

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

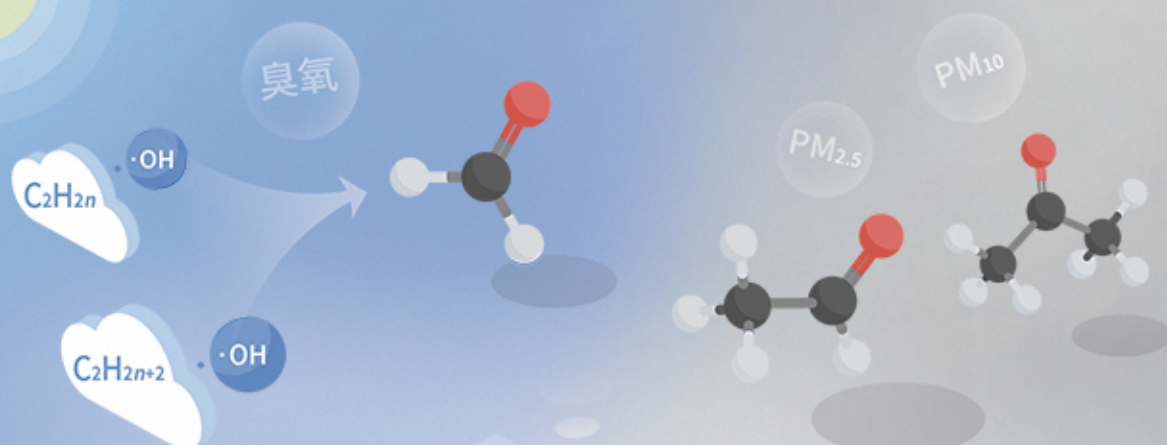
环境科学

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	高璟贻, 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)

填料对潮汐流人工湿地中 CANON 作用强化的影响

刘冰^{1,2}, 郑煜铭², 秦会安¹, 古励³

(1. 郑州师范学院化学化工学院, 郑州 450044; 2. 中国科学院城市环境研究所, 厦门 361021; 3. 重庆大学城市建设与环境工程学院, 重庆 400044)

摘要: 为了缩短潮汐流人工湿地(TFCW)中基于亚硝化的全程自养脱氮(CANON)作用的启动进程并进一步提高该作用的强度,探究了不同种类填料下 CANON 型 TFCW 的启动性能及其微生物特征。结果表明,填料的理化特性可显著影响脱氮功能菌(尤其是 ANAMMOX 菌)的富集效果及其活性,进而可影响 CANON 型 TFCW 系统的启动进程及其脱氮性能。相较于公分石、陶粒、沸石、废砖块和龙虾壳均可不同程度地提高 ANAMMOX 菌在 TFCW 中的丰度与活性,进而可缩短 CANON 型 TFCW 的启动时间并提高其脱氮性能。当系统水力负荷为 $0.96 \text{ m}^3 \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ 且以龙虾壳为湿地填料时, CANON 型 TFCW 仅需 300 个运行周期即可完成启动,好氧氨氧化菌(AOB)和 ANAMMOX 菌为其中的两种优势脱氮菌群,且系统在稳定运行阶段对 TN 和 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 的去除率分别可达 $(88.37 \pm 1.19)\%$ 和 $(91.03 \pm 0.66)\%$, 其次为废砖块、沸石、陶粒和公分石。

关键词: 潮汐流人工湿地(TFCW); 基于亚硝化的全程自养脱氮(CANON); 填料; 厌氧氨氧化(ANAMMOX); 脱氮

中图分类号: X52 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2021)01-0283-10 DOI: 10. 13227/j. hjkx. 202005029

Effect of Filter Medium on the Enhancement of Complete Autotrophic Nitrogen Removal over Nitrite Process in a Tidal Flow Constructed Wetland

LIU Bing^{1,2}, ZHENG Yu-ming², QIN Hui-an¹, GU Li³

(1. School of Chemistry and Chemical Engineering, Zhengzhou Normal University, Zhengzhou 450044, China; 2. Institute of Urban Environment, Chinese Academy of Sciences, Xiamen 361021, China; 3. College of Urban Construction and Environmental Engineering, Chongqing University, Chongqing 400044, China)

Abstract: This study attempted to shorten the time wasted at the startup of a complete autotrophic nitrogen removal over nitrite (CANON) process in a tidal flow constructed wetland (TFCW) to achieve higher nitrogen removal rates. Thus, the starting performance and the related microbiological characteristics of different kinds of filter media filling the TFCW were explored at an appropriate drainage rate. The results showed that the physicochemical properties of the filter medium could significantly affect the quantity and activity of the functional microbes (especially ANAMMOX bacteria) enriched in the TFCWs, leading to fluctuations of the starting time and nitrogen transformation rates of the systems filled with five different kinds of filter media. Compared with that of gravel, the quantity and activity of ANAMMOX bacteria in the bed could be enhanced to different degrees as the TFCW was filled with ceramsite, zeolite, broken bricks, and lobster shells. Correspondingly, the starting times of the TFCWs with the CANON process were shortened, and their nitrogen removal performances could also be optimized. When the hydraulic loading rate of the TFCW was $0.96 \text{ m}^3 \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$, the initiation of the CANON process could be accomplished successfully in the system filled with lobster shells within 300 cycles, since AOB and ANAMMOX bacteria could become dominant quickly in the packing bed. Moreover, the TN and $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ removal rates could reach up to $(88.37 \pm 1.19)\%$ and $(91.03 \pm 0.66)\%$, respectively, followed by those of broken bricks, zeolite, ceramsite, and gravel.

Key words: tidal flow constructed wetland (TFCW); complete autotrophic nitrogen removal over nitrite (CANON); filter medium; ANAMMOX; nitrogen removal

作为一种以厌氧氨氧化(ANAMMOX)作用为基础的单级自养脱氮技术,亚硝化的全程自养脱氮(complete autotrophic nitrogen removal over nitrite, CANON)工艺在污水生物脱氮过程中具有许多优点^[1~3]。随着人工湿地(CW)技术越来越广泛地应用于低碳氮比废水的处理,强化 CW 中的 CANON 作用已成为当前 CW 强化脱氮研究的热点^[4,5]。在前期研究中,本课题组便以填料层中溶解氧(DO)浓度及分布较易调控的潮汐流人工湿地(tidal flow constructed wetland, TFCW)为试验装置,通过设置适宜的排水速率(v_d)成功实现了 CANON 型 TFCW 系统的启动。然而,笔者在研究中发现,作为一种污染

水体生态修复技术^[6],由于 TFCW 通常在常温和低 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 浓度下运行,导致其中 CANON 反应体系的构建进程较长,且该作用的强度较低。

对于 TFCW 工艺而言,不同种类的填料可造成系统脱氮性能的显著差异^[7]。究其原因,一方面源于填料对氨氮吸附容量的不同,可影响 TFCW 在闲

收稿日期: 2020-05-06; 修订日期: 2020-06-29

基金项目: 国家自然科学基金项目(51208448); 河南省高等学校青年骨干教师资助计划项目(2015GGJS-136); 河南省科技厅科技攻关项目(162102310498); 河南省教育厅科学技术研究重点项目(14A610004)

作者简介: 刘冰(1978~),男,博士,副教授,主要研究方向为水处理原理与技术, E-mail: liubing_982002@163.com

置期内的 NH_4^+ -N氧化效果;另一方面则归因于填料不同的表观形貌及其理化特性,对系统中脱氮功能微生物的丰度与活性有着不同程度的影响^[8,9].由此推断,适宜种类填料的选用应可促进 CANON 型 TFCW 系统的启动进程,并有助于其脱氮性能的提高.

