

E方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

冠状病毒气溶胶传播及环境影响因素

李雪, 蒋靖坤, 王东滨, 邓建国, 贺克斌, 郝吉明



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2021年7月

第42卷 第7期

Vol.42 No.7

目次

冠状病毒气溶胶传播及环境影响因素 李雪, 蒋靖坤, 王东滨, 邓建国, 贺克斌, 郝吉明 (3091)

新冠肺炎疫情期间气象条件和排放变化对 PM_{2.5} 的影响 逯世泽, 史旭荣, 薛文博, 雷宇, 严刚 (3099)

基于网格的长三角 PM_{2.5} 分布影响因素及交互效应 黄小刚, 赵景波, 辛未冬 (3107)

ARIMA 时间序列分析模型在臭氧浓度中长期预报中的应用 李颖若, 韩婷婷, 汪君霞, 权维俊, 何迪, 焦热光, 吴进, 郭恒, 马志强 (3118)

中国长三角背景点冬季大气棕碳污染特征及来源解析 赵宇, 吴灿, 王益倩, 陈玉宝, 吕少君, 汪芳琳, 杜伟, 刘仕杰, 丁志健, 王格慧 (3127)

四川盆地 PM_{2.5} 浓度时空变化特征遥感监测与影响因子分析 李梦真, 张廷斌, 易桂花, 秦岩宾, 李景吉, 刘贤, 蒋杰 (3136)

河网连续动态模型构建及其在典型杀虫剂时空迁移模拟中的应用 邢成, 张芊芊, 蔡雅雅, 烟晓婷, 应光国 (3147)

九龙江流域河流氮输出对土地利用模式和水文状况的响应 黄亚玲, 黄金良 (3156)

滇池近岸水体微塑料污染与富营养化的相关性 袁海英, 侯磊, 梁启斌, 李佳琛, 任甲 (3166)

白洋淀夏季入淀区沉积物间隙水-上覆水水质特征及交换通量分析 张甜娜, 周石磊, 陈召莹, 张紫薇, 孙悦, 姚波, 崔建升, 李再兴, 罗晓 (3176)

镇江市古运河和金山湖河湖上覆水体和沉积物氮及有机质分布特征及污染评价 原璐彬, 邢书语, 刘鑫, 周晓红, Adelaide Angela Dadzie (3186)

洪湖国际重要湿地沉积物磷空间分布特征及释放风险 刘永九, 黄素珍, 张璐, 彭雪, 张心怡, 葛芳杰, 刘碧云, 吴振斌 (3198)

苏州古城区域河道底泥的重金属污染分布及生态风险评价 白冬锐, 张涛, 包峻松, 陈坦, 王洪涛, 金曦, 金军, 杨婷 (3206)

武汉集中式饮用水源地土壤重金属的时空分布特征及生态风险评价 朱静, 侯耀宗, 邹书成, 曹梦华, 涂书新 (3215)

升金湖河湖交汇区地表-地下水水化学特征及成因分析 崔玉环, 王杰, 刘友存, 郝洸, 高祥 (3223)

青岛市农区地下水硝态氮污染来源解析 寇馨月, 丁军军, 李玉中, 毛丽丽, 李巧珍, 徐春英, 郑欠, 庄姗 (3232)

三峡库区支流浮游植物群落稳定性及其驱动因子分析 何书晗, 欧阳添, 赵璐, 纪璐璐, 杨安琪, 施军琼, 吴忠兴 (3242)

哈尔滨城市河网丰水期浮游植物群落分布特征及驱动因子 路枫, 李磊, 齐青松, 陆欣鑫, 刘妍, 范亚文 (3253)

湖泊沉积物中微生物群落对天然有机质输入的响应 居琪, 章奇, 曹驰程, 白雷雷, 张晖 (3263)

补给水质与社会活动对白洋淀湿地微生物的影响特征 赵志瑞, 吴会清, 毕玉方, 展庆周, 吴海淼, 袁凯悦, 孟祥源, 李方红 (3272)

蓝藻衰亡过程中上覆水溶解性有机物变化特征 李翔, 李致春, 汪旋, 张思远, 王慧敏, 厉荣强, 王国祥, 李启蒙 (3281)

长江下游快速城市化地区水污染特征及源解析:以秦淮河流域为例 马小雪, 龚畅, 郭加汛, 王腊春, 徐蕴韵, 赵春发 (3291)

长江下游居民区降水地表径流的污染特征 郭文景, 张志勇, 闻学政, 张瀚文, 王岩 (3304)

潮河流域降雨径流事件污染物输出特征 包鑫, 江燕, 胡羽聪 (3316)

不透水地表粗糙度对城市面源颗粒物的累积和冲刷影响 单溪环, 谢文霞, 廖云杰, 房志达, 杨晓晶, 苏静君, 赵洪涛, 李叙勇 (3328)

基于概率方法的中国居民饮水途径暴露健康风险评估 秦宁, 刘运炜, 侯荣, 王彩云, 王贝贝, 段小丽 (3338)

蛋白类有机质在水厂各处理单元中的去除特性 李梦雅, 宋钰莹, 张晓岚, 黄海鸥 (3348)

污水处理厂不同单元工艺水中重金属及其纳米颗粒的分布 王杜珈, 何帅, 周小霞 (3358)

基于宏基因组技术分析 MBR 膜清洗后污泥中抗性基因 杜彩丽, 李中涵, 李晓光, 张列宇, 陈素华, 黎佳茜, 李曹乐 (3366)

石化废水处理厂中耐药菌和耐药基因的分布特征与去除效能解析 唐振平, 肖莎莎, 段毅, 刘迎九, 高媛媛, 吴月月, 陈怡雯, 周帅 (3375)

一段式亚硝化厌氧氨氧化 SMBBR 处理中低浓度氨氮废水 吕恺, 邵贤明, 王康舟, 姚雪薇, 彭党聪, 韩芸 (3385)

外加固体缓释碳源的两段反硝化工艺脱氮性能 唐义, 马邕文, 王金泉, 王艳, 叶刚 (3392)

臭氧投量对 SBR 系统污泥沉降性能及脱氮除磷的影响 吕永涛, 朱传首, 张旭阳, 徐超, 潘永宝, 刘爽, 崔双科, 王磊 (3400)

间歇梯度曝气下首段延时厌氧强化好氧颗粒污泥脱氮除磷 张玉君, 李冬, 王敬鑫, 张富国, 张杰 (3405)

提盐速率对序批式生物反应器性能和微生物群落结构的影响 古柏铭, 金春姬, 温淳, 侯金源, 赵阳国, 高孟春 (3413)

低温驯化对自养脱氮颗粒污泥功能活性与菌群结构的影响分析 钱飞跃, 刘雨馨, 王建芳, 刘文如 (3422)

矿渣改性剂对城市污泥重金属稳定化 张发文, 董明坤, 陈辰慧, 赵长民 (3430)

2000~2018 年长三角土地利用变化对农田生态系统氨排放的影响 王文锦, 王卿, 朱安生, 黄凌, 顾莹, 王杨君, 王敏, 李莉 (3442)

麦秸水热炭及其改良产物对水稻产量和稻田氨挥发排放的影响 韩晨, 侯朋福, 薛利红, 冯彦房, 余姗, 杨林章 (3451)

水肥管理对热带地区双季稻田 CH₄ 和 N₂O 排放的影响 李金秋, 邵晓辉, 缙广林, 邓艺欣, 谭诗敏, 徐文娟, 杨秋, 刘文杰, 伍延正, 孟磊, 汤水荣 (3458)

耐盐碱水稻土壤产甲烷菌群落特征及产甲烷途径 杨雨虹, 贺惠, 米铁柱, 刘玥腾, 刘佳音, 张国栋, 李明月, 甄毓 (3472)

铁碳微电解填料对人工湿地温室气体排放的影响 赵仲婧, 郝庆菊, 涂婷婷, 胡曼利, 张尧钰, 江长胜 (3482)

农地土壤重金属 Pb 和 Cd 有效性测定方法的筛选与评价 陈莹, 刘汉焱, 刘娜, 蒋珍茂, 魏世强 (3494)

亚热带高山森林土壤典型重金属的空间分布格局及其影响因素:以云南哀牢山为例 刘旭, 王训, 王定勇 (3507)

深圳市不同土类的重金属环境背景值与理化性质特征 林挺, 赵述华, 郝秀平, 杨坤, 吴静雅, 朱艳, 罗飞 (3518)

同步钝化土壤 Cd 和 As 材料的筛选 周嗣江, 刘针延, 熊双莲, 马烁, 黄倚豪, 雷寅, 曹梦华, 涂书新 (3527)

两种铁基材料对污染农田土壤砷、铅、镉的钝化修复 袁峰, 唐先进, 吴骥子, 赵科理, 叶正钱 (3535)

青藏高原东缘冻土中有机磷酸酯的污染特征 刘丽娅, 印红玲, 蹇林洁, 徐子文, 熊远明, 罗怡, 刘小雯, 徐维新 (3549)

成都平原氮磷化肥施用强度空间分布及影响因素分析 刘奇鑫, 王昌全, 李冰, 赵海岚, 方红艳, 邓茜, 李启权 (3555)

土壤中溶解性有机质对不同类型堆肥的响应差异 席北斗, 王燕, 檀文炳, 余红, 崔东宇, 程东会, 党秋玲 (3565)

《环境科学》征订启事(3315) 《环境科学》征稿简则(3357) 信息(3391, 3441, 3564)

铁碳微电解填料对人工湿地温室气体排放的影响

赵仲婧¹, 郝庆菊^{1,2}, 涂婷婷¹, 胡曼利¹, 张尧钰¹, 江长胜^{1,2*}

(1. 西南大学资源环境学院, 西南山地生态循环农业国家级培育基地, 重庆 400716; 2. 三峡库区生态环境教育部重点实验室, 重庆 400715)

摘要: 随着全球气候变暖的问题日益严重, 人工湿地中温室气体的减排措施也受到越来越多的关注. 铁碳微电解填料对废水处理效果良好且具备温室气体减排的潜力, 为探究铁碳微电解对间歇曝气人工湿地温室气体排放的影响, 本研究构建了以铁碳微电解填料+砾石(湿地 I)、铁碳微电解填料+沸石(湿地 II)、沸石(湿地 III)以及砾石(湿地 IV)为基质的 4 组人工湿地, 并利用间歇曝气技术对湿地系统进行了增氧. 结果表明, 铁碳微电解填料显著提高了间歇曝气人工湿地的脱氮效果, 且具备对人工湿地温室气体的减排作用. 与湿地 IV 相比, 湿地 I、II 和 III 的 CH₄ 排放通量分别平均降低了 32.81% ($P < 0.05$)、52.66% ($P < 0.05$) 和 54.50% ($P < 0.05$), 其中沸石对 CH₄ 的减排效果较优, 能显著降低曝气段和非曝气段人工湿地 CH₄ 的排放. 铁碳微电解填料明显减少了 N₂O 的排放, 与湿地 IV 相比, 湿地 I 和 II 分别实现 N₂O 减排 30.29%~60.63% ($P < 0.05$) 和 43.10%~73.87% ($P < 0.05$). 各组湿地系统在典型周期内排放的 CH₄ 和 N₂O 引起的综合 GWP (以 CO₂-eq 计) 分别为 (85.21 ± 6.48)、(49.24 ± 3.52)、(127.97 ± 11.44) 和 (137.13 ± 11.45) g·m⁻², 铁碳微电解填料与沸石的联合使用有效实现了人工湿地温室气体的减排. 总体而言, 湿地 II 在间歇曝气的条件下对污水净化效果最好, 温室气体的减排效果最佳.

