

# 环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第38卷 第2期

Vol.38 No.2

**2017**

中国科学院生态环境研究中心 主办  
科学出版社 出版



目次

北京大气颗粒物和重金属铅干沉降通量及季节变化 ..... 姚利, 刘进, 潘月鹏, 田世丽, 王振波, 韦霞, 张国忠, 周保华, 王跃思 (423)

海西城市群 PM<sub>2.5</sub> 中重金属元素的污染特征及健康风险评估 ..... 陈衍婷, 杜文娇, 陈进生, 徐玲玲 (429)

岷泗地区大气 PM<sub>2.5</sub> 中汞形态污染及其与碳组分的关系 ..... 程娜, 钱冠磊, 段炼, 赵梦飞, 修光利 (438)

泰山夏季 PM<sub>2.5</sub> 中二元羧酸类 SOA 的分子组成及来源 ..... 孟静静, 侯战方, 刘晓迪, 邢继钊 (445)

南京北郊大气 BTEX 变化特征和健康风险评估 ..... 张玉欣, 安俊琳, 王健宇, 王俊秀, 师远哲, 刘静达, 梁静舒 (453)

长株潭城市群人为源 VOCs 排放清单及其对环境的影响 ..... 尤翔宇, 罗达通, 刘湛, 苏艳蓉 (461)

南京城市交通甲烷排放特征 ..... 张雪, 胡凝, 刘寿东, 王淑敏, 高韵秋, 赵佳玉, 张圳, 胡勇博, 李旭辉, 张国君 (469)

2003~2014年东北三省气溶胶光学厚度变化分析 ..... 张宸赫, 赵天良, 王富, 徐祥德, 苏航, 程兴宏, 谭成好 (476)

基于增强回归树的城市 PM<sub>2.5</sub> 日均值变化分析: 以常州为例 ..... 葛跃, 王明新, 孙向武, 齐今笛 (485)

重庆市燃煤电厂汞排放特征及排放量 ..... 张成, 张雅惠, 王永敏, 王定勇, 徐凤, 杨熹, 何秀清 (495)

几种可能来源对广东某地空气中二噁英的影响 ..... 付建平, 韩静磊, 于晓巍, 杨艳艳, 尹文华, 冯桂贤, 张素坤, 黄锦琼, 任明忠 (502)

养鸡场空气中抗性基因和条件致病菌污染特征 ..... 高敏, 仇天雷, 秦玉成, 王旭明 (510)

百年来滇池沉积物中不同形态氮分布及埋藏特征 ..... 吴亚林, 李帅东, 江俊武, 沈胤胤, 黄昌春, 黄涛, 杨浩, 余艳红, 罗玉 (517)

岩溶地下河补给的地表溪流溶解无机碳及其稳定同位素组成的时空变化 ..... 李丽, 蒲俊兵, 李建鸿, 张陶 (527)

三峡水库大宁河支流浮游植物演变过程及其驱动因素 ..... 张佳磊, 郑丙辉, 刘德富, 王丽婧, 谭纤茹 (535)

分层型水库夏季水质对极端厄尔尼诺事件的响应 ..... 邱晓鹏, 黄廷林, 曾明正, 史建超, 曹占辉 (547)

淹水-落干与季节性温度升高耦合过程对消落带沉积物氮矿化影响 ..... 林俊杰, 刘丹, 张帅, 于志国, 何立平, 余顺慧 (555)

湖泊水体中铁(III)-草酸络合物驱动有机磷光解释放磷酸根 ..... 蒋永参, 彭云霄, 刘广龙, 周易勇, 朱端卫 (563)

高效磷吸附剂 Mg/Al-LDO 的制备及除磷机制 ..... 王卫东, 郝瑞霞, 张晓娴, 万京京, 钟丽燕 (572)

改性沸石湿地脱氮除磷效能及机制 ..... 吴鹏, 陆爽君, 徐乐中, 梁奇奇, 沈耀良 (580)

几种水陆交错带植物对底质氮磷释放的抑制作用 ..... 姚程, 胡小贞, 卢少勇, 耿荣妹 (589)

模拟三峡库区消落带优势植物根系低分子量有机酸对土壤中铅的解吸动力学 ..... 何沅洁, 刘江, 江韬, 黄京晶, 成晴, 陈宏 (600)

TiO<sub>2</sub>/膨润土复合材料对 Hg<sup>2+</sup> 的吸附性能研究 ..... 唐兴萍, 周雄, 张金洋, 张成, 王定勇 (608)

氨氮及 H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 对溴酸盐和消毒副产物控制的影响 ..... 王永京, 杜旭, 金萌, 冯思捷, 杨凯, 张明露, 于建伟 (616)

配水管网细菌活性影响因素 ..... 王晓丹, 赵新华 (622)

施氏矿物的化学合成及其对含 Cr(VI) 地下水吸附修复 ..... 朱立超, 刘元元, 李伟民, 牟海燕, 王婉玉, 石德智, 王涛 (629)

臭氧-混凝耦合工艺污水深度处理特性及其机制 ..... 侯瑞, 金鑫, 金鹏康, 王晓昌 (640)

单级和多级 A/O 工艺中氮的去除效果及 N<sub>2</sub>O 的产生特性 ..... 郭昌梓, 张凤燕, 刘富宇, 朱超, 裴立影 (647)

有机碳源作用下厌氧氨氧化系统的脱氮效能 ..... 管勇杰, 于德爽, 李津, 齐泮晴, 魏思佳 (654)

完全混合式曝气系统运行特性及微生物群落结构解析 ..... 王硕, 徐巧, 张光生, 李激 (665)

颗粒+絮体污泥 CANON 工艺的启动与 SRT 影响研究 ..... 孙延芳, 韩晓宇, 张树军, 李星, 曹相生 (672)

游离氨调控对污泥高含固厌氧消化反应器性能的影响 ..... 戴晓虎, 何进, 严寒, 李宁, 丁月玲, 董滨, 戴翎翎 (679)

利用卷枝毛霉成球特性高效收获微藻 ..... 顾琼, 金文标, 陈远清, 郭仕达, 万超凡 (688)

零价铁对污泥高温厌氧消化过程中四环素抗性基因及第一类整合子的消减影响 ..... 魏欣, 薛顺利, 杨帆, 李响, 刘振鸿, 薛罡, 高品 (697)

沈抚新城不同土地利用类型多环芳烃含量、来源及人体健康风险评估 ..... 王静, 刘明丽, 张士超, 鲁垠涛, 姚宏 (703)

河南某市驾校地表灰尘多环芳烃组成、来源与健康风险 ..... 陈轶楠, 马建华, 段海静, 魏林恒 (711)

外源微生物对植物根系修复十溴联苯醚污染底泥的强化作用 ..... 杨雷峰, 尹华, 彭辉, 李跃鹏 (721)

微生物修复油污土壤过程中氮素的变化及菌群生态效应 ..... 叶茜琼, 吴蔓莉, 陈凯丽, 李炜, 袁婧 (728)

沼泽红假单胞菌 PSB06 对辣椒根际微生物群落结构的影响 ..... 罗路云, 金德才, 左晖, 张卓, 谭新球, 张德咏, 卢向阳, 刘勇 (735)

再生水补水对河道底泥细菌群落组成与功能的影响 ..... 邱琰茗, 王广煊, 黄兴如, 郭道宇 (743)

矿区不同植被复垦模式对土壤细菌群落结构的影响 ..... 贺龙, 李艳琴, 李彬春, 李君剑 (752)

稻田土壤固碳功能微生物群落结构和数量特征 ..... 刘琼, 魏晓梦, 吴小红, 袁红朝, 王久荣, 李裕元, 葛体达, 吴金水 (760)

不同温度制备的生物质炭对土壤有机碳及其组分的影响: 对土壤腐殖物质组成及性质的影响 ..... 赵世翔, 于小玲, 李忠徽, 杨艳, 张霞, 王旭东, 张阿凤 (769)

复合菌剂秸秆堆肥对土壤碳氮含量和酶活性的影响 ..... 聂文翰, 戚志萍, 冯海玮, 孙玉静, 支月娥, 张进忠, 张丹 (783)

秸秆/生物炭施用对关中地区小麦-玉米轮作系统净增温潜势影响的对比分析 ..... 成功, 陈静, 刘晶晶, 张阿凤, 王旭东, 冯浩, 赵英 (792)

1株氯苯高效降解菌的分离鉴定及降解特性 ..... 叶杰旭, 林彤晖, 骆煜昊, 陈东之, 陈建孟 (802)

1株异养反硝化硫细菌的分离鉴定及代谢特性 ..... 谭文勃, 马晓丹, 黄聪, 陈川, 王爱杰 (809)

连续施用污泥堆肥土壤剖面中重金属积累迁移特征及对小麦吸收重金属的影响 ..... 孙娜, 商和平, 茹淑华, 苏德纯 (815)

施氮对小麦硒(VI)吸收、转运和分配的影响 ..... 陈玉鹏, 彭琴, 梁东丽, 宋卫卫, 雷凌明, 喻大松 (825)

长期暴露下纳米二氧化钛对典型淡水藻体砷累积与生物转化的影响 ..... 李金丽, 王振红, 严雅萌, 黄兵, 罗专溪 (832)

不同热解温度制备的玉米芯生物炭对对硝基苯酚的吸附作用 ..... 马锋锋, 赵保卫 (837)

《环境科学》征稿简则(526) 《环境科学》征订启事(720) 信息(678, 696, 844)

## 改性沸石湿地脱氮除磷效能及机制

吴鹏<sup>1</sup>, 陆爽君<sup>2</sup>, 徐乐中<sup>1</sup>, 梁奇奇<sup>1</sup>, 沈耀良<sup>1,3,4\*</sup>

