

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

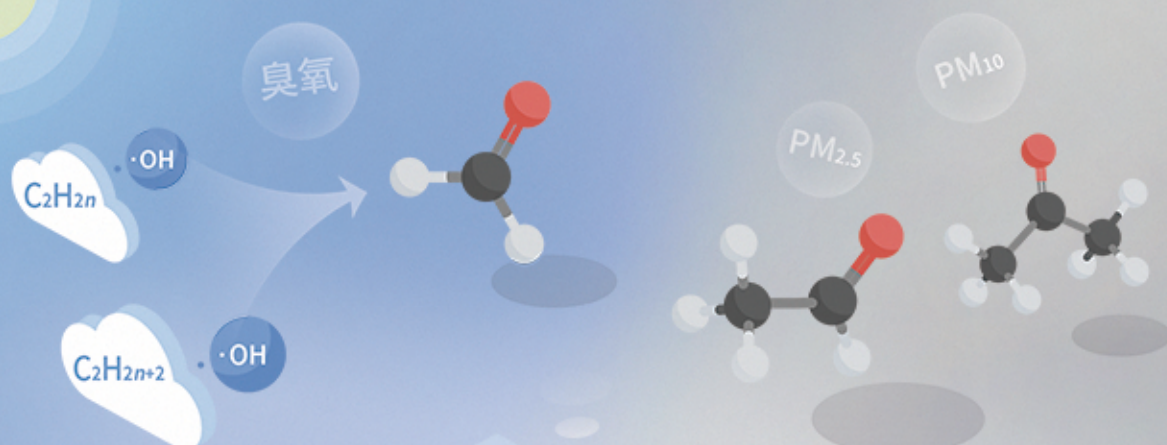
环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

基于PMF和源示踪物比例法的大气羰基化合物来源解析：以南京市观测为例
胡崑，王鸣，王红丽，景盛翱，陈文泰，卢兴东



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2021年1月

第42卷 第1期
Vol.42 No.1

目次

2019年国庆节前后北京气态氨和气溶胶铵盐浓度的同步观测	顾梦娜, 潘月鹏, 宋琳琳, 李萍, 田世丽, 武岳洋, 杨婷婷, 李浩洋, 石生伟, 吐莉尼沙, 吕雪梅, 孙倩, 方运霆(1)
基于无人机探空和数值模拟天津一次重污染过程分析	杨旭, 蔡子颖, 韩素芹, 史静, 唐颖潇, 姜明, 邱晓滨(9)
中原城市群典型城市秋冬季大气 PM _{2.5} 污染特征及溯源	苗青青, 姜楠, 张瑞芹, 赵孝因, 齐静文(19)
沈阳市冬季大气 PM _{2.5} 中水溶性离子污染特征及来源解析	王国祯, 任万辉, 于兴娜, 侯思宇, 张毓秀(30)
保定地区 PM _{2.5} 中重金属元素的污染特征及健康风险评价	雷文凯, 李杏茹, 张兰, 徐静, 赵文吉, 刘子锐(38)
基于 PMF 和源示踪物比例法的大气羰基化合物来源解析:以南京市观测为例	胡崑, 王鸣, 王红丽, 景盛翔, 陈文泰, 卢兴东(45)
2019年天津市挥发性有机物污染特征及来源	高璟贇, 肖致美, 徐虹, 李立伟, 李鹏, 唐邈, 杨宁, 李源, 毕温凯, 陈魁(55)
柳州市春季大气挥发性有机物污染特征及源解析	刘齐, 卢星林, 曾鹏, 于爽(65)
天津市郊夏季的臭氧变化特征及其前体物 VOCs 的来源解析	罗瑞雪, 刘保双, 梁丹妮, 毕晓辉, 张裕芬, 冯银厂(75)
2017年春夏期间南京地区臭氧污染输送影响及潜在源区	谢放尖, 陆晓波, 杨峰, 李文青, 李洁, 谢轶嵩, 王艳, 刘益和, 王庆九, 胡建林(88)
2006~2019年珠三角地区臭氧污染趋势	赵伟, 高博, 卢清, 钟志强, 梁小明, 刘明, 马社霞, 孙家仁, 陈来国, 范绍佳(97)
大型石化企业邻近区域大气沉降中多环芳烃赋存特征及源解析	李大雁, 齐晓宝, 吴健, 黄沈发, 王敏, 沙晨燕, 沈城(106)
叶片大气颗粒物滞纳能力评估方法的定量对比	岳晨, 李广德, 席本野, 曹治国(114)
东江流域敌敌畏的排放量估算及归趋模拟	张冰, 张芊芊, 应光国(127)
松花江哈尔滨段及阿什河抗生素的分布规律与生态风险评估	杨尚乐, 王旭明, 王伟华, 胡雪莹, 高立伟, 孙兴滨(136)
东北小兴凯湖沉积物 POPs 污染特征及生态风险评估	李慧, 李捷, 宋鹏, 程云轩, 焦立新, 杨亚铮(147)
河南省地表水源中 PPCPs 分布及生态风险评估	周颖, 吴东海, 陆光华, 姚晶晶, 魏磊, 韩枫(159)
无锡-常州地下水中内分泌干扰物的赋存特征和健康风险评估	王淑婷, 饶竹, 郭峰, 刘成海, 战楠, 王娅南, 彭洁, 杨鸿波(166)
清江流域地表水重金属季节性分布特征及健康风险评估	刘昭, 周宏, 曹文佳, 刘伟, 兰圣涛(175)
会仙岩溶湿地丰平枯时期地下水金属元素污染与健康风险	李军, 赵一, 邹胜章, 蓝美宁, 樊连杰, 谢浩, 秦月, 朱丹尼(184)
三峡库区城镇化影响下河流 DOM 光谱特征季节变化	陈昭宇, 李思悦(195)
不同植物覆盖下黄河三角洲湿地土壤中微塑料的分布	岳俊杰, 赵爽, 程昊东, 段鑫越, 石洪华, 汪磊, 端正花(204)
基于宏基因组学探讨东平湖水库的菌群结构、耐药基因谱及其公共健康风险	张红娜, 崔娜, 申红妙(211)
分层型水库藻类季相演替的细菌种群驱动机制	闫苗苗, 张海涵, 黄廷林, 宗容容, 刘凯文, 苗雨甜, 杨尚业, 黄鑫, 王娜(221)
丹江口库区浮游真菌组成与功能及其影响因素	郑保海, 王晓宇, 李英军, 陈彦, 李百炼, 李玉英, 陈兆进(234)
太湖出流河道藻颗粒变化及其水质效应	郭宇龙, 许海, 陈旭清, 郑建中, 詹旭, 朱广伟, 朱梦圆(242)
石盘丘小流域不同土地利用方式下土壤氮磷流失形态及通量	邓华, 高明, 龙翼, 黎嘉成, 王莹燕, 王子芳(251)
前期干旱天数对生物滞留系统除氮性能的影响	陈焱, 李欣芮, 郑爽, 刘臻, 余雪花, 程启洪(263)
浒苔生物炭对雨水径流中氨氮的吸附特性及吸附机制	陈友媛, 李培强, 李闲驰, 孙萍, 赵新月, 李洁, 李晋, 辛至然(274)
填料对潮汐流人工湿地中 CANON 作用强化的影响	刘冰, 郑煜铭, 秦会安, 古励(283)
FeMnNi-LDHs 对水中 As(Ⅲ) 的吸附性能与机制	廖玉梅, 余杰, 魏世强, 蒋珍茂(293)
硝酸钙添加和铅改性膨润土覆盖联用控制底泥中磷释放的效果及机制	张宏华, 林建伟, 詹艳慧, 俞阳, 张志斌(305)
某市污水厂抗生素和抗生素抗性基因的分布特征	颜亚玮, 於驰晟, 李菲菲, 姚鹏城, 刘宏远(315)
不同污泥在微波预处理-厌氧消化过程中抗性基因分布及菌群结构演替	李慧莉, 武彩云, 唐安平, 佟娟, 魏源送(323)
天然富硒土地划定的富硒阈值	王惠艳, 曾道明, 郭志娟, 成晓梦, 彭敏, 孙跃(333)
融合自然-人为因子改进回归克里格对土壤镉空间分布预测	高中原, 肖荣波, 王鹏, 邓一荣, 戴伟杰, 刘楚藩(343)
南方典型水稻土镉(Cd)累积规律模拟	戴雅婷, 傅开道, 杨阳, 王美娥, 陈卫平(353)
闽西南土壤-水稻系统重金属生物可给性及健康风险	林承奇, 蔡宇豪, 胡恭任, 于瑞莲, 郝春莉, 黄华斌(359)
干湿交替灌溉制度下纳米修复材料对杂交水稻籽粒 Cd 累积及产量的影响	杨茹, 陈馨睿, 张颖, 崔俊义, 武立权, 马友华, 廖江, 何海兵(368)
三元复合调理剂对土壤镉赋存形态和糙米镉累积的调控效应	蒋毅, 刘雅, 辜娇峰, 杨世童, 曾雄, 王轩宁, 周航, 廖柏寒(378)
风化煤组配改良剂结合水分管理对水稻根际土壤与稻米甲基汞含量的影响	郑顺安, 吴泽赢, 杜兆林, 倪润祥, 姚启星(386)
不同施肥措施对水稻土壤微生物拮抗性的影响	郑开凯, 马志远, 孙波, 梁玉婷(394)
氮添加影响下新疆天山雪岭云杉林土壤酶活性及其与环境因子的相关性	张涵, 贡璐, 刘旭, 邵康, 李昕竹, 李蕊希(403)
黄土丘陵区撂荒农田土壤酶活性及酶化学计量变化特征	钟泽坤, 杨改河, 任成杰, 韩新辉(411)
生物炭对土壤酶活性和细菌群落的影响及其作用机制	冯慧琳, 徐辰生, 何欢辉, 曾强, 陈楠, 李小龙, 任天宝, 姬小明, 刘国顺(422)
植被恢复对刺萼龙葵根际土壤细菌群落结构与功能的影响	张瑞海, 宋振, 付卫东, 郭玲玲, 高金会, 王然, 王忠辉, 张国良(433)
黄壤稻田土壤微生物量碳氮及水稻品质对生物炭配施氮肥的响应	史登林, 王小利, 刘安凯, 侯再芬, 梁国太(443)
等碳量添加秸秆和生物炭对土壤呼吸及微生物量碳氮的影响	何甜甜, 王静, 符云鹏, 符新妍, 刘天, 李亚坤, 李建华(450)
秸秆与氮肥配比对农田土壤内外源碳释放的影响	孙昭安, 张轩, 胡正江, 王开永, 陈清, 孟凡乔(459)
生物炭与化肥混合对氨挥发和磷固定的影响	杨文娜, 邓正昕, 李娇, 郑杰炳, 王子芳, 高明(467)
氮肥减投条件下膜材料使用对稻田氨挥发排放的影响	俞映惊, 王梦凡, 杨根, 何世颖, 段婧婧, 杨林章, 薛利红(477)
微塑料对斑马鱼胚胎孵化影响及其在幼鱼肠道中的积累	赵佳, 饶本强, 郭秀梅, 高进勇(485)
无人机热红外支持下的城市微尺度热环境模拟	阳少奇, 冯莉, 田慧慧, 刘艳霞(492)
基于人居尺度的中国城市热岛强度时空变化及其驱动因子解析	孙艳伟, 王润, 郭青海, 高超(501)