关键词: 人工湿地; 甲烷; 氧化亚氮; 铁碳微电解; 沸石

中图分类号: X16 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2021)07-3482-12 DOI: 10.13227/j.hjkk.202011248

Effect of Ferric-carbon Micro-electrolysis on Greenhouse Gas Emissions from Constructed Wetlands

ZHAO Zhong-jing¹, HAO Qing-ju^{1,2}, TU Ting-ting¹, HU Man-li¹, ZHANG Yao-yu¹, JIANG Chang-sheng^{1,2*}

(1. State Cultivation Base of Eco-agriculture for Southwest Mountainous Land, College of Resources and Environment, Southwest University, Chongqing 400716, China; 2. Key Laboratory of Eco-environment in Three Gorges Reservoir Region, Ministry, Education, Chongqing 400715, China)

Abstract: As the problem of global warming becomes increasingly serious, the greenhouse gas (GHG) emission reduction measures of constructed wetlands (CWs) have drawn significant attention. Ferric-carbon micro-electrolysis exhibits an excellent effect on wastewater purification as well as the potential to reduce GHG emissions. Therefore, to explore the impact of ferric-carbon micro-electrolysis on GHG emissions from intermittent aeration constructed wetlands, four kinds of different wetlands with different fillers were constructed. The four fillers were ferric-carbon micro-electrolysis filler + gravel (CW-I), ferric-carbon micro-electrolysis filler + zeolite (CW-II), zeolite (CW-III), and gravel (CW-IV). Intermittent aeration technology was used to aerate the wetland systems. The results show that ferric-carbon micro-electrolysis significantly improved the nitrogen removal efficiency of the intermittent aeration constructed wetlands and reduced GHG emissions. Compared with CW-IV, the CH₄ fluxes of CW-I, CW-II, and CW-III decreased by 32.81% ($P < 0.05$), 52.66% ($P < 0.05$), and 54.50% ($P < 0.05$), respectively. Among them, zeolite exhibited a stronger reduction effect on CH₄ emissions in both the aeration and non-aeration sections. The ferric-carbon micro-electrolysis substantially reduced N₂O emissions. In comparison with CW-IV, CW-I, and CW-II achieved N₂O emission reduction by 30.29%-60.63% ($P < 0.05$) and 43.10%-73.87% ($P < 0.05$), respectively. During a typical hydraulic retention period, the comprehensive GWP caused by CH₄ and N₂O emitted by each group of wetland system are (85.21 ± 6.48), (49.24 ± 3.52), (127.97 ± 11.44), and (137.13 ± 11.45) g·m⁻², respectively. The combined use of ferric-carbon micro-electrolysis and zeolite effectively reduces GHG emissions in constructed wetlands. Overall, ferric-carbon micro-electrolysis combined with zeolite (CW-II) can be regarded as one of the valuable filler combination methods for constructed wetlands, which can ensure high removal efficiency of pollutants and effective GHG emission reduction in constructed wetlands.

Key words: constructed wetland; methane; nitrous oxide; ferric-carbon micro-electrolysis; zeolite

人工湿地能够通过过滤、吸附、沉淀、植物吸收和微生物降解等过程有效净化生活污水, 且具有构建成本低、能耗小以及良好的景观效果等优点^[1]. 然而, 传统的人工湿地的运行过程中会产生一定的温室气体, 使其环境效益大打折扣^[2,3]. 有研究表明, 人工湿地中温室气体的释放通量是自然湿地的 2~10 倍^[3]. 另外, 自然水体复氧能力的不足限制了

人工湿地的净化效率, 为改善人工湿地系统的溶解

收稿日期: 2020-11-29; 修订日期: 2020-12-27

基金项目: 国家自然科学基金项目(41977186); 重庆市基础研究与前沿探索项目(cstc2018jcyjAX0476, cstc2019jcyj-msxmX0425); 重庆市研究生科研创新项目(CYS20115); 重庆市大学生创新训练项目(S202010635036)

作者简介: 赵仲婧(1996~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为水污染控制, E-mail: 895878117@qq.com

* 通信作者, E-mail: jiangcs@126.com

氧环境,曝气人工湿地越来越多地被运用于实际.然而,人工湿地在曝气过程中形成的好氧-缺氧环境在高效去除污染物的同时,将会导致更多温室气体的释放^[4,5].基于此,需要进一步对人工湿地,尤其是曝气人工湿地进行设计改造,寻求温室气体减排的有效措施,以保证人工湿地系统的综合处理效果.

N_2O 是硝化过程的副产物以及反硝化过程的中间产物^[6].传统人工湿地通常缺乏可生物利用的碳源,进而抑制了反硝化过程的完全进行,最终导致大量 N_2O 的释放^[5].实现异养反硝化的完全进行和促进自养反硝化的发生是减少湿地 N_2O 产生的重要途径.因此,铁碳微电解法逐渐走入人们的视野,一方面,铁碳微电解法是一种通过生物耦合化学过程的废水净化方法.在废水中,铁碳微电解填料以铁为阳极,碳为阴极形成大量微观原电池.废水中的 NO_3^-/NO_2^- 利用阳极产生的电子,通过化学过程被直接还原为 N_2 ^[7];另外,铁碳微电解的过程有利于大分子有机物转化为小分子有机物^[8],为微生物的异养反硝化提供碳源,进而促进反硝化过程完全进行^[7,9,10].另一方面,有研究表明,微生物能够利用氢、铁、无机碳等无机组分为电子供体实现自养反硝化^[5].Deng 等^[11]和 Xing 等^[12]的研究结果均表明,铁碳微电解在处理废水时存在自养反硝化的过程.由此可见,铁碳微电解法净化废水的过程倾向于减少 N_2O 的产生.

传统人工湿地长期处于厌氧状态,污水中的有机物以及湿地植物腐败产生的有机质在厌氧生物的作用下将释放大量 CH_4 .目前,抑制 CH_4 的产生以及促进 CH_4 的氧化是实现湿地 CH_4 减排的主要途径.有研究表明,铁碳微电解在处理废水的过程中能够有效降低有机物负荷,通过减少产甲烷的前驱物质进而达到减少 CH_4 产生的目的^[13];此外,湿地产生的 CH_4 有 50% 在进入大气前将通过氧化作用被消耗^[14],其中甲烷厌氧氧化发挥着十分重要的作用.尽管在湿地、污水厂等环境中普遍存在着由硝酸盐和亚硝酸盐驱动的甲烷厌氧氧化,但 Norði 等^[15]推断以铁离子为电子受体的甲烷厌氧氧化更适宜在湿地等淡水生境中发生,且在热力学和动力学上更易发生.Pangala 等^[16]在废水处理过程中添加 Fe^{3+} ,成功实现了 28%~64% 的 CH_4 减排.因此,以铁碳微电解作为人工湿地基质对 CH_4 减排具有较大的潜力.

然而,目前关于铁碳微电解法主要集中在其对于废水净化效果的研究,而关于铁碳微电解对人工湿地温室气体排放的影响,尤其是对 N_2O 和 CH_4 这两种重要温室气体的综合影响,以及铁碳微电解与其

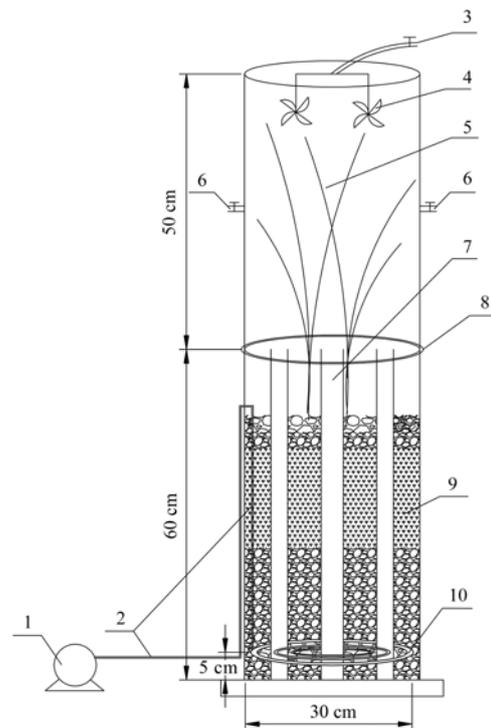
他常见填料组合在曝气人工湿地系统中的应用情况的研究较少.为此,本研究主要以铁碳微电解填料为基质,构建间歇曝气的垂直潜流人工湿地系统,探究不同人工湿地对废水净化和温室气体排放的影响,以期为曝气人工湿地温室气体减排提供理论参考.

1 材料与方法

1.1 实验装置的构建

本实验采用垂直潜流人工湿地系统模型,地点选在西南大学资源环境学院温室大棚内,通风良好,自然光照.