目前,关于 TFCW 中填料的研究多侧重于提高系统的除磷能力^[10~12],而通过填充不同种类填料进而调控其中 CANON 作用与强化的相关研究鲜见报道.为此,本文基于前期基础,开展了不同种类填料对 CANON 型 TFCW 启动进程的影响研究,探究了不同填料时 TFCW 脱氮性能及其微生物特性的变化,对系统宏观工艺运行性能和微观生物学特征之间的关系进行了初步解析,以期促进 CANON 型 CW 系统的工程化应用进程,并为新型 CW 工艺的研发与设计提供参考.

1 材料与方法

1.1 试验装置

TFCW 位于温室内,由 PVC 材料制成,其表面积约为 314 cm^2 ($\varphi \approx 20\text{ cm}$).装置顶部设置有进水管,出水管设置于距装置底部约 5 cm 处,装置侧壁按不同高度设置有 4 个取样管,以便于填料样品的采集. TFCW 填料层孔隙率为 40.37% (系统有效容积约 10.14 L),厚度为 80 cm ;下层 ($70 \sim 80\text{ cm}$) 为砾石支撑层 (粒径为 $10 \sim 15\text{ mm}$);上层 ($0 \sim 70\text{ cm}$) 则为待试填料层 (填充粒径: $2 \sim 5\text{ mm}$).本研究设置了 5 种待试填料,分别为公分石、陶粒、沸石、废砖块和龙虾壳.其中,公分石、陶粒和沸石是 3 种较为常见的湿地填料;作为建筑垃圾,废砖块因其较佳的理化特性 (尤其是除磷性能) 也日渐被认为是一种理想的湿地填料;作为水产养殖的副产物,龙虾壳中碳酸钙含量高,对水体中污染物的吸附能力较强,亦被视为一种较有潜力的湿地填料^[12].将上述 5 种填料分别填充入 TFCW,按照填料种类的不同将 5 组 TFCW 分别定义为 T-A (填充公分石)、T-B (填充陶粒)、T-C (填充沸石)、T-D (填充废砖块) 和 T-E (填充龙虾壳).湿地植物为石菖蒲,种植密度约 $96\text{ 株} \cdot \text{m}^{-2}$.各 TFCW 开始运行之前,均以污水处理厂的二沉池污泥作为接种污泥,对填料进行 3 个月的挂膜.接着,各系统进入后续试验阶段.

1.2 运行方式

TFCW 按照潮汐流运行方式连续运行,每天运行 3 个周期,每个周期 8 h ;周期之初将 10.00 L 进水由进水管泵入系统中 ($t = 10\text{ min}$);接着填料层处于淹水状态并反应 6.00 h ;反应结束后,通过出

水管将系统排空 (为利于 TFCW 中 CANON 作用的发生与强化,将系统排水速率设置为 $0.50\text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ ^[13],即排水期时长为 20 min);而后系统进入闲置期 ($t = 90\text{ min}$),即一个周期共包括进水期、淹水期、排水期和闲置期 4 个阶段.该过程中 TFCW 的水力负荷 (HLR) 为 $0.96\text{ m}^3 \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$.

1.3 进水水量与水质

试验用水为某小区内生活污水,原水经沉淀后取其上清液作为系统进水.其中,进水中 COD、 NH_4^+ -N、 NO_2^- -N、 NO_3^- -N、TN 和 TP 的浓度分别为 (284.40 ± 37.72) 、 (35.54 ± 3.41) 、 (2.77 ± 0.50) 、 (1.72 ± 0.18) 、 (43.00 ± 2.62) 和 $(5.64 \pm 1.39)\text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,pH 值则为 (7.74 ± 0.58) .

1.4 分析方法

1.4.1 填物理化特性分析

填料的孔隙率、真密度和堆积密度均按照文献 [14] 的方法进行测定;填料的比表面积、微孔体积和微孔平均孔径采用比表面积分析仪进行测定;填料 pH 值采用电位法进行测定 (以 CaCl_2 溶液为浸提剂,浸提剂与填料的比例为 $2.5:1$);填料水溶性盐总量 (EC) 采用电导率仪进行测定 (以纯水为浸提剂,浸提剂与填料的比例为 $5:1$);填料的表面微结构采用场发射扫描电镜 (SEM) 进行观察,表面化学元素则采用 SEM-EDX 技术进行测定.

1.4.2 水样采集及分析方法

定期且定时采集各 TFCW 进出水水样进行分析,水样中 NH_4^+ -N、 NO_2^- -N、 NO_3^- -N 和 TN 的含量均参照文献 [15] 的方法进行测定.

1.4.3 填料样品的采集

待各 TFCW 运行稳定后,从每个系统的各个取样管中采集填料样品,将其混匀后进行后续相关分析.

1.4.4 亚硝化活性、硝化活性、反硝化活性、短程反硝化活性及厌氧氨氧化比活性 (SAA) 的测定

各 TFCW 中填料样品的亚硝化活性、硝化活性、反硝化活性、短程反硝化活性及 SAA 分别参照文献 [16,17] 中所述方法进行测定.在相应的试验条件下,亚硝化活性和硝化活性均计为单位时间内单位质量填料样品中生物膜的耗氧量;反硝化活性和短程反硝化活性分别计为单位时间内单位质量填料样品中生物膜还原 NO_3^- -N 和 NO_2^- -N 的量;SAA 则计为单位时间内单位质量填料样品中生物膜对氮素的脱除量.

1.4.5 荧光原位杂交 (FISH) 分析

采用 FISH 技术对各系统填料样品中 AOB 和 ANAMMOX 菌的相对数量及分布进行分析,试验中

所用到的寡核苷酸探针均由上海生物工程技术服务有限公司合成. 从各系统填料层中分别取样后, 首先对样品进行预处理^[18]; 接着对预处理后的样品进行杂交^[19], 所用探针和杂交条件则如表 1 所示; 杂

交后样品用激光共聚焦显微镜 LSM 510META (Zeiss, Germany) 观察, FISH 图片则用 Image-Pro Plus 6. 0 (Media Cybernetics, America) 软件进行统计分析.

表 1 FISH 分析中所用探针及杂交条件

Table 1 16S rRNA-targeted oligonucleotide probes during the analysis of FISH					
探针	特异性	靶位点 (<i>E. coli</i>)	甲酰胺/%	NaCl/mmol·L ⁻¹	标记
NSO190	AOB in the β -Proteobacteria	190 ~ 208	40	25	Cy3 (绿色)
PLA46	<i>Planctomycetales</i>	46 ~ 63	30	159	Cy5 (红色)
AMX820	<i>Cand. "Brocadia anammoxidans"</i>	820 ~ 841	40	56	Cy5 (红色)
	<i>Cand. "Kuenenia stuttgartiensis"</i>				

1. 4. 6 脱氮功能基因定量分析

使用土壤 DNA 试剂盒 (D5625-01Omega USA) 对填料样品中的 DNA 进行提取纯化, 提取后的 DNA 产物经紫外分光光度计测定核酸浓度和纯度, 置于冰箱中 -20℃ 保存. 基于提取的 DNA 样品, 对其中的 bacterial 16S rRNA 及参与生物脱氮过程的关键功能基因 (即: *amoA*、*hzsA*、*nxrA*、*narG*、*napA*、*nirS*、*nirK*、*qnorB* 和 *nosZ*) 进行荧光定量 PCR 测定. 分析所用仪器为 Applied Biosystems StepOne™, 试验采用 SYBR Green I 荧光染料法进行测试, 每种功能基因的扩增体系、引物种类及反应条件均参照文献[20].

