

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV
HUANJING KEXUE

2000~2018年我国大气重金属沉降通量时空变化特征

陈其永, 郜允兵, 倪润祥, 潘瑜春, 阎跃观, 杨晶, 刘孝阳, 顾晓鹤



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2022年9月

第43卷 第9期
Vol.43 No.9

目次

2000~2018年我国大气重金属沉降通量时空变化特征	陈其永, 郇允兵, 倪润祥, 潘瑜春, 阎跃观, 杨晶, 刘孝阳, 顾晓鹤 (4413)
面向二/三维城市形态指标的 PM _{2.5} 浓度调控模拟	李莎, 邹滨, 刘宁, 冯徽徽, 陈军, 张鸿辉 (4425)
减排背景下成都大气 PM _{2.5} 碳质组分特征	陈璐瑶, 于阳春, 黄小娟, 董贵明, 张军科 (4438)
青岛秋冬季 PM ₁ 中金属元素污染特征及健康风险评估	刘子杨, 张宜升, 张厚勇, 马子轸, 陶文鑫, 王娇, 薛莲, 彭倩倩, 杜金花, 赵娇娇, 彭亮, 孙英杰 (4448)
港口地区大气 PM _{2.5} 中多环芳烃污染特征及来源分析	王鹏程, 杨凌霄, 别淑君, 黄琦, 齐安安, 虞雄, 王滢铭, 徐鹏, 张天琪, 王文兴 (4458)
天津市冬季道路颗粒物粒径分布及来源解析	张国涛, 殷宝辉, 白雯宇, 郭丽瑶, 王智宇, 张楠, 郑镇森, 张利文, 杨文, 韩斌, 白志鹏 (4467)
北京市生物源一次气溶胶浓度变化特征及影响因素	梁林林, 刘畅, 刘旭艳, 徐婉筠, 张根, 程红兵, 刘雨思 (4475)
北京市城区夏季 VOCs 变化特征分析与来源解析	孟祥来, 孙扬, 廖婷婷, 张琛, 张成影 (4484)
东莞工业集中区夏季臭氧污染与非污染期间 VOCs 组分特征及其来源	周振, 肖林海, 费蕾蕾, 余纬, 林满, 黄筠筠, 张智胜, 陶俊 (4497)
生活垃圾填埋场恶臭污染的时空变化与膜阻隔效果	何品晶, 李健晨, 吕凡, 章骅, 邵立明 (4506)
不同年份太湖水域全氟化合物健康风险源解析对比	武婷, 孙善伟, 樊境朴, 鲁富蕾, 郭昌胜, 徐建 (4513)
沱江流域典型及新兴全氟/多氟化合物的污染特征及来源解析	宋娇娇, 汪艺梅, 孙静, 方淑红 (4522)
白洋淀不同类型水体表层沉积物重金属的赋存形态及风险	许梦雅, 张超, 单保庆, 刘操 (4532)
喹诺酮类抗生素在城市典型水环境中的分配系数及其主要环境影响因子	剧泽佳, 付雨, 赵鑫宇, 陈慧, 宋圆梦, 赵波, 张纪媛, 卢梦洪, 崔建升, 张璐璐 (4543)
石家庄地下水中喹诺酮类抗生素生态风险及其与环境因子的相关性	陈慧, 剧泽佳, 赵鑫宇, 付雨, 崔建升, 张璐璐 (4556)
不同淹水环境下湖泊沉积物 DOM 的特征与来源	陈佳, 李忠武, 金昌盛, 文佳骏, 聂小东, 王磊 (4566)
晋城市沁河流域秋季浮游植物群落结构特征及其与环境因子的关系	高梦蝶, 李艳粉, 李艳利, 孙昂, 田爽, 张春晖, 耿亚平, 李林霞 (4576)
不同配置绿色屋顶径流水质特征及综合评价	章孙逊, 张守红, 闫婧, 王任重远, 杨航 (4587)
紫外光化过硫酸盐降解磷酸氯喹	李阳, 许玻琨, 邓琳, 罗伟 (4597)
微气泡臭氧氧化预处理实际制药废水去除 SS 和有机物性能	刘春, 陈蕊, 张静, 杨旭, 陈晓轩, 郭延凯, 武明泽, 庞勃 (4608)
废水排放对近海环境中抗生素抗性基因和微生物群落的影响	陈嘉瑜, 苏志国, 姚鹏城, 黄备, 张永明, 温东辉 (4616)
生物炭和秸秆还田对微咸水滴灌棉田土壤真菌群落结构多样性的影响	郭晓雯, 陈静, 鲁晓宇, 李远, 陶一凡, 闵伟 (4625)
有机物料投入对喀斯特地区土壤磷素赋存形态与含 <i>phoD</i> 基因细菌群落的影响	夏鑫, 乔航, 孙琪, 刘坤平, 陈香碧, 何寻阳, 胡亚军, 苏以荣 (4636)
煤矿矿区复垦植被类型对土壤微生物功能基因和酶活的影响	宁岳伟, 刘勇, 张红, 李君剑 (4647)
生物炭施用对黄壤土壤养分及酶活性的影响	袁访, 李开钰, 杨慧, 邓承佳, 梁红, 宋理洪 (4655)
黄河源区斑块化退化高寒草甸土壤细菌群落多样性变化	孙华方, 李希来, 金立群, 赵玉蓉, 李成一, 张静, 宋梓涵, 苏晓雪, 刘凯 (4662)
模拟氮沉降对三江平原小叶章湿地土壤微生物碳源利用能力的影响	翁晓虹, 隋心, 李梦莎, 刘赢男, 张荣涛, 杨立宾 (4674)
石家庄市土壤中喹诺酮类抗生素空间分布特征及其与微生物群落相关性	赵鑫宇, 剧泽佳, 陈慧, 付雨, 宋圆梦, 赵波, 张纪媛, 卢梦洪, 崔建升, 张璐璐 (4684)
典型氧化还原环境中微塑料表面的微生物群落组成特征与构建机制	龚志伟, 马杰, 苏趋, 林亚楠, 董鑫磊, 周立昌, 王宗平, 郭刚 (4697)
作物秸秆材料处理养殖废水中氮的周年去除效果及其对氮循环微生物丰度的影响	刘铭羽, 夏梦华, 蒋磊, 彭健, 陈坤, 赵聪芳, 李希, 孟岑, 曾睿, 王栋, 李裕元, 吴金水 (4706)
不同外碳源对尾水极限脱氮性能及微生物群落结构的影响	王伟, 赵中原, 张鑫, 由志鹏, 黄子晋, 彭永臻 (4717)
总氮提标改造工程的微生物群落结构分析	李海松, 王柯丹, 陈晓蕾, 阎登科, 许子聪, 胡培基 (4727)
IFAS 工艺处理南方低碳源污水的泥膜微生物互作规律分析	赫俊国, 江伟勋, 何卓义, 刘新平, 吴世华, 储昭瑞, 冯杰 (4736)
黄土高原土地利用方式对微塑料丰度和形态分布的影响	郝永丽, 胡亚鲜, 白晓雄, 郭胜利 (4748)
南方丘陵区土壤重金属含量、来源及潜在生态风险评价	王玉, 辛存林, 于爽, 薛红蕾, 曾鹏, 孙平安, 刘凡 (4756)
兰州市耕地“五毒”重金属的风险评价与归因分析	张利瑞, 彭鑫波, 马延龙, 康乐, 张妍娥, 王泉灵, 张松林 (4767)
石家庄市栾城区农田土壤重金属分布特征及作物风险评价	孟晓飞, 郭俊梅, 杨俊兴, 郑国砥, 陈同斌, 刘杰 (4779)
典型城市土壤中重金属锑(Sb)的含量分布特征及风险评价	沈城, 叶文娟, 钱诗颖, 吴健, 朱旭东, 王敏 (4791)
有色金属矿业城市典型村镇土壤重金属污染评价及来源解析	汪峰, 黄言欢, 李如忠, 吴鸿飞 (4800)
柠檬酸及刈割强化象草修复镉污染土壤的效应	唐棋, 伍港繁, 辜娇峰, 周航, 曾鹏, 廖柏寒 (4810)
稻田干湿过程甲基化效率变化与关键影响因素分析	张玥, 李令仪, 文炯, 曾希柏, 苏世鸣 (4820)
外源茉莉酸对水稻幼苗根系砷积累及抗逆应答效应	李颜, 黄益宗, 保琼莉, 黄永春, 张盛楠 (4831)
秸秆还田配施化肥对土壤养分及冬小麦产量的影响	宋佳杰, 徐郁阳, 白金泽, 于琦, 程伯豪, 冯永忠, 任广鑫 (4839)
冬季绿肥对黄土高原旱作春玉米农田土壤温室气体排放的影响	张少宏, 王俊, 方震文, 付鑫 (4848)
庞泉沟自然保护区土壤呼吸空间分异性影响因素探索	李晓敏, 严俊霞, 杜自强, 王琰 (4858)
小型养殖塘水体中 CH ₄ 、CO ₂ 和 N ₂ O 浓度的时空变化特征及影响因素	石婕, 张弥, 邱吉丽, 万梓文, 赵若男, 谢燕红, 陈明健, 赵佳玉, 肖薇, 刘寿东 (4867)
丁基黄药对选矿区土壤吸附铅镉的影响	胡志浩, 郭朝晖, 冉洪珍, 肖细元, 彭驰, 李钰滢 (4878)
秸秆生物炭吸附对乙酰氨基酚的机制及其位能分布特征	商岑尧, 顾若婷, 张强, 谢慧芳, 王冰玉 (4888)
黄土高原地区生态脆弱性时空变化及其驱动因子分析	张良侠, 樊江文, 张海燕, 周德成 (4902)
植物促生菌在重金属生物修复中的作用机制及应用	马莹, 王玥, 石孝均, 陈新平, 李振轮 (4911)
《环境科学》征订启事(4512) 《环境科学》征稿简则(4735) 信息(4696, 4790, 4887)	

作物秸秆材料处理养殖废水中氮的周年去除效果及其对氮循环微生物丰度的影响

刘铭羽^{1,2}, 夏梦华^{1,2}, 蒋磊^{1,2}, 彭健^{1,2}, 陈坤^{1,3}, 赵聪芳^{1,3}, 李希^{1*}, 孟岑¹, 曾睿⁴, 王栋⁴, 李裕元¹, 吴金水¹

(1. 中国科学院亚热带农业生态研究所亚热带农业生态过程重点实验室, 长沙 410125; 2. 中国科学院大学, 北京 100049; 3. 湖南师范大学资源与环境科学学院, 长沙 410006; 4. 湖南艾布鲁环保科技有限公司, 长沙 410000)