如图 1 所示,人工湿地系统装置为 PVC 材料制成的圆柱形容器,底面内径为 30 cm,高为 60 cm,其中填充 50 cm 高的填料基质.基质由最底部铺设的高 5 cm 的砾石承托层以及承托层上添加的不同的湿地填料组成.本实验共设置 4 种不同填料的人工湿地系统,分别为:湿地 I,添加体积比为 2:3 的铁碳微电解填料(Fe-C)和砾石;湿地 II,添加体积比为 2:3 的铁碳微电解填料(Fe-C)和沸石;湿地 III,仅添加沸石;湿地 IV,仅添加砾石.每组处理设置两个平行.每个人工湿地系统中央设置 3 根直径为 4 cm,长度为 60 cm 的 PVC 穿孔管,以便于进水、虹吸



1. 曝气泵; 2. 曝气导管; 3. 气体采样口; 4. 轴流风扇;
5. 菖蒲; 6. 开放式采气开口; 7. PVC 穿孔管;
8. 水封槽; 9. 填料; 10. 微孔曝气管

图 1 间歇曝气人工湿地装置示意

Fig. 1 Schematic diagram of intermittent aeration constructed wetland

排水以及各水质指标的测定. 在距人工湿地系统底部 5 cm 处设置微孔曝气管, 采用空气压缩机曝气, 并利用流量计控制曝气量, 利用定时开关控制曝气时间.

本实验所选取的砾石为普通建筑用青石, 购自重庆北碚某石料厂, 粒径为 1 ~ 3 cm, 孔隙率为 53.00%. 沸石为天然斜发沸石, 购自河南景盈水处理材料有限公司, 粒径为 5 ~ 10 mm, 孔隙率为 47.00%. 铁碳微电解填料主要由废铁屑/铁钉和活性炭制成, 购自郑州众邦水处理有限公司, 粒径为 1 ~ 3 cm, 孔隙率为 56.82%. 实验所需的微生物接种活性污泥取自北碚区污水处理厂曝气池, 在接种至实验系统前活性污泥先采用人工配制的污水进行驯化. 湿地植物为野生菖蒲 (*Acorus calamus* L.), 驯化培养一段时间后移栽入湿地装置中, 种植密度为 30 株·m⁻².

1.2 人工湿地系统的运行

人工湿地系统水力停留时间为 2 d, 进水采用人工配置的模拟污水, 进水 C/N 比约为 5:1. 模拟污水中 COD、NH₄⁺-N 和 NO₃⁻-N 分别由蔗糖、NH₄Cl 和 KNO₃ 提供, 浓度分别为 (406 ± 1.62)、(41.14 ± 0.33) 和 (40.81 ± 0.31) mg·L⁻¹; 此外, 每升进水中还包括 KH₂PO₄ (22.45 mg)、MgSO₄·7H₂O (97.50 mg)、CaCl₂ (58.30 mg)、蛋白胨 (10.00 mg) 和微量元素溶液 (0.1 mL). 其中每升微量元素溶液中包含 EDTA-Na₂ (3.50 g)、H₃BO₃ (1.70 g)、MnCl₂·4H₂O (1.08 g)、ZnSO₄·7H₂O (1.30 g)、CuSO₄·5H₂O (0.30 g) 和 H₂MoO₄·4H₂O (0.049 g). 进水 pH 为 7.09 ± 0.01.

采用间歇曝气的方式构建曝气人工湿地, 最佳曝气时间参考 Zhou 等^[17] 的实验结论, 每天曝气 2 h, 即在每天 00:00 ~ 01:00 以及 12:00 ~ 13:00 进行曝气, 曝气段 DO 控制在 3 mg·L⁻¹ 左右.

1.3 水样的采集与测定

系统稳定运行后每 2 d 进行一次日常水样的采集与分析, 采样时间固定在 09:00 ~ 10:00. 测定的原位指标包括溶解氧 (DO)、氧化还原电位 (Eh)、水温和 pH, 利用的是梅特勒-多参数测定仪进行测定, 其他水质指标 COD、NH₄⁺-N、NO₃⁻-N、NO₂⁻-N 和 TN 的分析测定均按照水和废水的国家标准分析法进行.

1.4 气样的采集与测定

温室气体主要进行 CH₄ 和 N₂O 的采集分析, 采用静态暗箱法^[18~20]. 如图 1 所示, 在人工湿地系统上部设置水封槽, 可放置配套的静态气体采样箱. 气体采样箱由顶箱 (直径 30cm, 高 50cm) 和延长箱 (直

径 30cm, 高 70cm) 组成, 均为 PVC 材质的圆柱体. 当植物生长高度超过顶箱高度时, 使用延长箱. 气体采样箱中部设有两个气体开放口, 便于在开放式采样时的排气, 采样箱内有温度探头便于实时测定箱内温度, 两个轴流风扇用于混合箱内空气.

在人工湿地系统稳定运行期间, 每月采气 4 次. 在监测气体的典型周期内设置 13 个时间节点, 以进水时刻为 0 时刻, 分别在 0、2、6、12、14、18、24、26、30、36、38、42 和 48 h 采集气样, 分析周期内人工湿地系统温室气体排放的变化, 计算气体排放通量及累积排放量. 气体样品的采集分为非曝气段采样、曝气段采样两种情况. 非曝气段气体样品的采集采用封闭式静态暗箱法进行^[21], 即在整个采气过程中关闭气体开放口, 并在不采气时闭合气体采样口, 保证气体采样箱始终处于封闭状态. 罩扣好采样箱后立即采集第一个气体样品, 之后每 10 min 采集一次, 每个湿地系统共采集 4 个气样. 曝气段气体样品的采集采用开放式采气法进行采气^[22], 采集气体样品的过程中始终打开气体开放口及气体采样口以排气, 曝气段采样频次是每 15 min 一次, 每个湿地系统在曝气段共采集 4 个气体样品. 气体样品均利用带有三通阀的 60 mL 注射器采集.

溶解态 CH₄ 和 N₂O 的浓度采用上部空间法测定^[22]. 对周期内所有非曝气段末端及曝气段末端的溶解态温室气体浓度进行分析测定, 采集水样 30 mL 于顶空瓶中, 立即加入 1 mL 浓度为 3 000 mg·L⁻¹ 的 HgCl₂ 溶液抑制水样中的微生物活性, 然后在顶空瓶内通入高纯氮气以排净液面上部空间的空气, 随后立即闭合顶空瓶, 用摇床恒温振荡 1 h, 接着稳定 15 min, 最后抽取顶空瓶上部空间气体进行测定.

所有气体样品均于 24 h 内利用 Agilent 7890A 气相色谱仪进行分析, CH₄ 和 N₂O 的浓度分别采用 FID 和 ECD 检测器测定, 具体分析方法及工作条件见文献[23].

非曝气段的气体排放通量根据 4 个气体样品中温室气体的浓度随时间变化的速率来计算, 计算公式为^[21]:

$$F = H \times \frac{273}{273 + T} \times \frac{p}{p_0} \times \rho \times \frac{dc}{dt} \quad (1)$$

曝气段的气体随曝气排出反应器, 因此在曝气量恒定, 环境状态稳定的情况下, 气体排放通量仅与气体浓度有关, 气体排放通量计算公式为^[22]:

$$F = Q \times \frac{\phi \cdot M \cdot p}{R \cdot T \cdot S} \quad (2)$$

溶解态温室气体的浓度计算公式为^[22]:

$$c_{\text{dis}} = (K_0RT + \beta) \cdot \omega \cdot M \cdot \frac{P}{R \cdot T} \quad (3)$$

式中, F 表示气体排放通量 [CH_4 对应单位为 $\text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ 和 N_2O 对应单位为 $\mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$]; H 表示箱内气室高度 (m); T 表示采样期间箱内平均气温 (K); p 表示采样时的大气压力 (Pa); p_0 表示标准状况的大气压力 (Pa); ρ 表示某一被测气体的密度 (摩尔质量/标准状态下的气体摩尔体积, $\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$); dc/dt 表示采样期间采样箱内某一被测气体的浓度变化速率 [CH_4 对应单位为 $\text{cm}^3 \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{h})^{-1}$ 和 N_2O 对应单位为 $\text{mm}^3 \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{h})^{-1}$]; Q 表示人工湿地曝气量 ($\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$); φ 表示测得气样中的气体体积分数; R 表示理想气体常数 [$8\,308.65 \text{ L} \cdot \text{Pa} \cdot (\text{mol} \cdot \text{K})^{-1}$]; M 表示气体摩尔质量 ($\text{g} \cdot \text{mol}^{-1}$); S 表示采气箱覆盖面积 (m^2); c_{dis} 表示单位体积水样中溶解的气体浓度 ($\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$); K_0 表示 CH_4 或 N_2O 的亨利常数 [$\text{mol} \cdot (\text{L} \cdot \text{Pa})^{-1}$]; β 表示取样瓶上部空间与水样的体积比; ω 表示测得的上部空间气体体积分数。

利用全球增温潜势 (GWP) 衡量不同人工湿地系统释放温室气体的综合影响, 将 CH_4 和 N_2O 的累积排放量转换为 CO_2 当量 ($\text{CO}_2\text{-eq}$), 因此, 各湿地的综合 GWP 计算公式为^[24]:

$$\text{GWP} = 34 \times \text{CH}_4 + 298 \times \text{N}_2\text{O} \quad (4)$$

1.5 数据分析

本实验数据利用 Microsoft Excel 2010 和 Origin

8.5 进行图表的绘制, 并通过软件 SPSS 19.0 进行数据的显著性检验分析及相关性分析, 显著性检验采用 One-way ANOVA 方法 ($P < 0.05$ 表示达到显著性水平, $P < 0.01$ 表示达到极显著水平)。

2 结果与分析

2.1 不同人工湿地出水水质变化

由表 1 可知, 稳定运行期间湿地 I 和湿地 II 出水的平均 pH 和 DO 均显著高于湿地 III 和湿地 IV ($P < 0.05$)。图 2 可以看出, 系统稳定运行期间 4 组人工湿地系统对有机物的去除率均达到 90% 以上, 各湿地系统出水 COD 均符合《城镇污水处理厂污染物排放标准》(GB 3838-2002) 一级 A 标准 ($50 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$), 去除效果差异不显著 ($P > 0.05$, 表 1)。与湿地 IV 相比, 添加铁碳微电解填料和沸石均明显改善了人工湿地中氮污染物的去除效果, 湿地 I、II 和 III 对 TN 的平均去除率分别比湿地 IV 提高了 7.93% ($P < 0.05$)、9.26% ($P < 0.05$) 和 3.57% ($P < 0.05$)。4 组湿地对 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的平均去除率分别为 74.42%、76.65%、72.57% 和 67.90%, 其中, 添加铁碳微电解填料联合沸石对 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的处理效果最好 ($P < 0.05$) (表 1)。铁碳微电解填料处理 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 的效果较为突出, 湿地 I 和 II 出水 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 浓度分别为 $(0.18 \pm 0.01) \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $(0.19 \pm 0.02) \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ (表 1), 去除率超过 99%, 而湿地 III 和 IV 的 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 去除率为 93%~94% (图 2)。