2 结果与讨论

2. 1 TFCW 脱氮性能

试验阶段各 TFCW 脱氮性能的变化如图 1 所示. 从中可知, 由于 5 种填料均具有一定的 NH₄⁺-N 吸附能力^[21], 试验伊始 T-A、T-B、T-C、T-D 和 T-E 对进水中 TN 和 NH₄⁺-N 的去除率分别为: (48. 05 ± 8. 13)% 和 (44. 31 ± 7. 72)%、(46. 11 ± 9. 24)% 和 (47. 63 ± 7. 92)%、(87. 62 ± 6. 85)% 和 (88. 25 ± 4. 77)%、(72. 86 ± 2. 11)% 和 (77. 87 ± 3. 03)%、(78. 44 ± 2. 83)% 和 (80. 89 ± 5. 40)% . 然而, 随着各填料 NH₄⁺-N 吸附容量的日趋饱和, 上述 5 组系统出水中的 TN 浓度逐渐增至与进水中的 TN 浓度相当. 随后, 伴随着运行时间的进一步延长, 各系统的脱氮性能复又出现了不同程度地提高并最终趋于稳定. 结合图 1 和表 2 可知, 当待试填料分别为公分

石、陶粒、沸石、废砖块和龙虾壳时, 5 组 TFCW 在分别经历了 771、510、390、345 和 300 个 CD 后相继进入稳定运行阶段, 其出水中 TN 和 NH₄⁺-N 的浓度 (mg·L⁻¹) 分别为: (8. 24 ± 0. 12) 和 (7. 42 ± 0. 16)、(8. 64 ± 0. 13) 和 (6. 46 ± 0. 15)、(7. 59 ± 0. 71) 和 (5. 52 ± 0. 42)、(6. 93 ± 0. 59) 和 (4. 26 ± 0. 35)、(5. 29 ± 0. 66) 和 (3. 24 ± 0. 19). 各系统对 TN 和 NH₄⁺-N 的去除率分别稳定在: (80. 65 ± 0. 42)% 和 (80. 34 ± 0. 46)%、(81. 71 ± 0. 61)% 和 (83. 72 ± 0. 33)%、(82. 89 ± 0. 98)% 和 (85. 37 ± 0. 13)%、(84. 66 ± 0. 75)% 和 (88. 39 ± 1. 04)%、(88. 37 ± 1. 19)% 和 (91. 03 ± 0. 66)% . 有研究表明, 作为一种间歇式进水的新型人工湿地系统, TFCW 虽具有良好的硝化性能, 但其反硝化能力通常较差, 导致其出水中 NO₃⁻-N 浓度过高, TN 去除率偏低^[22,23]. 然而, 上述试验结果却显示, 当 *v_d* 设置为 0. 50 L·min⁻¹ 时, 各 TFCW 稳定运行后均具有良好的脱氮性能, 对 TN 去除率均大于 80%. 结合先前的研究可知^[13], 适宜的 *v_d* 应可使 TFCW 填料层中形成了较佳的限氧微环境, 进而促进了系统中 CANON 作用的发生与强化. 值得注意的是, 各 TFCW 的启动时间存在显著差异, 达到稳态后 5 组系统脱氮性能各不相同. 相比较而言, T-E 仅需 300 个 CD 的运行便可成功启动, 且该系统趋于稳定后脱氮性能最佳, 其出水中 TN、NH₄⁺-N、NO₃⁻-N 和 NO₂⁻-N 的浓度分别为: (5. 29 ± 0. 66)、(3. 24 ± 0. 19)、(0. 22 ± 0. 07) 和 (1. 83 ± 0. 66) mg·L⁻¹, 而 T-D、T-C、T-B 和 T-A

表 2 稳定运行期间各 TFCW 的脱氮性能

Table 2 Nitrogen removal performance of each TFCW at the steady state										
填料	TN			NH ₄ ⁺ -N			NO ₃ ⁻ -N		NO ₂ ⁻ -N	
	进水 /mg·L ⁻¹	出水 /mg·L ⁻¹	去除率 /%	进水 /mg·L ⁻¹	出水 /mg·L ⁻¹	去除率 /%	进水 /mg·L ⁻¹	出水 /mg·L ⁻¹	进水 /mg·L ⁻¹	出水 /mg·L ⁻¹
公分石	42. 59 ± 0. 40	8. 24 ± 0. 12	80. 65 ± 0. 42	37. 76 ± 0. 22	7. 42 ± 0. 16	80. 34 ± 0. 46	1. 76 ± 0. 09	0. 17 ± 0. 08	2. 46 ± 0. 34	1. 04 ± 0. 27
陶粒	47. 26 ± 1. 13	8. 64 ± 0. 13	81. 71 ± 0. 61	39. 70 ± 0. 22	6. 46 ± 0. 15	83. 72 ± 0. 33	1. 80 ± 0. 06	0. 45 ± 0. 08	2. 89 ± 0. 19	1. 32 ± 0. 12
沸石	44. 33 ± 2. 18	7. 59 ± 0. 71	82. 89 ± 0. 98	37. 75 ± 2. 15	5. 52 ± 0. 42	85. 37 ± 0. 13	1. 75 ± 0. 12	0. 45 ± 0. 20	2. 70 ± 0. 30	1. 63 ± 0. 62
废砖块	45. 16 ± 2. 50	6. 93 ± 0. 59	84. 66 ± 0. 75	36. 81 ± 2. 70	4. 26 ± 0. 35	88. 39 ± 1. 04	1. 72 ± 0. 12	0. 31 ± 0. 07	2. 61 ± 0. 32	2. 36 ± 0. 73
龙虾壳	45. 39 ± 2. 40	5. 29 ± 0. 66	88. 37 ± 1. 19	36. 21 ± 2. 86	3. 24 ± 0. 19	91. 03 ± 0. 66	1. 69 ± 0. 12	0. 22 ± 0. 07	2. 54 ± 0. 33	1. 83 ± 0. 66