(1. 苏州科技大学环境科学与工程学院, 苏州 215009; 2. 苏州市环境科学研究所, 苏州 215004; 3. 江苏省水处理技术与材料协同创新中心, 苏州 215009; 4. 江苏省环境科学与工程重点实验室, 苏州 215009)

**摘要:** 为明确改性沸石湿地对分散性农村生活污水中氮磷的去除效能, 并探索其脱氮除磷机制, 将改性沸石作为折流湿地填料层填料, 应用于厌氧折流板反应器 (ABR) + 折流湿地 (BFCW) 组合工艺, 为苏州市农村生活污水处理提供新途径。结果表明, 改性沸石湿地对氮磷去除良好且稳定, 脱氮量和除磷量较沸石湿地分别增大 1.8% 和 1 倍多。湿地主要通过填料的吸附截留作用脱氮除磷, 以 Ca-P 和 Al-P 为主要沉淀磷素形式, 植物的泌氧和吸收作用有助于稳定出水水质。湿地前端和后端分别以填料的吸附截留作用和微生物的硝化反硝化作用为主要脱氮途径。改性过程对沸石磷素吸附沉淀性能的大幅提升是在多重途径的协同作用下实现的, 湿地构型和植物根系的影响是造成相同区域填料氮磷截留量差异的主要原因。硝化作用强度的高低是改性沸石湿地脱氮效果及稳定性季节性波动的主因。

**关键词:** 改性沸石; 人工湿地; 脱氮除磷; 效能; 机制; 分散性农村生活污水

中图分类号: X703.1 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2017)02-0580-09 DOI: 10.13227/j.hjxx.201607190

## Efficiency and Mechanism of Nitrogen and Phosphorus Removal in Modified Zeolite Wetland

WU Peng<sup>1</sup>, LU Shuang-jun<sup>2</sup>, XU Le-zhong<sup>1</sup>, LIANG Qi-qi<sup>1</sup>, SHEN Yao-liang<sup>1,3,4\*</sup>

(1. School of Environmental Science and Engineering, Suzhou University of Science and Technology, Suzhou 215009, China; 2. Suzhou Environmental Science Research Institute, Suzhou 215004, China; 3. Jiangsu Collaborative Innovation Center of Technology and Material of Water Treatment, Suzhou 215009, China; 4. Jiangsu Provincial Key Laboratory of Environmental Science and Engineering, Suzhou 215009, China)

**Abstract:** To study the efficiency and mechanism of nitrogen and phosphorus removal for decentralized rural sewage in modified zeolite wetland, the modified zeolite was applied as substrate into a combined process composed of anaerobic baffled reactor (ABR) and baffled flow constructed wetland (BFCW), providing a new way for rural sewage treatment in Suzhou City. The study was contrasted with zeolite wetland. The results showed that the modified zeolite wetland had high efficiency and stability of nitrogen and phosphorus removal, and the nitrogen and phosphorus removal quantities of modified zeolite wetland were 1.8% and 1 times higher than those of zeolite wetland during the trial. The modified zeolite wetland mainly removed nitrogen and phosphorus by substrate adsorption, and the main fractions of modified zeolite were Ca-P and Al-P. The oxygen-secretion and absorption of plants stabilized the water quality of the effluent. The substrate adsorption was the main nitrification removal pathway in front of the wetland, and nitrification and denitrification were the main nitrification removal pathways at the end of the wetland. The nitrogen and phosphorus adsorption capacities during the pilot test were much higher than those of the static test. The optimization of phosphorus adsorption capacity for modified zeolite was achieved under the synergy of multiple pathways. The effect of configuration and plant root was the main reason for the difference of nitrogen and phosphorus adsorption quantities. Nitrification intensity led to the seasonal fluctuation of nitrogen removal effect and stability in modified zeolite wetland, and the low nitrification intensity in the front of wetland was related to the strong adsorption of  $\text{NH}_4^+$ -N by the modified zeolite.

**Key words:** modified zeolite; constructed wetland; nitrogen and phosphorus removal; efficiency; mechanism; decentralized rural sewage

分散性农村生活污水以其分散性及在污水排放总量中的大比例, 成为太湖流域农村生活污水治理工作的重点和难点<sup>[1]</sup>。厌氧折流板反应器 (ABR) + 折流湿地 (BFCW) 组合工艺具有悬浮物和有机物去除效果好、抗冲击负荷能力强、运行低耗稳定、维护简便并可美化环境等特点<sup>[2]</sup>, 适宜处理太湖流域分散性农村生活污水, 但其冬季脱氮除磷效果不够理想, 限制了其在太湖沿岸的推广应用。

收稿日期: 2016-07-27; 修订日期: 2016-09-15

基金项目: 国家自然科学基金项目 (51578353); 江苏省自然科学基金项目 (BK20160356); 江苏省高校自然科学研究重大项目 (12KJA610002); 江苏省高校自然科学基金项目 (16KJB610013); 苏州市环保科技项目 (B20130502); 江苏高校优势学科建设工程项目; 环境工程江苏省重点专业类项目; 苏州科技学院科研基金青年项目 (XKQ201504)

作者简介: 吴鹏 (1985 ~), 男, 博士, 讲师, 主要研究方向为废水生物处理, E-mail: wupengniu@126.com

\* 通信作者, E-mail: ylshen@mail.usts.edu.cn

填料氮磷吸附截留性能的提高有利于湿地启动期及冬季的脱氮除磷<sup>[3-6]</sup>。本试验分别以改性沸石或沸石为 BFCW 填料层填料,应用于 ABR + BFCW 工艺处理农村生活污水的中试中,研究沸石改性前后 BFCW 在不同表面水力负荷(HLR)和不同运行时期脱氮除磷效果的变化,并以沸石湿地为对照,探索改性沸石湿地的脱氮除磷机制。通过测定湿地填料和植物全磷全氮及微生物硝化作用强度,明确填料吸附沉淀、植物吸收和微生物转化对湿地脱氮除磷的贡献及空间分布,并对 2 种填料中截留的磷素进行形态分析,以明确填料对磷素的去除机制,以期为太湖流域推广应用人工湿地提供技术支持。

## 1 材料与方 法

### 1.1 试验材料及用水

改性沸石由沸石依次经  $3 \text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$  NaOH 和  $2 \text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$   $\text{AlCl}_3$  溶液改性制得<sup>[7]</sup>。经多次测定,沸石改性前后理化特性见表 1,改性沸石湿地和沸石湿地理论容水体积分别为 113.19 L 和 111.93 L。试验原水提取自某高校生活区集水井,水质波动大(pH 5.5~8,溶解氧  $0.7\sim 2.5 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ),秋季起进水污染物浓度逐渐增大,符合分散性农村生活污水水质特征,经 ABR 预处理后,BFCWs 进水水质见表 2,其中 pH 5.1~7.5,溶解氧小于  $0.6 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。

表 1 沸石和改性沸石理化特性

Table 1 Physical and chemical properties of zeolite and modified zeolite

填料	沸石	改性沸石
粒径/mm	4~8	4~8
空隙率/%	45.0	46.0
堆积密度/ $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$	1 084	1 066
TP/ $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$	0.111	0.027
有机 P/ $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$	0.008	0.001
无机 P/ $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$	0.103(100%)	0.026(100%)
溶解性 P/ $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$	0.002(1.80%)	0(0%)
Al-P/ $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$	0.062(55.86%)	0.012(46.15%)
Fe-P/ $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$	0.003(2.70%)	0.002(7.69%)
O-P/ $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$	0.008(7.21%)	0.006(23.08%)
Ca-P/ $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$	0.028(25.23%)	0.006(23.08%)
TN/ $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$	0.198	0.034
Si/ $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$	0.342	0.307
Al/ $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$	0.025	0.028

### 1.2 试验装置及方法

#### 1.2.1 试验装置

BFCW 反应器(图 1)由 PVC 板制成,长×宽×高为  $1.35 \text{ m}\times 0.3 \text{ m}\times 1.0 \text{ m}$ ,由布水区、处理区和集水区构成,有效长度分别为 0.1、1.05 和 0.15 m,

两个反应器制作在一起,中间以竖直隔板完全封闭隔开,并做多重防渗处理。ABR 出水经阀门和流量计控制流量自流入 BFCWs 中,布水区和集水区均为渠构造,内部填充适量鹅卵石(粒径  $30\sim 50 \text{ mm}$ ),以均匀布水和收水,出水水位为  $0.55 \text{ m}$ ,进出水落差  $5 \text{ cm}$ 。进、出水渠顶放置有机玻璃盖板,以减轻大气复氧的影响。

表 2 不同运行时期 BFCWs 平均进水水质/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$

Table 2 Characteristics of BFCWs influent in different operation periods/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$

运行时期	COD	TN	$\text{NH}_4^+\text{-N}$	TP	SS
启动期	117.03	44.07	41.82	6.90	59.05
夏季	83.20	38.43	36.27	4.31	70.00
秋季	94.21	74.62	66.32	7.68	76.00
冬季	184.01	82.13	70.23	8.58	102.00