表 1 不同人工湿地出水的水质指标¹⁾

Table 1 Mean concentration of various water quality indicators in different constructed wetlands

类型	pH	DO / $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$	COD / $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$	TN / $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$	NH_4^+ / $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$	NO_3^- / $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$
湿地 I	7.43 ± 0.01a	0.26 ± 0.01a	16.87 ± 0.99a	11.18 ± 0.31c	10.51 ± 0.30bc	0.18 ± 0.01c
湿地 II	7.53 ± 0.02a	0.25 ± 0.02a	16.89 ± 0.97a	10.30 ± 0.27c	9.60 ± 0.26c	0.19 ± 0.02c
湿地 III	7.08 ± 0.01b	0.14 ± 0.01b	16.88 ± 0.66a	14.06 ± 0.31b	11.27 ± 0.28b	2.21 ± 0.07b
湿地 IV	7.12 ± 0.01b	0.13 ± 0.01b	17.85 ± 0.56a	16.44 ± 0.24a	13.21 ± 0.28a	2.67 ± 0.09a

1) 不同小写字母表示在不同人工湿地间差异显著 ($P < 0.05$)

2.2 不同人工湿地中 CH_4 及 N_2O 的月排放通量变化

不同人工湿地各月份 CH_4 的平均排放通量如图 3(a) 所示。稳定运行期间, 湿地 I、II、III 和 IV 释放的 CH_4 平均排放通量分别为 (0.31 ± 0.07) 、 (0.22 ± 0.06) 、 (0.21 ± 0.05) 和 $(0.47 \pm 0.14) \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ 。与湿地 IV 相比, 其他 3 组人工湿地均减少了 CH_4 的排放。其中, 湿地 I 中的 CH_4 排放通量平均降低了 32.81% ($P < 0.05$), 而添加沸石为填料的湿地 II 和 III 具有更为明显的 CH_4 减排作用, CH_4 排放通量分别平均降低了 52.66% ($P < 0.05$) 和 54.50% ($P < 0.05$)。此外, 由图 3(a) 可知, CH_4 的平均排放通量在夏季 (6~8 月) 高于秋季 (9~11

月), 且添加铁碳微电解和沸石对 CH_4 的减排效果在夏季更明显, 例如, 与湿地 IV 相比, 在 6~8 月, 湿地 I、II 和 III 平均实现 CH_4 减排 28.63%、54.16% 和 52.27%, 而在 9~11 月仅实现 CH_4 减排 23.26%、41.69% 和 48.15%。

4 组湿地在系统稳定运行期间的 N_2O 平均排放通量分别为 (300.95 ± 43.80) 、 (242.34 ± 29.82) 、 (455.59 ± 43.39) 和 $(577.42 \pm 60.65) \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ 。如图 3(b) 所示, 与湿地 IV 相比, 湿地 I、II 和 III 分别减少了 30.29%~60.63% ($P < 0.05$)、43.10%~73.87% ($P < 0.05$) 和 10.30%~31.56% ($P > 0.05$) 的 N_2O 排放, 添加铁碳微电解填

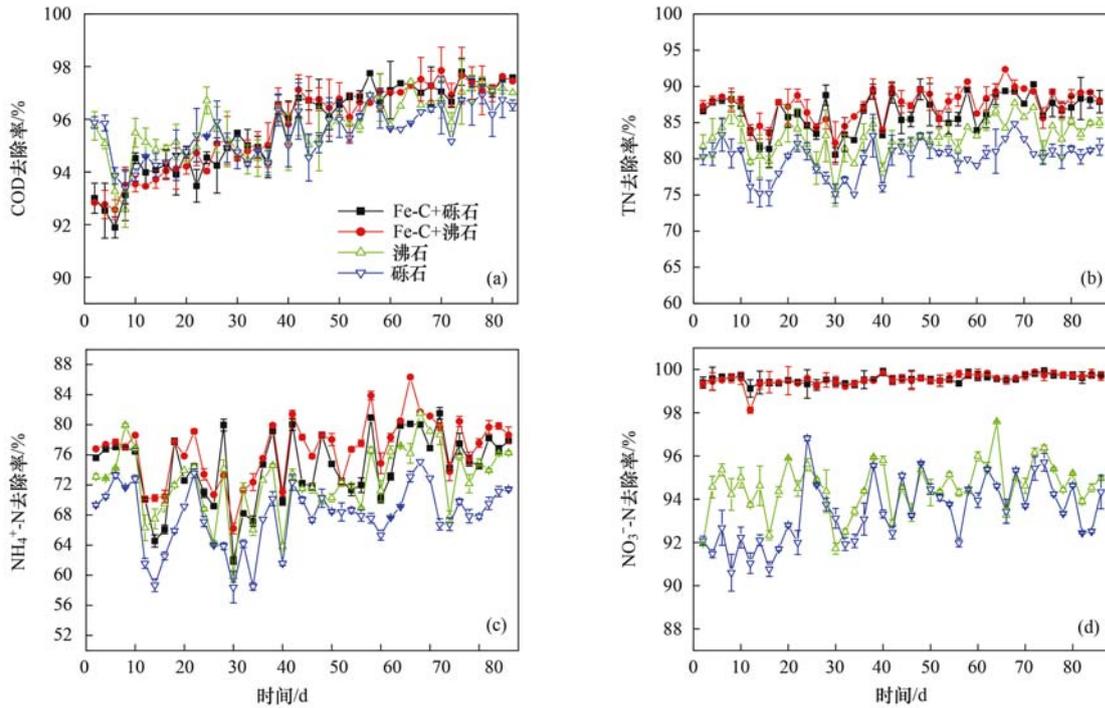
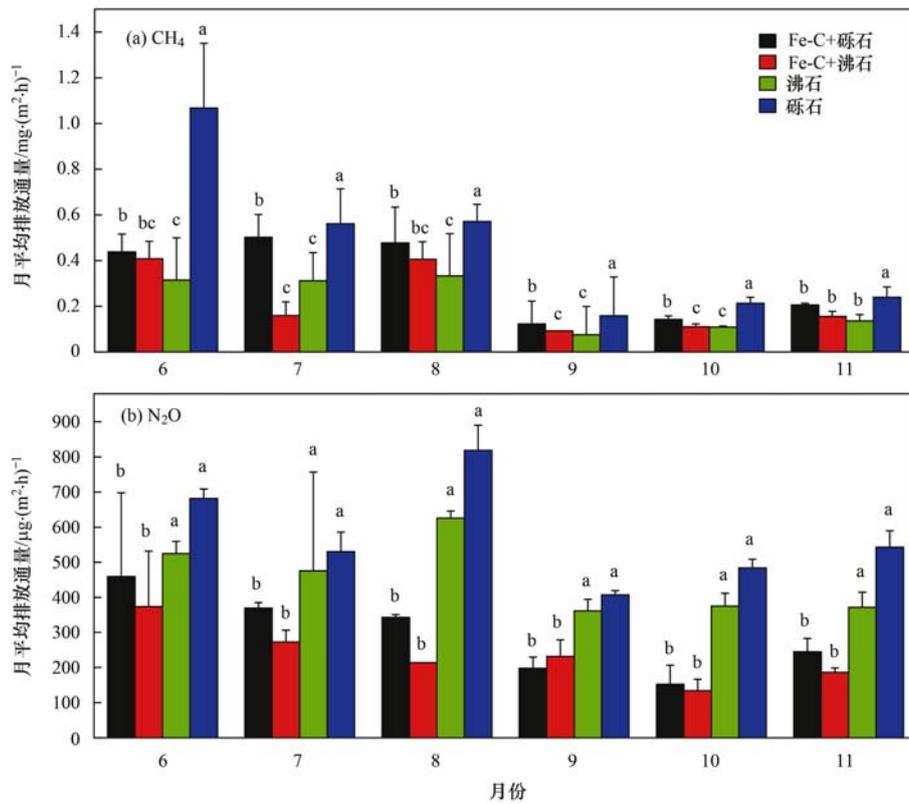


图2 曝气人工湿地系统 COD、TN、NH₄⁺ 和 NO₃⁻ 的去除率

Fig. 2 Changes of the removal rates of COD, TN, NH₄⁺, and NO₃⁻ of different constructed wetlands



不同小写字母表示不同人工湿地中温室气体月平均排放通量存在显著差异 ($P < 0.05$)