摘要: 基于前期研究, 利用秸秆材料处理养殖废水, 能够有效降低养殖废水中氮的浓度, 但周年去除效果及其对氮循环微生物丰度的影响尚不清楚。设置麦秸、玉米秆、稻草和空白对照这4个处理, 试验周期为1 a, 研究秸秆材料处理养殖废水中氮的周年去除效果及其氮循环微生物功能基因丰度动态变化。结果表明: ① 3种作物秸秆对养殖废水 TN 和 NH_4^+ -N 等主要污染物的去除效率均以前6个月为最佳, 后6个月去除效率明显下降; 稻草及麦秸对 TN 和 NH_4^+ -N 的周年去除效果较好, 其中稻草和麦秸对 TN 去除率分别为 $(32.81 \pm 11.34)\%$ 和 $(32.99 \pm 9.60)\%$, 对 NH_4^+ -N 去除率分别为 $(35.3 \pm 13.23)\%$ 和 $(34.97 \pm 12.00)\%$; ② 添加秸秆材料生物基质消纳系统中氮循环微生物功能基因 *nirK*、*nirS* 和 *hzsB* 基因丰度为 6.45×10^9 、 6.18×10^9 和 2.31×10^9 copies $\cdot \text{L}^{-1}$, AOA 和 AOB 基因丰度分别为 6.12×10^{10} copies $\cdot \text{L}^{-1}$ 和 4.93×10^9 copies $\cdot \text{L}^{-1}$; 16S rRNA 高达 8.90×10^{10} copies $\cdot \text{L}^{-1}$, 均显著高于空白处理 ($P < 0.05$)。其中添加稻草和麦秸处理中 *hzsB* 基因和 *nirS* 基因丰度相对较高, 表明添加稻草和麦秸显著增强了生物基质消纳系统厌氧氨氧化和反硝化微生物作用。同时, 相较于其他处理, 添加麦秸增加了生物基质池 AOA 和 AOB 基因丰度, 表明麦秸能够促进生物基质消纳系统的硝化作用。以上研究结果为秸秆材料处理养殖废水中氮去除分子机制提供了数据支撑。

关键词: 秸秆材料; 氮(N); 去除效率; 氮循环功能基因; 养殖废水

中图分类号: X172; X703.1 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2022)09-4706-11 DOI: 10.13227/j.hjxx.202111160

Annual Nitrogen Removal Efficiency and Change in Abundance of Nitrogen Cycling Microorganisms in Swine Wastewater Treated by Crop Straw Materials

LIU Ming-yu^{1,2}, XIA Meng-hua^{1,2}, JIANG Lei^{1,2}, PENG Jian^{1,2}, CHEN Kun^{1,3}, ZHAO Cong-fang^{1,3}, LI Xi^{1*}, MENG Cen¹, ZENG Rui⁴, WANG Dong⁴, LI Yu-yuan¹, WU Jin-shui¹

(1. Key Laboratory of Agro-ecological Processes in Subtropical Regions, Institute of Subtropical Agriculture, Chinese Academy of Sciences, Changsha 410125, China; 2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China; 3. College of Resources and Environmental Sciences, Hunan Normal University, Changsha 410006, China; 4. Hunan Airbluer Environmental Technology Co., Ltd., Changsha 410000, China)

Abstract: Based on previous research, using straw material to treat swine wastewater can effectively reduce the concentration of nitrogen (N); however, the annual N-removal efficiency and change in the abundance of N-cycling functional genes remain unclear. In this study, four treatments (wheat straw, rice straw, corn stalk, and CK) were set up, with the aim of studying the annual N-removal efficiency and change in the abundance of functional genes. Our results showed that: ① the total nitrogen (TN) removal and NH_4^+ -N removal efficiency were the best in the first six months and were significantly reduced in the following six months. In addition, the TN removal and NH_4^+ -N efficiency in straw and wheat straw were better than those in corn straw. The TN-removal efficiency in straw and wheat straw were $32.81\% \pm 11.34\%$ and $32.99\% \pm 9.60\%$, respectively. The NH_4^+ -N removal efficiency in straw and wheat straw were $35.3\% \pm 13.23\%$ and $34.97\% \pm 12.00\%$, respectively. ② The abundance of N-cycling functional genes significantly increased by the addition of straw materials, compared with that of the CK ($P < 0.05$). The average abundances of *nirK*, *nirS*, and *hzsB* were 6.45×10^9 copies $\cdot \text{L}^{-1}$, 6.18×10^9 copies $\cdot \text{L}^{-1}$, and 2.31×10^9 copies $\cdot \text{L}^{-1}$, respectively. The average abundances of ammonia-oxidizing archaea (AOA) and ammonia-oxidizing bacteria (AOB) were 6.12×10^{10} copies $\cdot \text{L}^{-1}$ and 4.93×10^9 copies $\cdot \text{L}^{-1}$, respectively. The average *hzsB* gene abundance was 2.31×10^9 copies $\cdot \text{L}^{-1}$. The average abundance of 16S rRNA in the treatment was 8.90×10^{10} copies $\cdot \text{L}^{-1}$. The abundances of *hzsB* and *nirS* genes in the straw and wheat straw were higher than those in the other treatment, indicating that the activities of anaerobic ammonia oxidation and denitrifying microorganisms were significantly increased by the addition of straw and wheat straw ($P < 0.05$). In addition, the abundance of AOA and AOB genes were increased in wheat straw, suggesting that wheat straw could promote nitrification. The results provided data supporting the molecular mechanism of nitrogen removal in swine wastewater treatment with straw materials.

Key words: straw materials; nitrogen(N); removal efficiency; nitrogen cycling functional gene; swine wastewater

根据文献[1], 全国水污染物排放量: 化学需氧量(COD)2 143.98万 t、氨氮(NH_4^+ -N)96.34万 t 和总氮(TN)304.14万 t。其中畜禽养殖业排放量: COD 1 000.53万 t、 NH_4^+ -N 11.09万 t 和 TN 59.63万 t, 分别占全国排放总量的 53.33%、88.49% 和

收稿日期: 2021-11-15; 修订日期: 2022-01-27

基金项目: 中国科学院科技服务网络计划项目(KFT-STG-QYZX-088); 湖南高新技术产业科技创新引领计划项目(2020GK4094)

作者简介: 刘铭羽(1993~), 女, 博士研究生, 主要研究方向为养殖废水生态治理, E-mail: liumingyu16@mails.ucas.ac.cn

* 通信作者, E-mail: lixi@isa.ac.cn

80.39%。因此,随着养殖业发展水环境将面临污染治理困难,水体的严重富营养化等问题。

目前,人工湿地治理养殖废水受到国内外推广和应用^[2,3]。人工湿地治理模式中将基质填料与湿地植物合理搭配,可提高污染物的净化效果。传统多孔材料不仅为植物和微生物的生长提供载体且一般带负电荷,通过物理吸附和离子交换作用可直接吸附 N、P 等营养物^[4]。然而,湿地系统中由于碳源不足,造成去除效率降低,基质填料由传统无机材料逐渐向有机碳源的新材料演化升级。由于向湿地内投加液态碳源不易于控制剂量且成本昂贵。因此,选用作物秸秆作为基质材料既满足对污染物的拦截又大幅降低了材料成本,是一种对农业副产品进行再利用的新途径。

有研究表明,在硝化细菌与反硝化细菌的参与下,污水中氮的去除主要通过硝化和反硝化作用^[5,6]。其中 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的转化(硝化作用为主)是一个好氧过程,而通过前期试验发现,添加秸秆材料的生物基质系统处于厌氧条件下($\text{DO} < 0.2 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$),反硝化细菌在厌氧环境下将 NO_3^- 还原为 N_2 ($\text{NO}_3^- \rightarrow \text{NO}_2^- \rightarrow \text{NO} \rightarrow \text{N}_2\text{O} \rightarrow \text{N}_2$)脱离水体。厌氧氨氧化作用是指厌氧氨氧化菌在厌氧环境下,以 NH_4^+ 为电子供体, NO_2^- 为电子受体将氨氮直接转化为氮气的过程($\text{NH}_4^+ + \text{NO}_2^- \rightarrow \text{N}_2 + \text{H}_2\text{O}$)^[7,8]。因此,为进一步阐释生物基质系统内参与氮循环过程的微生物作用,本文对参与氮循环的主要微生物功能基因丰度进行测定。

前期,本课题组对比分析了我国三大粮食作物秸秆:麦秸、稻草和玉米秆对猪场废水主要污染物去除效率。结果表明,在 6 个月试验周期中,麦秸对 COD、TN 和 TP 的去除效果最好,去除率分别为 32.1%、40.9% 和 33.3%,稻草对 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的去除效果最好达 43.4%,且通过干物质(DM)及纤维成分(CF)的降解过程分析,建议在湖南地区基质材料更换周期为 5~6 个月^[9]。本文延续之前的工作,通过为期 1 a 的野外试验,研究秸秆材料处理养殖废水中氮的周年去除效果,并补充分析其相关微生物功能基因丰度动态变化,这对于推动秸秆材料生态治理养殖废水技术具有重要实际指导意义。

1 材料与方法

1.1 研究区概况

试验区位于湖南省长沙县金井镇湘丰村的中国科学院长沙农业环境观测研究站,区内为典型亚热带湿润季风气候,多年平均气温为 17.5℃,最低气温为 -5.2℃,最高气温为 40.1℃。

1.2 试验设置

试验小区由 3 个同等大小水泥池串联(长×宽×深:100 cm×50 cm×50 cm)组成,设置稻草、麦秸、玉米秆和空白对照共 4 个处理,每级池内填充 12.5 kg 大小均匀风干处理的作物秸秆,并设置 3 次重复。进水由蠕动泵 24 h 连续泵入基质池内,水力停留时间为 7 d。

试验时间为 2017 年 9 月~2018 年 9 月。进水方式、生物基质材料填装和后端人工湿地如图 1 所示。

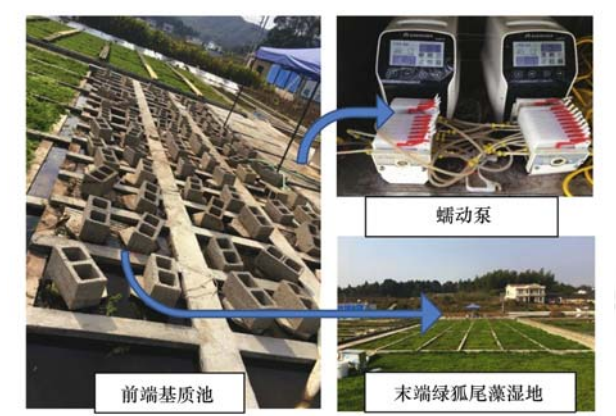


图 1 野外试验现场示意
Fig. 1 Schematic diagram of the field experiments

1.3 试验材料

本试验进水为白沙乡大花养猪场经过厌氧处理的沼液废水,水质具有一定的波动性,各主要污染物成分(TN、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 $\text{NO}_3^-\text{-N}$)全年浓度变化范围分别为 285.5~400.7、249.8~329.0 和 0.48~0.82 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。

稻草、玉米秆取自中国科学院长沙农业环境站附近牛场,麦秸购自河南省开封市,3 种秸秆常规营养成分含量见表 1。

表 1 秸秆主要组成成分含量/ $\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$

Table 1 Components of different straw materials/ $\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$			
项目	稻草	麦秸	玉米秆
DM	863.3	834.8	810.5
TN	12.4	8.6	8.0

1.4 样品采集与分析

1.4.1 水样的采集与测定

每周采集一次水样,每次水样采集储水池及三级基质池出水口水样,共 42 个样品。每次使用 200 mL 采样瓶采集水面下 5 cm 处水样,立即带回实验室分析或放于 -20℃ 冰箱保存。分析测定指标包括:pH、温度(T)、氧化还原电位(Eh)、溶解氧(DO)、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 和 TN。其中,指标(pH、T、Eh 和 DO)用便携式 DO 测定仪对每次进水和收集后的瞬

时出水进行测量,水样中 NH_4^+ -N与 NO_3^- -N的浓度直接取 50 mL 左右的水样离心后取上清液进行稀释,用流动注射仪(AA3,德国 SEAL 公司)测定,剩余的水样(未离心的水样)用于 TN 的测定. TN 采用碱性过硫酸钾消解-紫外分光光度法测定. 严格按照文献[10]方法测定.