前期干旱天数对生物滞留系统除氮性能的影响

陈垚^{1,2}, 李欣芮¹, 郑爽¹, 刘臻^{1,2}, 余雪花¹, 程启洪¹

(1. 重庆交通大学河海学院, 重庆 400074; 2. 重庆交通大学环境水利工程重庆市工程实验室, 重庆 400074)

摘要: 生物滞留系统是海绵城市建设的优选设施之一,但其对氮素的去除特性受前期干旱天数(ADD)影响较大. 通过设计不同 ADD(1、2、3、5、7、12 和 22 d)条件,形成 7 种恒定干湿交替周期的生物滞留系统,研究 ADD 对氮素去除性能的影响,并根据不同 ADD 条件下氮还原酶和微生物种群的空间变化规律,分析 ADD 对生物滞留系统除氮过程的影响机制. 结果表明,生物滞留系统对 NH_4^+ -N 的去除受 ADD 影响不显著,但去除率会因填料水力渗透性能和植物生长状况的影响而呈现较大的波动性;当 ADD 从 7 d 增至 22 d 时, NO_3^- -N 和 TN 去除率随 ADD 的增加而减小. ADD 在一定程度上影响土壤中硝酸还原酶(NaR)、亚硝酸还原酶(NiR)和羟胺还原酶(HyR)的空间分布;生物滞留系统中氮素转化过程受淹没层含水率调控,且 NO_3^- -N 可通过淹没层中氮还原酶的次级催化还原作用发生硝酸盐异化还原成铵(DNRA),进而影响 NH_4^+ -N 的去除. ADD 会显著改变土壤微生物群落结构及其空间分布,影响系统对不同形态氮的综合去除能力. 其中,较短 ADD(1~5 d)条件下,具反硝化能力的 Firmicutes 为优势菌门,其优势菌属 *Clostridium_sensu_stricto_1* 还具有 DNRA 功能. 结果证实,恒定干湿条件下 ADD 对生物滞留系统中氮素的去除能力、氮还原酶活性以及微生物种群结构空间变化存在一定的影响.

关键词: 生物滞留系统; 干湿交替; 前期干旱天数(ADD); 除氮; 氮还原酶; 微生物群落

中图分类号: X52 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2021)01-263-11 DOI: 10. 13227/j. hjkx. 202005049

Influence of Antecedent Dry Days on Nitrogen Removal in Bioretention Systems

CHEN Yao^{1,2}, LI Xin-rui¹, ZHENG Shuang¹, LIU Zhen^{1,2}, YU Xue-hua¹, CHENG Qi-hong¹

(1. School of River and Ocean Engineering, Chongqing Jiaotong University, Chongqing 400074, China; 2. Engineering Laboratory of Environmental Hydraulic Engineering of Chongqing Municipal Development and Reform Commission, Chongqing Jiaotong University, Chongqing 400074, China)

Abstract: Bioretention systems have become an optimal technology during the construction of the sponge city, but its nitrogen removal performance can be affected by antecedent dry days (ADD). This study was designed to investigate the effects of different lengths of ADD (1, 2, 3, 5, 7, 12, and 22 d) on nitrogen removal performance using a series of laboratory-scale bioretention systems to form seven constant alternate drying-rewetting regimes. The influence mechanism was further investigated by analyzing the spatial distribution of nitrogen reductase activity and microbial community structure under different drying-rewetting regimes. The results showed that the ammonium removal efficiency was not significantly affected by ADD, while exhibiting high variation depending on the hydraulic permeability of the filler and plant growth conditions. The nitrate and total nitrogen removal efficiency decreased as the length of ADD increased from 7 d to 22 d. In addition, the spatial distribution of nitrate reductase (NaR), nitrite reductase (NiR), and hydroxylamine reductase (HyR) were affected by ADD to some extent. It was found that the soil moisture of submerged layer (SL) regulated the nitrogen processes. The nitrate dissimilatory reduction to ammonium (DNRA) can occur in the SL through secondary catalytic reduction by nitrogen reductases, thus affecting the removal of ammonium. The soil microbial community structure and its spatial distribution could be altered by ADD significantly, and the removal of multiple nitrogen species was partly affected. Thereinto, under shorter ADD values of 1, 2, 3, and 5 d, the dominant phylum was Firmicutes, a group of denitrifying microbes, and its dominant genus, *Clostridium_sensu_stricto_1*, also had the function of DNRA. The results of the study confirmed that ADD has a certain effect on the nitrogen removal capacity and nitrogen reductase activity, while resulting in spatial changes in the microbial community structure in the bioretention system under constant drying-rewetting conditions.

Key words: bioretention system; alternate drying-rewetting; antecedent dry days (ADD); nitrogen removal; nitrogen reductases; microbial community

生物滞留系统是海绵城市建设的优选技术,其主要通过植物、填料和微生物等多介质作用实现水文削减和污染物控制双重功能^[1,2]. 而生物滞留系统固有的干湿交替运行特性会驱动土壤含水率发生剧烈变化,改变氮素在土壤中的运移路径和氧气空间分布,增强土壤空间异质性,显著影响植物生长和微生物活性,进而影响系统除氮性能和水文削减性能^[3,4]. 相关研究证实^[5],土壤中氮循环受土壤微生物群落及其活性所驱动,并受干湿交替引起的土壤

理化性质和环境因素变化所调控. 土壤含水率因其不仅可影响水和氧气的运移路径与供给率,而且还显著影响土壤基质和酶的扩散,已成为影响生物滞留系统中氮素滞留、迁移与转化的关键调控因子,如

收稿日期: 2020-05-07; 修订日期: 2020-07-16

基金项目: 国家自然科学基金项目(51709024); 重庆市留创计划项目(cx2017065); 重庆市基础科学与前沿技术研究项目(cstc2017jcyjAX0292); 重庆市青少年创新人才培养雏鹰计划项目(CY200701)

作者简介: 陈垚(1983~),男,博士,教授,主要研究方向为水污染防治与城市雨洪管理, E-mail: chenyaocqjtu.edu.cn

土壤含水率可通过影响土壤中溶质供给和微生物活性来调控氮素的矿化过程^[6]. 含水率的变化还会改变微生物优势种群结构,进而影响土壤微生物对氮素的代谢活动,如在干旱土壤中,真菌和放线菌比细菌更耐干旱,而革兰氏阳性菌比阴性菌更占优势^[7]. 生物滞留系统中氮素在干湿交替过程的驱动下会表现出除污特性的不稳定性,甚至发生显著的氮素淋失现象^[3,8~10],导致系统丧失除氮功能,反而成为水体富营养化的主要氮“源”之一.

前期干旱天数(antecedent dry days, ADD)是造成生物滞留系统干湿交替过程的水文驱动因子,进而影响其除氮性能^[4]. 黎雪然等^[11]的研究发现当 ADD 低于 10 d 时,ADD 对生物滞留系统去除 NH_4^+ -N 和 TN 的影响较小,但会显著影响系统对 NO_3^- -N 和有机氮的去除能力,其中,ADD 越长越有利于 NO_3^- -N 的去除,而有机氮去除率却随 ADD 的增大而减小. Lynn 等^[12]的研究发现 NO_3^- -N 去除率随 ADD 的增加而升高. Cho 等^[8]的研究则表明,当 ADD 从 5 d 增加至 20 d 时, NH_4^+ -N 出水浓度逐渐增加,而 NO_3^- -N 出水浓度受土壤类型所影响,但随 ADD 的增加,均出现 NO_3^- -N 的淋失现象. 同样, Hatt 等^[13]的研究发现, TN 和 NO_3^- -N 出水浓度随 ADD 的增大而增加. 相关研究认为^[14,15],生物滞留系统在经历较长的 ADD (15 d) 后,首次降雨再湿润后对 TN 的去除影响较小,而第二次再湿润后可显著降低 TN 去除率. 为尽可能减缓干旱过程中水分蒸发对植物和微生物的不良影响,研究学者在生物滞留设施中增设了淹没层以降低 ADD 对系统除氮性能的影响. 但即使在设置淹没层的生物滞留系统中,当 ADD 为 7 周时, NH_4^+ -N、 NO_3^- -N 和 TN 均会发生氮素淋失现象^[14,16]. 这是因为设置淹没区的雨水生物滞留系统干旱 5 周后土壤水分含量便降至 5% 以下(土壤处于严重干旱状态),严重影响植物和微生物活动^[4].

针对干湿交替过程对生物滞留系统除氮过程的影响,现有研究主要集中在 ADD 对生物滞留系统氮素去除率的影响^[8~15],缺少对氮还原酶变化、微生物种群结构演变及其与氮素去除变化间的耦合响应分析. 因此,本研究根据重庆市日降雨量大于 2 mm 的降雨间隔天数统计结果,构建了一系列生物滞留系统模拟体系,探讨了 7 种 ADD 形成的恒定干湿条件下生物滞留系统对氮素的去除能力、氮还原酶活性和微生物种群结构空间变化,进而研究干湿交替下系统内部氮素转化过程与还原酶活性之间的相关性. 本研究有助于探明多重干湿交替对氮素去除性

能的影响机制,以期为生物滞留设施的优化设计与推广应用提供指导,并为提高生物滞留系统除氮性能的稳定性和应对气候变化的适应能力提供相应的理论依据.

1 材料与方法

1.1 实验装置

选用 126 个内径为 150 mm 的滤柱模拟生物滞留系统,并置于四面通风的阳光棚内. 生物滞留系统植物选用具有高效去除多种污染物能力的风车草(*Cyperus alternifolius* L.)^[17]. 如图 1 所示,所有滤柱由蓄水层(200 mm,亚克力材质)和滤料层(600 mm, PVC 材质)组成,自上而下分别为蓄水层(200 mm)、种植层(300 mm)、淹没层(200 mm)和排水层(100 mm). 其中,种植层滤料选用沙壤土(粒径 0.02 ~ 0.2 mm)、石英砂(粒径 0.1 ~ 0.5 mm)和细沙(粒径 0.05 ~ 0.15 mm)混合(1:2:2,质量比)而成的种植土;淹没层滤料选用石英砂(粒径 0.25 ~ 0.5 mm)并添加 5% (质量比)的木屑(碳源);排水层滤料选用 3 ~ 6 mm 的砾石. 随机选取长势一致的风车草种植于上述滤柱中,每个滤柱各 3 株. 各滤料层之间铺设土工布,防止滤料渗漏到排水层,堵塞排水管. 为避免土壤本底养分淋洗对实验结果的干扰,植物栽培完成后并用营养液进行一段时间的驯化,待植物存活后采用清水向滤柱浇灌一段时间以淋洗出累积于系统内的本底基质.