图3 稳定运行期间不同人工湿地中 CH₄ 和 N₂O 的月平均排放通量

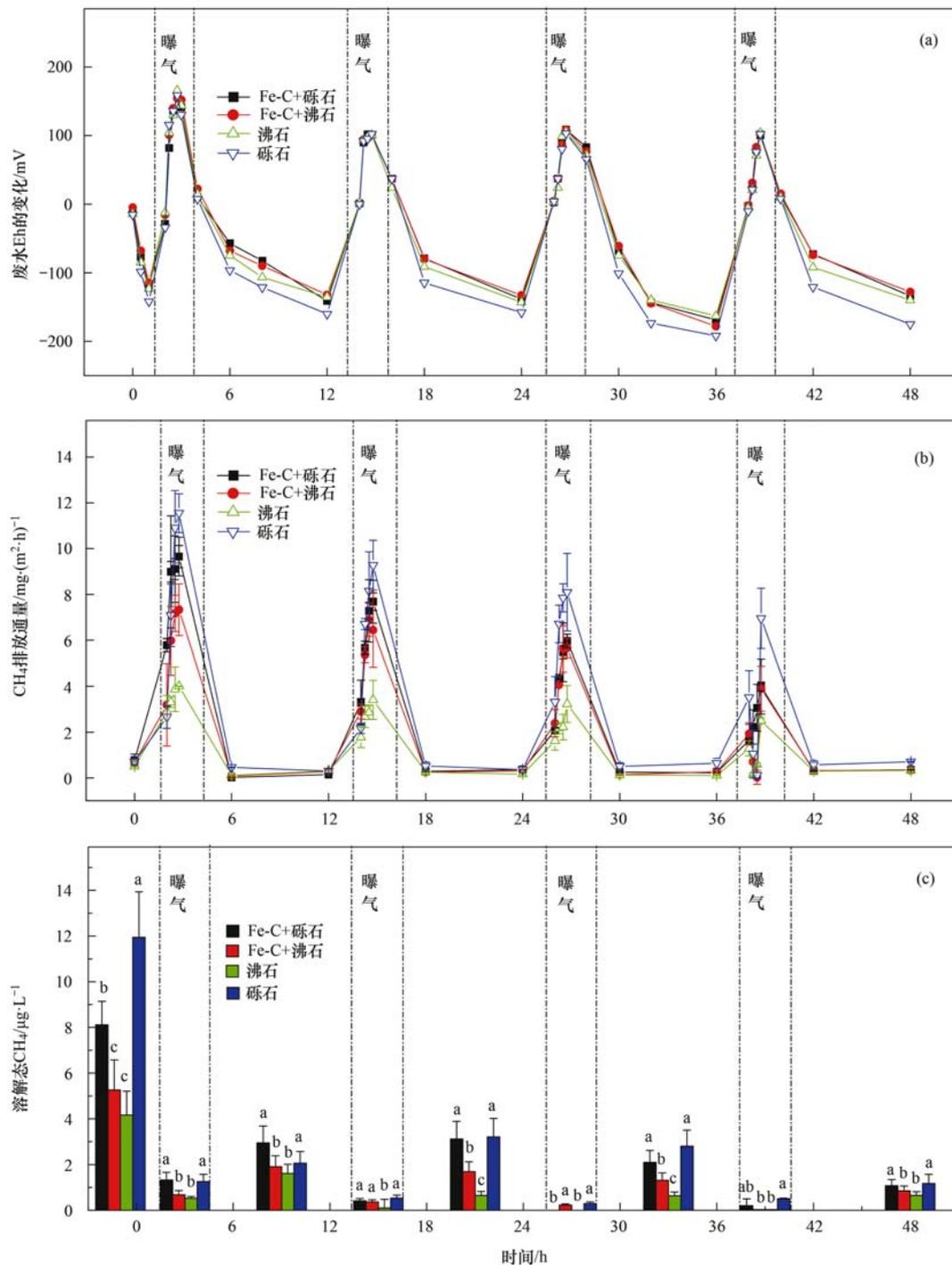
Fig. 3 Monthly mean fluxes of CH₄ and N₂O in different constructed wetlands during the stable operation period

料对 N₂O 的减排作用达到显著性水平. 此外, 与 CH₄ 排放情况相似, 4 组人工湿地夏季(6~8 月) 排放的 N₂O 均高于秋季(9~10 月).

2.3 不同人工湿地中典型周期内 CH₄ 的排放规律
各湿地 CH₄ 排放通量的变化规律基本一致, 在非曝气段的 CH₄ 排放通量较低, 在 0.2 ~ 0.6

$\text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ 之间, 而曝气使各湿地系统 CH_4 排放通量显著升高并出现明显的排放峰[图 4(b)]. 在整个典型周期内, 湿地 I、II 和 III 的 CH_4 累积排放量比湿地 IV 分别低 20.81% ($P < 0.05$)、26.00% ($P < 0.05$) 和 49.92% ($P < 0.05$) (表 2), 且在典型周期内, 湿地 I、II、III 和 IV 的 CH_4 排放通量的平均峰值分别为 (6.82 ± 1.21) 、 (5.83 ± 0.73) 、 (3.29 ± 0.31) 和 $(8.97 \pm 0.98) \text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$. 可见, 湿地 III 对

CH_4 排放的减排效果最优, 且在曝气段减排效果更加显著. 图 4(c) 反映了在曝气段及非曝气段末端溶解态 CH_4 的浓度, 与 CH_4 排放通量不同, 溶解态 CH_4 的浓度在非曝气段末端明显高于曝气段末端. 整体来看, 4 组湿地中溶解态 CH_4 的浓度均随着时间在减少, 尤其在典型周期的后期曝气段末端已基本检测不出溶解态 CH_4 . 此外, 添加沸石的湿地 II 和 III 中所含的溶解态 CH_4 显著低于湿地 I 和 IV ($P < 0.05$).



不同小写字母表示不同人工湿地中溶解态 CH_4 浓度存在显著差异 ($P < 0.05$)

图 4 典型周期内不同人工湿地 Eh、 CH_4 排放通量和溶解态 CH_4 浓度的变化

Fig. 4 Changes of Eh, CH_4 fluxes, and dissolved CH_4 content in different constructed wetlands during the typical period

表 2 典型周期内人工湿地 CH₄ 及 N₂O 的排放量及综合 GWP¹⁾
Table 2 CH₄ and N₂O emissions and integrated GWP in the typical cycle

类型	CH ₄ /mg·m ⁻²	GWP-CH ₄ (以 CO ₂ -eq 计)/g·m ⁻²	N ₂ O /mg·m ⁻²	GWP-N ₂ O (以 CO ₂ -eq 计)/g·m ⁻²	GWP(CH ₄ + N ₂ O) (以 CO ₂ -eq 计)/g·m ⁻²
湿地 I	79.29 ± 0.65b	2.70 ± 0.03	276.88 ± 10.58b	82.51 ± 1.25	85.21 ± 6.48b
湿地 II	74.09 ± 0.52b	2.52 ± 0.03	156.78 ± 7.40b	46.72 ± 0.68	49.24 ± 3.52b
湿地 III	50.14 ± 0.27c	1.70 ± 0.02	423.74 ± 26.36a	126.27 ± 2.20	127.97 ± 11.44a
湿地 IV	100.12 ± 0.74a	3.40 ± 0.04	448.75 ± 26.95a	133.73 ± 2.25	137.13 ± 11.45a

1) 不同小写字母表示在不同人工湿地间差异显著 ($P < 0.05$)

2.4 不同人工湿地典型周期内 N₂O 的排放规律

与 CH₄ 排放通量相似,非曝气段各湿地 N₂O 排放通量较低,均保持在 1 000 μg·(m²·h)⁻¹ 左右;曝气时各人工湿地 N₂O 排放通量显著上升,出现峰值.与湿地中 NO₂⁻-N 浓度的变化类似,典型周期初期出现极高的 N₂O 排放峰值,此后曝气段的 N₂O 排放峰值逐渐降低(图 5).在整个典型周期内,各湿地通过 N₂O 排放去除的氮分别占系统总氮去除的 0.22%、0.12%、0.36% 和 0.41%.与湿地 IV 相比,湿地 I 和 II 分别减少了 38.02% ($P < 0.05$) 和 64.91% ($P < 0.05$) 的 N₂O 累积排放量,湿地 III 对 N₂O 的减排效果不明显(表 2).图 5(c) 为典型周期内曝气段和非曝气段末端溶解态 N₂O 的浓度,可以看出,典型周期前期曝气段和非曝气段溶解态 N₂O 浓度均较高,在典型周期内前 24 h,4 组人工湿地溶解态 N₂O 浓度的变化范围为 (7.15 ± 1.19) ~ (993.61 ± 165.60) μg·L⁻¹.而 24 h 后溶解态 N₂O 的浓度明显减少,仅为 (1.17 ± 0.19) ~ (62.29 ± 10.51) μg·L⁻¹.另外,整体而言曝气段溶解态 N₂O 的浓度低于非曝气段,且湿地 I 和 II 中溶解态 N₂O 浓度低于湿地 III 和 IV ($P < 0.05$).

2.5 曝气人工湿地典型周期内 CH₄ 和 N₂O 的综合 GWP

如表 2,对于综合 GWP 而言,与仅添加砾石的常规人工湿地 IV 相比,湿地 I、II 和 III 的综合 GWP 分别降低了 37.86% ($P < 0.05$)、64.09% ($P < 0.05$) 和 6.68% ($P > 0.05$).N₂O 对综合 GWP 的贡献率为 94.88% ~ 98.67%,而 CH₄ 的贡献率仅为 1.33% ~ 5.12%.典型周期内湿地 III 所排放的 CH₄ 最少 ($P < 0.05$),湿地 II 的 N₂O 排放量低于其他湿地系统 ($P < 0.05$).湿地 II 的综合 GWP 仅为 (49.24 ± 3.52) g·m⁻² (以 CO₂-eq 计),其综合减排效果最好.