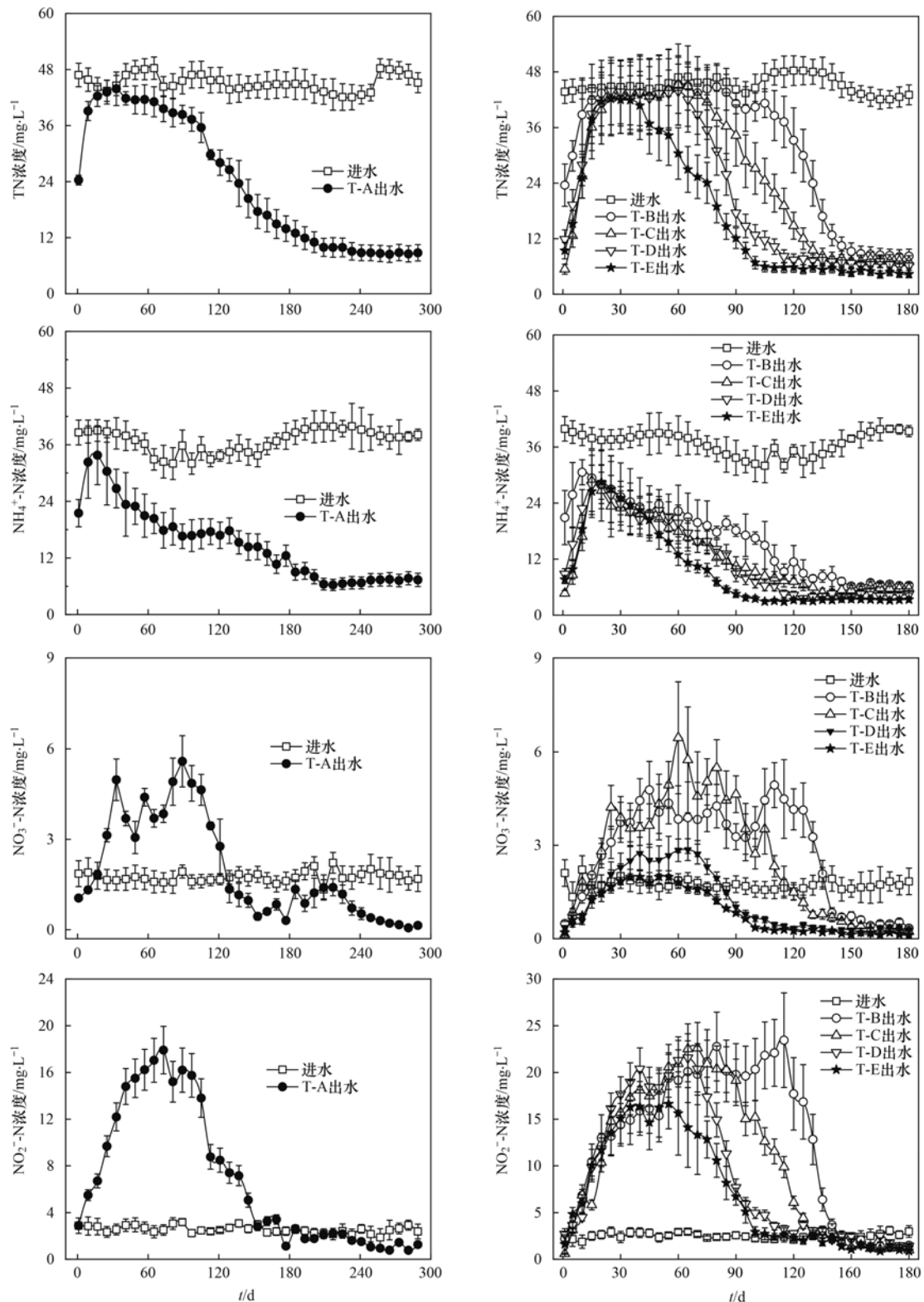


图1 各组 TFCW 的脱氮性能变化

Fig. 1 Nitrogen removal performance of each TFCW during the test

的启动时间及其启动后的脱氮性能却分别出现了不同程度的延迟和降低。结果表明,填料种类会影响 CANON 作用在 TFCW 中的启动进程及强度,进而会造成各系统脱氮效果的差异。

2.2 功能微生物活性与丰度

图2所示为各 TFCW 在稳定运行阶段的亚硝酸

化活性、硝化活性、短程反硝化活性、反硝化活性和 SAA。从中可知,5 组 TFCW 在稳定运行阶段的亚硝化活性、硝化活性、短程反硝化活性和反硝化活性均无显著差异,分别稳定在: (7.79 ± 0.87) 、 (0.46 ± 0.04) 、 (0.28 ± 0.01) 和 (0.31 ± 0.07) $\text{mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{h})^{-1}$ 。与文献[24]对比可知,处于稳定运行

阶段的各系统具有较为理想的亚硝化性能,但其 NO_2^- -N 氧化能力和反硝化性能效果均不理想. 究其原因,一方面由于填料层中限氧环境对亚硝酸盐氧化菌(NOB)丰度与活性的抑制以及进水中有机碳源的相对不足;另一方面稳定运行阶段 5 组 TFCW 均具有较高的 SAA^[25],但各系统的 SAA 值存在较明显的差异(图 2),即:T-A、T-B、T-C、T-D 和 T-E 的 SAA 值分别为: (4.92 ± 1.09) 、 (5.14 ± 0.83) 、 (5.21 ± 0.94) 、 (5.46 ± 1.31) 和 (5.73 ± 1.26) $\text{mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{h})^{-1}$. 同时,由图 3 可知:TFCW 的 TN 和 NH_4^+ -N 去除效果均与其 SAA 值呈显著线性相关关系. 由图 2 和图 3 结果可知,CANON 作用对各系统中氮的脱除起着重要作用,而 ANAMMOX 菌活性的

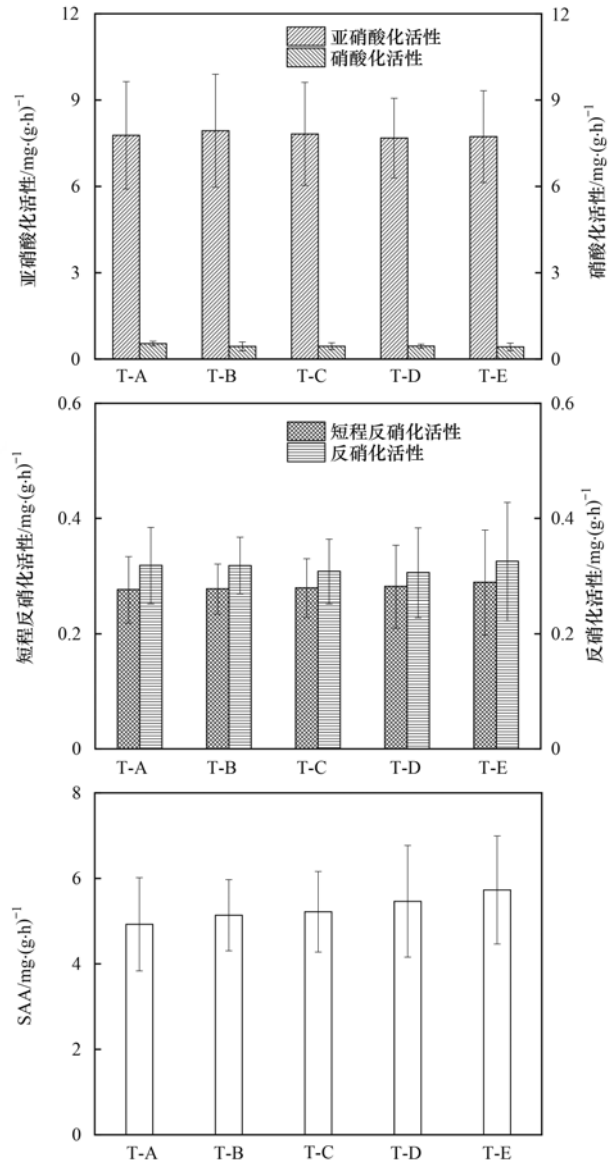


图 2 稳定运行期间各 TFCW 的亚硝化活性、硝化活性、短程反硝化活性、反硝化活性和 SAA

Fig. 2 Potential nitrification activities, potential nitrification activities, potential brief-denitrification activities, potential denitrification activities, and SAA of each TFCW at the steady state