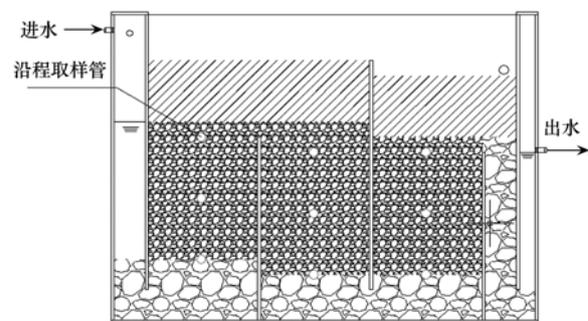


图 1 BFCW 构造示意  
Fig. 1 Structure of BFCW

处理区由隔板横向均匀分隔为 3 个隔室,各隔室均长  $0.35 \text{ m}$ ,其中第 1 隔室和第 3 隔室为上向流,第 2 隔室为下向流。第 1 隔室水位为  $0.60 \text{ m}$ ,后两个隔室以隔板底部暗门相连,水位控制在  $0.55 \text{ m}$ 。处理区填料由 3 层组成,底层铺  $15 \text{ cm}$  厚的鹅卵石,为防堵,第 1 隔室增厚  $5 \text{ cm}$ ; 中层为主处理区,分别填充  $45 \text{ cm}$  的沸石或改性沸石,上层铺  $20 \text{ cm}$  的覆土。各隔室中央种植 1 丛美人蕉,种植密度约为  $10 \text{ 株}\cdot\text{m}^{-2}$ ,4 个角落附近各种植 1 丛菖蒲,种植密度约为  $38 \text{ 株}\cdot\text{m}^{-2}$ 。植物于试验启动前夕种植,均为幼苗。分别于各隔室前后左右及中央附近预埋 5 根塑料填料采集管,采集管长  $0.6 \text{ m}$ ,内径  $20 \text{ mm}$ ,沿管壁四周均匀打孔 4 排,4 排孔在截面上呈中心对称,以减轻采集管对湿地水力流态的影响,以硬油料加塞管底,并辅以棉纱布裹住底部,管内填充沸石或改性沸石,并覆土。反应器侧壁面上,沿程各设 9 个采样点,由内径  $15 \text{ mm}$  的有机玻璃管接出,分别采集运行期间各隔室处理区底部、中部和顶部水样和固体样。

### 1.2.2 试验运行及方法

本试验研究自 2014 年 4 月启动,启动期间控制 HLR 约为  $152 \text{ mm}\cdot\text{d}^{-1}$ ,运行 60 d 后,两湿地出水水质均趋于稳定. 启动完成后,分别控制 HLR 约为 152、230、305 和  $460 \text{ mm}\cdot\text{d}^{-1}$ ,各阶段历时 3 周左右,考察不同 HLR 对两湿地氮磷处理效能的影响. 10 月起,始终控制 HLR 约为  $152 \text{ mm}\cdot\text{d}^{-1}$ 时,考察相同 HLR 下,不同运行时期两湿地氮磷去除效果的波动.

分别于 7、10 和 12 月,自 9 个采样沿程点中,分别挖取一定量的填料,测定沿程各段微生物硝化作用强度,以探究季节变化对微生物硝化反应的影响,各处填料做 3 个平行. 同步测定沿程水样的 TN、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 、DO、TP、DTP、IP、COD、SS 等指标,以研究湿地污染物沿程去除和存在形式转化.

1 月将植物地面部分收割完毕后,分别于两湿地中拔去美人蕉和菖蒲各 1 整棵,以获取各湿地美人蕉和菖蒲的主根系样品,并估算根系质量. 将各湿地美人蕉按花、叶、茎和根,菖蒲按叶、块茎和根分离开来,分别称重. 并分别测定两种植物各部分的全磷全氮,各部分分别做 3 个平行. 综合各部分质量和全磷全氮含量估算两湿地植物对氮磷的吸收量.

1 月将两湿地预埋的 15 根填料采集管取出,分别测定每根管上中下 3 段填料的全磷全氮,并进行截留磷素形态分析,以估算填料对氮磷的截留量及空间分布,研究沸石和改性沸石对磷素的吸附机制和沿程各段磷素吸附形态的区别.

根据填料和植物的全氮全磷及各季微生物的硝化强度,以估算不同湿地中植物、填料和微生物对系统脱氮除磷的贡献率.

经 ABR 预处理后, $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 成为湿地进水主要氮素形式,占 TN 浓度的 90% 以上. 湿地沿程 DO 值均在  $0.6 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  以下,反硝化作用强度远高于硝化作用强度,氧化态氮难以积累,硝化反应成为人工湿地脱氮的限制性步骤. 有研究表明<sup>[8]</sup>,处理  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  废水时,人工湿地 TN 去除率与硝化作用强度正相关,植物根面和根区硝化作用强度差距不大,经观察本试验中植物根系生长成熟后,在水平方向上分布较为均匀,根系较密集的水平面根系间距基本均在 2 cm 内,整个水平面基本均属根区,而湿地中微生物基本附着于填料表面,因此本试验以处理层填料的硝化作用强度衡量湿地微生物脱氮强度.

### 1.2.3 分析方法

水样 TN、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 、TP、DTP、IP、COD 和 SS 等常规指标均采用国家标准方法<sup>[9]</sup>. 硝化作用强度采用溶液培养法,填料的全磷全氮采用  $\text{HClO}_4\text{-H}_2\text{SO}_4$  法,植物的全磷全氮采用  $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{O}_2$  法,无机磷形态分析采用化学试剂浸提分离法<sup>[10-12]</sup>.

### 1.2.4 相关计算公式

湿地氮磷转移去除总量:

$$M = \sum_{i=1}^n (c_{ii} - c_{i0}) \times V_i \quad (1)$$

$$M = M_1 + M_2 + (M_3) + M_0 \quad (2)$$

湿地植物全氮全磷:

$$M_1 = \sum_{\tau=1}^3 Z_{\tau} m_{\tau} (1 - W_{\tau}) + \sum_{\theta=1}^4 Z_{\theta} m_{\theta} (1 - W_{\theta}) \quad (3)$$

湿地填料氮磷截留量:

$$M_{2N} = (N - N_0) m_s \quad (4)$$

$$M_{2P} = (P - P_0) m_s \quad (5)$$

$$P = \left( \sum_{\delta=1}^9 \sum_{\eta=1}^6 P_{\eta} \right) / 9 \quad (6)$$

湿地微生物硝化作用脱氮量:

$$M_3 = \left( \sum_{\varepsilon=1}^4 r_{\varepsilon} t_{\varepsilon} \right) \times m_s \quad (7)$$

$$r_{\varepsilon} = \left( \sum_{\delta=1}^9 r_{\delta} \right) / 9 \quad (8)$$

$$m_s = \rho_b V \quad (9)$$

式中, $M$  为中试运行期间湿地对污水中氮磷的转移去除总量, g;  $M_1$  为中试运行期间湿地植物对污水中氮磷的吸收量,包括菖蒲和美人蕉的全氮全磷增量, g;  $M_2$  为中试运行期间湿地填料对污水中氮磷的截留量,其中,  $M_{2N}$  和  $M_{2P}$  分别为填料对氮素和磷素的截留量, g;  $M_3$  为中试运行期间湿地微生物硝化作用脱氮量, g;  $M_0$  为中试运行期间湿地通过其他方式对污水中氮磷的转移去除量, g.  $c_{ii}$  为第  $i$  天湿地进水氮磷质量浓度,  $\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ;  $c_{i0}$  为第  $i$  天出水氮磷质量浓度,  $\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ;  $V_i$  为第  $i$  天处理废水体积,  $\text{m}^3$ ;  $n$  为中试运行天数, d;  $\tau$  和  $\theta$  分别为菖蒲和美人蕉的各个器官,菖蒲共 3 个器官,美人蕉共 4 个器官;  $Z_{\tau}$  和  $Z_{\theta}$  分别为菖蒲和美人蕉各器官单位质量的氮磷含量,  $\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ;  $m_{\tau}$  和  $m_{\theta}$  分别为菖蒲和美人蕉各器官湿重, kg;  $W_{\tau}$  和  $W_{\theta}$  分别为菖蒲和美人蕉各器官含水率, %;  $N$  和  $P$  为中试运行结束后单位质量填料的平均全氮全磷量,  $\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ;  $N_0$  和  $P_0$  为填料全氮全磷背景值,  $\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ;  $P_{\eta}$  为单位质量填料截留的

第  $\eta$  种磷素形态质量, 填料全磷由有机磷、水溶性磷、Al-P、Fe-P、O-P 和 Ca-P 这 6 种磷素形态构成,  $g \cdot kg^{-1}$ ;  $\varepsilon$  为中试运行期间经过的各个时期(启动期和夏、秋、冬 3 季, 共 4 个阶段);  $r_\varepsilon$  为某一时期湿地的平均硝化反应强度,  $g \cdot (kg \cdot d)^{-1}$ ;  $t_\varepsilon$  为某一时期天数,  $d$ ;  $r_\delta$  为湿地填料层第  $\delta$  段平均硝化反应强度, 将湿地填料层平均分为前中后和上中下共 9 段,  $g \cdot (kg \cdot d)^{-1}$ ;  $m_s$  为湿地填料层填料质量,  $kg$ ;  $\rho_b$  为湿地填料层填料堆积密度,  $kg \cdot m^{-3}$ ;  $V$  为湿地填料层体积.