3 讨论

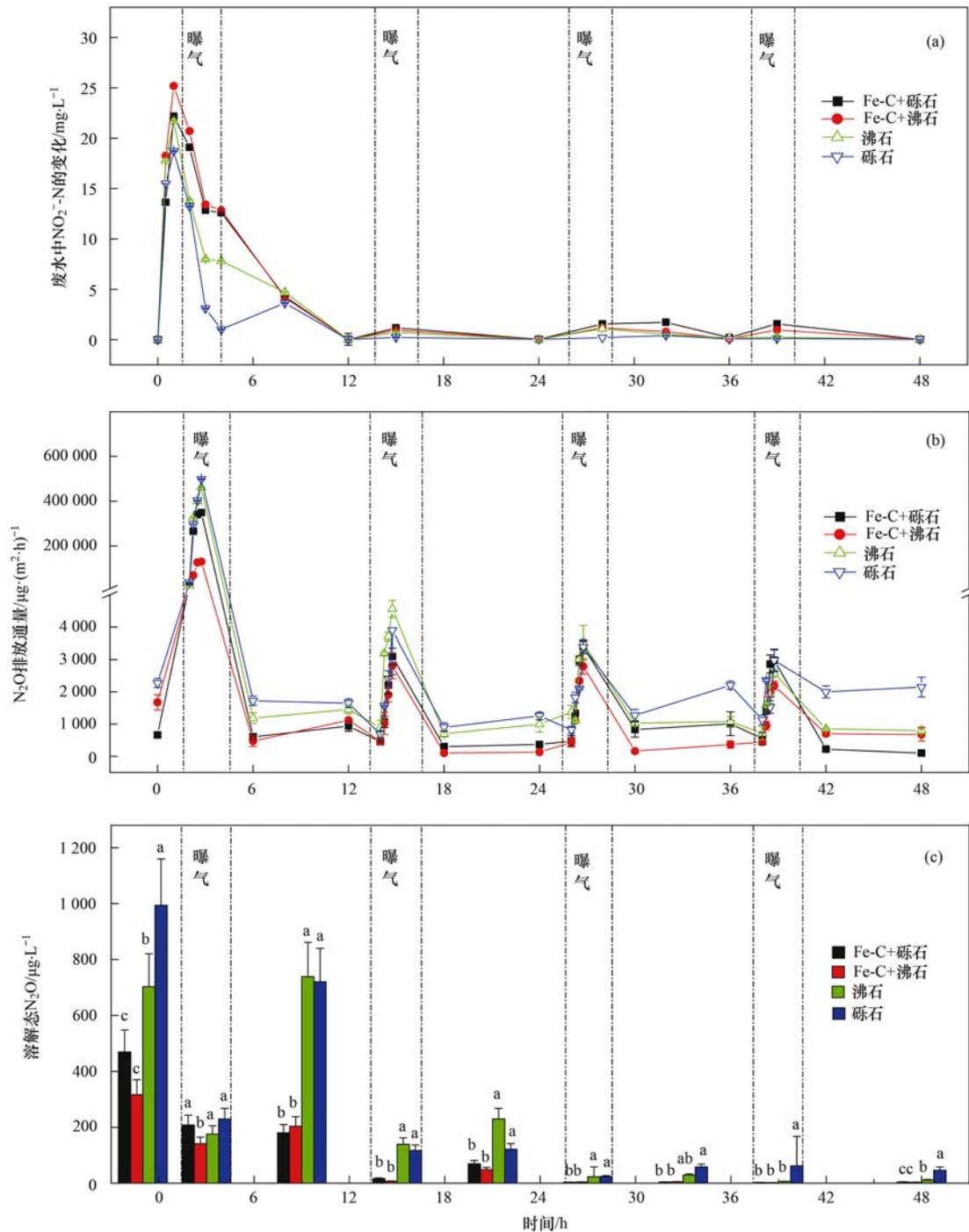
3.1 不同湿地对间歇曝气人工湿地污水处理效果的影响

有研究表明,中性环境中铁碳微电解的阴极反

应会生成大量的 OH⁻[11],导致湿地 I 和 II 出水的 pH 高于湿地 III 和 IV.本研究中,各湿地出水处于缺氧状态,与已有的研究结果类似[25],铁碳微电解填料具有提高系统 DO 的作用,一方面是由于铁碳填料促进根系泌氧,另一方面是由于系统内存在的 Fe³⁺ 能够将一部分有机物氧化[26],且进水中大量的 NO₃⁻ 可以氧化 Fe 或 Fe²⁺[27,28],这些过程都减少了污水中氧化反应的 DO 消耗.由于曝气改善了湿地系统的溶解氧环境,本研究中各组湿地对 COD 的去除效果均较好.有研究表明,人工湿地中 DO 的浓度是影响 NH₄⁺ 去除的关键[29],铁碳微电解提高了湿地系统的 DO(表 1),因此湿地 I 和 II 提升了 NH₄⁺-N 的处理效果.湿地 III 提高 NH₄⁺-N 去除率的主要原因是因为沸石独特的晶体结构,环境中存在的大量 NH₄⁺ 可以通过离子交换作用进入沸石骨架,而将沸石铝氧四面体结构中原有的金属离子交换出去,从而去除了水中的 NH₄⁺[30,31].铁碳微电解填料能够促进 NO₃⁻-N 的去除主要由于 3 个方面原因:首先,铁碳微电解填料形成的微观原电池系统产生大量电子还原 NO₃⁻[7];其次,铁碳微电解填料促使大分子有机物转化为小分子有机物,能够为反硝化作用提供一定的碳源[8],进而促进 NO₃⁻ 的还原[7];第三,Fe²⁺ 和 Fe³⁺ 可以提高微生物活性,尤其是显著提高了反硝化功能基因的丰度[7],进一步提升脱氮效率[32].

3.2 不同湿地对间歇曝气人工湿地 CH₄ 的影响

本研究中,4 组人工湿地系统 CH₄ 平均排放通量在 0.21 ~ 0.47 mg·(m²·h)⁻¹ 之间,与文献[33,34]在曝气人工湿地系统中测得的 CH₄ 排放通量的结果类似.但也有研究的结果显示,潜流人工湿地系统的 CH₄ 排放通量范围在 1.36 ~ 2.86 mg·(m²·h)⁻¹[35] 或 9.26 ~ 35.30 mg·(m²·h)⁻¹[6],远高于本研究中 CH₄ 的排放通量,主要原因是湿地系统中的碳源以及溶解氧环境不同造成的.有研究表明,不同人工湿地中的碳和氧气的可用性在时间和空间上各不相同,造成 CH₄ 排放的巨大差异,其排放通量变化在 -18.33 ~ 1 847.22 mg·(m²·h)⁻¹



不同小写字母表示不同人工湿地中溶解态 N_2O 浓度存在显著差异 ($P < 0.05$)

图5 典型周期内不同人工湿地 NO_2^- -N 浓度、 N_2O 排放通量和溶解态 N_2O 浓度的变化

Fig. 5 Changes in NO_2^- -N content, N_2O fluxes, and dissolved N_2O content in different constructed wetlands during the typical period

之间^[34].

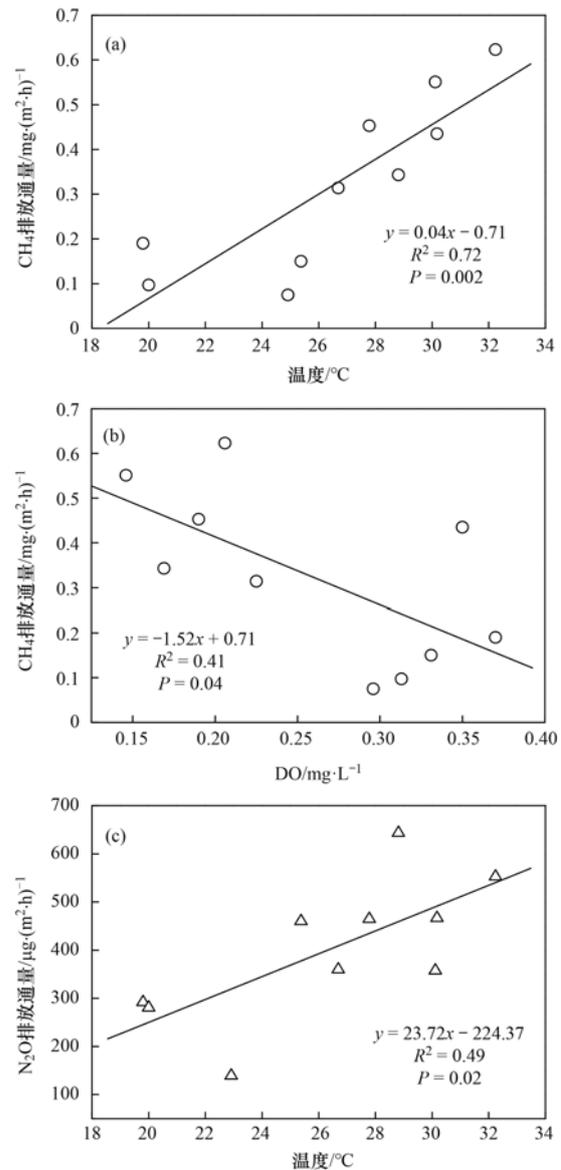
与湿地Ⅳ相比,添加铁碳微电解填料和沸石都显著减少了 CH_4 的排放.铁碳微电解填料主要通过抑制 CH_4 的产生和促进 CH_4 的氧化来实现 CH_4 减排,一方面,有研究表明铁碳填料对有机物的有效去除减少了产生 CH_4 的底物^[13];且由于 Fe^{3+} 的存在,系统中有大量的铁还原菌也会与产甲烷菌竞争有机酸或氢气等底物,进而抑制了 CH_4 的产生过程^[36].

另一方面,作为电子受体的 Fe^{3+} 具有极高的氧化还原电位^[14],使得甲烷厌氧氧化更易发生,实现了 CH_4 的厌氧氧化^[37];此外,由表1可以看出,湿地Ⅰ和Ⅱ的溶解氧(DO)浓度显著高于湿地Ⅳ($P < 0.05$),而产甲烷菌在严格的厌氧条件下产生 CH_4 ^[38],且DO与 CH_4 的产生速率呈负相关关系[图6(b)];再者,活性炭较大的表面积有利于生物膜的形成^[39],一定程度上可以加速 CH_4 的氧化.对

于沸石而言,具有独特晶体结构的沸石是一种性能极佳的气体吸附材料,很多研究都表明沸石是具有吸附贮存 CH_4 的功能^[40]. 另外,有研究表明,沸石减排 CH_4 的原因在于沸石的多孔结构为改善局部的溶解氧环境提供了可能,促进了 CH_4 的氧化^[41]; 且沸石的添加减少了产甲烷古菌的数量,阻碍了 CH_4 的产生^[41]. 本实验结果表明,仅添加沸石的湿地系统对 CH_4 的减排效果更好,一方面可能是由于在本研究中沸石对 CH_4 吸附贮存作用超过了铁碳填料对 CH_4 的减排作用,另一方面也可能是因为两种基质的混合影响了系统内的微生物群落结构,进一步对 CH_4 的释放产生了一定的影响.

本研究中 CH_4 的月平均排放通量存在显著的季节差异,夏季 CH_4 的排放量较高,其原因主要在于环境温度的变化. 本研究中 CH_4 排放通量与温度呈显著正相关关系[图 6(a)],这与 Bateganya 等^[42] 在垂直潜流人工湿地中的结论一致. 在夏季,除 CH_4 排放量较高之外,湿地 I、II 和 III 对 CH_4 的减排效果也高于秋季,这可能是由于秋季湿地 IV 中产甲烷菌活性随温度的降低而降低,以及随着实验的进行沸石的吸附能力逐渐减弱所导致的.