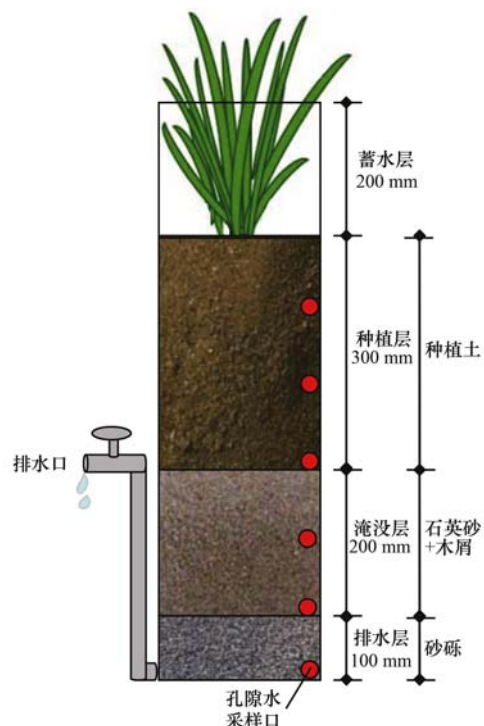


图 1 实验装置示意

Fig. 1 Schematic diagram of the biofilter columns

1.2 实验方法

根据重庆市主城区市政道路雨水径流监测结果,采用化学药剂,当地雨水塘底泥(粒径小于1 mm)和脱氯自来水配置成目标污染物浓度的模拟雨水(表1),以降低自然降雨径流高度变异的水质特征对实验研究产生干扰.各滤柱进水量按照巴南区年径流总量控制率所对应的设计降雨量进行设置,计算方法如式(1)所示.

$$V = 10HRF \tag{1}$$

式中, H 为设计降雨量,75%年径流总量控制率对应的设计降雨量为19.1 mm,而80%年径流总量控

制率对应的设计降雨量为21.4 mm; R 为径流系数(取0.85); F 为汇水面积, hm^2 ,可根据生物滞留设施面积为汇水面积的7%进行计算.

不采样时,滤柱进水量根据75%年径流总量控制率对应设计降雨量确定,为4.1 L,而采样时为避免采集过多水样对实验过程产生干扰,进水量按80%年径流总量控制率对应设计降雨量确定,为4.6 L.

根据重庆市典型年(2011~2017年)内日降雨量大于2 mm(不透水面产生径流的有效降雨量)的降雨间隔天数统计数据,选取出现频率最多的场次降雨间隔天数(1、2、3和5 d),并考虑到长时间干旱曝晒和一般干旱条件对生物滞留系统运行性能的影响,最终确定ADD分别为1、2、3、5、7、12和22 d,分别对应7个实验组,并记为BR1~BR7.本实验自2018年10月至2019年1月根据各实验组运行周期进行进水及采样.各实验组分别设置18个平行滤柱,对于水样采集,所有滤柱均于每月中旬进行集中采样,其中,BR1、BR2和BR4实验组在2018年10月进行了两次采样;而对于土壤和微生物样品的采集,待各实验组实验结束后选出水水质和植物生长状况相似的3个滤柱进行采样.各组滤柱运行情况 & 样品采集情况如表2所示.

表1 模拟径流雨水水质

Table 1 Semi-synthetic stormwater quality

污染物指标	目标浓度/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	来源
TSS	394	雨水塘底泥(粒径<0.2 mm)
COD	319	$\text{C}_6\text{H}_{12}\text{O}_6 + \text{C}_6\text{H}_5\text{NO}_2$
TP	0.9	KH_2PO_4
TN	7.3	$\text{NH}_4\text{Cl} + \text{KNO}_3 + \text{C}_6\text{H}_5\text{NO}_2$
$\text{NH}_4^+ - \text{N}$	4.0	NH_4Cl
$\text{NO}_3^- - \text{N}$	2.1	KNO_3
Cu	0.13	CuSO_4
Zn	0.732	ZnCl_2
Cd	0.053	CdCl_2
Fe	1.0	FeCl_3

表2 各实验滤柱运行情况及样品采集情况¹⁾

Table 2 Operation of each filter column during the experiment and sample collection site

实验组编号	ADD/d	进水次数	进水量/L	水样		微生物样本和土样	
				采样次数	样本量	采样次数	样本量
BR1	1	99	407.9	5	90	1	3
BR2	2	49	202.9	5	90	1	3
BR3	3	33	136.8	4	72	1	3
BR4	5	21	88.1	5	90	1	3
BR5	7	14	58.9	4	72	1	3
BR6	12	9	38.4	4	72	1	3
BR7	22	4	17.4	4	72	1	3

1) BR1和BR2实验组在运行至11月中旬开始发生填料堵塞现象,于12月中旬进行种植土更换和植物补栽

1.3 样品采集与分析方法

对水样的采集,首先将配置的模拟雨水分两次导入至实验滤柱中,打开连接至带盖集水桶的排水口阀门,使进水从装置中自然流出进入集水桶.待排水口不再有水流出,关闭阀门,记录总出水量.然后利用不锈钢棒对集水桶中的水进行搅拌混合后采集适量水样用于分析出水中 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 、 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 和TN浓度;对土样和微生物样品的采集,各实验组实验结束后在不影响植物根系和土壤层的前提下剖开滤柱^[18],采用五点法采集各种植层和淹没层土壤样品.土壤采样时首先去除碎根系等杂质,用无菌袋取适量新鲜土样3份.其中1份立即送往实验室测定含水率,1份进行冷冻保存用于后续测定硝酸还原

酶(NaR)、亚硝酸还原酶(NiR)和羟胺还原酶(HyR)等氮还原酶活性,1份用于后续微生物基因组DNA提取与测序分析.

采用国家标准方法检测水样中的TN、 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 和 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 等污染物指标,土壤含水率采用80℃烘干恒重称量法.氮转化酶活性中,NaR采用紫外分光光度法,NiR采用对氨基苯磺酸-a萘胺比色法,HyR则采用改进硫酸铁铵-邻菲罗啉法测定^[19, 20].各形态氮去除率按如公式(2)进行计算:

$$R = \frac{c_i Q_i - c_e Q_e}{c_i Q_i} \times 100\% \tag{2}$$

式中, R 为氮去除率,%; c_i 和 c_e 分别为进水和出水氮浓度, $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$; Q_i 和 Q_e 分别为进水量和出水量,

L. 同时,为避免平行样检测数据受极值影响而产生偏差,采用中位数进行数据分析.利用 SPSS 24.0 软件进行方差分析和相关性分析,其中,多重比较采用 Student-Newman-Keuls (SNK) 法,用 Pearson 相关系数分析出水氮浓度、含水率和土壤酶活性之间的相关性.

1.4 土壤 DNA 提取、扩增测序与数据分析

利用土壤 DNA 提取试剂盒提取土壤微生物基因组 DNA,并进行 DNA 纯度、相对浓度和完整性检测.以稀释后的基因组 DNA 为模板,选用引物 27F (5'-AGAGTTTGATCCTGGCTCAG-3') 和 553R (5'-TTACCGCGGCTGCTGGCAC-3') 对 16S rDNA 进行扩增.具体基因扩增体系、测序与数据分析方法详见文献[18].

2 结果与讨论

2.1 ADD 对 NH_4^+ -N 去除的影响

ADD 对 NH_4^+ -N 的平均去除率并无显著影响,不同 ADD 下各实验组对 NH_4^+ -N 的平均去除率均高于 70% [图 2(a)]. 但从逐月变化曲线来看 [图 2(b)], 各实验组对 NH_4^+ -N 的去除呈现出不同的变化规律. 较长 ADD 条件下 (12 ~ 22 d), NH_4^+ -N 去除率围绕 75% 上下小幅度波动,与较短 ADD (1 ~

7 d) 的系统相比表现出较稳定的 NH_4^+ -N 去除性能. 这是因为生物滞留系统对 NH_4^+ -N 的去除主要通过土壤吸附、植物吸收同化以及微生物硝化作用等途径^[16].

ADD 对 NH_4^+ -N 的去除影响主要体现在以下两个方面,一是在干旱期间,非生物固定的 NH_4^+ -N 能被植物和微生物吸收转化,导致土壤介质中的 NH_4^+ 吸附点位被空出,而在恢复进水后 NH_4^+ -N 能重新被土壤介质吸附. 另一方面在干旱期间,由于淹没层在厌氧环境下硝化作用受到限制,土壤中有氮 (如土壤含氮有机物、衰亡根系和死亡微生物等) 在厌氧环境下通过矿化作用转化为 NH_4^+ -N^[11]. 当 ADD 为 1 d 和 2 d 时,频繁进水导致 BR1 和 BR2 实验组几乎所有滤柱运行至 30 d 左右开始发生填料堵塞,60 d 左右堵塞现象较为严重,造成土壤介质长期处于厌氧状态导致硝化过程受限. 同时,由于植物长期处于高含水率的胁迫状态,开始发生衰亡,造成植物对 NH_4^+ -N 的吸收同化能力大幅减弱,最终导致土壤介质的吸附点位长期处于饱和状态. 此外,衰亡的根系在厌氧环境中通过矿化作用将有机氮转化为 NH_4^+ -N,进一步增加了出水浓度,最终导致同一实验组的部分滤柱去除率发生大幅下降,并呈现为较大的波动范围. 虽然从 11 月中旬起对 BR1 实验组进行了近 1 个月的“耙松”措施,解决了部分滤柱的堵塞问题,但植物已处于死亡状态. 而 BR2 实验组仍无法解决填料堵塞问题,且植物也基本处于死亡状态. 为保证实验进行,于 12 月中旬对 BR1 和 BR2 实验组的所有滤柱进行了种植土更换和植物补栽. 因此,在后续中,这两实验组的去除效能得到了有效恢复,对 NH_4^+ -N 的去除率均高于 80%. BR3 和 BR4 实验组随运行时间的延长,大概在运行 45 d 时,少部分滤柱也开始出现填料堵塞现象,但观察发现堵塞主要是填料表层过多截留径流中的 TSS 所致,通过表层土“耙松”处理后,可使水力渗透性能得到恢复,可在一定程度上改善系统对 NH_4^+ -N 的去除效能,从而表现出 ADD 为 3 d 和 5 d 的实验组, NH_4^+ -N 去除率从 12 月开始逐渐提高. 在 12 月中旬进行换土和耙松措施后, BR1 ~ BR4 实验组去除能力均在一定程度上得到提升, NH_4^+ -N 去除率高于 BR5 ~ BR7 实验组,这主要是由于后 3 个实验组干旱后期淹没层含水率低 (图 3),恢复进水后水流在土壤层的流动快,停留时间短,导致土壤层快速吸附的 NH_4^+ -N 量和微生物硝化量减少,更多的 NH_4^+ -N 随水流迁移至淹没层进而被冲出系统,造成出水浓度升高.