## 2 结果与讨论

### 2.1 脱氮效能研究

改性后, 沸石硅铝比降低<sup>[13]</sup>,  $NH_4^+$ -N 吸附性能提高, HLR 越高, 改性沸石在脱氮能力上的优势越明显, BFCW 脱氮效能实现优化(图 2). 由于极强的吸附性能,  $NH_4^+$ -N 于第 1 隔室中大量去除. 污水  $NH_4^+$ -N 浓度于第 1 隔室下方即大幅降低, 而第 1 隔室下、中、上这 3 个采样点间浓度差较小, 垂直隔板将第 1 隔室分隔为相对独立的处理单元, 污水进入

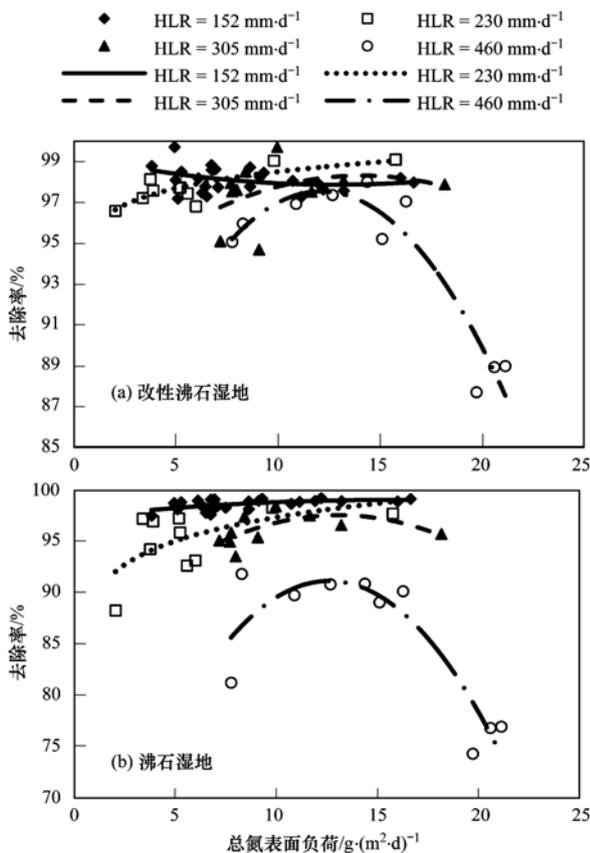


图 2 不同 HLR 下 TN 去除率与 TN 表面负荷的关系  
Fig. 2 Relationship between inlet TN surface loading and TN removal rate under different HRTs in BFCWs

湿地后,  $NH_4^+$ -N 迅速于第 1 隔室中扩散, 与填料的接触反应更加充分, 提升了湿地的空间利用率. 经第 1 隔室后, TN 负荷已大幅下降, 后两个隔室起到了抗冲击负荷及保证出水水质的作用,  $NH_4^+$ -N 浓度极低时, 填料吸附性能差, 甚至有吸附态  $NH_4^+$ -N 析出, 因此出水中仍有微量  $NH_4^+$ -N 存在. 相同 TN 负荷下, HLR 越高, 污水与填料接触时间越短, 吸附反应越不充分, 同时, 填料内外浓度差变小, 污水对填料的冲刷加剧, 吸附效果有所降低, TN 负荷越低, 吸附态  $NH_4^+$ -N 越易析出, 吸附效果降低的越明显.

低 TN 负荷时, ABR 中未氨化的有机氮在第 1 隔室中基本得到氨化, 湿地出水中仅有少量微生物代谢衰亡及硝化产物,  $NH_4^+$ -N 含量极低. 但单位体积的污水与填料接触的单位时间内, 吸附量存在极值, 因此在高 TN 负荷时, 去除率随 HLR 的增大急剧下降. 当  $HLR = 460 \text{ mm} \cdot \text{d}^{-1}$  时, TN 进水浓度在  $40 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  以上时, 沸石湿地和改性沸石湿地出水 TN 浓度均超过  $5 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ .

图 3 为不同季节下 TN 去除率与 TN 表面负荷的关系.  $HLR = 152 \text{ mm} \cdot \text{d}^{-1}$  时, 夏季 TN 负荷在  $3.84 \sim 9.67 \text{ g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$  间波动, 秋冬季 TN 负荷在  $6.75 \sim 16.65 \text{ g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$  间波动. 相近进水 TN 负荷下, 10 月底第 1 隔室对 TN 的去除效果略优于 4 月底, 可能与植物的继续生长有关<sup>[14,15]</sup>.

冬秋两季进水 TN 负荷相近, 两个湿地冬季 TN 去除率波动显著大于秋季, 冬季温度低, 湿地供氧能

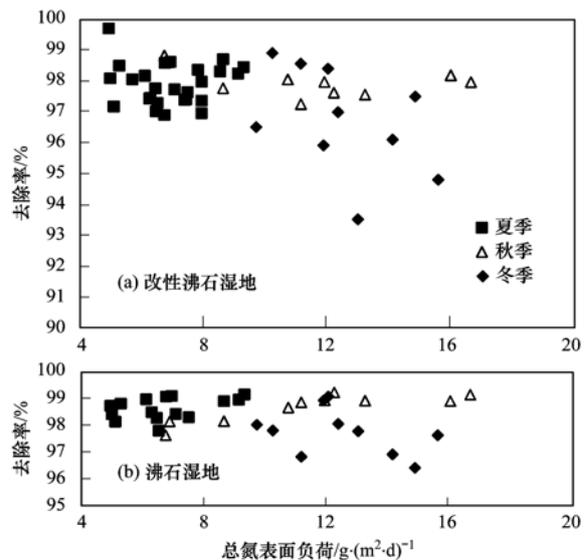


图 3 不同季节下 TN 去除率与 TN 表面负荷的关系  
( $HLR = 152 \text{ mm} \cdot \text{d}^{-1}$ )

Fig. 3 Relationship between inlet TN surface loading and TN removal rate of BFCW in different seasons when the HLR was  $152 \text{ mm} \cdot \text{d}^{-1}$

力下降,脱氮菌活性降低<sup>[16]</sup>,死区更易形成,导致处理效果和稳定性有所降低. 冬季改性沸石湿地和沸石湿地平均去除率分别为 96.73% 和 97.74%,改性沸石湿地去除效果较差,改性沸石对  $\text{PO}_4^{3-}$  吸附效果优于沸石,改性沸石对  $\text{PO}_4^{3-}$  的大量吸附占用了更多的吸附点位,影响了其对  $\text{NH}_4^+$  的吸附. 运行 1 年来,两种湿地脱氮效果未见明显下降,填料远未达到吸附饱和.

## 2.2 脱氮机制研究

湿地填料沿程各段的氮素截留量见表 3,改性沸石湿地第 1 隔室填料平均氮素截留量比沸石湿地多了 17%,说明在改性过程中低价金属离子有效地取代了沸石晶格中的  $\text{Si}^{4+}$ ,且于实际应用中发挥了作用,两种沸石在第 1 隔室的氮素截留量远高于静态吸附试验中得到的吸附量. 与静态吸附试验锥形瓶中氮素总量恒定不变不同,实际运行中不断有新氮源与填料接触,填料对氮素始终保持较高的吸附推动力,

吸附点位的利用更为充分,从而吸附了更多的氮素.

由于两种沸石对  $\text{NH}_4^+$ -N 极强的吸附性能,  $\text{NH}_4^+$ -N 粒子进入湿地后迅速在两种湿地的第 1 隔室中扩散,并被大量吸附至吸附平衡,改性沸石和沸石湿地分别有 87.77% 和 81.19% 的截留氮素被截留在第 1 隔室,且整个隔室上下层吸附量无显著差异.

两种沸石湿地第 2 隔室中上层前端和后端吸附量差距较大,说明  $\text{NH}_4^+$ -N 粒子进入第 2 隔室后,先于第 2 隔室前端流至底层再向上层返混所致,这也解释了第 2 隔室作为下向流,氮素平均截留量与第 3 隔室一样,呈现出下层 > 中层 > 上层的规律,且同层吸附量差距不大. 改性沸石各隔室中段平行的 3 根填料采样管中,有粗壮根系的采样管氮素平均截留量比无粗壮根系的采样管多 11.59%,粗壮根系的导流作用使周围填料与同层填料相比能接触更多的氮素,从而获得更高的截留量,这是除流态影响外,相同区域吸附量差异的另一因素.

表 3 填料沿程截留氮素量<sup>1)</sup>/mg·g<sup>-1</sup>

Table 3 Increase of TN in substrate of different areas in wetlands/mg·g<sup>-1</sup>

位置	第 1 隔室		第 2 隔室		第 3 隔室	
	改性沸石	沸石	改性沸石	沸石	改性沸石	沸石
上层	9.85(0.091)	8.09(0.099)	0.63(0.126)	0.82(0.110)	0.43(0.075)	0.68(0.059)
中层	9.90(0.075)	8.23(0.087)	0.76(0.078)	1.06(0.060)	0.66(0.037)	0.94(0.078)
下层	10.02(0.084)	8.36(0.099)	0.87(0.056)	1.13(0.021)	0.83(0.030)	1.08(0.031)

1) 氮素截留量指运行前后该段填料全氮的平均增加值,即运行结束后该段前后左右中 5 部分填料的平均全氮减去填料全氮背景值;括号内为标准差,下同

改性沸石湿地各段硝化作用强度季节变化如图 4 所示,湿地上中下 3 层硝化作用强度均呈现出秋季 > 夏季 > 冬季的规律,这与改性沸石在各季的脱氮效果及稳定性规律相一致,硝化作用强度的高低是改性沸石湿地脱氮效果及稳定性季节性波动的主因. 由于试验启动较晚,植物在 9 ~ 10 月的继续生长及根系的延伸强化了湿地的供氧能力并拓展了湿地的供氧空间,因此湿地在秋季硝化作用强度较大,而植物根系在夏秋季的疏导作用使湿地拥有较为稳定的水力条件,出水浓度波动较冬季小. 沸石湿地和改性沸石湿地夏、秋和冬这 3 季平均日硝化总量分别为  $0.91 \text{ g}\cdot\text{d}^{-1}$  和  $0.68 \text{ g}\cdot\text{d}^{-1}$ 、 $1.22 \text{ g}\cdot\text{d}^{-1}$  和  $0.88 \text{ g}\cdot\text{d}^{-1}$  以及  $0.67 \text{ g}\cdot\text{d}^{-1}$  和  $0.51 \text{ g}\cdot\text{d}^{-1}$ ,运行期间,沸石湿地下、中、上三层平均硝化强度分别为  $0.45$ 、 $5.12$  和  $11.84 \text{ mg}\cdot(\text{kg}\cdot\text{d})^{-1}$ ,改性沸石湿地分别为  $0.55$ 、 $3.31$  和  $10.28 \text{ mg}\cdot(\text{kg}\cdot\text{d})^{-1}$ ,沸石湿地硝化强度普遍高于改性沸石湿地,而沸石湿地和改性沸石湿地菖蒲全氮增量分别为  $12.82 \text{ g}$  和

$10.68 \text{ g}$ ,美人蕉全氮增量分别为  $3.88 \text{ g}$  和  $3.20 \text{ g}$ ,改性沸石湿地植物长势更佳,供氧效果更好,溶氧浓度高于沸石湿地,改性沸石更佳的氮素吸附截留能力,抑制了其床体内硝化反应的发生<sup>[17]</sup>.