1.4.2 基质材料样品的采集与测定

控制试验于 2017 年 9 ~ 12 月每月采集两次,2018 年 1 ~ 9 月每月采集 1 次. 取预先填埋于基质池中的白色尼龙网袋,清洗后放于信封袋内,于 105℃ 烘箱中杀青 30 min,然后于 80℃ 下烘至恒重,称干重. 分别称取并记录约 0.2 g 样品于 100 mL 锥形瓶内,用于测定秸秆材料中 TN 含量. 并用弯颈小漏斗倒扣在瓶口防止液体飞溅. 测定方法为浓硫酸双氧水(H_2SO_4 - H_2O_2)法消解, TN 取上清液使用 AA3 流动分析仪采用凯氏定氮法测定^[11].

1.4.3 微生物样品的采集与测定

每 3 个月采集一次,取储水池及各级基质池内混匀水样 100 mL,立即进行抽滤(水样浑浊时先低速离心 5 min 后对上清液进行抽滤),滤膜使用美国 Millipore 混合纤维素酯滤膜(AAWP04700,孔径 0.45 μm). 将滤膜和离心后的废渣一同转移到试剂

盒(PowerWater DNA Isolation kit)内进行 DNA 提取操作. 并利用 1% 琼脂糖凝胶电泳检测抽提的基因组 DNA,核对基因组 DNA 的完整性与浓度,并用 NanoDrop 核酸蛋白测定仪(ND-1000)测定 DNA 的浓度和质量. 采用表 2 所示的反应体系(Taq PCR MasterMix 天根,中国)、上下游引物和反应条件 PCR 扩增目的基因^[12, 13],DNA 模板约 200 ng.

构建基因的标准曲线,首先构建克隆文库,然后选择阳性克隆子,从中吸取 10 μL 菌液于 1 mL 含氨苄青霉素 LB 培养基中, 37℃ 摇床培养 10 h,提取重组质粒并测定浓度,进一步换算成单位体积的拷贝数. 10 倍梯度稀释作为标准曲线的模板,标准曲线的范围在 $10^2 \sim 10^8 \text{ copies} \cdot \mu\text{L}^{-1}$.

全部样本按照正式试验条件进行,每个样本 3 个重复,将同一样本的 PCR 产物混合后用 2% 琼脂糖凝胶电泳检测,使用 AxyPrepDNA 凝胶回收试剂盒(AXYGEN 公司)切胶回收 PCR 产物, Tris-HCl 洗脱; 2% 琼脂糖电泳检测. 参照电泳初步定量结果,将 PCR 产物用 QuantiFluor™-ST 蓝色荧光定量系统进行检测定量,之后按照每个样品的测序量要求,进行相应比例的混合, -80℃ 保存待后续测量.

表 2 质粒构建¹⁾
Table 2 Plasmid construction

目标序列	引物序列	程序	循环
AOA (<i>amoA</i>)	上游引物	ATG GTC TGG CTW AGA CG	预孵化
	下游引物	GCC ATC CAT CTG TAT GTC CA	PCR 扩增
		熔解曲线	
AOB (<i>amoB</i>)	上游引物	GGG GTT TCT ACT GGT GGT	预孵化
	下游引物	CCC CTC KGS AAA GCC TTC TTC	PCR 扩增
		熔解曲线	
16S rRNA	上游引物	CGG TGA ATA CGT TCY CGG	预孵化
	下游引物	GGW TAC CTT GTT ACG ACT	PCR 扩增
		熔解曲线	
<i>nirK</i>	上游引物	ATY GGC GGV CAY GGC GA	预孵化
	下游引物	GCY TCG ATC AGR TTR TGG TT	PCR 扩增
		熔解曲线	
<i>nirS</i>	上游引物	GTS AAC GTS AAG GAR ACS GG	预孵化
	下游引物	GAS TTC GGR TGS GTC TTG A	PCR 扩增
		熔解曲线	
<i>hzsB</i>	上游引物	ARG GH TGG GGH AGY TGG AAG	预孵化
	下游引物	GTY CCH ACR TCA TGV GTC TG	PCR 扩增
		熔解曲线	

1) 各目标序列程序的最后阶段为冷却降温,设置 50℃, 30 s^[14~16]

1.5 数据处理与统计

1.5.1 基质处理系统污染物拦截计算

各污染指标去除率(r)、进水负荷(m_0)、出水负荷(m_1)和去除负荷(p)分别采用如下公式计算:

$$r = (c_1 - c_2) \times c_1^{-1} \times 100\% \quad (1)$$

$$m_0 = c_1 \times Q \quad (2)$$

$$m_1 = c_2 \times Q \quad (3)$$

$$p = m_0 - m_1 \quad (4)$$

式中, c_1 和 c_2 为基质池进、出水浓度($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$); Q 为基质池进水流量($\text{L} \cdot \text{d}^{-1}$).

1.5.2 秸秆 TN 含量的计算

秸秆中全氮含量(c_N)的计算公式为:

$$c_N = c_3 \times V \times m_3^{-1} \tag{5}$$

式中, m_3 为样品质量(g); c_3 为反应体系 TN 浓度($\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$); V 为反应体系体积(L), 一般是 0.1 L; c_N 表示每 kg 秸秆中 TN 含量($\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$).

1.5.3 基因丰度的计算

质粒拷贝数通过下列公式计算:

$$\text{拷贝数} = \frac{6.02 \times 10^{23} \times \text{质粒浓度} \times 10^{-9}}{\text{DNA 长度} \times 660} \tag{6}$$

式中, 拷贝数用($\text{copies}\cdot\mu\text{L}^{-1}$)表示; 质粒浓度用($\text{ng}\cdot\mu\text{L}^{-1}$)表示; DNA 长度为质粒碱基对数(bp)^[17]. 由于上机数据得出的为 CT 值, 因此将质粒模板实际 CT 值与式中计算求得的拷贝数的对数值整理并计算二者的标准曲线, 建立 CT 值与拷贝数对数值的回归方程.

计算每 L 废水中的拷贝数($\text{copies}\cdot\text{L}^{-1}$):

$$\text{拷贝数} = \frac{\text{拷贝数}(\mu\text{L}) \times c_{\text{样}} \times V_{\text{ddH}_2\text{O}}}{V_{\text{样}} \times c_{\text{per}}} \tag{7}$$

式中, $c_{\text{样}}$ 为样品 DNA 浓度($\text{ng}\cdot\mu\text{L}^{-1}$); $V_{\text{ddH}_2\text{O}}$ 为稀释质粒所加水的体积(μL); $V_{\text{样}}$ 为进行抽滤用于提取 DNA 所用样品体积, 一般为 0.05 L; c_{per} 为上机稀释后 DNA 浓度(一般是将样品 DNA 稀释 100

倍)^[18,19]. 这样将样品 CT 值代入标准曲线后可得到实际拷贝数的对数值, 再次转化后求得样品基因的拷贝数.

DNA 纯度 D_{260}/D_{280} 在 1.6 ~ 2.0 之间(等于 1.8 较好), 若 < 1.6 时表明有蛋白质或酚污染; 若 > 2.0 时表明可能有异硫氰酸残存^[20].

1.5.4 统计分析

采用 Microsoft Excel 2013 进行数据分析, Origin 作图, 并用 SPSS 19 进行 one-way ANOVA 单因素方差分析, 在显著性水平 $P < 0.05$ 下表示差异显著, $P < 0.01$ 表示差异极显著. 数据均在重复试验中取平均值与标准差.

2 结论与分析

2.1 生物基质系统周年脱氮效果

对猪场废水不同形态 N 含量测定分析表明, 进水 TN、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 污染负荷分别为 24.83 ~ 26.78、29.73 ~ 2.66 和 0.05 ~ 0.06 $\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$ 时, 3 种秸秆材料均能对不同形态氮进行去除(表 3). 3 种作物秸秆对养殖废水 TN 和 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 等主要污染物的去除效果均以前 6 个月为最佳. 添加前 6 个月麦秸对 TN 的去除效果最好, 最高达 40.9%, 稻草对 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的去除效果最佳, 最高达 43.4%.

表 3 基质系统周年进出水浓度及去除效率

Table 3 Annual influent/effluent concentrations and removal efficiency in straw material system

项目	进水浓度/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	分析指标	CK	麦秸	稻草	玉米秆
TN	343.1 ± 57.6	去除率/%	9.44 ± 5.64c	32.99 ± 9.60a	32.81 ± 11.34ab	25.82 ± 7.43b
		出水浓度/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	264.00 ± 37.9	227.90 ± 37.8	227.70 ± 40.2	253.20 ± 41.6
$\text{NH}_4^+\text{-N}$	289.4 ± 39.6	去除率/%	10.86 ± 9.47c	34.97 ± 12.00a	35.30 ± 13.23a	30.03 ± 13.99b
		出水浓度/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	257.60 ± 43.4	177.70 ± 40.8	183.50 ± 36.8	206.60 ± 38.6
$\text{NO}_3^-\text{-N}$	0.65 ± 0.17	去除率/%	11.45 ± 7.27b	31.95 ± 13.60a	32.12 ± 14.88a	33.78 ± 15.37a
		出水浓度/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	0.57 ± 0.13	0.44 ± 0.13	0.43 ± 0.12	0.40 ± 0.12

1) 数据为平均值 ± 标准差($n = 48$); 同行不同字母表示具有显著差异($P < 0.05$)

2.1.1 总氮去除效果动态分析

从基质池进出水 TN 浓度的周年动态变化情况分析可见图 2. 试验开展后, 前 36 d 不同基质材料对 TN 的去除效果呈波动上升趋势, 随后麦秸与稻草材料的去除作用略有降低, 但玉米秆继续上升, 在试验进行 77 ~ 99 d 左右, 秸秆材料对污染物去除率出现下降变化, 其中稻草材料下降趋势较为平缓. 前 5 个月, 稻草材料对 TN 的去除作用较玉米秆和麦秸更加稳定, 去除率能够稳定在 40% 左右, 最高可去除达 45% 以上. 但后期下降较为明显, 最低降至 14% 以下. 相比之下, 玉米秆材料对 TN 去除效果较差, 麦秸材料对 TN 具有较强去除能力的周期较短, 去除率高于 40% 的情况可持续 2 个月左右, 进入冬季

后去除效果能保持在 30%, 经过 6 个月后随气温升高略有提高. 分析周年结果得出, 经基质系统处理后 $\rho(\text{TN})$ 由 285.5 ~ 400.7 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 下降到 187.5 ~ 294.8 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 显著低于对照处理(226.1 ~ 301.9 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$).