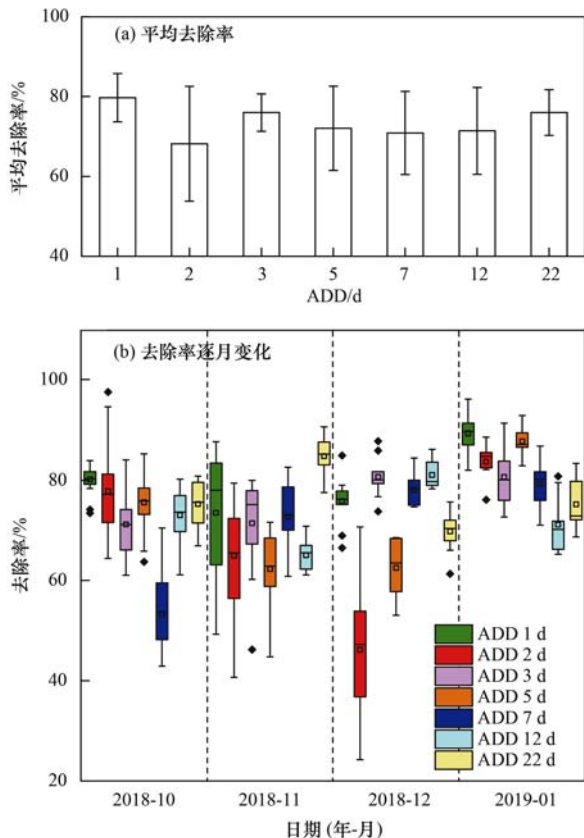


图 2 ADD 对 NH_4^+ -N 去除的影响

Fig. 2 Effect of ADD on the removal of NH_4^+ -N

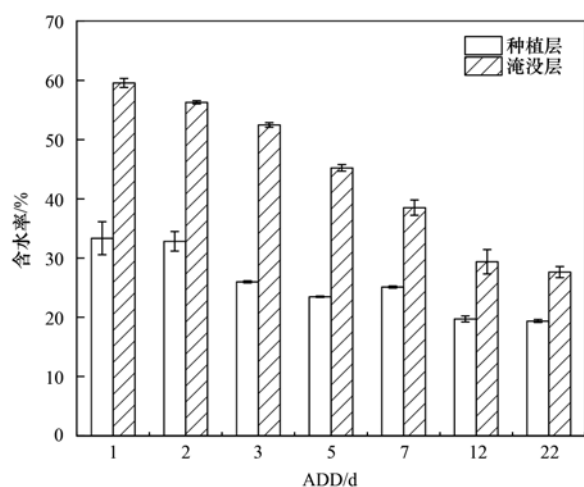
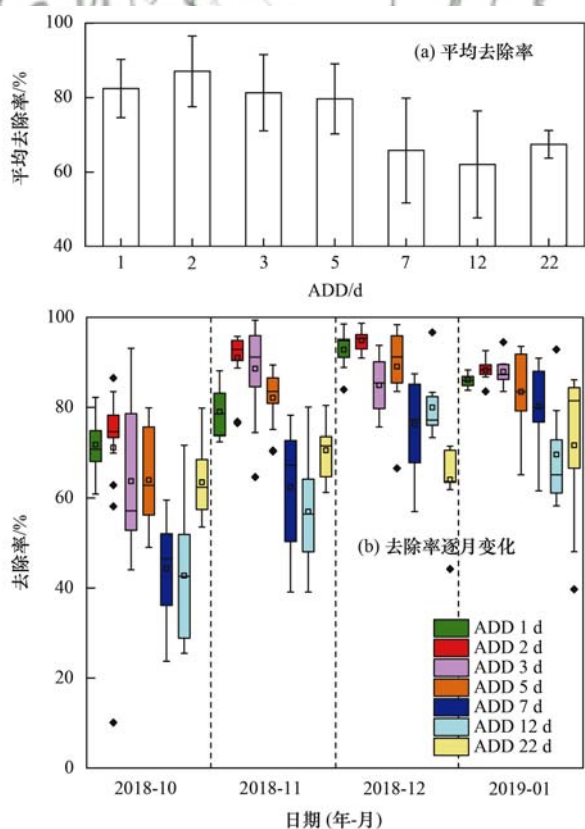


图3 ADD对土壤含水率的影响

Fig. 3 Effect of ADD on the soil moisture content

2.2 ADD对 NO_3^- -N去除的影响

ADD对 NO_3^- -N的平均去除率有一定的影响,当ADD低于5 d时,系统对 NO_3^- -N的平均去除率超过80%,但随着ADD的增加(7~22 d), NO_3^- -N去除率呈明显下降趋势[图4(a)],去除率降至65%左右,且不同运行时间下均呈现这一趋势[图4(b)].这一结果与Hatt等^[13]的研究结论相一致,而与黎雪然等^[11]的研究结论相悖,这可能是由于实验季节和持续时间不同所导致.文献[11]中实验开展时间为4

图4 ADD对 NO_3^- -N去除的影响Fig. 4 Effect of ADD on the removal of NO_3^- -N

~5月,植物和微生物均处于活跃期,而本研究为秋冬季(9~12月),微生物和植物生长活性逐渐下降.

在生物滞留系统中去除 NO_3^- -N的主要途径是反硝化作用.同时, NO_3^- -N也可被植物吸收和微生物固定去除,但需要较长的时间.虽然土壤中也可能存在 NO_3^- -N的非生物固定作用^[21],但土壤颗粒一般带负电荷,对 NO_3^- -N的吸附作用较弱,易受水动力等外力作用而发生迁移.在2018年10~12月期间,BR1~BR4实验组去除率和稳定性均随运行时间而逐渐提高.这可能是由于两个原因所导致,首先是BR1~BR4实验组因ADD较短,致使系统内形成了有效淹没区(含水率高于40%),创造了利于反硝化过程的厌氧条件和固体碳源释放环境,进而促进了反硝化作用的进行.其次是BR1~BR4实验组因频繁进水而存在不同程度的堵塞,造成种植层高含水率(高于30%),使得土壤介质长期处于厌氧状态,微生物对 NH_4^+ -N的硝化量少.相应地,系统内需要去除的 NO_3^- -N量也少.而堵塞现象,在一定程度上导致水流在系统内的滞留时间得到延长,保证了反硝化过程,可将系统内少量的 NO_3^- -N去除,从而表现出较高和较稳定地去除效能.由此可见,进水在系统内的滞留时间对 NO_3^- -N去除有一定的影响.尽管所有平行实验的填料层一致,蓄水层高度一致,但是不同ADD会影响植物根系形态特征,导致植物根系在填料层内的空间分布发生改变,进而影响系统内的水流渗透性能,改变滞留时间.表3列出了不同工况下风车草的根系形态特征,不同干湿交替条件影响了根系的根长、根表面积及体积等指标,结果表明,进水周期较长条件下,植物根系生长情况较好.BR5、BR6和BR7这3组的滞留时间基本在1 h左右,BR3和BR4的滞留时间大概在2~3 h,而BR1和BR2在堵塞现象发生前滞留时间大概在1~2 h,堵塞发生后滞留时间逐渐增加,最长可达5~6 h.

BR3和BR4实验组前期因水动力条件优于BR1和BR2实验组,导致 NO_3^- -N的去除存在较大波动,但随着部分滤柱发生堵塞,种植层厌氧环境逐渐增加,加之植物根系衰亡释放出有机质,进而促进了反硝化作用和土壤介质的吸附作用,提高 NO_3^- -N去除能力.BR5和BR6实验组虽表现出 NO_3^- -N去除率随运行时间而提高,但仍存在较大的波动性.分析认为,随着实验的进行,滤柱中反硝化体系逐渐稳定,同时,植物吸收和微生物固定作用也逐渐增强,进而表现为去除率中位数逐渐升高.但由于 NH_4^+ -N经硝化细菌氧化为 NO_3^- -N,进一步加大了反硝化负荷,加之ADD较高时,恢复进水后水流在土壤层的滞留时间短,易影响植物吸收、微生物固定和反硝化

作用效果,而呈现出较大波动.而当 ADD 为 22 d 时,植物生长明显要好,种植层土壤非生物固定和植物吸收作用强,加之淹没层反硝化体系逐渐形成,从而表现为 BR7 实验组对 NO_3^- -N 的去除率中位数无明显提高,但也无过大波动,维持在 70% 左右. BR1、BR2、BR4 和 BR6 实验组 NO_3^- -N 的平均

去除率在 2019 年 1 月均出现下降趋势,而 BR5 实验组的 NO_3^- -N 的平均去除率也出现增速减缓的趋势,这主要是由于气温下降导致微生物活性和植物代谢降低,造成系统对 NO_3^- -N 去除的降低.同时,ADD 越长(超过 3 d),气温降低越容易造成系统对 NO_3^- -N 去除发生波动.

表 3 不同干湿交替下风车草各器官生物量及根系形态特征

Table 3 Biomass of each organ and root morphological characteristics of campanula under different alternate drying and wetting

参数	恒定干湿交替实验组						
	BR1	BR2	BR3	BR4	BR5	BR6	BR7
根生物量/g	6.10	4.32	5.42	3.24	2.52	7.60	9.54
茎生物量/g	8.13	8.01	8.32	9.25	8.33	9.94	11.00
叶生物量/g	1.97	2.92	4.39	3.40	4.09	4.14	4.83
总根长/g	189.50	83.64	245.99	202.32	358.97	624.49	965.99
总根面积/ cm^2	341.77	212.27	250.93	354.57	380.43	487.31	620.79
总根体积/ cm^3	49.05	42.87	20.37	49.45	34.83	30.26	31.75
根平均直径/mm	5.74	8.08	3.25	5.58	3.69	2.48	2.05
根尖	157	117	292	232	379	867	1 401
分支数	1 006	402	1 402	1 156	1 759	4 397	5 549
交叉数	38	9	87	61	129	448	612

2.3 ADD 对 TN 去除的影响

生物滞留系统对 TN 的去除是 NH_4^+ -N 和 NO_3^- -N 综合作用的结果,受 ADD 影响不大,去除率均高于 65%.但整体上来看,BR5 ~ BR7 实验组平均去除率略低[图 5(a)].同时,从 TN 去除率的逐月变化曲线来看,不同 ADD 条件下呈现不同的变化规律,且变化趋势基本为 NH_4^+ -N 和 NO_3^- -N 逐月变化的综合叠加[图 2(b)、图 4(b) 和图 5(b)].分析认为,生物滞留系统中土壤氧环境可通过植物根系作用产生空间异质性,形成好氧、缺氧环境进行硝化和反硝化作用实现脱氮过程^[22],这一过程与植物吸收同化和微生物固持作用受气温变化和干湿交替等因素影响,从而使生物滞留系统对 TN 去除缺乏良好的弹性.但总体来说,在保证填料水力渗透和植物生长条件下,较长的 ADD(7 ~ 22 d)不利于系统除氮.