湿地沿程各段运行期间硝化作用分布如表 4,硝化反应均主要发生在湿地的中上层,这与湿地的溶氧分布相符<sup>[18]</sup>,中上层硝化作用强度沿程变化普遍呈现出第 2 隔室 > 第 3 隔室 > 第 1 隔室的规律. 湿地进水中  $\text{NH}_4^+$ -N 浓度较高,大量  $\text{NH}_4^+$ -N 在第 1 隔室迅速被改性沸石截留,造成第 1 隔室中 C/N 过高,硝化菌难以大量繁殖. 第 1 隔室出水  $\text{NH}_4^+$ -N 浓度一般在  $12 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  以下,第 2、3 隔室填料内外  $\text{NH}_4^+$ -N 浓度差变小,吸附推动力变小,  $\text{NH}_4^+$ -N 难以被填料迅速吸附;同时,由于缺少硝化菌对溶氧的竞争,污水中的有机物在第 1 隔室中上段被大量降解,有效降低了第 2 隔室进水的 C/N,使硝化菌在 2、3 隔室中上段大量生长繁殖成为可能,第 2 隔室上层硝化菌能有效去除返混至此的大量  $\text{NH}_4^+$ -N,而

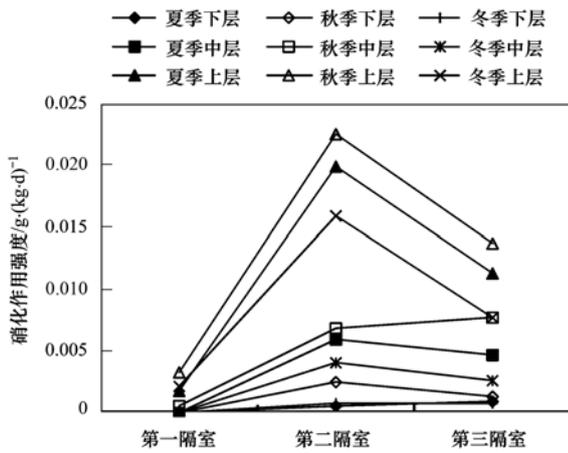


图4 改性沸石湿地各段硝化作用强度季节变化  
Fig. 4 Seasonal changes of nitrification intensity in each part of modified zeolite wetland

第3隔室上层可能由于难以获得稳定的氮源硝化作用强度较低。沸石吸附性能较差,沸石湿地在第1隔室上层即有较为明显的硝化反应发生,运行期间在此区域沸石湿地平均硝化作用强度是改性沸石湿地的3倍多。

表4 运行期间硝化作用沿程分布/%

Table 4 Distribution of nitrification in wetlands during operation/%

位置	第1隔室		第2隔室		第3隔室	
	改性沸石	沸石	改性沸石	沸石	改性沸石	沸石
上层	4.42	11.50	43.53	34.19	24.58	21.27
中层	0.16	1.54	12.80	14.81	10.59	14.14
下层	0.00	0.08	1.82	1.18	2.09	1.30

从填料及植物全氮增量和微生物硝化作用强度这3个方面表征填料吸附沉淀、植物吸收和微生物转化对湿地脱氮的贡献,由于湿地出水中几无硝态氮剩余,因此认为硝化作用生成的硝态氮均被反硝化。填料吸附沉淀、植物吸收和微生物硝化反硝化作用对改性沸石湿地脱氮贡献分别约为74.11%、2.43%和22.29%,对沸石湿地分别约为67.64%、2.06%和28.80%,均主要依靠填料吸附沉淀作用脱氮。承托层填料均为鹅卵石,氮素吸附性能极差,且位于湿地底部几无硝化菌繁殖;运行期间pH基本均低于8.5,湿地氨挥发量少;湿地进水属NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N型污水,硝态氮浓度低,因此通过其他途径脱氮量较低。由表5可知,改性沸石湿地前段主要依靠填料的吸附截留脱氮,而微生物的硝化反硝化是其后续的主要脱氮途径,改性沸石湿地第1隔室对湿地脱氮的贡献率近70%,而后段主要起稳定出水水质的作用,因此冬季微生物脱氮菌活性下降后,湿地出水TN浓度波动加大。改性沸石湿地依靠处

理层填料吸氮性能的优化,运行期间脱氮量较沸石湿地提高了1.8%,对沸石湿地脱氮效果起到了一定的优化效果。

表5 改性沸石各隔室三大脱氮因素作用比较/%

Table 5 Comparison of three main nitrogen removal pathways in modified zeolite wetland/%

项目	第1隔室	第2隔室	第3隔室
微生物硝化反硝化	97.16	26.51	31.56
植物吸收	1.32	4.00	6.04
填料截留	1.52	69.49	62.40

2.3 除磷效能研究

湿地TP去除率均随进水TP负荷提高而增大,低TP负荷时,填料内外浓度差小,易有磷素析出,对除磷效果影响较大。沸石磷素吸附沉淀能力差<sup>[19]</sup>,磷素更易析出,因此当负荷小于1.5 g·(m<sup>2</sup>·d)<sup>-1</sup>时,沸石湿地TP去除率随TP负荷的降低急剧下降,HLR高时,污水对填料的冲刷加剧,甚至出现负值<sup>[20]</sup>,这也是对沸石进行改性的原因。

沸石经改性后,除磷能力大幅提升,但铝代硅会产生负电荷,进水NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N浓度较大时会影响其除磷效果<sup>[21]</sup>,因此高HLR时处理稳定性较差(图5)。改性沸石湿地出水TP浓度主要受湿地后段微生物生

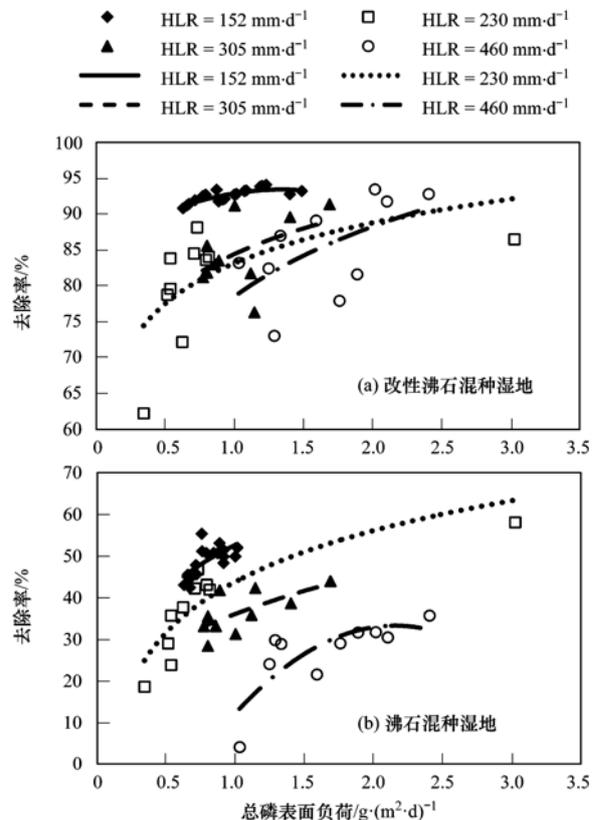


图5 不同HLR下各湿地TP去除率与TP表面负荷的关系

Fig. 5 Relationship between inlet TP surface loading and TP removal rate under different HRTs in BFCWs

长代谢影响,湿地后段氮磷负荷长期处于低负荷状态,会使后段微生物大量衰亡,出水中含有大量溶解性有机磷. 当夏季进水 TP 负荷较低,易出现此现象.

季节变化对湿地除磷效果的影响见表 6,为减轻 TP 负荷不同对处理效果的影响,选取沸石湿地进水 TP 负荷在  $0.85 \sim 1.05 \text{ g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$  间的数值结果进行比较发现,相较夏季,沸石湿地在秋季的 TP 去除率提高了 8.33%,且稳定性更高. 植物的继

续生长,泌氧能力的加强,磷素形态转化速率加快,湿地内生物量不断增加,生物膜的生长成熟是湿地除磷效果和稳定性增强的主要原因<sup>[22]</sup>. 对沸石湿地进水 TP 负荷在  $1.06 \sim 1.50 \text{ g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$  间的数值结果进行秋冬季比较,冬季 TP 去除率较秋季降低了 10.29%,微生物生长繁殖受限及填料吸附能力的下降是其除磷效果变差的主因<sup>[23,24]</sup>. 而改性沸石湿地始终保持在较高水平,出水浓度基本稳定在  $0.5 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  以下.