2.1.2 氨氮去除效果动态分析

秸秆材料前期对 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的去除规律与 TN 相似, 分析全年数据发现 3 种秸秆材料对 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的去除效果为: 稻草 > 麦秸 > 玉米秆. 对 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除效果动态分析见图 3, 可以看出前 3 周先迅速上升而后下降, 秸秆材料经 3 ~ 4 周的稳定期后去除效果较为明显, 4 ~ 8 周后脱氮作用逐渐增强, 最高可去除 47% 以上的 $\text{NH}_4^+\text{-N}$. 经过 6 个月试验周期, 秸秆材料

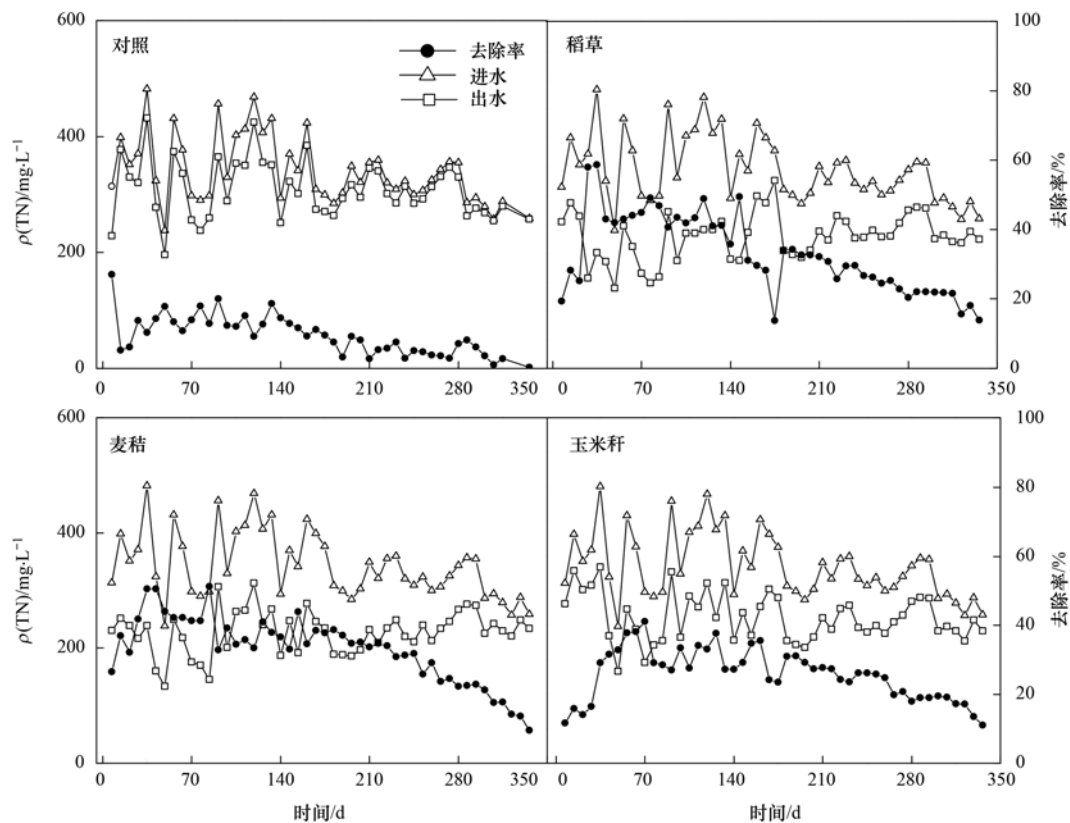


图2 基质池全年TN进出水浓度及去除率动态分析

Fig. 2 Dynamic analysis of TN annual influent/effluent concentrations and removal efficiency in straw material system

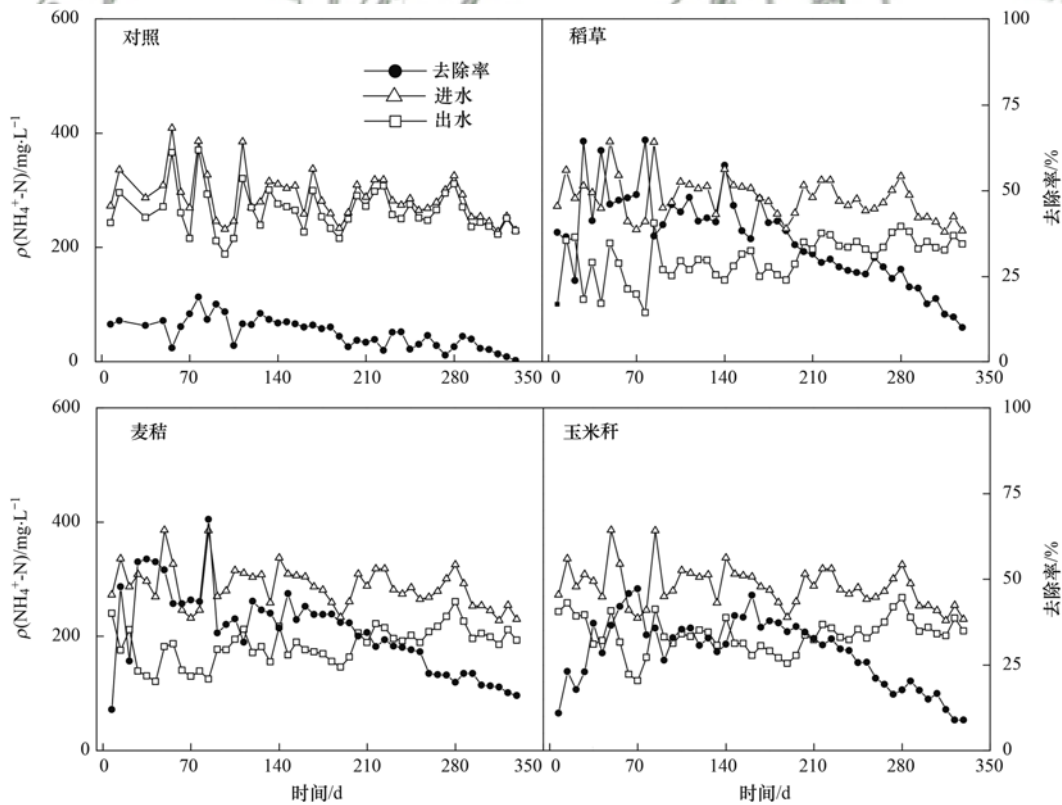


图3 基质池全年NH₄⁺-N进出水浓度及去除率动态分析

Fig. 3 Dynamic analysis of NH₄⁺-N annual influent/effluent concentrations and removal efficiency in straw material system

作为基质填料,对高浓度养殖废水处理效果明显,麦秸、稻草和玉米秆对NH₄⁺-N去除率平均值分别为

42.2%、43.4%和41.7%,而对照组对NH₄⁺-N去除率平均值仅为11.96%。进入春季温度上升后,玉米

秆对 NH_4^+ -N的去除效果有缓慢回升,相比稻草与麦秸材料去除效果呈逐渐下降的趋势.进入试验后期,基质池进出水浓度已无明显改善,去除效果直线下降.试验末期时,玉米秆对 NH_4^+ -N拦截效率低至7.4%,稻草及麦秸有效去除10%左右的 NH_4^+ -N.因此,定期向基质池内补充秸秆材料可以增强对污染物的去除效果.

2.1.3 硝氮去除效果动态分析

基质池进出水 NO_3^- -N浓度较低如图4,进水 $\rho(\text{NO}_3^- \text{-N})$ 为0.08~1.63 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$,基质材料对其去除

效果的波动变化较为剧烈.基质池内DO较低,硝化过程中氧气不充足产生 NO_2^- -N.对数据分析后发现,麦秸对 NO_3^- -N去除效果最高达53.3%,最低为11.3%,稻草对 NO_3^- -N去除效率范围在12.3%~64%之间,高于玉米秆的去除范围(4.5%~12.0%).前6个月麦秸、稻草和玉米秆对 NO_3^- -N去除率平均值分别为38%、40.7%和31.56%,处理间差异显著,年去除率平均值依次为:玉米秆[(33.78±15.37)%]>麦秸[(32.12±14.88)%]>稻草[(31.95±13.6)%],显著高于空白对照组去除率20%以上.

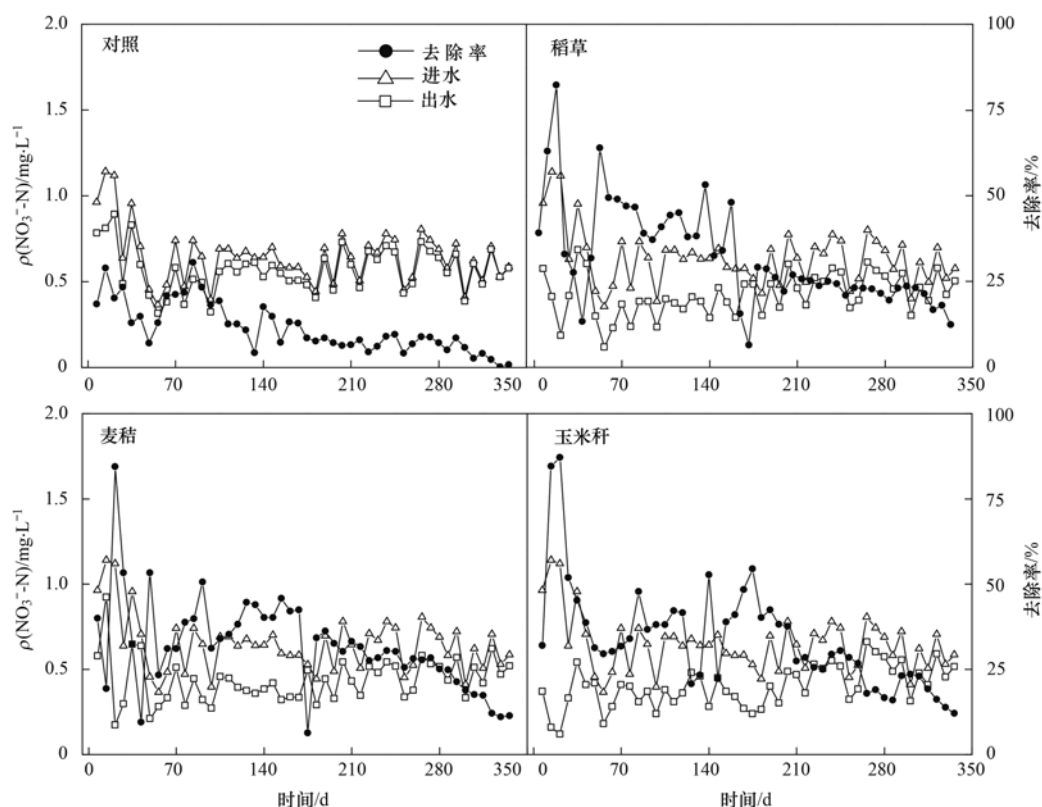


图4 基质池全年 NO_3^- -N进出水浓度及去除率动态分析

Fig. 4 Dynamic analysis of NO_3^- -N annual influent/effluent concentrations and removal efficiency in straw material system

2.2 主要环境影响因素分析

基质池系统中 T 、 pH 、 Eh 和 DO 的变化特征见图5.本试验期间,年平均气温为18.5℃,最高气温为40.4℃,少数低气温天气达-3.2℃,无霜期约占全年的75%.基质池内废水最高温度为26.8℃,最低温度为5.7℃.前6个月中养殖废水流经基质池过程中 Eh 和 DO 的变化范围为-37.4~-29.3 mV和0.04~0.17 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$,两者均表现出随梯级的增加而不断上升的变化趋势.废水流经基质池前 $\text{DO} < 0.2 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,长期处于厌氧条件,经基质池处理后,废水中溶解氧逐渐增加.系统中 pH 值的变化范围为7.05~7.74,呈弱碱性条件,随着基质池梯级的增加缓慢降低.各级基质池 Eh 、 pH 及 DO 差异显著($P < 0.05$).后6个月随温度上升,基质池内 DO

含量下降,添加秸秆材料的各处理间差异逐渐减小; pH 值受温度及时间影响波动不大,后6个月 pH 值在逐级基质池间差异缩小,改变量低于前期; Eh 受环境改变产生变化,如秸秆分解的影响及其他环境因子的影响,试验后期 Eh 升高,还原性减弱.