2.4 ADD 对土壤氮还原酶活性的影响

土壤酶是促进土壤生物化学反应的重要催化剂^[23],也是调节土壤氮循环的重要中间物质.而土壤水分改变是诱导酶活性发生变化的主要原因^[24].干湿交替过程引起土壤含水率发生剧烈变化,进而影响氮素生物转化的酶活性^[4].有研究证实,硝酸还原酶(NaR)、亚硝酸还原酶(NiR)和羟胺还原酶(HyR)等氮还原酶活性能将 NO_3^- -N 催化还原为 NO_2^- -N、 NH_2OH 以及 NH_4^+ -N,且与 NO_3^- -N 和 NH_4^+ -N 的生物转化密切相关^[25, 26].因此,氮还原酶活性可在一定程度上解释 ADD 对系统除氮性能的影响机制.

本研究结果表明,土壤氮还原酶的活性受 ADD

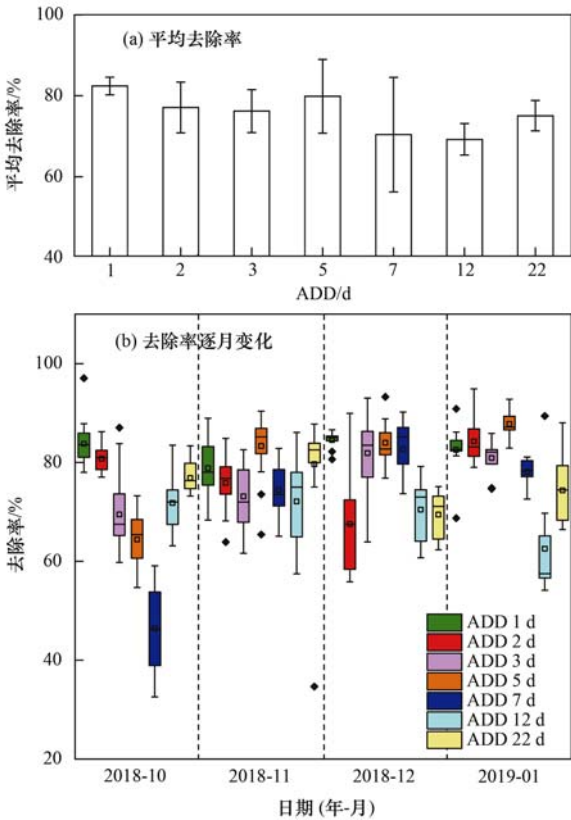
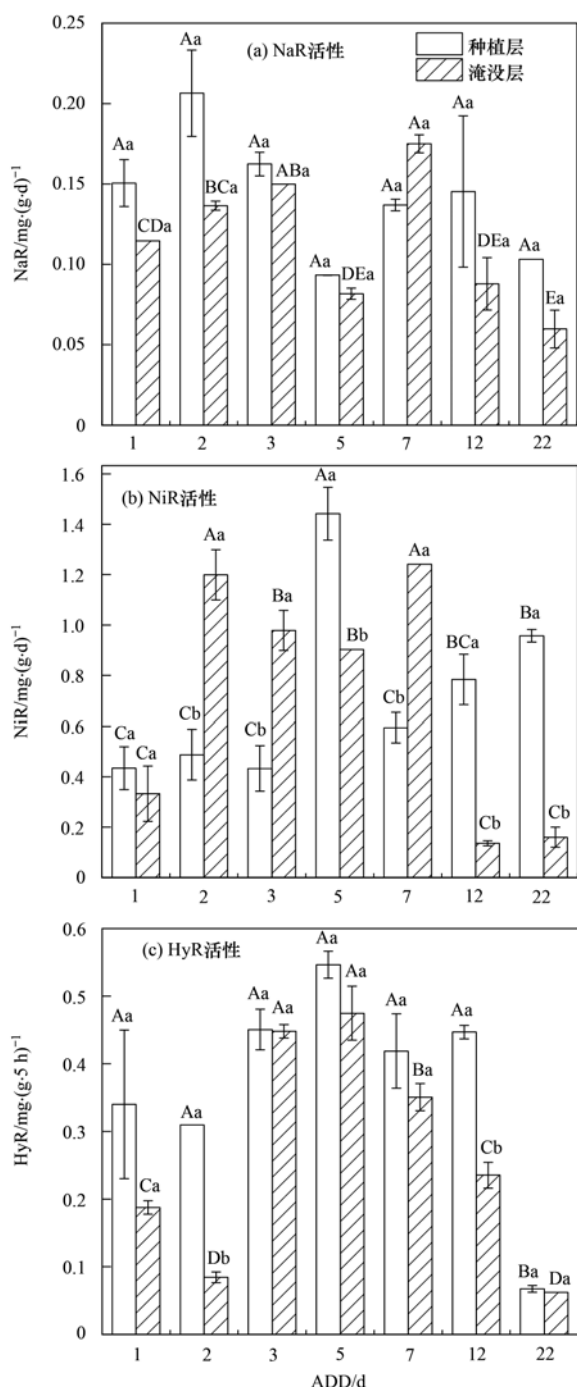


图 5 ADD 对 TN 去除的影响

Fig. 5 Effect of ADD on the removal of TN

和土壤深度影响(图 6).不同 ADD 条件下种植层 NiR 活性存在一定的差异,HyR 活性的差异较小,而 NaR 活性无明显差异;淹没层 NaR、NiR 和 HyR 活性有一定的差异.不同土壤层中 NaR 活性无显著性差异;NiR 活性除 BR1 实验组(ADD = 1 d)外,其他 ADD 条件下具有显著差异性($P < 0.05$);而 HyR

活性除 ADD 为 2 d 和 7 d 条件下有显著差异外,其余均无明显差异。



不同大写字母表示同一土层不同 ADD 间差异显著, $P < 0.05$;

不同小写字母表示同一 ADD 不同土壤层差异显著, $P < 0.05$

图 6 ADD 对土壤氮还原酶活性的影响

Fig. 6 Effect of ADD on nitrogen reductases activity

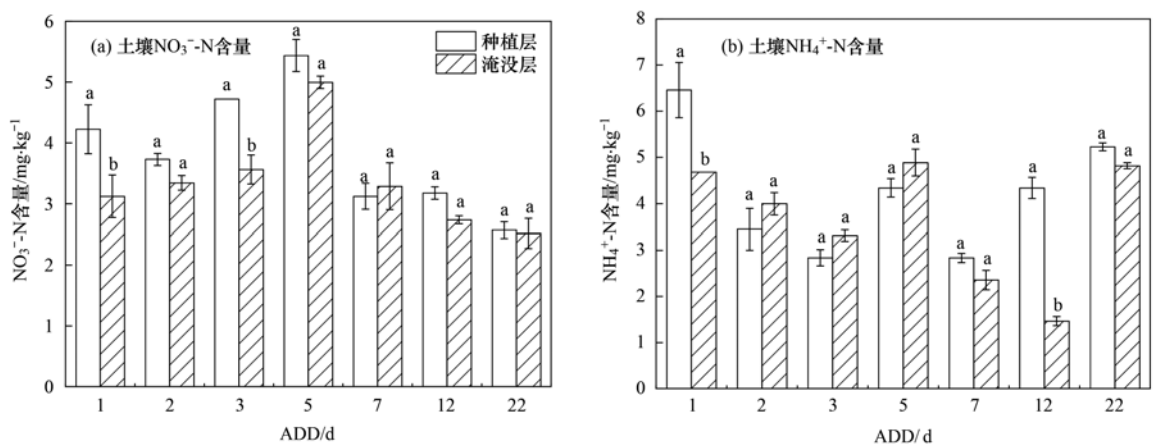
不同 ADD 条件下, NaR 活性整体数值低于 $0.21 \text{ mg}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$, 可能是冬季温度较低, 抑制了酶活性。3 种还原酶活性在大多数 ADD 条件下均表现为种植层高于淹没层, 即还原酶活性随着土壤深度逐渐降低, 这与众多酶活性的研究结果一致^[27,28]。有研究认为, 由于种植层有植物根系存在, 土壤养分状况较好, 利于微生物生长而使种植层的土壤酶活

性较高^[29]。同时, 淹没层土壤缺乏光照, 且水温和溶解氧含量较低, 影响微生物代谢活动, 造成酶活性降低。而当 ADD 为 2、3 和 7 d 时, 淹没层的 NiR 活性高于种植层, 为种植层的 2.1 ~ 2.5 倍, 可能与其土壤氮含量有关系。其中, ADD 为 2 d 和 3 d 条件下, 淹没层土壤 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 含量 ($3.99 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $3.31 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$) 高于种植层 ($3.45 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $2.83 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$), 这一变化趋势正好与 NiR 活性的空间分布规律一致 [图 7(b)]。左智天等^[30]的研究发现, 土壤氮含量与酶活性存在一定的正相关, 土壤氮含量越高, 其酶活性也越高。虽然 BR5 实验组 (ADD = 7 d) 中 NiR 活性空间分布规律与 BR2 和 BR3 实验组相似, 但其与土壤氮含量并不存在相关性, 这可能是由于淹没层土壤含水率 (38.5%) 高于种植层 (25.1%), 而相关研究认为土壤含水率低于 35% 时土壤还原酶活性反而相对较高^[24]。同时, 淹没层溶解氧浓度较少, 利用亚硝酸盐还原菌的生长, 从而表现为淹没层 NiR 活性高于种植层。

为进一步阐释氮还原酶活性与除氮性能之间的关系, 对不同土壤层的氮还原酶活性和不同形态的氮出水浓度、土壤含水率进行了相关性分析, 结果如表 4 所示。出水 TN 与出水 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 呈显著正相关, 进一步证实系统对 TN 的去除能力取决于系统对 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 的去除情况, 而出水 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 又与种植层和淹没层含水率均呈极显著负相关, 表明含水率越高越有利于反硝化的进行, 这为 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 和 TN 去除能力随 ADD 的增大而降低提供了有力支持。种植层 NaR 活性与种植层 NiR 活性呈显著负相关, 表明硝酸盐还原菌和亚硝酸盐还原菌在种植层存在竞争关系。淹没层 NaR 活性与淹没层 NiR 活性呈显著正相关, 并与 HyR 活性呈现出一定的正相关, 表明 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 和 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 还原具有高度一致性与连续性, 并经 NaR 和 NiR 次第催化还原为 NH_2OH , 后由 HyR 催化还原为 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ ^[31]。这一系列氮还原过程主要发生在淹没层, 再次证实淹没层含水率会显著调控生物滞留系统除氮过程。种植层 HyR 活性与淹没层 HyR 活性呈显著正相关, 表明种植层和淹没层均存在 NH_2OH 在 HyR 催化作用下还原为 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 。上述相关性分析结果表明, 生物滞留系统中存在硝酸盐异化还原成铵 (DNRA) 反应, 加之植物吸收同化、硝化和土壤吸附途径, 进一步造成 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除的复杂性, 导致 ADD 对 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的去除表现出无显著影响。

2.5 ADD 对土壤微生物群落结构的影响

从门水平来看, ADD 对土壤微生物群落结构具有较大的影响, 如图 8(a) 所示。Firmicutes 相对丰度随 ADD 的增加呈下降趋势, 而 Proteobacteria、