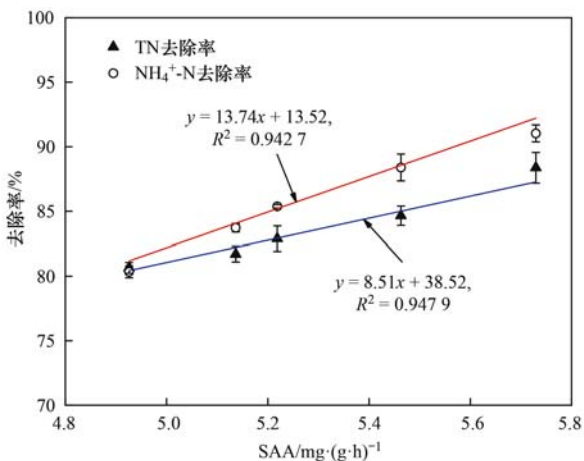


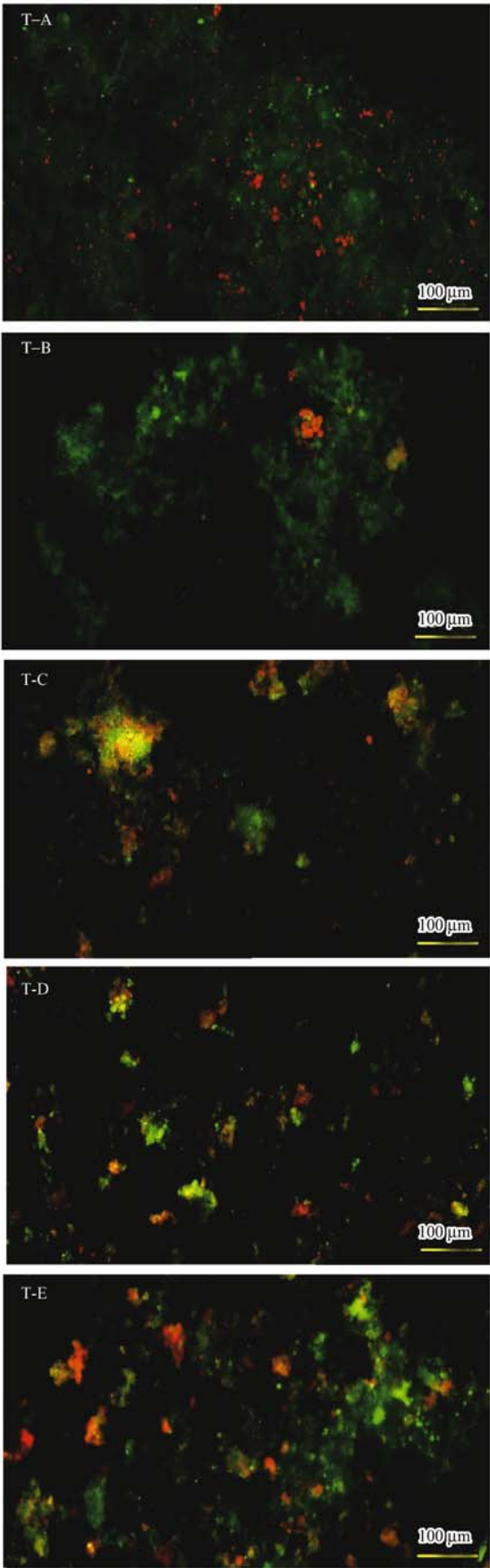
图 3 稳定运行阶段各系统的 SAA 与其脱氮性能的关系

Fig. 3 Relationship between SAA and the nitrogen removal performance of each TFCW at the steady state

高低可显著影响该作用.

待各 TFCW 稳定运行后对其进行生物膜样品的采集,固定后用相应的特异性荧光探针(NSO190、PLA46 和 AMX820)进行杂交,以便考察各系统填料层中 AOB 和 ANAMMOX 菌的富集情况. 由图 4 可知,5 组系统生物膜样品中 AOB(绿色)的丰度均较高,但其中 ANAMMOX 菌(红色)的丰度水平却存在较大差异. 相比较于 T-C、T-D 和 T-E 3 组系统,T-A 和 T-B 生物膜样品中 ANAMMOX 菌的丰度均相对偏低. 该结果表明,填料种类的不同会影响 TFCW 中 ANAMMOX 菌的富集,并会造成其丰度水平的差异. 结合图 2 可知,ANAMMOX 菌的丰度水平是造成各系统 SAA 值出现显著差异的主要原因之一. 另外,图 4 结果也表明,在 T-A 和 T-B 两组系统中, AOB 和 ANAMMOX 菌之间并无明显的空间分布差异,二者混在一起生长,此生长特征与 Pynaert 等^[26]的研究结论相一致. 在 T-C、T-D 和 T-E 3 组系统中, AOB 和 ANAMMOX 菌分别位于生物膜的外层和内层,该发现则与 Nielsen 等^[27]的报道相符,且该分布特征有助于确保系统获得更为理想的脱氮效果.

基于各系统的脱氮性能(图 1),并结合图 2~4 的试验结果可知,当 TFCW 在适宜的 v_d 条件下连续运行时,填料层中形成的限氧环境使系统具备了稳定且高效的短程硝化性能,ANAMMOX 菌随之在系统中得以富集,活性也不断得到提高,从而确保了 CANON 作用在系统中的发生与强化,并最终使该作用成为了各 TFCW 在稳定运行阶段脱氮的主要途径;另一方面,不同种类的填料可导致各 TFCW 中 ANAMMOX 菌丰度与活性的具有显著差异,由于 ANAMMOX 菌丰度与活性的高低是影响 CANON 作用强弱的关键因素,各系统的脱氮性能最终出现了显著区别.



绿色荧光信号代表 AOB; 红色信号代表 ANAMMOX 菌

图 4 稳定运行阶段各 TFCW 中生物膜样品的 FISH 图

Fig. 4 FISH images of biofilm samples in each TFCW at the steady state

2.3 脱氮功能基因丰度

图 5 表明,当 T-A、T-B、T-C、T-D 和 T-E 相继进入稳定运行阶段后,其填料层中的 bacteria 16S rRNA 基因拷贝数分别维持在: $(7.15 \times 10^8 \pm 3.06 \times 10^7)$ 、 $(9.26 \times 10^8 \pm 2.88 \times 10^7)$ 、 $(1.24 \times 10^9 \pm 3.96 \times 10^8)$ 、 $(1.29 \times 10^9 \pm 3.33 \times 10^7)$ 和 $(1.28 \times 10^9 \pm 2.95 \times 10^8)$ copies·g⁻¹. 通常认为,微生物作用是人工湿地中氮素脱除的主要途径,稳定且充足的微生物量可为其脱氮性能的强化提供保障^[6]. 而由上述结果可知,不同种类的填料会影响各 TFCW 中微生物量的高低,由此会对系统的脱氮性能及其中 CANON 作用的强度造成不同程度的影响.

amoA 与 *nxrA* 分别是参与硝化过程中 NH₄⁺-N 和 NO₂⁻-N 氧化的 2 种关键基因, *hzsA* 是参与 ANAMMOX 过程中 NH₄⁺-N 和 NO₂⁻-N 转化的关键基因,而 *narG*、*napA*、*nirK*、*nirS*、*qnorB* 和 *nosZ* 则分别是参与生物反硝化过程(即: NO₃⁻-N → NO₂⁻-N → NO → N₂O → N₂) 的 6 种关键基因^[28]. 其中, *narG* 和 *napA* 是参与反硝化过程第 1 步还原反应的 2 种关键基因; *nirS* 和 *nirK* 是参与该过程第 2 步还原反应的 2 种关键基因; *qnorB* 和 *nosZ* 则分别被认为是参与反硝化过程第 3 步和第 4 步还原反应的关键基因. 由

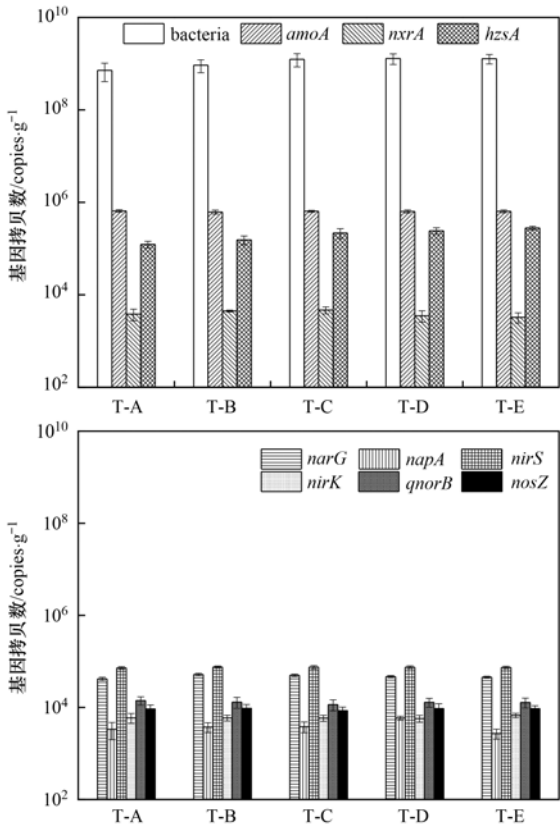


图 5 稳定运行期间各 TFCW 中脱氮功能基因丰度

Fig. 5 Absolute abundance of nitrogen transformation functional genes in each TFCW at the steady state

