions	BAI Run-ying, SONG Bo-wen, ZHANG Yu, <i>et al.</i>	(1461)
Pollutant Removal Efficiency of Different Units Along a Mature Landfill Leachate Treatment Process in a Membrane Biological Reactor-Nanofiltration Combined Facility	SHAO Li-ming, DENG Ying-tao, QIU Jun-jie, <i>et al.</i>	(1469)
Biological Conversion Mechanism of Sulfate Reduction Ammonium Oxidation in ANAMMOX Consortia	BI Zhen, DONG Shi-yu, HUANG Yong, <i>et al.</i>	(1477)
Microbial Community Structure of Waste Water Treatment Plants in Different Seasons	HE Yun, LI Kui-xiao, WANG Jia-wei, <i>et al.</i>	(1488)
Organ-Specific Accumulation and Toxicokinetics of Ephedrine in Adult Zebrafish (<i>Danio rerio</i>)	YIN Xing-xing, GUO Chang-sheng, DENG Yang-hui, <i>et al.</i>	(1496)
Characteristics and Evaluation of Soil Rare Earth Element Pollution in the Bayan Obo Mining Region of Inner Mongolia	WANG Zhe, ZHAO Ying-chen, LUO Yi-fei, <i>et al.</i>	(1503)
Factors Affecting the Translocation and Accumulation of Cadmium in a Soil-Crop System in a Typical Karst Area of Guangxi Province, China	MA Hong-hong, PENG Min, GUO Fei, <i>et al.</i>	(1514)
Effects of Superparamagnetic Nanomaterials on Soil Microorganisms and Enzymes in Cadmium-Contaminated Paddy Fields	FANG Dan-dan, ZHANG Li-zhi, WANG Qiang, <i>et al.</i>	(1523)
Effects of Water Management and Silicon Application on Iron Plaque Formation and Uptake of Arsenic and Cadmium by Rice	CHEN Jia, ZHAO Xiu-lan, <i>et al.</i>	(1535)
Biological Effect of Tetracycline Antibiotics on a Soil-Lettuce System and Its Migration Degradation Characteristics	WANG Wei-zhong, CHI Sun-lin, XU Wei-hong, <i>et al.</i>	(1545)
Effect of Plastic Film Mulching on Methane and Nitrous Oxide Emissions from the Ridges and Furrows of a Vegetable Field	XIONG Wei-xia, JIANG Chang-sheng, ZHAO Zhong-jing, <i>et al.</i>	(1559)
Effects of Biochar and Straw on Soil N ₂ O Emission from a Wheat Maize Rotation System	TANG Zhan-ming, LIU Xing-ren, ZHANG Qing-wen, <i>et al.</i>	(1569)
Overview on Habitat Monitoring Methods Under Watershed Ecological Space Management	YIN Kun, LIU Hai-jiang, WANG Guang, <i>et al.</i>	(1581)