表 6 季节变化对各湿地除磷效果的影响 (HLR =  $152 \text{ mm} \cdot \text{d}^{-1}$ )

Table 6 Relationship between inlet TP surface loading and TP removal rate of BFCWs in different seasons when the HLR was  $152 \text{ mm} \cdot \text{d}^{-1}$

湿地类型	夏季		秋季		冬季	
	进水 TP 负荷 $/\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$	去除率 /%	进水 TP 负荷 $/\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$	去除率 /%	进水 TP 负荷 $/\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$	去除率 /%
改性沸石	0.82(0.13)	92.04(0.68)	1.16(0.18)	93.18(0.61)	1.32(0.20)	93.26(0.91)
沸石	0.81(0.12)	49.14(3.57)	1.16(0.18)	62.98(0.85)	1.32(0.20)	57.93(1.12)

## 2.4 除磷机制研究

沸石湿地和改性沸石湿地沿程各段的填料磷素截留量见表 7. 沸石经改性后,磷素吸附性能大幅提升,污水进入第 1 隔室后  $\text{PO}_4^{3-}$  浓度明显降低,第 1 隔室改性沸石湿地填料平均磷素截留量比沸石湿地增加了 59.96%,改性效果在实际应用中得到体现. 第 1 隔室改性沸石湿地磷素截留量远高于静态吸附试验中得到的吸附量,由于污水中磷素浓度较低,填料在静态试验中更易失去对磷素的吸附推动力,因此与氮素相比,磷素在静态试验中吸附量差距更大.

磷素截留量均呈现出第 1 隔室 > 第 2 隔室 > 第 3 隔室的规律,各隔室均呈现出下层 > 中层 > 上层

的规律. 第 1 隔室中吸附量较为接近,第 2、3 隔室上下层吸附量差距较大. 改性沸石优化的磷素吸附性能使填料在第 2 隔室中上层前后端吸附量差距更为明显.  $\text{Al}^{3+}$  取代沸石晶格中的  $\text{Si}^{4+}$  后,既可能吸附沉淀  $\text{PO}_4^{3-}$ ,也可能由于生成多余负电荷强化对  $\text{NH}_4^+$ -N 的吸附. 与氮素相比,改性沸石对磷素的截留能力较差,第 1 隔室仅截留了 53.50% 的磷素. 第 1 隔室中改性沸石与沸石相比,氮素和磷素平均截留量分别增加了  $1.70 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$  和  $0.485 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$ ,说明虽然  $\text{Al}^{3+}$  有效入替到晶格中,但其对  $\text{NH}_4^+$ -N 的吸附优于对  $\text{PO}_4^{3-}$  的吸附,粗壮根系的导流作用使相同区域的改性沸石磷截留量增加 5.8%.

表 7 填料沿程截留磷素量/ $\text{mg} \cdot \text{g}^{-1}$

Table 7 Increase of TP in substrate of different areas in wetlands/ $\text{mg} \cdot \text{g}^{-1}$

位置	第 1 隔室		第 2 隔室		第 3 隔室	
	改性沸石	沸石	改性沸石	沸石	改性沸石	沸石
上层	0.788(0.013)	0.316(0.016)	0.335(0.091)	0.185(0.035)	0.198(0.022)	0.127(0.012)
中层	0.809(0.013)	0.320(0.006)	0.425(0.029)	0.215(0.014)	0.295(0.011)	0.194(0.014)
下层	0.831(0.021)	0.336(0.008)	0.478(0.026)	0.243(0.004)	0.379(0.022)	0.232(0.009)

填料截留磷素形态分布见表 8,其中其他指填料吸附的有机磷和截留在填料表面的颗粒磷,由于  $\text{AlCl}_3$  溶液呈酸性,在改性过程中部分改性液未从填料表面及孔道内完全洗净使改性沸石湿地床体内在启动初期呈弱酸性,因此生成了部分的闭蓄态磷<sup>[25]</sup>. 沸石改性前后,均以 Ca-P 为主要吸附沉淀磷素途径,改性前后水溶性 P 和 Fe-P 截留量变化不大,可能与沸石中铁质含量不高有关,而湿地 Ca-P 和 Al-P 截留量均有大幅提升,Ca-P 增幅大于 Al-P,

因此  $\text{Al}^{3+}$  入替至晶格不是改性沸石磷素吸附性能提升的唯一原因. 沸石先后经  $\text{NaOH}$  溶液和  $\text{AlCl}_3$  溶液中的  $\text{H}^+$  处理后,大量位于沸石内部的无效钙质和铝质溶出并沉积在填料表面或入替表面晶格中的  $\text{Si}^{4+}$ ,大量吸附沉淀在天然沸石表面的磷素解吸出来,均增强了沸石的磷素吸附性能,而酸碱还能疏通拓宽沸石孔道,增大其孔容积及吸附点位,增大  $\text{Al}^{3+}$  入替至晶格中的可能性. 在这些途径的协同作用下,改性沸石中 Ca 和 Al 成分对磷素的吸附沉淀

表 8 改性沸石湿地和沸石湿地各形态磷素截留总量  
Table 8 Total content of different phosphorus fractions in modified zeolite wetland and zeolite wetland

项目	改性沸石/g	沸石/g
水溶性 P	0.73	0.73
Al-P	22.27	6.80
Fe-P	1.58	1.50
Ca-P	39.93	21.63
O-P	0.16	—
其他	2.38	1.45

表 9 改性沸石湿地截留磷素形态沿程分布

Table 9 Distribution of different phosphorus fractions in compartments of modified zeolite wetland

项目	第 1 隔室		第 2 隔室		第 3 隔室	
	截留量/g	百分比/%	截留量/g	百分比/%	截留量/g	百分比/%
水溶性 P	0.30	0.84	0.26	1.37	0.17	1.35
Al-P	12.23	34.45	6.10	32.41	3.95	30.94
Fe-P	0.86	2.41	0.44	2.34	0.29	2.26
Ca-P	20.24	57.03	11.57	61.53	8.13	63.68
O-P	0.01	0.02	0.01	0.06	0.00	0.01
其他	1.86	5.25	0.43	2.30	0.22	1.75

填料吸附截留和植物吸收对改性沸石湿地除磷的贡献分别约为 92.93% 和 6.63%, 对沸石湿地除磷的贡献分别约为 89.72% 和 9.41%, 改性前后填料的吸附截留作用均为湿地除磷的主要途径。运行期间, 改性沸石湿地除磷量较沸石湿地增长了 1 倍多, 改性效果在中试试验中得到充分体现。

### 3 结论

(1) 改性沸石在实际应用中对氮磷去除良好且稳定, 湿地脱氮量和除磷量较沸石湿地分别增加 1.8% 和 1 倍多, 适用于苏州市农村生活污水的处理。

(2) 改性沸石湿地主要通过填料的吸附截留作用脱氮除磷, 以 Ca-P 和 Al-P 为主要沉淀磷素形式截留在湿地前端。运行期间氮磷主要于湿地前端去除, 湿地后端以硝化反硝化脱氮为主, 起稳定出水水质的作用。

(3) 水力流态和植物根系的影响是造成相同区域填料氮磷截留量差异的主要原因。流体粒子易于下向流前端形成优先流, 故建议在折流湿地实际应用中适当缩短下向流隔室流向方向的长度, 以 0.2 ~ 0.3 m 为宜。

(4) 低价金属离子有效取代沸石晶格中的  $\text{Si}^{4+}$ , 孔道的疏通和吸附点位的增加是沸石改性后  $\text{NH}_4^+$ -N 吸附性能优化的主因, 而改性过程对沸石磷素吸附沉淀性能的大幅提升是在多重途径的协同作

能力大幅提升。

对改性沸石湿地各隔室截留磷素的形态分析见表 9。从中可知, 有机磷和颗粒磷主要被截留在湿地前端, 这与沿程测定结果相符。污水中的颗粒磷和可溶性有机磷在湿地前端被截留后, 逐渐无机化, 因此截留总量较少。对 3 个隔室磷素吸附形态进行比较发现, 第 1 隔室中 Al-P 和 Fe-P 比例较后 2 个隔室高, 可能是启动初期填料表面呈酸性,  $\text{PO}_4^{3-}$  易与 Al 和 Fe 结合<sup>[26]</sup>。

用下实现的。  $\text{Al}^{3+}$  取代沸石晶格中的  $\text{Si}^{4+}$  后, 对  $\text{NH}_4^+$ -N 的吸附优于  $\text{PO}_4^{3-}$  是造成改性沸石磷素平均截留增量低于氮素平均增量的主因。

(5) 改性沸石湿地硝化作用强度呈现出秋季 > 夏季 > 冬季的规律, 硝化作用强度的高低是改性沸石湿地脱氮效果及稳定性季节性波动的主因。

### 参考文献:

- [1] 徐乐中, 陆爽君, 陈重军, 等. 苏州分散性农村生活污水处理工艺技术现状及适用技术优化[J]. 苏州科技学院学报(工程技术版), 2014, 27(1): 5-9.  
Xu L Z, Lu S J, Chen C J, et al. Present status and optimization of technologies for decentralized rural domestic sewage treatment in Suzhou[J]. Journal of Suzhou University of Science and Technology (Engineering and Technology), 2014, 27(1): 5-9.
- [2] 宋小康, 金龙, 王建芳, 等. ABR + 复合人工湿地处理分散性生活污水的中试研究[J]. 环境工程学报, 2012, 6(9): 3096-3100.  
Song X K, Jin L, Wang J F, et al. Pilot-scale study on ABR-hybrid constructed wetland process for decentralized domestic sewage treatment[J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2012, 6(9): 3096-3100.
- [3] 史鹏博, 朱洪涛, 孙德智. 人工湿地不同填料组合去除典型污染物的研究[J]. 环境科学学报, 2014, 34(3): 704-711.  
Shi P B, Zhu H T, Sun D Z. Removal efficiency of typical pollutants by different substrate combinations for constructed wetlands[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2014, 34(3): 704-711.
- [4] 谭良良, 解伊瑞文, 白少元, 等. 基质结构对潜流人工湿地氮磷降解规律的影响[J]. 环境工程学报, 2014, 8(11): 4669-4673.  
Tan L L, Xie Y R W, Bai S Y, et al. Effect of substrate