不同小写字母表示同一处理下不同土壤层差异显著 $P < 0.05$

图7 ADD对土壤氮含量的影响

Fig. 7 Effect of ADD on the soil nitrogen content

表4 出水氮浓度、含水率与氮还原酶活性间的相关性¹⁾

Table 4 Correlations between effluent nitrogen concentrations, moisture, and nitrogen reductases activity

	TN	NH ₄ ⁺ -N	NO ₃ ⁻ -N	种植层 NaR	淹没层 NaR	种植层 NiR	淹没层 NiR	种植层 HyR	淹没层 HyR	种植层 含水率
NH ₄ ⁺ -N	0.73									
NO ₃ ⁻ -N	0.797 *	0.473								
种植层 NaR	-0.255	-0.041	-0.449							
淹没层 NaR	-0.688	-0.330	-0.437	0.586						
种植层 NiR	0.393	0.190	0.254	-0.801 *	-0.674					
淹没层 NiR	-0.585	-0.081	-0.600	0.376	0.765 *	-0.167				
种植层 HyR	-0.459	-0.703	-0.328	0.020	0.347	0.159	0.415			
淹没层 HyR	-0.518	-0.586	-0.209	-0.303	0.309	0.279	0.424	0.837 *		
种植层含水率	-0.695	-0.414	-0.877 **	0.681	0.510	-0.590	0.419	0.077	-0.157	
淹没层含水率	-0.810 *	-0.552	-0.960 **	0.572	0.470	-0.461	0.462	0.276	0.131	0.928 **

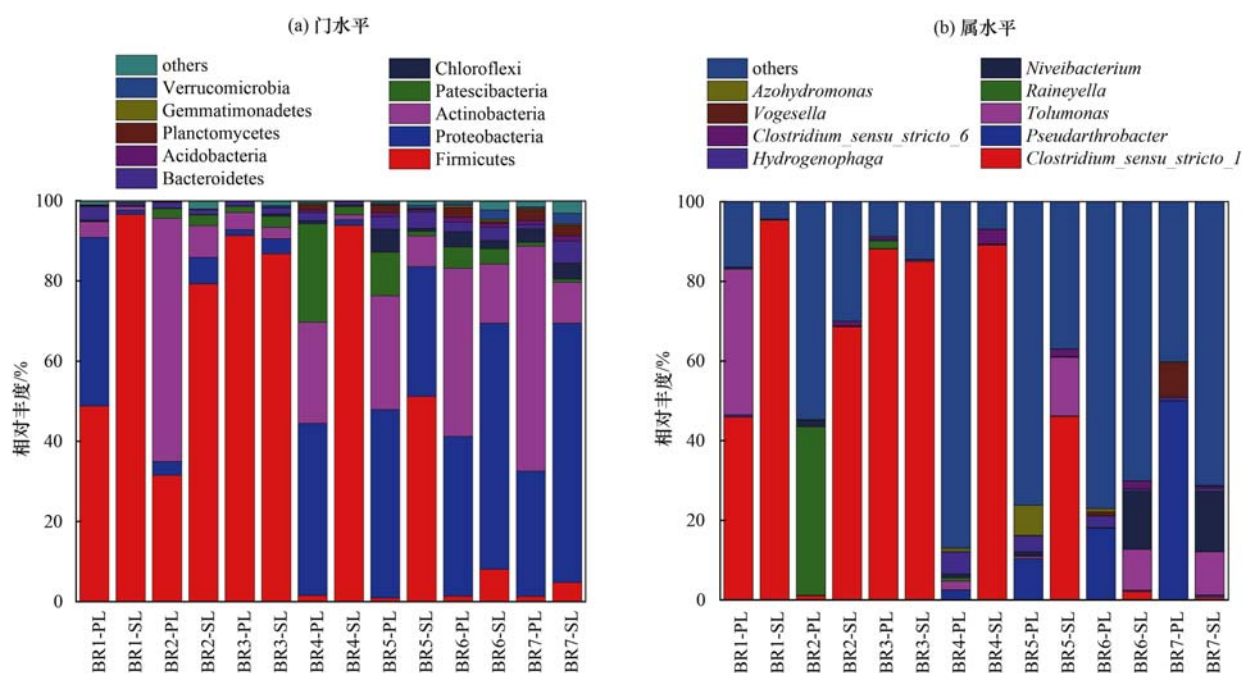
1) * 表示 $P < 0.05$, 显著相关; ** 表示 $P < 0.01$, 极显著相关; Spearman 等级相关 (双尾检验)

Actinobacteria 和 Chloroflexi 的相对丰度则随 ADD 的增加呈上升趋势. 其中, Firmicutes 主要分布在进水较频繁的 BR1 ~ BR3 实验组 (ADD 为 1、2 和 3 d) 和 BR4 ~ BR5 实验组 (ADD 为 5 d 和 7 d) 的淹没层, 而 Proteobacteria、Actinobacteria 和 Chloroflexi 则主要分布在 BR4 ~ BR7 实验组 (ADD 为 5、7、12 和 22 d). 结果表明, 不同干湿交替周期可通过改变氧环境而影响生物滞留系统菌群结构. 这是因为厌氧细菌更倾向于持续地浸水条件, 而好氧细菌则适合于干湿交替环境^[32]. 此外, 土壤菌群对水环境有不同的耐受性, 在各环境条件的共同作用下使 BR1 ~ BR3 实验组中优势菌门为 Firmicutes, 而在 ADD 相对较长的 BR4 ~ BR7 实验组中优势菌门为 Actinobacteria 和 Proteobacteria. 有研究表明, Firmicutes 被认为是还原 NO₃⁻-N 和 NO₂⁻-N 的优势菌门^[33], 且 Firmicutes 与 TN 和 NO₃⁻-N 去除率及反硝化酶活性呈正相关^[34], 这也在一定程度上解释了 BR1 ~ BR4 实验组 (ADD 为 1、2、3 和 5 d) 的 NO₃⁻-N 和 TN 去除率高于 BR5 ~ BR7 实验组 (ADD

为 7、12 和 22 d).

同时, 各实验组中微生物群落结构在空间分布上存在较大差异性 [图 8(a)]. 其中, 最为明显的是 Firmicutes 和 Actinobacteria. Firmicutes 主要分布在淹没层, 而 Actinobacteria 则主要分布在种植层上. 微生物在空间分布上的显著差异性 with 细菌对环境的适应能力有关. 因 Firmicutes 具有孢子形成能力可适应恶劣环境^[35], 使其能在进水较频繁的实验组和溶解氧浓度较低的淹没层中存活. 而 Actinobacteria 在干旱胁迫下反而能够成为优势菌^[7,36], 淹没层含水率高于种植层 (图 3), 且种植层溶解氧含量更高, 从而表现为 Actinobacteria 在种植层的相对丰度均高于淹没层.

从属水平来看, *Clostridium_sensu_stricto_1* 主要分布在淹没层, 且当 ADD 超过 5 d 时, 其相对丰度随 ADD 的增加而逐渐降低, 而 *Pseudarthrobacte* 则主要分布在种植层, 且当 ADD 超过 3 d 时, 其相对丰度随 ADD 的增加而增加. 菌属 *Clostridium* 具有良好的 NO₃-N 还原能力, 与反硝化细菌 *Bacillus* 类似, 均



PL: 种植层, SL: 淹没层, BR1-PL 为 BR1 实验组种植层, 以此类推

图 8 ADD 对微生物群落结构的影响

Fig. 8 Effect of ADD on microbial community structure

属于 Firmicutes 门, 通常在缺氧或厌氧环境中被发现^[37,38]. 同时, 相关文献报道 *Clostridium* 在厌氧环境中也能发生 DNRA 过程^[39]. 而本研究中, *Clostridium_sensu_stricto_1* 属于严格厌氧的 *Clostridium* 菌属. 由于淹没层含水率比种植层更高, 通气性更差而呈现厌氧环境, 导致 *Clostridium_sensu_stricto_1* 在淹没层的相对丰度更高. 而进水较频繁的实验组 (ADD 为 1~5d), 使系统整体含水量较高 (图 3), 透气性变差, 所以 *Clostridium_sensu_stricto_1* 在 BR1~BR4 实验组更高, 从微生物角度再次证实 NO_3^- -N 可通过淹没层的 DNRA 过程转化为 NH_4^+ -N. 进化树分析表明, *Pseudarthrobacter* 属于 Actinobacteria 门, 而 Actinobacteria 大多为厚细胞的单胚层细菌, 细胞壁更能抵抗水分胁迫^[40], 所以 ADD 为 7、12 和 22 d 实验组的种植层其分布较为丰富.

3 结论

(1) 生物滞留系统对 NH_4^+ -N 的去除受 ADD 影响不显著, 而主要受填料水力渗透性能和植物生长状况的影响, 其平均去除率均能达到 70% 以上. 系统对 NO_3^- -N 和 TN 的去除受 ADD 影响较大, 较长的 ADD (7、12 和 22 d) 不利于 NO_3^- -N 和 TN 的去除.

(2) 不同 ADD 条件下, 同一土壤层 NaR、NiR 和 HyR 活性都存在一定的差异 (除种植层间 NaR 外); 从空间分布来看, NaR 活性无显著差异性 (P

>0.05), 而 NiR 和 HyR 活性存在一定程度的差异. 系统对 TN 的去除能力取决于 NO_3^- -N 的去除, 且除氮过程受淹没层含水率所调控, 而 NO_3^- -N 可通过淹没层中 NaR、NiR 和 HyR 的次第催化还原作用发生 DNRA, 进而影响系统对 NH_4^+ -N 的去除能力.

(3) 进水频繁的实验组 (ADD 为 1~5 d) 优势菌门为 Firmicutes, 而其他实验组 (ADD 为 5~22 d) 的优势菌门为 Actinobacteria 和 Proteobacteria. 从属水平看, 具有反硝化和 DNRA 能力的严格厌氧菌属 *Clostridium_sensu_stricto_1* 更适合生长在较低 ADD 条件下 (1~5 d). 较低 ADD 条件下土壤微生物的分布特性使生物滞留系统对 TN 和 NO_3^- -N 具有较高的去除.