图 5 可知,对于成功启动后的各 TFCW 而言,其填料层中 *amoA* 和 *nxrA* 的丰度分别稳定在 $(6.36 \times 10^5 \pm 1.12 \times 10^4)$ copies $\cdot$ g $^{-1}$ 和 $(3.95 \times 10^3 \pm 5.43 \times 10^2)$ copies $\cdot$ g $^{-1}$,即各系统中 *nxrA* 的丰度水平均远低于 *amoA*. 同时,5 组系统中 *hzsA* 的丰度分别可达: $(1.23 \times 10^5 \pm 2.07 \times 10^4)$ 、 $(1.54 \times 10^5 \pm 3.31 \times 10^4)$ 、 $(2.18 \times 10^5 \pm 5.23 \times 10^4)$ 、 $(2.42 \times 10^5 \pm 3.89 \times 10^4)$ 和 $(2.79 \times 10^5 \pm 2.51 \times 10^4)$ copies $\cdot$ g $^{-1}$,该功能基因在各系统中的丰度水平与 *amoA* 相当,均远高于 *nxrA*. 但与 *amoA* 不同的是,不同填料种类条件下各组 TFCW 中 *hzsA* 的丰度水平存在较大差异. 另一方面,各系统中涉及生物反硝化过程的 6 种基因的丰度分别维持在: $(4.71 \times 10^4 \pm 3.56 \times 10^3)$ 、 $(3.90 \times 10^3 \pm 1.06 \times 10^3)$ 、 $(7.42 \times 10^4 \pm 1.19 \times 10^3)$ 、 $(6.03 \times 10^3 \pm 3.40 \times 10^2)$ 、 $(1.29 \times 10^4 \pm 8.23 \times 10^2)$ 和 $(9.23 \times 10^3 \pm 3.78 \times 10^2)$ copies $\cdot$ g $^{-1}$. 与同类型研究相比^[29,30],上述 6 种功能基因的丰度偏低,各系统的反硝化性能亦不甚理想(如 2.2 节).

上述结果表明,当各组 TFCW 稳定运行后,虽然 *hzsA* 的丰度会因填料种类的不同出现波动,但 AOB 和 ANAMMOX 菌始终是其中主要的两种脱氮功能微生物,NOB 和反硝化功能菌群的丰度与活性此时则处于较低水平. 由此可进一步证实,当系统的 v_d 设置在适宜的范围内时,CANON 作用可成为 TFCW 脱氮的主要途径;不同种类的填料会对系统中 ANAMMOX 菌的富集效果造成不同程度的影响,随之会影响 TFCW 中 CANON 作用的启动时间、强度及其脱氮效果.

2.4 填料理化特性分析

各 TFCW 中所用的填料分别为公分石、陶粒、沸石、废砖块和龙虾壳,5 种填料的部分理化特性如表 3 和图 6 所示. 通常认为,湿地填料的堆积密度和孔隙率的变化范围分别为 0.7 ~ 1.83 g $\cdot$ cm $^{-3}$ 和 30.0% ~ 54.4%^[31]. 由表 3 可知,上述 5 种填料的堆积密度和孔隙率均处于正常范围内. 从相关研究可知,湿地填料的比表面积一般为 2.6 ~ 3.9 m 2 $\cdot$ g $^{-1}$ ^[32],则本研究所用的 5 种填料除公分石比表面积(≈ 1.78 m 2 $\cdot$ g $^{-1}$)较小外,其他 4 种填料的比表面积均能满足填充要求. 结合图 6 可知,陶粒、沸石、废砖块和龙虾壳表面较粗糙,微孔孔径均约为 2 ~ 5 μ m,而公分石表面则较为光滑,孔隙较少. Roseth^[33]的研究表明,当填料表面分布有孔径范围为 1 ~ 3 μ m 的微孔时,微生物较易在其中挂膜和增殖,由此可知,相较于公分石,陶粒、沸石、废砖块和龙虾壳的表面微结构更有利于生物膜的生长,应可对 TFCW 中 CANON 作用的发生和强化产生积极的推动作用. 除物理特性外,填料的化学成分及其化学形态亦会影响其表面生物膜中相关脱氮微生物(如 AOB 和 ANAMMOX 菌等)的丰度与活性^[34]. 图 6 表明,公分石、沸石、陶粒和废砖块均含有较高含量的 Al;除此之外,陶粒和废砖块还分别含有一定量的 Ca 和 Fe;龙虾壳主要的成分为 CaCO $_3$ ^[35],其中 Ca 的含量较为丰富. 由表 3 可知,与公分石、陶粒和沸石相比,龙虾壳和废砖块分别具有更高的 EC 值,且龙虾壳为上述填料中唯一的碱性填料,其 pH 值高达 8.67.

表 3 填料的部分理化特性

Table 3 Partial physicochemical properties of the five filter media							
填料	孔隙率 /%	真密度 /g $\cdot$ cm $^{-3}$	堆积密度 /g $\cdot$ cm $^{-3}$	比表面积 /m 2 $\cdot$ g $^{-1}$	微孔体积 /cm 3 $\cdot$ g $^{-1}$	EC / μ S $\cdot$ cm $^{-1}$	pH 值
公分石	48.5	2.44	1.03	1.78	3.06×10^{-3}	43	7.05
陶粒	66.0	1.82	0.72	4.72	15.20×10^{-3}	98	7.69
沸石	52.5	2.07	0.98	2.88	5.85×10^{-3}	70	5.98
废砖块	65.0	2.37	0.83	3.78	9.15×10^{-3}	790	5.25
龙虾壳	55.0	2.56	1.15	2.94	5.03×10^{-3}	2 840	8.67

在 CANON 型 TFCW 的启动过程中,ANAMMOX 菌作为参与 CANON 作用的主要功能微生物,其富集效果及其活性的高低会受到填物理化性质的显著影响. 由上述试验结果可知,与公分石相比,陶粒、沸石、废砖块和龙虾壳的表面微结构更有利于生物膜的生长. 其中,沸石对 NH $_4^+$ -N 具有良好的吸附效果^[21],可有效延长氨氮在系统中的水力停留时间;由于废砖块的 EC 值较高且含有一定量的 Fe,致使其在系统运行时可释放一定量的 Fe $^{3+}$ /Fe $^{2+}$ 于间隙水中. 先前研究指出^[36,37],适当浓度的 Fe $^{2+}$ 或 Fe $^{3+}$

均可刺激并增强 ANAMMOX 菌的活性;龙虾壳为碱性填料,其 EC 值最高且以 CaCO $_3$ 为主要成分,从而可使 TFCW 填料层间隙水中的碱度提高, Wen 等^[38]的研究表明,系统中偏碱性填料(如炉渣和石灰石等)的使用可为 ANAMMOX 菌的生长与增殖提供充足的碱度,进而有利于 CANON 作用的实现. 综上所述,本研究发现将陶粒、沸石、废砖块或龙虾壳作为湿地填料均会促进 TFCW 中相关脱氮功能微生物(尤其是 ANAMMOX 菌)丰度与活性的提高,进而可不同程度地缩短 CANON 型 TFCW 的启动时间