3 生物基质系统中氮循环微生物功能基因

3.1 氮循环微生物功能基因丰度变化

利用实时定量PCR(Q-PCR)测定了三级基质系统废水中氮循环微生物功能基因丰度,包括 $hzsB$ 、 $nirK$ 、 $nirS$ 、 AOA 、 AOB 和16S rRNA,见图6.

生物基质系统处理养殖废水过程中,各级基质池内的微生物功能基因丰度存在显著的统计差异($P < 0.05$),每L废水中 $hzsB$ 、 $nirK$ 、 $nirS$ 、 AOA 、

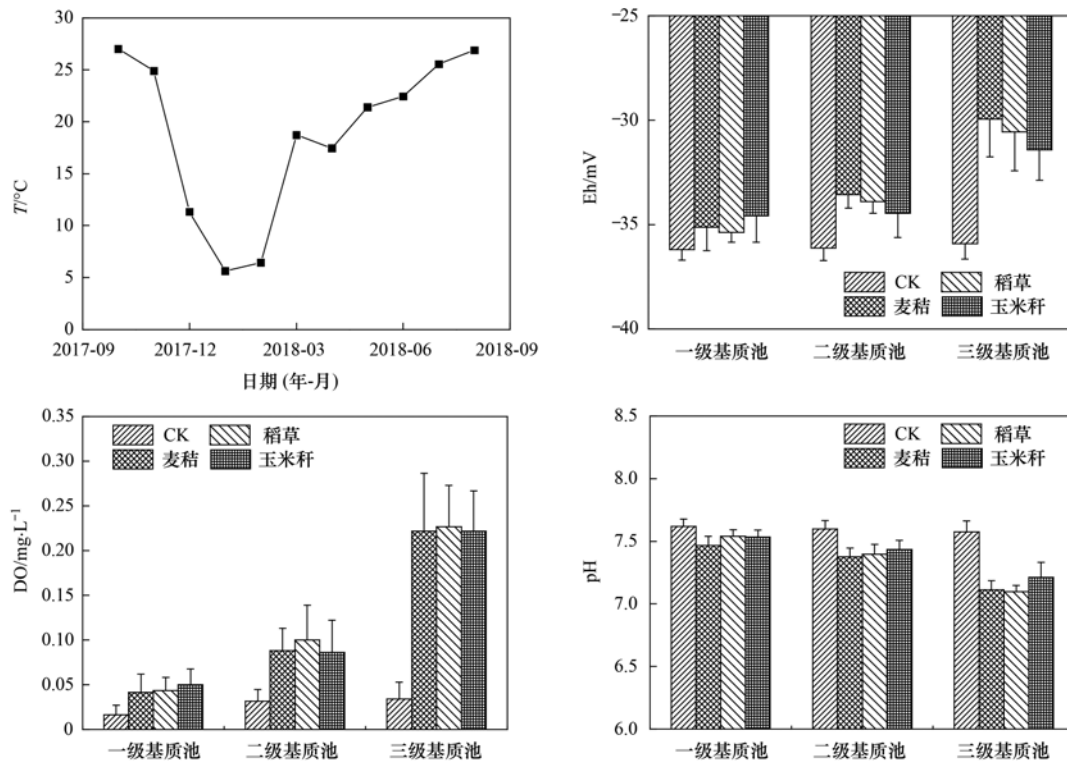


图5 主要水质理化指标分析

Fig. 5 Physicochemical properties in straw material system

AOB 和 16S rRNA 基因丰度均表现为:一级 > 二级 > 三级。

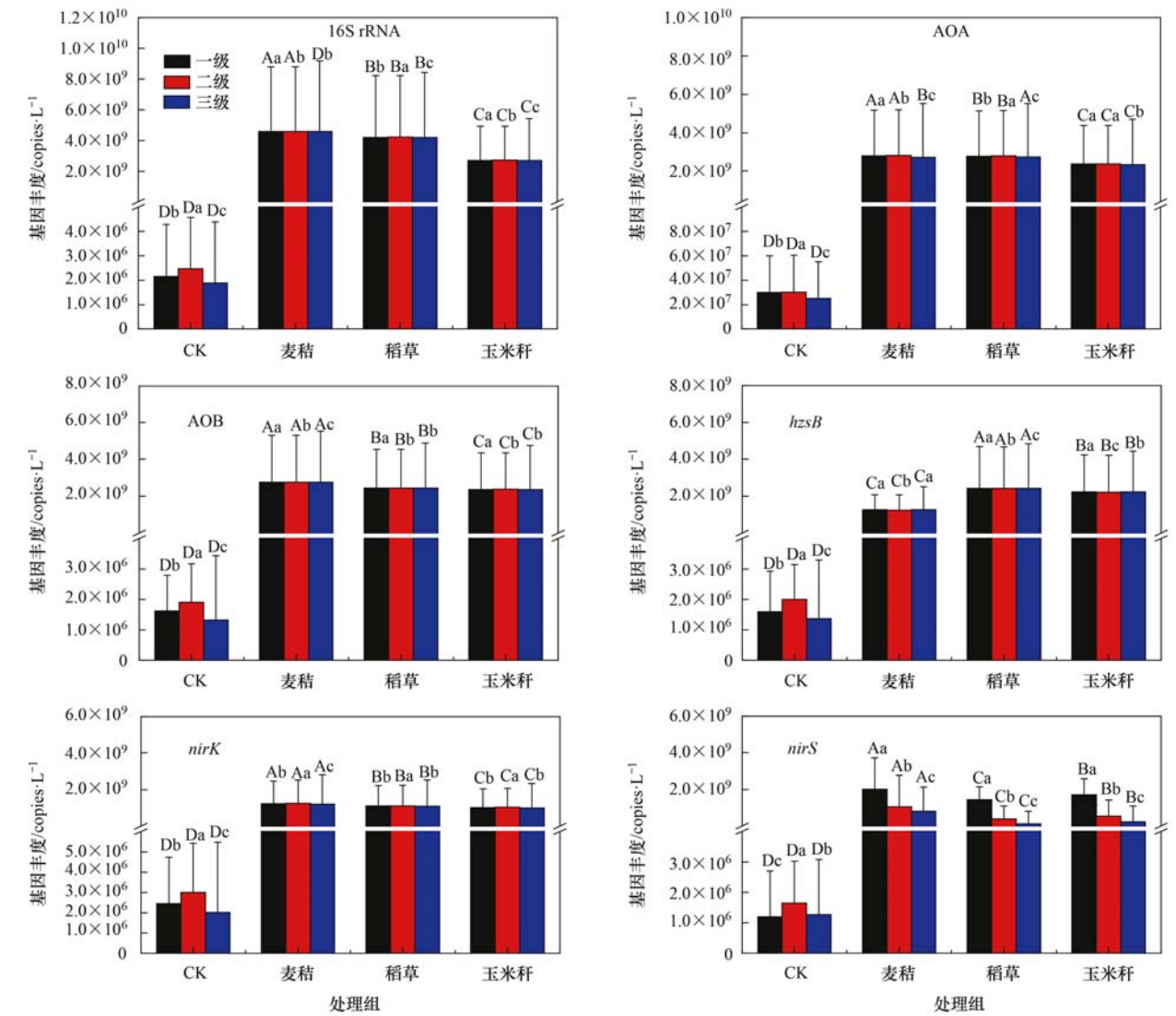
对同级间不同处理组的分析得出:添加秸秆 90 d 后, 1 L 废水中 *nirK* 基因的拷贝数由 1.94×10^6 copies 升至 1.80×10^9 copies (麦秸 > 稻草 > 玉米秆), 进行 3 ~ 6 个月时, 添加秸秆材料后 *nirK* 基因丰度增至 2.06×10^9 copies·L⁻¹, 进行 9 ~ 12 个月时从 6.45×10^9 copies·L⁻¹ 降至 4.45×10^9 copies·L⁻¹, 且随试验进行, 对全年结果分析得添加秸秆的 3 个处理组间差异极显著 ($P < 0.01$); *nirS* 基因由 1.54×10^6 copies·L⁻¹ 升至 1.58×10^9 copies·L⁻¹ (麦秸 > 玉米秆 > 稻草), 且三者在前 3 个月产生显著差异 ($P < 0.05$), 后期差异逐渐消失, 其丰度由 6.18×10^9 copies·L⁻¹ 降至 4.18×10^9 copies·L⁻¹; AOA 和 AOB 基因丰度在 3 个月时均表现为 (麦秸 > 玉米秆 > 稻草), 其中 AOA 由 1.49×10^6 copies·L⁻¹ 升至 6.85×10^8 copies·L⁻¹; AOB 由 1.62×10^6 copies·L⁻¹ 升至 1.31×10^9 copies·L⁻¹. 周年分析得出 3 种秸秆在试验前 9 个月时, 各基质池废水中 AOA ($P < 0.01$) 和 AOB ($P < 0.05$) 差异显著, 试验后期差异性降低, AOA 和 AOB 平均基因丰度由 6.12×10^{10} copies·L⁻¹ 和 4.93×10^9 copies·L⁻¹, 降至 4.12×10^{10} copies·L⁻¹ 和 3.93×10^9 copies·L⁻¹; *hzsB* 由 1.20×10^6 copies·L⁻¹ 升至 2.31×10^9 copies·L⁻¹ (稻草 > 玉米 > 麦秸). 此外, 3 种秸秆中 *hzsB* 功能基因在基质

池内无明显差异, 试验后期平均丰度在 $1.71 \times 10^8 \sim 3.55 \times 10^8$ copies·L⁻¹; 16S rRNA 基因丰度由 1.94×10^7 copies·L⁻¹ 升至 8.90×10^{10} copies·L⁻¹ (麦秸 > 稻草 > 玉米秆), 试验后期处理组间产生显著差异 ($P < 0.01$), 并且各基因丰度在逐级基质池内递减. 添加麦秸的处理中含 AOA、AOB、*nirK* 和 16S rRNA 基因的微生物数量最高, 含 *hzsB* 基因和 *nirS* 基因的微生物分别在稻草和麦秸中最多. 其中 CK 组各基因丰度均与其他处理组产生明显差异, 后期添加 3 种秸秆的处理组间差异性逐渐降低. 结果表明, 与对照组相比, 添加秸秆材料的处理组基因的丰度均显著增加。