有研究表明, CH_4 主要在厌氧阶段产生,一般认为当环境氧化还原电位(Eh)低于 -150 mV 时,产甲烷菌的活性显著增强进而释放大量的 CH_4 ^[43],当湿地 Eh 高于 50 mV 时, CH_4 停止产生^[4]. 本研究中,4 组湿地非曝气段最低 Eh 值分别为 -169 、 -178 、 -163 和 -192 mV ,曝气段 Eh 峰值均超过 100 mV [图 4(a)],因此, CH_4 产生主要出现在非曝气段,而好氧阶段出现的 CH_4 排放现象主要是靠曝气搅动吹脱实现的^[44]. 曝气时,湿地系统不再产生 CH_4 ,此前产生的溶解态 CH_4 被吹脱至大气环境中,导致 CH_4 排放通量出现峰值且曝气段末端溶解态 CH_4 显著减少(图 4). 有研究表明,曝气段 CH_4 排放量仅与曝气强度和溶解态 CH_4 的浓度有关^[45],本研究各湿地系统曝气强度一致,因此,造成曝气段不同湿地 CH_4 排放量出现差异的原因主要是溶解态 CH_4 的浓度. 在厌氧阶段,如前所述,湿地 I、II 和 III 中的铁碳和沸石均有改善溶解氧环境的作用,因而湿地 IV 中的 Eh 值显著低于其他 3 组湿地 [$P < 0.05$, 图 4(a)],由于 Eh 越低,产 CH_4 的速率越快^[46],湿地 IV 中存在的溶解态 CH_4 高于湿地 I、II 和 III [图 4(c)]. 因此,曝气段湿地 I、II 和 III 中 CH_4 排放通量低于湿地 IV. 本研究中,添加沸石的湿地 II 和 III 对 CH_4 的减排效果更明显 ($P < 0.05$, 图 4),但由于自然界中沸石的种类众多,每种沸石都有自身独特的



(a) CH_4 排放通量与温度的相关关系; (b) CH_4 排放通量与 DO 的相关关系; (c) N_2O 排放通量与温度的相关关系

图 6 CH_4 排放通量与温度及 DO 的相关关系和 N_2O 排放通量与温度的相关关系

Fig. 6 Correlation between CH_4 fluxes, temperature, and DO and between N_2O fluxes and temperature

结构,对各种分子、离子的选择性也不尽相同. 因此关于沸石对 CH_4 减排的具体机制还有待进一步研究. 另外,典型周期后期有机物含量的不足成为制约 CH_4 产生的主要影响因素^[45],因此 CH_4 排放量和溶解态 CH_4 浓度都随时间逐渐减少.

3.3 不同湿地对曝气人工湿地 N_2O 产生的影响

在人工湿地中各种环境条件主要通过影响参与硝化-反硝化过程的酶活性进一步对 N_2O 的排放产生影响,硝化-反硝化过程的不彻底会产生大量 N_2O ^[19]. 本研究中添加铁碳微电解填料的湿地和未添加铁碳填料的湿地中 N_2O 的平均排放通量分别

为 $271.65 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$ 和 $516.51 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$, N_2O 排放通量变化在现有研究关于人工湿地 N_2O 排放量的范围内 [$-0.92 \sim 6.29 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$]^[34]. 此外,有研究发现经铁碳强化的人工湿地 N_2O 排放量为 $231.78 \sim 246.19 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$,无铁碳强化湿地系统的 N_2O 排放量为 $345.71 \sim 440.65 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$ ^[47],与本研究的结果接近.

有研究表明,出水 TN 浓度越低,气态 N_2O 释放越少^[48],本研究中湿地 I、II 和 III 出水中的 TN 浓度显著低于湿地 IV (表 1),因此排放的 N_2O 也较少. 其中,铁碳微电解填料显著减少了 N_2O 排放,与已有相关研究的结论一致^[5,47]. 其原因主要在于铁碳不仅能够通过化学过程还原硝态氮,还能够促进微生物异养反硝化的完全进行并实现微生物的自养反硝化^[12]. 首先, $\text{NO}_3^-/\text{NO}_2^-$ 利用微电解系统中阳极产生的电子可以直接通过化学过程被还原为 N_2 ^[8]; 其次,铁碳对大分子有机物具有极强的分解能力,大大提高了微生物异养反硝化过程中碳源的利用率,促进了反硝化的完全进行^[7]; 同时,铁作为电子供体实现了微生物的自养反硝化^[11],进而减少了 N_2O 的产生. 另外,还有研究表明,铁碳微电解显著促进了脱氮微生物的富集,铁碳人工湿地中硝化和反硝化微生物占微生物总量的 7.13%,是普通人工湿地的 8.7 倍^[49],此外, Fe^{3+} 的存在会使 N_2O 的还原速率大于 NO_2^- 的还原速率^[46],且由于存在铁碳微电解的系统中 DO 浓度更高,氨氧化细菌(AOB)的好氧反硝化过程被抑制,也会进一步减少 N_2O 的释放.

与已有的研究结果类似^[19],本研究中夏季 4 组人工湿地 N_2O 的排放高于冬季,这是由于温度能够通过影响硝化和反硝化过程来影响 N_2O 的释放. 一般来说 N_2O 排放通量与环境温度呈正相关关系[图 6(c)]. 有研究证明,较高的温度会引起硝化过程中大量 NO_2^- 的积累,进而造成 N_2O 的释放^[45]. 另外,夏季植物代谢旺盛,强烈的呼吸作用减少了环境中 DO 的浓度,进而加强了反硝化作用,产生较多的 N_2O .

在典型周期内,曝气段 N_2O 的排放通量明显高于非曝气段,相反,非曝气段末端的溶解态 N_2O 浓度高于曝气段(图 5). 首先,与 CH_4 类似,曝气时的吹脱作用极大程度地将溶解态的气体带入大气中; 其次,曝气段 DO 的迅速升高抑制了氧化亚氮还原酶(Nos)的活性,造成了 N_2O 的大量释放^[50]. 反应初期, N_2O 的排放峰值以及溶解态 N_2O 的浓度均较

高,这是因为在反应初期微生物好氧分解有机物导致系统 DO 迅速下降,此时 NO_3^- 被还原,造成大量 NO_2^- 的积累[图 5(a)],而 NO_2^- 的积累是造成溶解态 N_2O 产量增加的重要原因^[51]. 此外,硝化过程中较低的 DO 导致硝化细菌的反硝化也会产生大量 N_2O ^[52]. 又因反应初期积累了较多的溶解态 N_2O ,这些溶解的 N_2O 在第一次曝气过程中被吹脱至大气中,最终导致极高的 N_2O 排放峰值. 此后,随着系统中硝化和反硝化反应的持续进行,TN 的浓度减少,系统中缺少了硝化-反硝化过程所需的底物,使得曝气段 N_2O 的峰值和溶解态 N_2O 的浓度均逐渐降低.

4 结论

(1) 与仅以砾石为基质的传统人工湿地相比,以铁碳微电解填料和沸石为基质的湿地系统脱氮效果较好,总氮的去除率平均提高了 3.57%~9.26%,其中氨氮的去除率达 70% 以上,添加铁碳微电解填料的湿地中硝态氮的去除率高达 99%.

(2) 与仅以砾石为基质的传统人工湿地相比,以铁碳微电解填料和沸石为基质的曝气人工湿地系统 CH_4 排放减少了 32.81%~54.50%,其中沸石对人工湿地 CH_4 的减排效果更为突出; 铁碳微电解填料显著减少了人工湿地 30.29%~73.87% 的 N_2O 排放,并显著降低了湿地系统 N_2O 释放占脱氮总量的百分比.

(3) 同时添加铁碳微电解和沸石填料的间歇曝气人工湿地系统的脱氮效果最好且综合 GWP 最低,是一种综合性能较优的人工湿地基质填料组合方式.

参考文献:

- [1] Huang X, Yang X M, Zhu J, et al. Microbial interspecific interaction and nitrogen metabolism pathway for the treatment of municipal wastewater by iron carbon based constructed wetland [J]. Bioresource Technology, 2020, **315**, doi: 10.1016/j.biortech.2020.123814.
- [2] Mander Ü, Dotro G, Ebie Y, et al. Greenhouse gas emission in constructed wetlands for wastewater treatment: a review [J]. Ecological Engineering, 2014, **66**: 19-35.
- [3] 郝晓地,孟祥挺,胡沅胜. 人工湿地温室气体释放、影响及其控制[J]. 中国给水排水, 2016, **32**(22): 39-47.
Hao X D, Meng X T, Hu Y S. Emissions, influence and control of greenhouse gases in constructed wetlands[J]. China Water & Wastewater, 2016, **32**(22): 39-47.
- [4] 张馨文. 尾气增氧人工湿地污染物强化去除机制及其氧化亚氮减排效能研究[D]. 济南: 山东大学, 2018.
Zhang X W. Study on mechanism of pollutants removal enhancement and efficiency of nitrous oxide reduction in constructed wetlands aerated with waste gas [D]. Ji'nan: Shandong University, 2018.
- [5] Jia L X, Liu H, Kong Q, et al. Interactions of high-rate nitrate reduction and heavy metal mitigation in iron-carbon-based