- structure on pollutant degradations through substrate of horizontal subsurface flow constructed wetlands [J]. *Chinese Journal of Environmental Engineering*, 2014, **8**(11): 4669-4673.
- [ 5 ] 张菁, 李睿华, 李杰, 等. 石灰石和黄铁矿-石灰石人工湿地净化河水的研究[J]. *环境科学*, 2013, **34**(9): 3445-3450.  
Zhang J, Li R H, Li J, *et al.* Limestone and pyrite-limestone constructed wetlands for treating river water[J]. *Environmental Science*, 2013, **34**(9): 3445-3450.
- [ 6 ] 陈丽丽, 赵同科, 张成军, 等. 不同人工湿地基质对磷的吸附性能研究[J]. *农业环境科学学报*, 2012, **31**(3): 587-592.  
Chen L L, Zhao T K, Zhang C J, *et al.* Phosphorus adsorption properties of different substrates in constructed wetland [J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2012, **31**(3): 587-592.
- [ 7 ] 陆爽君, 吴鹏, 陈重军, 等. 适宜处理分散性生活污水的人工湿地除磷填料的筛选及改性[J]. *环境工程学报*, 2014, **8**(9): 3807-3812.  
Lu S J, Wu P, Chen C J, *et al.* Screening and modifying of suitable substrates to improve phosphorus removal capability of constructed wetlands for decentralized sewage treatment [J]. *Chinese Journal of Environmental Engineering*, 2014, **8**(9): 3807-3812.
- [ 8 ] 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.
- [ 9 ] 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.
- [ 10 ] 许光辉, 郑洪元. 土壤微生物分析方法手册[M]. (第二版). 北京: 农业出版社, 1986.
- [ 11 ] 鲍士旦. 土壤农化分析[M]. (第三版). 北京: 中国农业出版社, 2000.
- [ 12 ] 中国土壤学会农业化学专业委员会. 土壤农业化学常规分析方法[M]. 北京: 科学出版社, 1983.
- [ 13 ] 陆爽君. 适合分散性农村生活污水处理的人工湿地高效能脱氮除磷填料的研究与应用[D]. 苏州: 苏州科技学院, 2015.
- [ 14 ] Breen P F. A mass balance method for assessing the potential of artificial wetlands for wastewater treatment[J]. *Water Research*, 1990, **24**(6): 689-697.
- [ 15 ] 陈明利, 吴晓芙, 陈永华, 等. 景观型人工湿地污水处理系统构建及植物脱氮效应研究[J]. *环境科学*, 2010, **31**(3): 660-666.  
Chen M L, Wu X F, Chen Y H, *et al.* Construction of a landscaping-type wetland system for wastewater treatment and analysis of plant denitrifying effect[J]. *Environmental Science*, 2010, **31**(3): 660-666.
- [ 16 ] 黄娟, 杨思思, 李润青, 等. 低温域湿地植物根际硝化强度及氨氧化微生物研究[J]. *环境科学研究*, 2014, **27**(8): 857-864.  
Huang J, Yang S S, Li R Q, *et al.* Nitrification intensity and ammonia-oxidizing microorganisms in wetland plant rhizosphere soil at low temperature[J]. *Research of Environmental Sciences*, 2014, **27**(8): 857-864.
- [ 17 ] 林立君. 改性沸石的制备及去除废水中氨氮的研究[D]. 秦皇岛: 燕山大学, 2011.
- [ 18 ] 张涛, 宋新山. 潜流人工湿地理化性质及不同形态氮素的空间分布[J]. *生态环境学报*, 2010, **19**(6): 1343-1347.  
Zhang T, Song X S. Physicochemical character and nitrogen changes in subsurface flow constructed wetland[J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2010, **19**(6): 1343-1347.
- [ 19 ] 司国良. 村镇污水处理技术及运营管理模式的研究[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2014.
- [ 20 ] 刘璨. 填料 ABR-SBR 法深度处理大蒜加工生产废水[D]. 济南: 山东大学, 2011.
- [ 21 ] 韩金柱. 沸石的改性及其除磷性能研究[D]. 哈尔滨: 东北林业大学, 2010.
- [ 22 ] 林剑华, 杨扬, 李丽, 等. 8 种湿地植物的生长状况及泌氧能力[J]. *湖泊科学*, 2015, **27**(6): 1042-1048.  
Lin J H, Yang Y, Li L, *et al.* Characteristics of growth and radial oxygen loss of eight wetland plants[J]. *Journal of Lake Sciences*, 2015, **27**(6): 1042-1048.
- [ 23 ] 邹益雄. 人工湿地植物的筛选及冬季去氮除磷能力与中试研究[D]. 长沙: 中南林业科技大学, 2008.
- [ 24 ] 黄锦楼, 陈琴, 许连煌. 人工湿地在应用中存在的问题及解决措施[J]. *环境科学*, 2013, **34**(1): 401-408.  
Huang J L, Chen Q, Xu L H. Problems and countermeasures in the application of constructed wetlands [J]. *Environmental Science*, 2013, **34**(1): 401-408.
- [ 25 ] 明劲松. 人工湿地强化除磷材料及方法研究[D]. 南京: 东南大学, 2008.
- [ 26 ] 马超. 人工湿地填料基质筛选[D]. 天津: 天津大学, 2012.