参考文献:

- [1] Lucke T, Nichols P W B. The pollution removal and stormwater reduction performance of street-side bioretention basins after ten years in operation [J]. Science of the Total Environment, 2015, 536: 784-792.
- [2] Wang S M, Lin X Y, Yu H, et al. Nitrogen removal from urban stormwater runoff by stepped bioretention systems [J]. Ecological Engineering, 2017, 106: 340-348.
- [3] Navarro-García F, Casermeiro M á, Schimel J P. When structure means conservation: effect of aggregate structure in controlling microbial responses to rewetting events [J]. Soil Biology and Biochemistry, 2012, 44(1): 1-8.
- [4] 陈垚, 程启洪, 甘春娟, 等. 雨水生物滞留系统氮素过程研究现状与展望 [J]. 环境工程, 2018, 36(7): 11-16.
- [5] Chen Y, Cheng Q H, Gan C J, et al. Research and prospect on processes of nitrogen removal in bioretention systems [J]. Environmental Engineering, 2018, 36(7): 11-16.
- [5] Chen Z M, Ding W X, Xu Y H, et al. Importance of

- heterotrophic nitrification and dissimilatory nitrate reduction to ammonium in a cropland soil: evidences from a ^{15}N tracing study to literature synthesis[J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2015, **91**: 65-75.
- [6] Curtin D, Beare M H, Hernandez-Ramirez G. Temperature and moisture effects on microbial biomass and soil organic matter mineralization[J]. *Soil Science Society of America Journal*, 2012, **76**(6): 2055-2067.
- [7] Manzoni S, Schimel J P, Porporato A. Responses of soil microbial communities to water stress: results from a meta-analysis[J]. *Ecology*, 2012, **93**(4): 930-938.
- [8] Cho K W, Yoon M H, Song K G, *et al.* The effects of antecedent dry days on the nitrogen removal in layered soil infiltration systems for storm run-off control[J]. *Environmental Technology*, 2011, **32**(7): 747-755.
- [9] Brown R A, Birgand F, Hunt W F. Analysis of consecutive events for nutrient and sediment treatment in field-monitored bioretention cells[J]. *Water, Air, & Soil Pollution*, 2013, **224**(6), doi: 10.1007/s11270-013-1581-6.
- [10] Li L Q, Davis A P. Urban stormwater runoff nitrogen composition and fate in bioretention systems[J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, **48**(6): 3403-3410.
- [11] 黎雪然, 王凡, 秦华鹏, 等. 雨前干早期对生物滞留系统氮素去除的影响[J]. *环境科学与技术*, 2018, **41**(3): 118-123, 140.
- Li X R, Wang F, Qin H P, *et al.* Effect of antecedent dry periods on the nitrogen removal in bioretention systems[J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, **41**(3): 118-123, 140.
- [12] Lynn T J, Yeh D H, Ergas S J. Performance of denitrifying stormwater biofilters under intermittent conditions[J]. *Environmental Engineering Science*, 2015, **32**(9): 796-805.
- [13] Hatt B E, Fletcher T D, Deletic A. Hydraulic and pollutant removal performance of stormwater filters under variable wetting and drying regimes[J]. *Water Science & Technology*, 2007, **56**(12): 11-19.
- [14] Zinger Y, Deletic A, Fletcher T D. The effect of various intermittent dry-wet cycles on nitrogen removal capacity in biofilters systems[A]. In: *Rainwater and Urban Design 2007* [C]. Australia: Engineers Australia, 2007. 1195-1202.
- [15] Payne E G I, Pham T, Cook P L M, *et al.* Biofilter design for effective nitrogen removal from stormwater-influence of plant species, inflow hydrology and use of a saturated zone[J]. *Water Science & Technology*, 2014, **69**(6): 1312-1319.
- [16] Zinger Y, Blecken G T, Fletcher T D, *et al.* Optimising nitrogen removal in existing stormwater biofilters: benefits and tradeoffs of a retrofitted saturated zone[J]. *Ecological Engineering*, 2013, **51**: 75-82.
- [17] 余雪花, 陈垚, 任萍萍, 等. 生物滞留系统植物筛选与综合评价[J]. *环境工程学报*, 2019, **13**(7): 1634-1644.
- Yu X H, Chen Y, Ren P P, *et al.* Selection and comprehensive assessment of plants in bioretention system[J]. *Chinese Journal of Environmental Engineering*, 2019, **13**(7): 1634-1644.
- [18] 陈垚, 程启洪, 郑爽, 等. 干湿交替对生物滞留系统中氮素功能微生物群落的影响[J]. *微生物学报*, 2020, **60**(3): 533-544.
- Chen Y, Cheng Q H, Zheng S, *et al.* Effects of drying-rewetting alternating on nitrogen-related microbial functional communities in bioretention systems[J]. *Acta Microbiologica Sinica*, 2020, **60**(3): 533-544.
- [19] 关松荫. 土壤酶及其研究法[M]. 北京: 农业出版社, 1986.
- [20] Weng B S, Xie X Y, Yang J J, *et al.* Research on the nitrogen cycle in rhizosphere of *Kandelia obovata* under ammonium and nitrate addition[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2013, **76**(1-2): 227-240.
- [21] Zhang J B, Cai Z C, Cheng Y, *et al.* Nitrate immobilization in anaerobic forest soils along a north-south transect in East China[J]. *Soil Science Society of America Journal*, 2010, **74**(4): 1193-1200.
- [22] Minett D A, Cook P L M, Kessler A J, *et al.* Root effects on the spatial and temporal dynamics of oxygen in sand-based laboratory-scale constructed biofilters[J]. *Ecological Engineering*, 2013, **58**: 414-422.
- [23] Acosta-Martínez V, Cruz L, Sotomayor-Ramírez D, *et al.* Enzyme activities as affected by soil properties and land use in a tropical watershed[J]. *Applied Soil Ecology*, 2007, **35**(1): 35-45.
- [24] 李源, 袁星, 祝惠. 含水量对黑土氮素转化及土壤酶活性影响的模拟研究[J]. *土壤通报*, 2014, **45**(4): 903-908.
- Li Y, Yuan X, Zhu H. Simulation study on effects of soil moisture contents on nitrogen transformation and enzyme activities in black soil[J]. *Chinese Journal of Soil Science*, 2014, **45**(4): 903-908.
- [25] Strohm T O, Griffin B, Zamft W G, *et al.* Growth yields in bacterial denitrification and nitrate ammonification[J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2007, **73**(5): 1420-1424.
- [26] 陈志刚, 陈蕾, 陈瀚翔, 等. 水稻根际土壤反硝化酶活性对水分调控的响应[J]. *环境科学与技术*, 2014, **37**(5): 21-25.
- Chen Z G, Chen L, Chen H X, *et al.* Denitrification enzyme activity in rice rhizosphere soil in response to water regulation[J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, **37**(5): 21-25.
- [27] 王亮, 周怀东, 王世岩, 等. 白洋淀湿地酶活性空间变化规律研究[J]. *生态环境学报*, 2012, **21**(5): 853-857.
- Wang L, Zhou H D, Wang S Y, *et al.* Spatial distribution of soil enzyme activities in wetlands of Baiyangdian[J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2012, **21**(5): 853-857.
- [28] 王晓龙, 徐力刚, 白丽, 等. 鄱阳湖典型湿地植物群落土壤酶活性[J]. *生态学杂志*, 2011, **30**(4): 798-803.
- Wang X L, Xu L G, Bai L, *et al.* Soil enzyme activities in Poyang Lake wetlands with typical hygrophilous vegetations[J]. *Chinese Journal of Ecology*, 2011, **30**(4): 798-803.
- [29] Wang B, Xue S, Liu G B, *et al.* Changes in soil nutrient and enzyme activities under different vegetations in the Loess Plateau area, Northwest China[J]. *CATENA*, 2012, **92**: 186-195.
- [30] 左智天, 田昆, 向仕敏, 等. 澜沧江上游不同土地利用类型土壤氮含量与土壤酶活性研究[J]. *水土保持研究*, 2009, **16**(4): 280-285.
- Zuo Z T, Tian K, Xiang S M, *et al.* Soil nitrogen content and enzyme activity in different utilization types of land in the upper reaches of Lancang River[J]. *Research of Soil and Water Conservation*, 2009, **16**(4): 280-285.
- [31] 韩建刚, 曹雪. 典型滨海湿地干湿交替过程氮素动态的模拟研究[J]. *环境科学*, 2013, **34**(6): 2383-2389.
- Han J G, Cao X. Effects of drying-rewetting alternation on nitrogen dynamics in a typical coastal wetland: a simulation study[J]. *Environmental Science*, 2013, **34**(6): 2383-2389.
- [32] Unger I M, Kennedy A C, Muzika R M. Flooding effects on soil microbial communities[J]. *Applied Soil Ecology*, 2009, **42**(1): 1-8.
- [33] Chen D, Yang K, Wei L, *et al.* Microbial community and

- metabolism activity in a bioelectrochemical denitrification system under long-term presence of p-nitrophenol [J]. *Bioresource Technology*, 2016, **218**: 189-195.
- [34] Kondaveeti S, Lee S H, Park H D, *et al.* Bacterial communities in a bioelectrochemical denitrification system; the effects of supplemental electron acceptors[J]. *Water Research*, 2014, **51**: 25-36.
- [35] Li X L, Peng Y Z, Ren N Q, *et al.* Effect of temperature on short chain fatty acids (SCFAs) accumulation and microbiological transformation in sludge alkaline fermentation with $\text{Ca}(\text{OH})_2$ adjustment[J]. *Water Research*, 2014, **61**: 34-45.
- [36] 韦海波, 毛心怡, 毛立晖, 等. 干旱胁迫对长雄野生稻根际微生物群落结构的影响[J]. *南昌大学学报(理科版)*, 2018, **42**(6): 596-602.
- Wei H B, Mao X Y, Mao L H, *et al.* Effects of drought stress on rhizosphere microorganisms of *Oryza longistaminata*[J]. *Journal of Nanchang University (Natural Science)*, 2018, **42**(6): 596-602.
- [37] Lei Z F, Wu T, Zhang Y, *et al.* Two-stage soil infiltration treatment system for treating ammonium wastewaters of low COD/TN ratios[J]. *Bioresource Technology*, 2013, **128**: 774-778.
- [38] Sun J J, Chen L, Rene E R, *et al.* Biological nitrogen removal using soil columns for the reuse of reclaimed water; performance and microbial community analysis[J]. *Journal of Environmental Management*, 2018, **217**: 100-109.
- [39] 朱艺双, 朱瑾, 何岩, 等. 黑臭河道内源硫对硝酸盐异化还原过程的影响研究进展[J]. *环境工程*, 2018, **36**(8): 8-13, 59.
- Zhu Y S, Zhu J, He Y, *et al.* Effect of endogenous sulfur on dissimilatory nitrate reduction processes in malodorous river; a review[J]. *Environmental Engineering*, 2018, **36**(8): 8-13, 59.
- [40] Lennon J T, Aanderud Z T, Lehmkuhl B K, *et al.* Mapping the niche space of soil microorganisms using taxonomy and traits[J]. *Ecology*, 2012, **93**(8): 1867-1879.