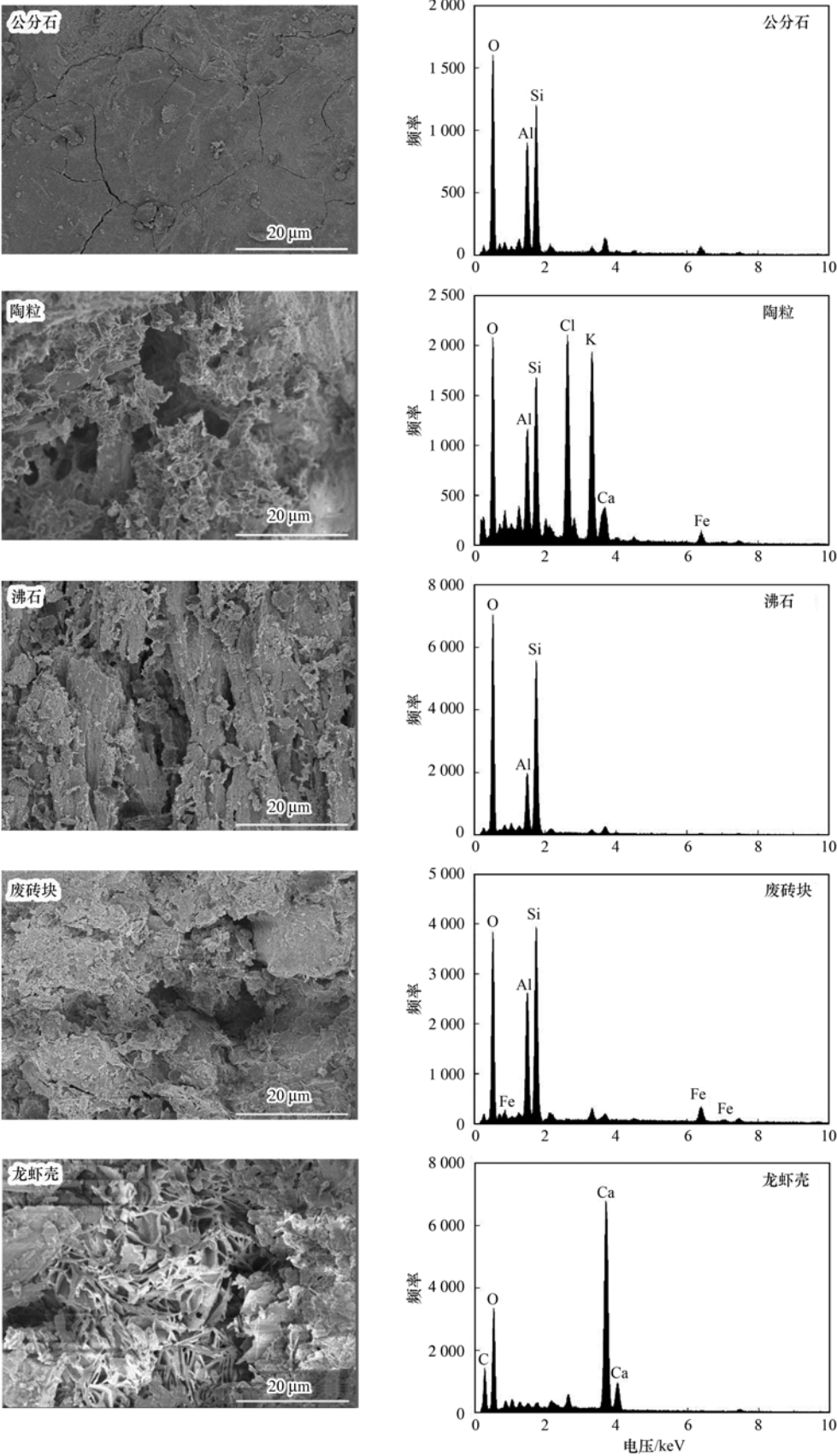


图 6 各填料的表现微结构与表面主要化学成分

Fig. 6 SEM image and EDX spectrum of each filter medium

并提高其脱氮性能. 其中,当选用龙虾壳作为湿地填料时,CANON 型 TFCW 的启动耗时最短,其脱氮性

能亦最佳. 因此,填料的理化特性是构建 CANON 型 TFCW 系统的重要参数,适宜种类填料的填充可强

化并提高功能微生物的丰度及其活性,进而有助于缩短 CANON 反应体系在湿地系统中的构建进程。

3 结论

(1)填料的理化特性可显著影响 ANAMMOX 菌的富集效果及其活性,进而可影响 CANON 型 TFCW 系统的启动进程及其脱氮性能。

(2)相较于公分石、陶粒、沸石、废砖块和龙虾壳可不同程度地提高 ANAMMOX 菌在 TFCW 中的丰度与活性,进而可缩短 CANON 型 TFCW 的启动时间并提高其脱氮性能。

(3)当填充填料为龙虾壳时,CANON 型 TFCW 仅需 300 个 CD 即可完成启动,且其在稳定运行阶段对 TN 和 NH_4^+-N 的去除率分别可达 $(88.37 \pm 1.19)\%$ 和 $(91.03 \pm 0.66)\%$,其次为废砖块、沸石、陶粒和公分石。

参考文献:

- [1] Ma B, Wang S Y, Cao S B, *et al.* Biological nitrogen removal from sewage via anammox: recent advances [J]. *Bioresource Technology*, 2016, **200**: 981-990.
- [2] Winkler M K H, Straka L. New directions in biological nitrogen removal and recovery from wastewater [J]. *Current Opinion in Biotechnology*, 2019, **57**: 50-55.
- [3] 成朔,李冬,张杰,等. AUSB 中置曝气对 CANON 颗粒污泥工艺的影响 [J]. *环境科学*, 2018, **39**(3): 1286-1293.
Cheng S, Li D, Zhang J, *et al.* Effect of intermediate-setting aeration on the CANON granular sludge process in the AUSB reactor [J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(3): 1286-1293.
- [4] Ilyas H, Masih I. The performance of the intensified constructed wetlands for organic matter and nitrogen removal: a review [J]. *Journal of Environmental Management*, 2017, **198**: 372-383.
- [5] Wu S B, Kuschik P, Brix H, *et al.* Development of constructed wetlands in performance intensifications for wastewater treatment: a nitrogen and organic matter targeted review [J]. *Water Research*, 2014, **57**: 40-55.
- [6] Vymazal J. Constructed wetlands for wastewater treatment: five decades of experience [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, **45**(1): 61-69.
- [7] Liu M H, Wu S B, Chen L, *et al.* How substrate influences nitrogen transformations in tidal flow constructed wetlands treating high ammonium wastewater? [J]. *Ecological Engineering*, 2014, **73**: 478-486.
- [8] Wu H M, Fan J L, Zhang J, *et al.* Intensified organics and nitrogen removal in the intermittent-aerated constructed wetland using a novel sludge-ceramsite as substrate [J]. *Bioresource Technology*, 2016, **210**: 101-107.
- [9] Shen Y H, Zhuang L L, Zhang J, *et al.* A study of ferric-carbon micro-electrolysis process to enhance nitrogen and phosphorus removal efficiency in subsurface flow constructed wetlands [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2019, **359**: 706-712.
- [10] Zhuang L L, Yang T, Zhang J, *et al.* The configuration, purification effect and mechanism of intensified constructed wetland for wastewater treatment from the aspect of nitrogen removal: a review [J]. *Bioresource Technology*, 2019, **293**: 122086.
- [11] 吴鹏,陆爽君,徐乐中,等. 改性沸石湿地脱氮除磷效能及机制 [J]. *环境科学*, 2017, **38**(2): 580-588.
Wu P, Lu S J, Xu L Z, *et al.* Efficiency and mechanism of nitrogen and phosphorus removal in modified zeolite wetland [J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(2): 580-588.
- [12] 章丹,叶春,李春华,等. 人工湿地填料选择研究进展 [A]. 见: 中国环境科学学会 2013 年学术年会论文集 [C]. 昆明: 中国环境科学学会, 2013. 8.
- [13] 靳慧征,王振,丁亚男. 排水速率对潮汐流人工湿地中 CANON 作用的强化 [J]. *中国环境科学*, 2018, **38**(6): 2182-2192.
Jin H Z, Wang Z, Ding Y N. Effect of drainage rate on the enhancement of the complete autotrophic nitrogen removal over nitrite process in a tidal flow constructed wetland [J]. *China Environmental Science*, 2018, **38**(6): 2182-2192.
- [14] 中华人民共和国水利部. 土工试验方法标准 [M]. 北京: 中国计划出版社, 1999.
Ministry of Water Resources of the People's Republic of China. Standard for test methods of earthworks [M]. Beijing: China Planning Press, 1999.
- [15] 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.
- [16] 高瑶远,彭永臻,包鹏,等. 低溶解氧环境下全程硝化活性污泥的特性 [J]. *中国环境科学*, 2017, **37**(5): 1769-1774.
Gao Y Y, Peng Y Z, Bao P, *et al.* The characteristic of activated sludge in nitrifying low-DO reactor [J]. *China Environmental Science*, 2017, **37**(5): 1769-1774.
- [17] 宋成康,王亚宜,韩海成,等. 温度降低对厌氧氨氧化脱氮效能及污泥胞外聚合物的影响 [J]. *中国环境科学*, 2016, **36**(7): 2006-2013.
Song C K, Wang Y Y, Han H C, *et al.* Effect of decreasing temperature on the performance and extracellular polymer substance of anaerobic ammonia oxidation sludge [J]. *China Environmental Science*, 2016, **36**(7): 2006-2013.
- [18] 刘涛,李冬,畅晓燕,等. 常温 CANON 反应器内微生物群落结构及生物多样性 [J]. *哈尔滨工业大学学报*, 2013, **45**(8): 28-33.
Liu T, Li D, Chang X Y, *et al.* Bacterial community structure and biodiversity of CANON reactor at room temperature [J]. *Journal of Harbin Institute of Technology*, 2013, **45**(8): 28-33.
- [19] 张肖静,李冬,梁瑜海,等. MBR-CANON 工艺处理生活污水的快速启动及群落变化 [J]. *哈尔滨工业大学学报*, 2014, **46**(4): 25-30.
Zhang X J, Li D, Liang Y H, *et al.* Rapid start-up of CANON treating domestic wastewater and the community dynamics in MBR [J]. *Journal of Harbin Institute of Technology*, 2014, **46**(4): 25-30.
- [20] Ji G D, Zhi W, Tan Y F. Association of nitrogen micro-cycle functional genes in subsurface wastewater infiltration systems [J]. *Ecological Engineering*, 2012, **44**: 269-277.
- [21] 卢少勇,王正芬,李锋民,等. 29 种湿地填料对氨氮的吸附解吸性能比较 [J]. *环境科学研究*, 2016, **29**(8): 1187-1194.
- [22] 柳明慧,吴树彪,鞠鑫鑫,等. 潮汐流人工湿地污水强化处理研究进展 [J]. *水处理技术*, 2014, **40**(5): 10-15.
Liu M H, Wu S B, Ju X X, *et al.* Progress and prospects of