3.2 氮循环微生物功能基因丰度与环境因子相关性分析

将全年水质环境因子 (pH、Eh、DO) 和废水中部分氮循环微生物功能基因丰度进行 Pearson 分析 (见表 4), 结果表明二者显著相关且系统内微生物受 DO 及温度影响较大, AOA 和 AOB 功能基因丰度与 *T* 呈显著正相关 ($P < 0.05$), 与 DO 呈显著正相关 ($P < 0.05$), 且与 Eh、pH 正相关, *hzsB* 功能基因丰度与 DO 呈极显著负相关 ($P < 0.01$), 且与 *T*、Eh 和 pH 正相关。

同时, 相关分析表明功能基因丰度与废水中 NH_4^+ -N、TN 和 NO_3^- -N 浓度相关. AOA、AOB、*nirK* 和 *hzsB* 基因均与 NH_4^+ -N 和 TN 浓度呈正相关关系



不同大写字母表示各级基质池间具有显著差异 ($P < 0.05$), 不同小写字母表示不同处理间差异

图 6 不同处理 *hzsB*, *nirK*, *nirS*, AOA, AOB 和 16S rRNA 基因丰度分析

Fig. 6 Abundance of *hzsB*, *nirK*, *nirS*, AOA, AOB, and 16S rRNA genes under different treatments

表 4 养殖废水微生物功能基因丰度与环境因子间相关性分析¹⁾

Table 4 Correlation analysis between abundance of microbial functional genes and environmental factors

项目		pH	Eh	DO	<i>T</i>	TN	NH ₄ ⁺ -N	NO ₃ ⁻ -N	AOA	AOB	<i>nirS</i>	<i>nirK</i>	<i>hzsB</i>	16S rRNA
环境因子	pH	1												
	Eh	0.974 **	1											
	DO	-0.917 **	-0.838 **	1										
	<i>T</i>	-0.596	-0.678	0.433	1									
水质指标	TN	0.975 **	0.872 *	-0.825	0.372	1								
	NH ₄ ⁺ -N	0.657 *	0.803 *	-0.726	0.476	0.827 *	1							
	NO ₃ ⁻ -N	-0.392	0.024	0.221	0.362	0.037	-0.374	1						
功能基因丰度	AOA	0.267	0.330	0.846 *	0.753 *	0.784	0.738	-0.135	1					
	AOB	0.302	0.472	0.824 *	0.765 *	0.679	0.742	-0.036	0.536	1				
	<i>nirS</i>	0.680	0.775	-0.664 *	0.625 *	-0.679 *	-0.847 *	0.873 *	0.419	0.423	1			
	<i>nirK</i>	0.678	0.780	-0.647	0.632 *	0.643	0.743	-0.353	0.748 *	0.537	0.231	1		
	<i>hzsB</i>	0.676	0.743	-0.942 **	0.572	0.271	0.201	-0.072	0.366	0.305	0.362	0.184	1	
	16S rRNA	0.694	0.604	0.367	0.597	0.504	0.446	0.379	0.569	0.591	0.347	0.316	0.231	1

1) * 表示显著相关 ($P < 0.05$), ** 表示极显著相关 ($P < 0.01$)

($P < 0.05$), 与 NO_3^- -N 呈负相关关系, *nirS* 基因与废水中 NH_4^+ -N 和 TN 浓度呈显著负相关关系 ($P < 0.05$), 与 NO_3^- -N 呈显著正相关关系。

4 讨论

本研究选择我国 3 种主要农作物秸秆作为生物基质填料, 是由于农村地区秸秆作为农业副产品年产量较大, 如何通过廉价的加工程序就能使其再次发挥作用, 是秸秆资源化利用的有效方式。而将秸秆材料作为养殖废水的治污材料既符合农户的需求又符合秸秆资源化利用理念并解决其二次污染对环境造成的危害。有研究表明, 传统无机基质材料需向基质池投加不同类型的液体有机碳源, 而与液态碳源相比, 固体有机物质可以避免反硝化过程碳源过量或不足量的问题, 易于控制剂量且价格低廉^[21]。而针对农村地区高负荷畜禽养殖废水的 C/N 比较低的情况, 来源广且成本低的农作物秸秆可作为基质材料的首选。玉米秆、稻草和麦秸等木质纤维类物质, 纤维素、木质素和半纤维素, 纤维素所占比例最大, 未加工的玉米秆、稻草和麦秸等生物基质材料也可在微生物的作用下转化, 释放出单糖为反硝化提供碳源, 且渗透系数高^[22,23]。同时, 作物秸秆与水生植物茎叶类似, 其表面的附着层为反硝化作用提供了微环境和物质基础^[24,25]。因此, 它作为一种天然可再生的高分子材料, 具有多重优势应得到充分的利用。

对废水中污染物去除效果分析发现, 试验开始时, 秸秆材料对 TN 去除率呈缓慢上升后波动下降的变化趋势, 有可能试验前期以秸秆的吸附作用为主, 后期以微生物作用为主。在秸秆利用的有效期限内, 秸秆材料对 NH_4^+ -N 去除效果高于 TN 与秸秆材料向水体释放有机物及无机氮的协同作用有关^[26,27]。随试验进行, 3 种秸秆材料稻草、麦秸与玉米秆中干物质由初始的 86.33%、83.48% 和 81.05% 降至 20.62%~28.79%、30.75%~37.55% 和 38.78%~47.07%, 有效成分已在前 6 个月降解^[7], 导致秸秆材料在后 6 个月对污染物去除效果下降, 污染物周年去除率均在 25.8%~35.3%。进入试验末期, 3 种基质材料对 TN 的去除效果降至 10% 左右, 显著低于有效期限内的净化效果, 微生物作用缓慢是受温度影响。并且结合秸秆分解过程中参与硝化、反硝化及厌氧氨氧化过程中所可利用的能源物质降低, 微生物脱氮作用减弱, 污染物去除效率迅速下降。其中空白对照组对 NH_4^+ -N 的去除率在 10% 左右, 且受温度影响较大, 赵聪芳等^[29]发现未添加秸秆材料的对照组 N 含量发生降低是由于底

泥微生物参与硝化反硝化作用且存在氨挥发发生。此外, 3 种秸秆中 TN 含量表现出“快速-平缓”下降的变化趋势, 9 月背景值含量最高(稻草 > 麦秸 > 玉米秆), 12 月下降最快最高, 试验进行 6 个月后 TN 含量基本持平。麦秸中 TN 含量由初始时 $8.60 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 降至 $2.00 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$, 下降 76.74%; 稻草中 TN 初始含量由最高 $12.39 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 降至 $3.19 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$, 下降 74.25%; 玉米秆中 TN 含量由初始时 $7.98 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 降至 $1.63 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 下降最高达 79.57%。

同时, 生物基质材料在处理养殖废水过程中的脱氮机制是复杂的, 本研究试图通过微生物硝化、反硝化和厌氧氨氧化过程功能基因丰度的变化初步解释其脱氮机制。试验初期正值长沙地区较热时期, 在微生物挂膜期间长沙步入冬季, 因此挂膜时期受温度影响变长, 进入冬季后虽然温度降低, 但也在微生物适应范围内, 且营养物质充足微生物缓慢生长。次年春天, 温度上升后微生物活性逐渐增加, 但试验后期由于营养成分的限制, 微生物的生长繁殖同时受到影响。*T* 和 *DO* 是影响微生物活性的重要因素, 在最适温度范围内, *T* 升高可显著提升微生物活性, 与国内外的研究结果一致^[29~31]。试验过程中, 基质池内废水中的 *DO* 不高于 $0.3 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 适宜厌氧氨氧化细菌的繁殖, 随着废水在逐级基质池中处理净化, *DO* 升高, *hzsB* 基因丰度降低, 但各级基质池间 pH 变化范围不大, 均适宜微生物繁殖, 因此各功能基因受 pH 变化影响不显著。有研究表明^[32,33], 当人工湿地基质内 $\text{DO} < 2 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时, 有利于污水中硝态氮的去除。Liu 等^[34]的研究也发现高 *DO* 能提高湿地系统中 NH_4^+ -N 的去除率。由于当湿地系统中 *DO* 增加时, 好氧硝化细菌的硝化速率增强, 进而有更多的 NH_4^+ -N 被氧化, 湿地系统中 TN 去除率随之增高。而基质池内为厌氧环境, 添加秸秆材料在湿地前端不仅为参与硝化/反硝化微生物提供附着位点及能量使其数量显著增加, 还证实基质池内发生厌氧氨氧化作用。因而, 尽管基质池内 *DO* 低至 $0.05 \sim 0.21 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 基质池中仍可进行脱氮作用, 并表明厌氧氨氧化过程是基质消纳系统高浓度养殖废水氮去除途径之一。此外, 由于进水中 NO_3^- -N 浓度较低且随着处理系统内含量仍保持稳定, 因此猜测系统内存在好氧反硝化菌和异养硝化菌^[35]为同步硝化反硝化提供了有利条件。

由上述分析结果可知, 3 种秸秆添加对基质池 N 转化微生物的影响略有差异, 且不同的外部环境因子对于生物基质消纳系统中微生物功能基因丰度均有着影响, 与王欢等^[36]和宋壮壮等^[37]研究结果较为一致。因此, 对于猪场沼液的处理, 创造合理的

环境条件,促进微生物特别是功能菌群的增加,可以最大程度发挥生物基质材料及水体中微生物脱氮的功能,是提高生物基质系统处理效果的有效途径之一。

筛选比较 3 种作物秸秆作为生物基质材料不仅在一定程度上能够降低废污染物浓度,有利于末端生态湿地植物的生长,而且达到养殖废水营养物质植物转化与生态治理的目的,是基质系统中参与脱氮微生物挂膜的良好载体,为人工湿地前端处理提供新的基质材料选择。

5 结论

(1)添加前 6 个月,3 种秸秆材料对 NH_4^+ -N 和 TN 有较好的去除效果,后 6 个月去除效果呈下降趋势。稻草与麦秸对 TN 及 NH_4^+ -N 的去除效果最好,年均去除率均高于 32%。生物基质材料可显著提高养殖废水脱氮效果。

(2)生物基质材料有利于系统内微生物增加,添加麦秸材料的处理中 AOA、AOB、*nirK* 及 16S rRNA 基因丰度最高,*hzsB* 基因与 *nirS* 基因丰度分别在稻草和麦秸中最多,证实了基质池内有厌氧氨氧化过程。

(3)N 循环相关功能基因丰度与水质环境因子之间存在显著相关,*T* 及 DO 是影响微生物活性的重要因素。同时也受废水中 NH_4^+ -N、TN 及 NO_3^- -N 浓度影响。

致谢:课题组与实验室的老师、同学和试验站的人员在采样和试验方面提供帮助,在此一并致谢!