## CONTENTS

Atmospheric Dry Deposition Fluxes and Seasonal Variations of Particulate Matter and Lead in Urban Beijing .....	YAO Li, LIU Jin, PAN Yue-peng, <i>et al.</i> ( 423 )
Pollution Characteristics of Heavy Metals in PM <sub>2.5</sub> and Their Human Health Risks Among the Coastal City Group Along Western Taiwan Straits Region, China .....	CHEN Yan-ting, DU Wen-jiao, CHEN Jin-sheng, <i>et al.</i> ( 429 )
Correlation of Speciated Mercury with Carbonaceous Components in Atmospheric PM <sub>2.5</sub> in Shengsi Region .....	CHENG Na, QIAN Guan-lei, DUAN Lian, <i>et al.</i> ( 438 )
Compositions and Sources of Summertime Dicarboxylic Acids and Related SOA in PM <sub>2.5</sub> from Mt. Taishan .....	MENG Jing-jing, HOU Zhan-fang, LIU Xiao-di, <i>et al.</i> ( 445 )
Variation Characteristics and Health Risk Assessment of BTEX in the Atmosphere of Northern Suburb of Nanjing .....	ZHANG Yu-xin, AN Jun-lin, WANG Jian-yu, <i>et al.</i> ( 453 )
Inventory and Environmental Impact of VOCs Emission from Anthropogenic Source in Chang-Zhu-Tan Region .....	YOU Xiang-yu, LUO Da-tong, LIU Zhan, <i>et al.</i> ( 461 )
Characteristics of Methane Emission from Urban Traffic in Nanjing .....	ZHANG Xue, HU Ning, LIU Shou-dong, <i>et al.</i> ( 469 )
Variations in Aerosol Optical Depth over Three Northeastern Provinces of China, in 2003-2014 .....	ZHANG Chen-he, ZHAO Tian-liang, WANG Fu, <i>et al.</i> ( 476 )
Variation Analysis of Daily PM <sub>2.5</sub> Concentrations Based on Boosted Regression Tree: A Case Study in Changzhou .....	GE Yue, WANG Ming-xin, SUN Xiang-wu, <i>et al.</i> ( 485 )
Characteristics of Mercury Emissions from Coal-fired Power Plants in Chongqing .....	ZHANG Cheng, ZHANG Ya-hui, WANG Yong-min, <i>et al.</i> ( 495 )
Possible Sources of PCDD/Fs in Atmosphere of a Certain District in Guangdong .....	FU Jian-ping, HAN Jing-lei, YU Xiao-wei, <i>et al.</i> ( 502 )
Sources and Pollution Characteristics of Antibiotic Resistance Genes and Conditional Pathogenic Bacteria in Concentrated Poultry Feeding Operations .....	GAO Min, QIU Tian-lei, QIN Yu-cheng, <i>et al.</i> ( 510 )
Distribution and Burial Characteristics of Nitrogen Forms in Sediment of Dianchi Lake During Last Century .....	WU Ya-lin, LI Shuai-dong, JIANG Jun-wu, <i>et al.</i> ( 517 )
Temporal and Spatial Variations of Dissolved Inorganic Carbon and Its Stable Isotopic Composition in the Surface Stream of Karst Groundwater Recharge .....	LI Li, PU Jun-bing, LI Jian-hong, <i>et al.</i> ( 527 )
Succession Pattern of Phytoplankton of Daning River in the Three Gorges Reservoir and Its Driving Factors .....	ZHANG Jia-lei, ZHENG Bing-hui, LIU De-fu, <i>et al.</i> ( 535 )
Response of the Water Quality of a Stratified Reservoir to an Extreme El Niño Event During Summer .....	QIU Xiao-peng, HUANG Ting-lin, ZENG Ming-zheng, <i>et al.</i> ( 547 )
Effect of Coupling Process of Wetting-Drying Cycles and Seasonal Temperature Increasing on Sediment Nitrogen Minerization in the Water Level Fluctuating Zone .....	LIN Jun-jie, LIU Dan, ZHANG Shuai, <i>et al.</i> ( 555 )
Photo-induced Phosphate Release from Organic Phosphorus Decomposition Driven by Fe(III)-oxalate Complex in Lake Water .....	JIANG Yong-can, PENG Yun-xiao, LIU Guang-long, <i>et al.</i> ( 563 )
Preparation and Phosphorus Removal Mechanism of Highly Efficient Phosphorus Adsorbent Mg/Al-LDO .....	WANG Wei-dong, HAO Rui-xia, ZHANG Xiao-xian, <i>et al.</i> ( 572 )
Efficiency and Mechanism of Nitrogen and Phosphorus Removal in Modified Zeolite Wetland .....	WU Peng, LU Shuang-jun, XU Le-zhong, <i>et al.</i> ( 580 )
Repression of Nitrogen and Phosphorus Release from Lakeshore Sediment by Five Littoral-zone Plants .....	YAO Cheng, HU Xiao-zhen, LU Shao-yong, <i>et al.</i> ( 589 )
Simulated Desorption Kinetics of Lead by the Dominant Plant Roots Released Low Molecular Weight Organic Acids from the Water-Level-Fluctuating Zone in the Three Gorges Reservoir .....	HE Yuan-jie, LIU Jiang, JIANG Tao, <i>et al.</i> ( 600 )
Experimental Research of Hg <sup>2+</sup> Removal by TiO <sub>2</sub> /Bentonite Composite .....	TANG Xing-ping, ZHOU Xiong, ZHANG Jin-yang, <i>et al.</i> ( 608 )
Impact of Ammonia and H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> on Bromate and Disinfection By-products Control .....	WANG Yong-jing, DU Xu, JIN Meng, <i>et al.</i> ( 616 )
Influencing Factors of Bacterial Activity in Water Distribution Networks .....	WANG Xiao-dan, ZHAO Xin-hua, <i>et al.</i> ( 622 )
Adsorptive Remediation of Cr(VI) Contaminated Groundwater with Chemically Synthesized Schwertmannite .....	ZHU Li-chao, LIU Yuan-yuan, LI Wei-min, <i>et al.</i> ( 629 )
Characteristics and Mechanism of Hybrid Ozonation-Coagulation Process in Wastewater Reclamation .....	HOU Rui, JIN Xin, JIN Peng-kang, <i>et al.</i> ( 640 )
Nitrogen Removal Effect and Conversion Characteristics of Nitrous Oxide in Single-stage and Multi-stage A/O Processes .....	GUO Chang-zi, ZHANG Feng-yan, LIU Fu-yu, <i>et al.</i> ( 647 )
Nitrogen Removal Performance of ANAMMOX with Different Organic Carbon Sources .....	GUAN Yong-jie, YU De-shuang, LI Jin, <i>et al.</i> ( 654 )
Operational Performance and Microbial Community Structure in a Completely Mixed Aeration System .....	WANG Shuo, XU Qiao, ZHANG Guang-sheng, <i>et al.</i> ( 665 )
Start-up of Combined Floc-granule CANON Process and the Effects of SRT on Reactor Performance .....	SUN Yan-fang, HAN Xiao-yu, ZHANG Shun-jun, <i>et al.</i> ( 672 )
Effects of Free Ammonia Regulation on the Performance of High Solid Anaerobic Digesters with Dewatered Sludge .....	DAI Xiao-hu, HE Jin, YAN Han, <i>et al.</i> ( 679 )
Highly Efficient Bioflocculation of Microalgae Using <i>Mucor circinelloides</i> .....	GU Qiong, JIN Wen-biao, CHEN Yuan-qing, <i>et al.</i> ( 688 )
Effect of Zero Valent Iron on the Decline of Tetracycline Resistance Genes and Class 1 Integrons During Thermophilic Anaerobic Digestion of Sludge .....	WEI Xin, XUE Shun-li, YANG Fan, <i>et al.</i> ( 697 )
Concentration, Sources and Ecological Risks of PAHs of Different Land Use Types in Shenfu New City .....	WANG Jing, LIU Ming-li, ZHANG Shi-chao, <i>et al.</i> ( 703 )
Compositions, Sources and Health Risks of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Surface Dusts from Driving-schools in a City of Henan Province, China .....	CHEN Yi-nan, MA Jian-hua, DUAN Hai-jing, <i>et al.</i> ( 711 )
Remediation of Decabromodiphenyl Ether Contaminated Sediment Through Plant Roots Enhanced by Exogenous Microbes .....	YANG Lei-feng, YIN Hua, PENG Hui, <i>et al.</i> ( 721 )
Impacts of Bioremediation on Microbial Communities and Different Forms of Nitrogen in Petroleum Contaminated Soil .....	YE Xi-qiong, WU Man-li, CHEN Kai-li, <i>et al.</i> ( 728 )
Effects of <i>Rhodospseudomonas palustris</i> PSB06 on Pepper Rhizosphere Microbial Community Structure .....	LUO Lu-yun, JIN De-cai, ZUO Hui, <i>et al.</i> ( 735 )
Effect of Reclaimed Water on Bacterial Community Composition and Function in Urban River Sediment .....	DI Yan-ming, WANG Guang-xuan, HUANG Xing-ru, <i>et al.</i> ( 743 )
Effects of Different Vegetation Types and Reclamation Years on Soil Bacterial Community Structure in Reclaimed Mine Areas .....	HE Long, LI Yan-qin, LI Bin-chun, <i>et al.</i> ( 752 )
Characteristic of Abundances and Diversity of Carbon Dioxide Fixation Microbes in Paddy Soils .....	LIU Qiong, WEI Xiao-meng, WU Xiao-hong, <i>et al.</i> ( 760 )
Effects of Biochar Pyrolyzed at Varying Temperatures on Soil Organic Carbon and Its Components: Influence on the Composition and Properties of Humic Substances .....	ZHAO Shi-xiang, YU Xiao-ling, LI Zhong-hui, <i>et al.</i> ( 769 )
Straw Composts with Composite Inoculants and Their Effects on Soil Carbon and Nitrogen Contents and Enzyme Activity .....	NIE Wen-han, QI Zhi-ping, FENG Hai-wei, <i>et al.</i> ( 783 )
Comparative Analysis on Effect of Wheat Straw and Its Biochar Amendment on Net Global Warming Potential Under Wheat-Maize Rotation Ecosystem in the Guanzhong Plain .....	CHENG Gong, CHEN Jing, LIU Jing-jing, <i>et al.</i> ( 792 )
Isolation and Identification of a Chlorobenzene-degrading Bacterium and Its Degradation Characteristics .....	YE Jie-xu, LIN Tong-hui, LUO Yu-hao, <i>et al.</i> ( 802 )
Isolation, Identification and Metabolic Characteristics of a Heterotrophic Denitrifying Sulfur Bacterial Strain .....	TAN Wen-bo, MA Xiao-dan, HUANG Cong, <i>et al.</i> ( 809 )
Effects of Continuous Application of Sewage Sludge Compost on Heavy Metals Accumulation and Mobility Characteristics in Soil Profile and on Heavy Metals Uptake of Wheat .....	SUN Na, SHANG He-ping, RU Shu-hua, <i>et al.</i> ( 815 )
Effects of Nitrogen Application on Selenium Uptake, Translocation and Distribution in Winter Wheat .....	CHEN Yu-peng, PENG Qin, LIANG Dong-li, <i>et al.</i> ( 825 )
Accumulation and Biotransformation in Typical Freshwater Algae Species Influenced by Titanium Dioxide Nanoparticles Under Long-term Exposure .....	LI Jin-li, WANG Zhen-hong, YAN Ya-meng, <i>et al.</i> ( 832 )
Sorption of <i>p</i> -Nitrophenol by Biochars of Corn cob Prepared at Different Pyrolysis Temperatures .....	MA Feng-feng, ZHAO Bao-wei ( 837 )

# 《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 赵进才

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军  
朱永官 刘志培 刘 毅 汤鸿霄 孟 伟 周宗灿 林金明  
赵进才 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞  
黄耀 鲍 强 潘 纲 潘 涛 魏复盛

## 环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2017年2月15日 第38卷 第2期

## ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 38 No. 2 Feb. 15, 2017

主 管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主 办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协 办	(以参加先后为序) 北京市环境保护科学研究院 清华大学环境学院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主 编	赵进才	Editor-in -Chief		ZHAO Jin-cai
编 辑	《环境科学》编辑委员会 北京市2871信箱(海淀区双清路 18号, 邮政编码:100085) 电话:010-62941102, 010-62849343 传真:010-62849343 E-mail: hjkx@rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science ( HUANJING KEXUE) P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel:010-62941102, 010-62849343; Fax:010-62849343 E-mail: hjkx@rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn
出 版	科 学 出 版 社 北京东黄城根北街16号 邮政编码:100717	Published	by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印 刷 装 订	北京宝昌彩色印刷有限公司	Printed	by	Beijing Baochang Color Printing Co., Ltd.
发 行	科 学 出 版 社 电话:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com	Distributed	by	Science Press Tel:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com
订 购 处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易集团有限公司 (北京399信箱)	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号: ISSN 0250-3301  
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国内定价: 140.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行

ISSN 0250-3301



9 770250 330172