- polluted water treatment of tidal flow constructed wetland [J]. *Technology of Water Treatment*, 2014, **40**(5): 10-15.
- [23] Wang Z, Huang M L, Qi R, *et al.* Enhanced nitrogen removal and associated microbial characteristics in a modified single-stage tidal flow constructed wetland with step-feeding [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2017, **314**: 291-300.
- [24] 李冬, 杨卓, 梁瑜海, 等. 耦合反硝化的 CANON 生物滤池脱氮研究 [J]. *中国环境科学*, 2014, **34**(6): 1448-1456.
Li D, Yang Z, Liang Y H, *et al.* Nitrogen removal performance by CANON biological filtration with denitrification [J]. *China Environmental Science*, 2014, **34**(6): 1448-1456.
- [25] 魏思佳, 于德爽, 李津, 等. 厌氧氨氧化与反硝化耦合脱氮除碳研究 I: COD/NH₄⁺-N 对耦合反应的影响 [J]. *中国环境科学*, 2016, **36**(3): 759-767.
Wei S J, Yu D S, Li J, *et al.* Simultaneous carbon and nitrogen removal by anaerobic ammonium oxidation and denitrification I: effect of COD/NH₄⁺-N on coupled reaction [J]. *China Environmental Science*, 2016, **36**(3): 759-767.
- [26] Pynaert K, Smets B F, Wyffels S, *et al.* Characterization of an autotrophic nitrogen-removing biofilm from a highly loaded lab-scale rotating biological contactor [J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2003, **69**(6): 3626-3635.
- [27] Nielsen M, Bollmann A, Slikkers O, *et al.* Kinetics, diffusional limitation and microscale distribution of chemistry and organisms in a CANON reactor [J]. *FEMS Microbiology Ecology*, 2005, **51**(2): 247-256.
- [28] Maul J E, Cavigelli M A, Vinyard B, *et al.* Cropping system history and crop rotation phase drive the abundance of soil denitrification genes *nirK*, *nirS* and *nosZ* in conventional and organic grain agroecosystems [J]. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 2019, **273**: 95-106.
- [29] Zhi W, Ji G D. Quantitative response relationships between nitrogen transformation rates and nitrogen functional genes in a tidal flow constructed wetland under C/N ratio constraints [J]. *Water Research*, 2014, **64**: 32-41.
- [30] 黄梦露, 李战朋, 王振. 进水碳氮比对 CANON 型人工湿地脱氮性能的影响 [J]. *应用生态学报*, 2017, **28**(12): 4075-4082.
Huang M L, Li Z P, Wang Z. Effect of influent C/N on nitrogen removal performance in tidal flow constructed wetland via CANON process [J]. *Chinese Journal of Applied Ecology*, 2017, **28**(12): 4075-4082.
- [31] Del Bubba M, Arias C A, Brix H. Phosphorus adsorption maximum of sands for use as media in subsurface flow constructed reed beds as measured by the Langmuir isotherm [J]. *Water Research*, 2003, **37**(14): 3390-3400.
- [32] Drizo A, Frost C A, Grace J, *et al.* Physico-chemical screening of phosphate-removing substrates for use in constructed wetland systems [J]. *Water Research*, 1999, **33**(17): 3595-3602.
- [33] Roseth R. Shell sand; a new filter medium for constructed wetlands and wastewater treatment [J]. *Journal of Environmental Science and Health, Part A*, 2000, **35**(8): 1335-1355.
- [34] 谭洪新, 周琪, 杨殿海. 页岩-钢渣组合填料湿地强化脱氮除磷研究 [J]. *环境科学*, 2006, **27**(11): 2182-2187.
Tan H X, Zhou Q, Yang D H. Studies on nitrogen and phosphorus enhancing removal in combined shale and steel slag subsurface constructed wetlands [J]. *Environmental Science*, 2006, **27**(11): 2182-2187.
- [35] 梁越敢, 方涛, 李伟, 等. 磁性龙虾壳吸附去除水中磷的特性 [J]. *中国环境科学*, 2019, **39**(5): 1928-1933.
Liang Y G, Fang T, Li W, *et al.* Characteristics of phosphorus adsorption by magnetic lobster shell [J]. *China Environmental Science*, 2019, **39**(5): 1928-1933.
- [36] 张黎, 胡筱敏, 姜彬慧, 等. 亚铁离子对厌氧氨氧化反应器脱氮性能的影响 [J]. *东北大学学报 (自然科学版)*, 2015, **36**(12): 1753-1756.
Zhang L, Hu X M, Jiang B H, *et al.* Effect of iron ions on denitrification performance in Anammox reactor [J]. *Journal of Northeastern University (Natural Science)*, 2015, **36**(12): 1753-1756.
- [37] 李祥, 黄勇, 巫川, 等. Fe²⁺ 和 Fe³⁺ 对厌氧氨氧化污泥活性的影响 [J]. *环境科学*, 2014, **35**(11): 4224-4229.
Li X, Huang Y, Wu C, *et al.* Effect of Fe²⁺ and Fe³⁺ on the Activity of ANAMMOX [J]. *Environmental Science*, 2014, **35**(11): 4224-4229.
- [38] Wen J F, Tao W D, Wang Z Y, *et al.* Enhancing simultaneous nitrification and Anammox in recirculating biofilters: effects of unsaturated zone depth and alkalinity dissolution of packing materials [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2013, **244**: 245-671-680.

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)