参考文献:

- [1] 第二次全国污染源普查公报[J]. 环境保护, 2020, **48**(18): 8-10.
- [2] Zhou S L, Zhang Y R, Huang T L, *et al.* Microbial aerobic denitrification dominates nitrogen losses from reservoir ecosystem in the spring of Zhoucun reservoir[J]. Science of the Total Environment, 2019, **651**(Pt 1): 998-1010.
- [3] Hu B, Quan J N, Huang K, *et al.* Effects of C/N ratio and dissolved oxygen on aerobic denitrification process: a mathematical modeling study[J]. Chemosphere, 2021, **272**, doi: 10.1016/j.chemosphere.2020.129521.
- [4] 张燕, 阎百兴, 刘秀奇, 等. 农田排水沟渠系统对磷面源污染的控制[J]. 土壤通报, 2012, **43**(3): 745-750.
Zhang Y, Yan B X, Liu X Q, *et al.* Measures for controlling phosphorus from agricultural non-point source pollutions in drainage ditch systems[J]. Chinese Journal of Soil Science, 2012, **43**(3): 745-750.
- [5] Li X, Li Y Y, Lv D Q, *et al.* Nitrogen and phosphorus removal performance and bacterial communities in a multi-stage surface flow constructed wetland treating rural domestic sewage[J]. Science of the Total Environment, 2020, **709**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2019.136235.
- [6] 赵远哲, 董伟羊, 王海燕, 等. 气水比对 A/O-BF 处理低碳氮比农村生活污水脱氮的影响[J]. 环境科学学报, 2021, **41**(2): 451-459.
Zhao Y Z, Dong W Y, Wang H Y, *et al.* Effects of air-water ratio on the nitrogen removal of A/O-BF for the treatment of rural domestic sewage with low C/N ratio[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2021, **41**(2): 451-459.
- [7] 陈亮, 刘锋, 肖润林, 等. 人工湿地氮去除关键功能微生物生态学研究进展[J]. 生态学报, 2017, **37**(18): 6265-6274.
Chen L, Liu F, Xiao R L, *et al.* Research advances in microbial ecology for N-removal in constructed wetlands[J]. Acta Ecologica Sinica, 2017, **37**(18): 6265-6274.
- [8] 王晓玲, 宋铁红, 殷宝勇, 等. 利用主要缺氧段 ORP 作为连续流单污泥污水脱氮除磷系统调控参数[J]. 环境科学, 2015, **36**(7): 2617-2625.
Wang X L, Song T H, Yin B Y, *et al.* ORP in the main anoxic stage as the control parameter for nitrogen and phosphorus removal in the single sludge system with a continuous flow[J]. Environmental Science, 2015, **36**(7): 2617-2625.
- [9] 刘铭羽, 夏梦华, 李远航, 等. 3 种基质材料对高浓度养殖废水处理效果及降解过程[J]. 环境科学, 2019, **40**(8): 3650-3659.
Liu M Y, Xia M H, Li Y H, *et al.* Treatment of highly concentrated swine wastewater and its degradation processes using three matrix Materials[J]. Environmental Science, 2019, **40**(8): 3650-3659.
- [10] 王丽莎, 李希, 甘蕾, 等. 亚热带丘陵区湿地水生植物组合模式拦截氮磷的研究[J]. 生态环境学报, 2017, **26**(9): 1577-1583.
Wang L S, Li X, Gan L, *et al.* Study on the aquatic plant combination patterns for intercepting nitrogen and phosphorus in wetland of subtropical hilly region[J]. Ecology and Environmental Sciences, 2017, **26**(9): 1577-1583.
- [11] 鲍士旦, 戚道光, 薛爱英, 等. 氮素营养对啤酒大麦产量和品质的影响[J]. 土壤, 1993, **25**(1): 21-23.
- [12] Rothauwe J H, Witzel K P, Liesack W. The ammonia monooxygenase structural gene amoA as a functional marker: molecular fine-scale analysis of natural ammonia-oxidizing populations[J]. Applied and Environmental Microbiology, 1997, **63**(12): 4704-4712.
- [13] Sahan E, Muyzer G. Diversity and spatio-temporal distribution of ammonia-oxidizing Archaea and Bacteria in sediments of the Westerschelde estuary[J]. FEMS Microbiology Ecology, 2008, **64**(2): 175-186.
- [14] 黄薇, 刘兰英, 吴妙鸿, 等. 养殖废水处理系统中微生物菌群结构及动态变化[J]. 中国环境科学, 2019, **39**(2): 839-848.
Huang W, Liu L Y, Wu M H, *et al.* Microbial community structure and dynamics in swine wastewater treatment system[J]. China Environmental Science, 2019, **39**(2): 839-848.
- [15] 张树楠. 绿狐尾藻湿地对养殖废水氮去除效应及其机理研究[D]. 北京: 中国科学院大学, 2016.
- [16] Throbäck I N, Enwall K, Jarvis Å, *et al.* Reassessing PCR primers targeting *nirS*, *nirK* and *nosZ* genes for community surveys of denitrifying bacteria with DGGE[J]. FEMS Microbiology Ecology, 2004, **49**(3): 401-417.
- [17] Dale O R, Tobias C R, Song B. Biogeographical distribution of diverse anaerobic ammonium oxidizing (anammox) bacteria in Cape Fear River Estuary[J]. Environmental Microbiology, 2009, **11**(5): 1194-1207.
- [18] 杨杰. 亚热带红壤不同施肥处理对根际土壤微生物硝化及反硝化作用的影响研究[D]. 长沙: 湖南师范大学, 2019.

- [19] 闫冰, 夏嵩, 桂双林, 等. 厌氧氨氧化菌富集培养过程微生物群落结构及多样性[J]. 环境科学, 2020, **41**(12): 5535-5543.
Yan B, Xia S, Gui S L, *et al.* Microbial community structure and diversity during the enrichment of anaerobic ammonium oxidation bacteria[J]. Environmental Science, 2020, **41**(12): 5535-5543.
- [20] 萨姆布鲁克 J, 拉塞尔 D W, 著. 黄培堂, 译. 分子克隆实验指南第三版下[M]. 北京: 科学出版社, 2002.
- [21] Wang J L, Chu L B. Biological nitrate removal from water and wastewater by solid-phase denitrification process [J]. Biotechnology Advances, 2016, **34**(6): 1103-1112.
- [22] 周卿伟, 祝惠, 阎百兴, 等. 添加填料的人工湿地反硝化过程研究[J]. 湿地科学, 2017, **15**(4): 588-594.
Zhou Q W, Zhu H, Yan B X, *et al.* Denitrification process of constructed wetlands with adding filler [J]. Wetland Science, 2017, **15**(4): 588-594.
- [23] 凌宇, 闫国凯, 王海燕, 等. 6 种农业废弃物初期碳源及溶解性有机物释放机制[J]. 环境科学, 2021, **42**(5): 2422-2431.
Ling Y, Yan G K, Wang H Y, *et al.* Release mechanisms of carbon source and dissolved organic matter of Six agricultural wastes in the initial stage[J]. Environmental Science, 2021, **42**(5): 2422-2431.
- [24] Li X, Zhang M M, Liu F, *et al.* The significance of *Myriophyllum elatinoide*s for swine wastewater treatment: abundance and community structure of ammonia-oxidizing microorganisms in sediments [J]. PLoS One, 2015, **10**(10), doi: 10.1371/journal.pone.0139778.
- [25] 赵林丽, 邵学新, 吴明, 等. 人工湿地不同基质和粒径对污水净化效果的比较[J]. 环境科学, 2018, **39**(9): 4236-4241.
Zhao L L, Shao X X, Wu M, *et al.* Effects of Different substrates and particle sizes on wastewater purification [J]. Environmental Science, 2018, **39**(9): 4236-4241.
- [26] Li T, Yang X L, Song H L, *et al.* Alkali-treated cellulose carrier enhancing denitrification in membrane bioreactor [J]. International Biodeterioration & Biodegradation, 2019, **145**, doi: 10.1016/j.ibiod.2019.104813.
- [27] Xu Z S, Dai X H, Chai X L. Effect of different carbon sources on denitrification performance, microbial community structure and denitrification genes[J]. Science of the Total Environment, 2018, **634**: 195-204.
- [28] Wu L N, Yan Z B, Huang S, *et al.* Rapid start-up and stable maintenance of partial nitrification-anaerobic ammonium oxidation treatment of landfill leachate at low temperatures [J]. Environmental Research, 2020, **191**, doi: 10.1016/j.envres.2020.110131.
- [29] 赵聪芳, 陈坤, 李希, 等. 利用秸秆材料处理养殖废水过程中氮的转化与氨排放特征[J]. 环境工程学报, 2020, **14**(4): 993-1002.
Zhao C F, Chen K, Li X, *et al.* Characteristics of nitrogen transformation and ammonia emission in swine wastewater treatment with straw materials [J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2020, **14**(4): 993-1002.
- [30] 黄娟, 王世和, 鄢璐, 等. 潜流型人工湿地硝化和反硝化作用强度研究[J]. 环境科学, 2007, **28**(9): 1965-1969.
Huang J, Wang S H, Yan L, *et al.* Intensity of nitrification and denitrification in subsurface-flow constructed wetlands [J]. Environmental Science, 2007, **28**(9): 1965-1969.
- [31] 刘永杰. 基于自养反硝化的沼气脱硫与废水脱氮同步处理技术研究[D]. 北京: 中国地质大学(北京), 2019.
- [32] 徐伟锋, 郑淑平, 孙力平, 等. 生物膜法同步硝化反硝化影响因素的分析[J]. 天津城市建设学院学报, 2003, **9**(1): 4-7.
- [33] 秦彦荣, 袁忠玲, 张明, 等. 部分亚硝化-厌氧氨氧化协同反硝化处理生活污水脱氮除碳[J]. 环境科学, 2021, **42**(10): 4853-4863.
Qin Y R, Yuan Z L, Zhang M, *et al.* Partial nitrification and anaerobic ammonia oxidation synergistic denitrification to remove nitrogen and carbon from domestic Sewage [J]. Environmental Science, 2021, **42**(10): 4853-4863.
- [34] Liu D Z, Li J W, Li C W, *et al.* Poly (butylene succinate)/bamboo powder blends as solid-phase carbon source and biofilm carrier for denitrifying biofilters treating wastewater from recirculating aquaculture system[J]. Scientific Reports, 2018, **8**(1), doi: 10.1038/s41598-018-21702-5.
- [35] 梁伟光, 黄廷林, 张海涵, 等. 李家河水库春季分层期 nirS 型反硝化菌群特征分析[J]. 环境科学, 2022, **43**(1): 306-313.
Liang W G, Huang T L, Zhang H H, *et al.* Characteristic analysis of nirS denitrifying bacterial community in Lijiahe reservoir during stratification[J]. Environmental Science, 2022, **43**(1): 306-313.
- [36] 王欢, 裴伟征, 李旭东, 等. 低碳氮比猪场废水短程硝化反硝化-厌氧氨氧化脱氮[J]. 环境科学, 2009, **30**(3): 815-821.
Wang H, Pei W Z, Li X D, *et al.* Removing nitrogen from low-C/N-piggery-wastewater using shortcut nitrification/denitrification-ANAMMOX [J]. Environmental Science, 2009, **30**(3): 815-821.
- [37] 宋壮壮, 吕爽, 刘哲, 等. 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[J]. 环境科学, 2019, **40**(11): 5057-5065.
Song Z Z, Lü S, Liu Z, *et al.* Start-up of simultaneous ANAMMOX and denitrification process and changes in microbial community characteristics [J]. Environmental Science, 2019, **40**(11): 5057-5065.