CONTENTS

Concurrent Collection of Ammonia Gas and Aerosol Ammonium in Urban Beijing During National Celebration Days Utilizing an Acid-Coated Honeycomb Denuder in Combination with a Filter System	GU Meng-na, PAN Yue-peng, SONG Lin-lin, <i>et al.</i>	(1)
Heavy Pollution Episode in Tianjin Based on UAV Meteorological Sounding and Numerical Model	YANG Xu, CAI Zi-ying, HAN Su-qin, <i>et al.</i>	(9)
Characteristics and Sources of PM _{2.5} Pollution in Typical Cities of the Central Plains Urban Agglomeration in Autumn and Winter	MIAO Qing-qing, JIANG Nan, ZHANG Rui-qin, <i>et al.</i>	(19)
Characteristics and Sources of Water-soluble Ion Pollution in PM _{2.5} in Winter in Shenyang	WANG Guo-zhen, REN Wan-hui, YU Xing-na, <i>et al.</i>	(30)
Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of Heavy Metals in PM _{2.5} Collected in Baoding	LEI Wen-kai, LI Xing-ru, ZHANG Lan, <i>et al.</i>	(38)
Source Apportionment of Ambient Carbonyl Compounds Based on a PMF and Source Tracer Ratio Method: A Case Based on Observations in Nanjing	HU Kun, WANG Ming, WANG Hong-li, <i>et al.</i>	(45)
Characterization and Source Apportionment of Atmospheric VOCs in Tianjin in 2019	GAO Jing-yun, XIAO Zhi-mei, XU Hong, <i>et al.</i>	(55)
Characteristics and Source Apportionment of Ambient VOCs in Spring in Liuzhou	LIU Qi, LU Xing-lin, ZENG Peng, <i>et al.</i>	(65)
Characteristics of Ozone and Source Apportionment of the Precursor VOCs in Tianjin Suburbs in Summer	LUO Rui-xue, LIU Bao-shuang, LIANG Dan-ni, <i>et al.</i>	(75)
Transport Influence and Potential Sources of Ozone Pollution for Nanjing During Spring and Summer in 2017	XIE Fang-jian, LU Xiao-bo, YANG Feng, <i>et al.</i>	(88)
Ozone Pollution Trend in the Pearl River Delta Region During 2006-2019	ZHAO Wei, GAO Bo, LU Qing, <i>et al.</i>	(97)
Distribution Characteristics and Source Apportionment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Atmospheric Deposition in Areas Adjacent to a Large Petrochemical Enterprise	LI Da-yan, QI Xiao-bao, WU Jian, <i>et al.</i>	(106)
Quantitative Comparison of Methods to Assess the Airborne Particulate Matter Retention Capacity of Leaves	YUE Chen, LI Guang-de, XI Ben-ye, <i>et al.</i>	(114)
Emission Estimation and Fate Simulation of Dichlorvos in the Dongjiang River Watershed	ZHANG Bing, ZHANG Qian-qian, YING Guang-guo	(127)
Distribution and Ecological Risk Assessment of Antibiotics in the Songhua River Basin of the Harbin Section and Ashe River	YANG Shang-le, WANG Xu-ming, WANG Wei-hua, <i>et al.</i>	(136)
Characteristics and Ecological Risk Assessment of POPs Pollution in Sediments of Xiaoxingkai Lake in the Northeast China	LI Hui, LI Jie, SONG Peng, <i>et al.</i>	(147)
Distribution and Ecological Risk Assessment of PPCPs in Drinking Water Sources of Henan Province	ZHOU Ying, WU Dong-hai, LU Guang-hua, <i>et al.</i>	(159)
Occurrence Characteristics and Health Risk Assessment of Endocrine Disrupting Chemicals in Groundwater in Wuxi-Changzhou	WANG Shu-ting, RAO Zhu, GUO Feng, <i>et al.</i>	(166)
Seasonal Distribution Characteristics and Health Risk Assessment of Heavy Metals in Surface Water of Qingjiang River	LIU Zhao, ZHOU Hong, CAO Wen-jia, <i>et al.</i>	(175)
Metal Pollutions and Human Health Risks in Groundwater from Wet, Normal, and Dry Periods in the Huixian Karst Wetland, China	LI Jun, ZHAO Yi, ZOU Sheng-zhang, <i>et al.</i>	(184)
Seasonal Variation of DOM Spectral Characteristics of Rivers with Different Urbanization Levels in the Three Gorges Reservoir Area	CHEN Zhao-yu, LI Si-yue	(195)
Distribution of Micro-plastics in the Soil Covered by Different Vegetation in Yellow River Delta Wetland	YUE Jun-jie, ZHAO Shuang, CHENG Hao-dong, <i>et al.</i>	(204)
Metagenomic Analysis Provides Insights into Bacterial Communities, Antibiotic Resistomes, and Public Health Risks in the Dongping Lake Reservoir	ZHANG Hong-na, CUI Na, SHEN Hong-miao	(211)
Mechanism of Algal Community Dynamics Driven by the Seasonal Water Bacterial Community in a Stratified Drinking Water Reservoir	YAN Miao-miao, ZHANG Hai-han, HUANG Ting-lin, <i>et al.</i>	(221)
Community Structure, Function, and Influencing Factors of Planktonic Fungi in the Danjiangkou Reservoir	ZHENG Bao-hai, WANG Xiao-yu, LI Ying-jun, <i>et al.</i>	(234)
Changes in Algal Particles and Their Water Quality Effects in the Outflow River of Taihu Lake	GUO Yu-long, XU Hai, CHEN Xu-qing, <i>et al.</i>	(242)
Characteristics of Soil Nitrogen and Phosphorus Losses Under Different Land-use Schemes in the Shipanqiu Watershed	DENG Hua, GAO Ming, LONG Yi, <i>et al.</i>	(251)
Influence of Antecedent Dry Days on Nitrogen Removal in Bioretention Systems	CHEN Yao, LI Xin-rui, ZHENG Shuang, <i>et al.</i>	(263)
Effect of <i>Enteromorpha prolifera</i> Biochar on the Adsorption Characteristics and Adsorption Mechanisms of Ammonia Nitrogen in Rainfall Runoff	CHEN You-yuan, LI Pei-qiang, LI Xian-chi, <i>et al.</i>	(274)
Effect of Filter Medium on the Enhancement of Complete Autotrophic Nitrogen Removal over Nitrite Process in a Tidal Flow Constructed Wetland	LIU Bing, ZHENG Yu-ming, QIN Hui-an, <i>et al.</i>	(283)
Adsorption Effect and Mechanism of Aqueous Arsenic on FeMnNi-LDHs	LIAO Yu-mei, YU Jie, WEI Shi-qiang, <i>et al.</i>	(293)
Combined Use of Zirconium-Modified Bentonite Capping and Calcium Nitrate Addition to Control the Release of Phosphorus from Sediments	ZHANG Hong-hua, LIN Jian-wei, ZHAN Yan-hui, <i>et al.</i>	(305)
Distribution Characteristics of Antibiotics and Antibiotic Resistance Genes in Wastewater Treatment Plants	XIE Ya-wei, YU Chi-sheng, LI Fei-fei, <i>et al.</i>	(315)
Occurrence of Antibiotic Resistance Genes and Bacterial Community Structure of Different Sludge Samples During Microwave Pretreatment-Anaerobic Digestion	LI Hui-li, WU Cai-yun, TANG An-ping, <i>et al.</i>	(323)
Selenium Threshold for the Delimitation of Natural Selenium-Enriched Land	WANG Hui-yan, ZENG Dao-ming, GUO Zhi-juan, <i>et al.</i>	(333)
Improved Regression Kriging Prediction of the Spatial Distribution of the Soil Cadmium by Integrating Natural and Human Factors	GAO Zhong-yuan, XIAO Rong-bo, WANG Peng, <i>et al.</i>	(343)
Simulation Cadmium (Cd) Accumulation in Typical Paddy Soils in South China	DAI Ya-ting, FU Kai-dao, YANG Yang, <i>et al.</i>	(353)
Bioaccessibility and Health Risks of the Heavy Metals in Soil-Rice System of Southwest Fujian Province	LIN Cheng-qi, CAI Yu-hao, HU Gong-ren, <i>et al.</i>	(359)
Effects of Nano Material on Cadmium Accumulation Capacity and Grain Yield of Indica Hybrid Rice Under Wetting-drying Alternation Irrigation	YANG Ru, CHEN Xin-rui, ZHANG Ying, <i>et al.</i>	(368)
Regulation Control of a Tribasic Amendment on the Chemical Fractions of Cd and As in Paddy Soil and Their Accumulation in Rice	JIANG Yi, LIU Ya, GU Jiao-feng, <i>et al.</i>	(378)
Combined Effect of Weathered Coal Based Amendments and Soil Water Management on Methylmercury Accumulation in Paddy Soil and Rice Grains	ZHENG Shun-an, WU Ze-ying, DU Zhao-ling, <i>et al.</i>	(386)
Effects of Fertilization Strategies on the Cadmium Resistance of Paddy Soil Microorganisms	ZHENG Kai-kai, MA Zhi-yuan, SUN Bo, <i>et al.</i>	(394)
Soil Enzyme Activity in <i>Picea schrenkiana</i> and Its Relationship with Environmental Factors in the Tianshan Mountains, Xinjiang	ZHANG Han, GONG Lu, LIU Xu, <i>et al.</i>	(403)
Effects of Farmland Abandonment on Soil Enzymatic Activity and Enzymatic Stoichiometry in the Loess Hilly Region, China	ZHONG Ze-kun, YANG Gai-he, REN Cheng-jie, <i>et al.</i>	(411)
Effect of Biochar on Soil Enzyme Activity & the Bacterial Community and Its Mechanism	FENG Hui-lin, XU Chen-sheng, HE Huan-hui, <i>et al.</i>	(422)
Effects of Vegetation Restoration on the Structure and Function of the Rhizosphere Soil Bacterial Community of <i>Solanum rostratum</i>	ZHANG Rui-hai, SONG Zhen, FU We-dong, <i>et al.</i>	(433)
Response of Microbial Biomass Carbon and Nitrogen and Rice Quality in a Yellow Soil Paddy Field to Biochar Combined with Nitrogen Fertilizer	SHI Deng-lin, WANG Xiao-li, LIU An-kai, <i>et al.</i>	(443)
Effects of Adding Straw and Biochar with Equal Carbon Content on Soil Respiration and Microbial Biomass Carbon and Nitrogen	HE Tian-tian, WANG Jing, FU Yun-peng, <i>et al.</i>	(450)
How Different Ratios of Straw Incorporation to Nitrogen Fertilization Influence Endogenous and Exogenous Carbon Release from Agricultural Soils	SUN Zhao-an, ZHANG Xuan, HU Zheng-jiang, <i>et al.</i>	(459)
Effect of Biochar and Chemical Fertilizer Mixture on Ammonia Volatilization and Phosphorus Fixation	YANG Wen-na, DENG Zhen-xin, LI Jiao, <i>et al.</i>	(467)
Effects of Film Materials on Ammonia Volatilization Emissions from a Paddy System After Reducing Nitrogen Fertilizer Application	YU Ying-liang, WANG Meng-fan, YANG Bei, <i>et al.</i>	(477)
Effects of Microplastics on Embryo Hatching and Intestinal Accumulation in Larval Zebrafish <i>Danio rerio</i>	ZHAO Jia, RAO Ben-qiang, GUO Xiu-mei, <i>et al.</i>	(485)
Urban Micro-Scale Thermal Environment Simulation Supported by UAV Thermal Infrared Data	YANG Shao-qi, FENG Li, TIAN Hui-hui, <i>et al.</i>	(492)
Estimation of the Urban Heat Island Intensity Change and Its Relationships with Driving Factors Across China Based on the Human Settlement Scale	SUN Yan-wei, WANG Run, GUO Qing-hai, <i>et al.</i>	(501)