CONTENTS

Temporal and Spatial Variation Characteristics of Heavy Metal in Atmospheric Deposition in China from 2000 to 2018	CHEN Qi-yong, GAO Yun-bing, NI Run-xiang, <i>et al.</i> (4413)
Simulation of PM _{2.5} Concentration Based on Optimized Indexes of 2D/3D Urban Form	LI Sha, ZOU Bin, LIU Ning, <i>et al.</i> (4425)
Characteristics of Carbonaceous Species in PM _{2.5} in Chengdu Under the Background of Emission Reduction	CHEN Lu-yao, YU Yang-chun, HUANG Xiao-juan, <i>et al.</i> (4438)
Characteristics and Health Risk Assessment of Trace Elements in Atmospheric PM ₁ During Autumn and Winter in Qingdao	LIU Zi-yang, ZHANG Yi-sheng, ZHANG Hou-yong, <i>et al.</i> (4448)
Pollution Characteristics and Source Analysis of Atmospheric PM _{2.5} -bound Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in a Port Area	WANG Peng-cheng, YANG Ling-xiao, BIE Shu-jun, <i>et al.</i> (4458)
Size Distribution and Source Apportionment of Road Particles During Winter in Tianjin	ZHANG Guo-tao, YIN Bao-hui, BAI Wen-yu, <i>et al.</i> (4467)
Characteristics and Impact Factors of Number Concentration of Primary Biological Aerosol Particles in Beijing	LIANG Lin-lin, LIU Chang, LIU Xu-yan, <i>et al.</i> (4475)
Characteristic Analysis and Source Apportionment of VOCs in Urban Areas of Beijing in Summer	MENG Xiang-lai, SUN Yang, LIAO Ting-ting, <i>et al.</i> (4484)
Characteristics and Source Apportionment of Volatile Organic Compounds (VOCs) in a Typical Industrial Area in Dongguan During Periods of Ozone and Non-ozone Pollution in Summer	ZHOU Zhen, XIAO Lin-hai, FEI Lei-lei, <i>et al.</i> (4497)
Temporal and Spatial Variation in Odor Pollution and Membrane Barrier Effect in Municipal Solid Waste Landfill	HE Pin-jing, LI Jian-chen, LÜ Fan, <i>et al.</i> (4506)
Comparison of Health Risk from Sources of Perfluoroalkyl Substances in Taihu Lake for Different Years	WU Ting, SUN Shan-wei, FAN Jing-pu, <i>et al.</i> (4513)
Pollution Characteristics and Source Apportionment of Typical and Emerging Per- and Polyfluoroalkylated Substances in Tuojiang River Basin	SONG Jiao-jiao, WANG Yi-mei, SUN Jing, <i>et al.</i> (4522)
Speciation and Risk of Heavy Metals in Surface Sediments of Different Types of Water Bodies in Baiyangdian Lake	XU Meng-ya, ZHANG Chao, SHAN Bao-qing, <i>et al.</i> (4532)
Distribution Coefficient of QNs in Urban Typical Water and Its Main Environmental Influencing Factors	JU Ze-jia, FU Yu, ZHAO Xin-yu, <i>et al.</i> (4543)
Ecological Risk Assessment of Quinolones Antibiotics and the Correlation Analysis Between QNs and Physical-Chemical Parameters in Groundwater, Shijiazhuang City	CHEN Hui, JU Ze-jia, ZHAO Xin-yu, <i>et al.</i> (4556)
Characteristics and Sources of DOM in Lake Sediments Under Different Inundation Environments	CHEN Jia, LI Zhong-wu, JIN Chang-sheng, <i>et al.</i> (4566)
Characteristics of Phytoplankton Community Structure and Their Relationships with Environmental Factors in Autumn in Qinhe River Basin of Jincheng Region	GAO Meng-die, LI Yan-fen, LI Yan-li, <i>et al.</i> (4576)
Integrated Assessment of Runoff Quality from Green Roofs with Different Configurations	ZHANG Sun-xun, ZHANG Shou-hong, YAN Jing, <i>et al.</i> (4587)
Degradation of Chloroquine Phosphate by UV-activated Persulfate	LI Yang, XU Bo-hui, DENG Lin, <i>et al.</i> (4597)
Removal Performance of Suspended Solid (SS) and Organic Compounds in the Pre-treatment of Actual Pharmaceutical Wastewater by Microbubble Ozonation	LIU Chun, CHEN Rui, ZHANG Jing, <i>et al.</i> (4608)
Effects of Wastewater Discharge on Antibiotic Resistance Genes and Microbial Community in a Coastal Area	CHEN Jia-yu, SU Zhi-guo, YAO Peng-cheng, <i>et al.</i> (4616)
Effects of Biochar and Straw Returning on Soil Fungal Community Structure Diversity in Cotton Field with Long-term Brackish Water Irrigation	GUO Xiao-wen, CHEN Jing, LU Xiao-yu, <i>et al.</i> (4625)
Effects of Organic Materials on Phosphorus Fractions and <i>phoD</i> -harboring Bacterial Community in Karst Soil	XIA Xin, QIAO Hang, SUN Qi, <i>et al.</i> (4636)
Effects of Different Vegetation Types on Soil Microbial Functional Genes and Enzyme Activities in Reclaimed Coal Mine	NING Yue-wei, LIU Yong, ZHANG Hong, <i>et al.</i> (4647)
Effects of Biochar Application on Yellow Soil Nutrients and Enzyme Activities	YUAN Fang, LI Kai-yu, YANG Hui, <i>et al.</i> (4655)
Changes in Soil Bacterial Community Diversity in Degraded Patches of Alpine Meadow in the Source Area of the Yellow River	SUN Hua-fang, LI Xi-lai, JIN Li-qun, <i>et al.</i> (4662)
Effects of Simulated Nitrogen Deposition on Soil Microbial Carbon Metabolism in <i>Calamagrostis angustifolia</i> Wetland in Sanjiang Plain	WENG Xiao-hong, SUI Xin, LI Meng-sha, <i>et al.</i> (4674)
Spatial Distribution of Quinolone Antibiotics and Its Correlation Relationship with Microbial Community in Soil of Shijiazhuang City	ZHAO Xin-yu, JU Ze-jia, CHEN Hui, <i>et al.</i> (4684)
Composition Characteristics and Construction Mechanism of Microbial Community on Microplastic Surface in Typical Redox Environments	GONG Zhi-wei, MA Jie, SU Qu, <i>et al.</i> (4697)
Annual Nitrogen Removal Efficiency and Change in Abundance of Nitrogen Cycling Microorganisms in Swine Wastewater Treated by Crop Straw Materials	LIU Ming-yu, XIA Meng-hua, JIANG Lei, <i>et al.</i> (4706)
Effects of External Carbon Sources on Ultimate Nitrogen Removal Performance and Microbial Community in Secondary Effluent Treating Process	WANG Wei, ZHAO Zhong-yuan, ZHANG Xin, <i>et al.</i> (4717)
Microbial Community Structure of Activated Sludge for Total Nitrogen Upgrading Project	LI Hai-song, WANG Ke-dan, CHEN Xiao-lei, <i>et al.</i> (4727)
Analysis of Microbial Interaction Law of Mud Membrane in IFAS Process for Treating Low Carbon Source Sewage in South China	HE Jun-guo, JIANG Wei-xun, HE Zhuo-yi, <i>et al.</i> (4736)
Abundances and Morphology Patterns of Microplastics Under Different Land Use Types on the Loess Plateau	HAO Yong-li, HU Ya-xian, BAI Xiao-xiong, <i>et al.</i> (4748)
Evaluation of Heavy Metal Content, Sources, and Potential Ecological Risk in Soils of Southern Hilly Areas	WANG Yu, XIN Cun-lin, YU Shi, <i>et al.</i> (4756)
Risk Assessment and Attribution Analysis of "Five Toxic" Heavy Metals in Cultivated Land in Lanzhou	ZHANG Li-rui, PENG Xin-bo, MA Yan-long, <i>et al.</i> (4767)
Distribution Characteristics and Risk Assessment of Heavy Metal Pollution in Farmland Soils and Crops in Luancheng, Shijiazhuang City	MENG Xiao-fei, GUO Jun-mei, YANG Jun-xing, <i>et al.</i> (4779)
Distribution Characteristics and Risk Assessment of Antimony in Typical Urban Soil	SHEN Cheng, YE Wen-juan, QIAN Shi-ying, <i>et al.</i> (4791)
Contamination Assessment and Source Apportionment of Soil Heavy Metals in Typical Villages and Towns in a Nonferrous Metal Mining City	WANG Feng, HUANG Yan-huan, LI Ru-zhong, <i>et al.</i> (4800)
Effect of Citric Acid and Mowing on Enhancing the Remediation of Cadmium Contaminated Soil by Napier Grass (<i>Pennisetum purpureum</i> Schum)	TANG Qi, WU Gang-fan, GU Jiao-feng, <i>et al.</i> (4810)
Arsenic Methylation Efficiency Changes During Paddy Soil Drying and Its Key Influencing Factors Analysis	ZHANG Yue, LI Ling-yi, WEN Jiong, <i>et al.</i> (4820)
Effects of Exogenous Jasmonic Acid on Arsenic Accumulation and Response to Stress in Roots of Rice Seedlings	LI Yan, HUANG Yi-zong, BAO Qiong-li, <i>et al.</i> (4831)
Effects of Straw Returning and Fertilizer Application on Soil Nutrients and Winter Wheat Yield	SONG Jia-jie, XU Xi-yang, BAI Jin-ze, <i>et al.</i> (4839)
Effect of Winter Cover Cropping on Soil Greenhouse Gas Emissions in a Dryland Spring Maize Field on the Loess Plateau of China	ZHANG Shao-hong, WANG Jun, FANG Zhen-wen, <i>et al.</i> (4848)
Detection of Influencing Factors of Spatial Variability of Soil Respiration in Pangqiangou Nature Reserve	LI Xiao-min, YAN Jun-xia, DU Zi-qiang, <i>et al.</i> (4858)
Temporal and Spatial Variation Characteristics of Methane, Carbon Dioxide, and Nitrous Oxide Concentrations and the Influencing Factors in Small Aquaculture Pond	SHI Jie, ZHANG Mi, QIU Ji-li, <i>et al.</i> (4867)
Effect of Butyl Xanthate on Pb ²⁺ and Cd ²⁺ Adsorption by Soil Around a Dressing Plant	HU Zhi-hao, GUO Zhao-hui, RAN Hong-zhen, <i>et al.</i> (4878)
Sorption Mechanism and Site Energy Distribution of Acetaminophen on Straw-derived Biochar	SHANG Cen-yao, GU Ruo-ting, ZHANG Qiang, <i>et al.</i> (4888)
Spatial-temporal Variations and Their Driving Forces of the Ecological Vulnerability in the Loess Plateau	ZHANG Liang-xia, FAN Jiang-wen, ZHANG Hai-yan, <i>et al.</i> (4902)
Mechanism and Application of Plant Growth-Promoting Bacteria in Heavy Metal Bioremediation	MA Ying, WANG Yue, SHI Xiao-jun, <i>et al.</i> (4911)