- constructed wetlands for purifying contaminated groundwater[J]. *Water Research*, 2020, **169**, doi: 10.1016/j.watres.2019.115285.
- [6] 陈世杰. 赤铁矿和生物炭对潜流人工湿地污水处理效果及 N₂O 和 CH₄ 排放的影响[D]. 重庆: 西南大学, 2020.
Chen S J. Effect of hematite and biochar on the treatment of sewage and the control of N₂O and CH₄ in horizontal subsurface flow constructed wetland[D]. Chongqing: Southwest University, 2020.
- [7] 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.
- [8] Peng S, Kong Q, Deng S H, *et al.* Application potential of simultaneous nitrification/Fe⁰-supported autotrophic denitrification (SNAD) based on iron-scrap and micro-electrolysis[J]. *Science of the Total Environment*, 2020, **711**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2019.135087.
- [9] Zheng X Y, Jin M Q, Zhou X, *et al.* Enhanced removal mechanism of iron carbon micro-electrolysis constructed wetland on C, N, and P in salty permitted effluent of wastewater treatment plant[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **649**: 21-30.
- [10] Zhou Q W, Zhu H, Bañuelos G, *et al.* Impacts of vegetation and temperature on the treatment of domestic sewage in constructed wetlands incorporated with Ferric-Carbon micro-electrolysis material[J]. *International Journal of Phytoremediation*, 2017, **19**(10): 915-924.
- [11] Deng S H, Li D S, Yang X, *et al.* Biological denitrification process based on the Fe(0)-carbon micro-electrolysis for simultaneous ammonia and nitrate removal from low organic carbon water under a microaerobic condition[J]. *Bioresource Technology*, 2016, **219**: 677-686.
- [12] Xing W, Li D S, Li J L, *et al.* Nitrate removal and microbial analysis by combined micro-electrolysis and autotrophic denitrification[J]. *Bioresource Technology*, 2016, **211**: 240-247.
- [13] 郑婧. 铁碳微电解处理高浓度酒精废水研究[D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2007.
Zheng J. Research of ferric-carbon microelectrolysis treatment on high-density alcohol wastewater[D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 2007.
- [14] 马宏璞. 锰矿物驱动湿地甲烷消减及甲烷厌氧氧化研究[D]. 重庆: 重庆大学, 2019.
Ma H P. Reduction of methane in wetland system and anaerobic oxidation of methane driven by manganese ore[D]. Chongqing: Chongqing University, 2019.
- [15] Norði K Á, Thamdrup B, Schubert C J. Anaerobic oxidation of methane in an iron-rich Danish freshwater lake sediment[J]. *Limnology and Oceanography*, 2013, **58**(2): 546-554.
- [16] Pangala S R, Reay D S, Heal K V. Mitigation of methane emissions from constructed farm wetlands[J]. *Chemosphere*, 2010, **78**(5): 493-499.
- [17] Zhou X, Gao L, Zhang H, *et al.* Determination of the optimal aeration for nitrogen removal in biochar-amended aerated vertical flow constructed wetlands[J]. *Bioresource Technology*, 2018, **261**: 461-464.
- [18] 周旭. 生物炭联合曝气强化人工湿地处理低碳氮比污水的效能及其过程研究[D]. 杨凌: 西北农林科技大学, 2018.
Zhou X. Enhancement of nitrogen removal of low C/N wastewater using a biochar-amended aerated vertical flow constructed wetland [D]. Yangling: Northwest A&F University, 2018.
- [19] 程呈. 人工湿地系统中甲烷和氧化亚氮的同步消减及机制研究[D]. 济南: 山东大学, 2012.
Cheng C. Research on simultaneous reduction and mechanisms of methane and nitrous oxide [D]. Ji'nan: Shandong University, 2012.
- [20] 吕婉琳. 生物炭对潜流人工湿地 N₂O 排放的影响机理研究[D]. 重庆: 西南大学, 2018.
Lv W L. Influences of biochar on N₂O emissions in subsurface flow constructed wetland[D]. Chongqing: Southwest University, 2018.
- [21] Hao Q J, Jiang C S, Chai X S, *et al.* Drainage, no-tillage and crop rotation decreases annual cumulative emissions of methane and nitrous oxide from a rice field in Southwest China [J]. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 2016, **233**: 270-281.
- [22] 王宁, 黄磊, 罗星, 等. 生物炭添加对曝气人工湿地脱氮及氧化亚氮释放的影响[J]. *环境科学*, 2018, **39**(10): 4505-4511.
Wang N, Huang L, Luo X, *et al.* Impact of biochar on nitrogen removal and nitrous oxide emission in aerated vertical flow constructed wetland [J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(10): 4505-4511.
- [23] Wang Y S, Wang Y H. Quick measurement of CH₄, CO₂ and N₂O emissions from a short-plant ecosystem [J]. *Advances in Atmospheric Science*, 2003, **20**(5): 842-844.
- [24] IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change). Special report on emissions scenarios, a special report of Working Group III of the intergovernmental panel on climate change [M]. Cambridge University Press, 2013.
- [25] 陈欣, 祝惠, 阎百兴, 等. 铁碳微电解基质强化人工湿地污染物去除率的室内模拟实验[J]. *湿地科学*, 2018, **16**(5): 684-689.
Chen X, Zhu H, Yan B X, *et al.* Indoor simulation experiment on pollutant removal rates by micro-electrolysis material intensified constructed wetland[J]. *Wetland Science*, 2018, **16**(5): 684-689.
- [26] Song X S, Wang S Y, Wang Y H, *et al.* Addition of Fe²⁺ increase nitrate removal in vertical subsurface flow constructed wetland[J]. *Ecological Engineering*, 2016, **91**: 487-494.
- [27] Siantar D P, Schreier C G, Chou C S, *et al.* Treatment of 1, 2-dibromo-3-chloropropane and nitrate-contaminated water with zero-valent iron or hydrogen/palladium catalysts [J]. *Water Research*, 1996, **30**(10): 2315-2322.
- [28] Cheng H F, Xu W P, Liu J L, *et al.* Pretreatment of wastewater from triazine manufacturing by coagulation, electrolysis, and internal microelectrolysis [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2007, **146**(1-2): 385-392.
- [29] Pietikäinen J, Kiikkilä O, Fritze H. Charcoal as a habitat for microbes and its effect on the microbial community of the underlying humus[J]. *Oikos*, 2000, **89**(2): 231-242.
- [30] 贺银海. 沸石同步脱氮除磷功能调控及机理研究[D]. 北京: 北京科技大学, 2018.
He Y H. Study on the functional regulation and mechanism of simultaneous removal of nitrogen and phosphorus by natural zeolite [D]. Beijing: University of Science and Technology Beijing, 2018.
- [31] 陈彬. 沸石强化生物脱氮工艺试验研究[D]. 上海: 同济大学, 2006.
- [32] Zhang L, Zhang L X, Li D P. Enhanced dark fermentative hydrogen production by zero-valent iron activated carbon micro-electrolysis[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2015, **40**(36): 12201-12208.

- [33] Ji B H, Chen J Q, Mei J, *et al.* Roles of biochar media and oxygen supply strategies in treatment performance, greenhouse gas emissions, and bacterial community features of subsurface-flow constructed wetlands [J]. *Bioresource Technology*, 2020, **302**, doi: 10.1016/j.biortech.2020.122890.
- [34] Maltais-Landry G, Maranger R, Brisson J, *et al.* Greenhouse gas production and efficiency of planted and artificially aerated constructed wetlands [J]. *Environmental Pollution*, 2009, **157** (3): 748-754.
- [35] Yan C, Zhang H, Li B, *et al.* Effects of influent C/N ratios on CO₂ and CH₄ emissions from vertical subsurface flow constructed wetlands treating synthetic municipal wastewater [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2012, **203-204**: 188-194.
- [36] Jia W L, Wang Q, Zhang J, *et al.* Nutrients removal and nitrous oxide emission during simultaneous nitrification, denitrification, and phosphorus removal process: effect of iron [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2016, **23** (15): 15657-15664.
- [37] Bond D R, Lovley D R. Reduction of Fe(III) oxide by methanogens in the presence and absence of extracellular quinones [J]. *Environmental Microbiology*, 2002, **4** (2): 115-124.
- [38] Cakir F Y, Stenstrom M K. Greenhouse gas production: a comparison between aerobic and anaerobic wastewater treatment technology [J]. *Water Research*, 2005, **39** (17): 4197-4203.
- [39] 杨程. 沸石/活性炭复合材料的阳离子交换对甲烷/氮气吸附分离性能的影响 [D]. 太原: 太原理工大学, 2017.
- Yang C. Effect of cation exchange of zeolite activated carbon composite on CH₄/N₂ adsorption separation performance [D]. Taiyuan: Taiyuan University of Technology, 2017.
- [40] Ermoshin V A, Engel V. Construction of a potential energy surface for molecular dynamics studies of methane adsorbed in zeolites [J]. *The Journal of Physical Chemistry A*, 1999, **103** (26): 5116-5122.
- [41] 刘聪敏. 吸附法浓缩煤层气甲烷研究 [D]. 天津: 天津大学, 2010.
- Liu C M. Study on adsorptive enrichment of coalbed methane [D]. Tianjin: Tianjin University, 2010.
- [42] Bateganya N L, Mentler A, Langergraber G, *et al.* Carbon and nitrogen gaseous fluxes from subsurface flow wetland buffer strips at mesocosm scale in East Africa [J]. *Ecological Engineering*, 2015, **85**: 173-184.
- [43] 蔡祖聪, 沈光裕, 颜晓元, 等. 土壤质地、温度和 Eh 对稻田甲烷排放的影响 [J]. *土壤学报*, 1998, **35** (2): 145-154.
- Cai Z C, Shen G Y, Yan X Y, *et al.* Effects of soil texture, soil temperature and Eh on methane emissions from rice paddy fields [J]. *Acta Pedologica Sinica*, 1998, **35** (2): 145-154.
- [44] Liu Y, Cheng X, Lun X X, *et al.* CH₄ emission and conversion from A²O and SBR processes in full-scale wastewater treatment plants [J]. *Journal of Environmental Science*, 2014, **26** (1): 224-230.
- [45] 任延刚. A/A/O 工艺处理城市污水过程中温室气体的释放研究 [D]. 济南: 山东大学, 2013.
- Ren Y G. The greenhouse gases emissions in the municipal sewage treatment process by A/A/O [D]. Ji'nan: Shandong University, 2013.
- [46] 邹旭青, 郝庆菊, 赵茂森, 等. 铁矿石和生物炭添加对潜流人工湿地污水处理效果及温室气体排放的影响 [J]. *环境工程学报*, 2021, **15** (2): 589-599.
- Zou X Q, Hao Q J, Zhao M S, *et al.* Effects of hematite and biochar addition on sewage treatment and greenhouse gases emissions in subsurface flow constructed wetland [J]. *Chinese Journal of Environmental Engineering*, 2021, **15** (2): 589-599.
- [47] 沈友豪. 铁碳微电解对人工湿地脱氮除磷的强化效果研究 [D]. 济南: 山东大学, 2019.
- Shen Y H. A study of ferric-carbon micro-electrolysis process to enhance nitrogen and phosphorus removal efficiency in constructed wetlands [D]. Ji'nan: Shandong University, 2019.
- [48] 孙世昌. 城市污水处理典型工艺 N₂O 的释放特征及减排策略研究 [D]. 北京: 北京林业大学, 2014.
- Sun S C. Study on characteristics and reduction strategies of N₂O emission from typical urban wastewater treatment processes [D]. Beijing: Beijing Forestry University, 2014.
- [49] 郑晓英, 朱星, 王菊, 等. 内电解人工湿地冬季低温尾水强化脱氮机制 [J]. *环境科学*, 2018, **39** (2): 758-764.
- Zheng X Y, Zhu X, Wang J, *et al.* Mechanism on enhanced nitrogen removal in municipal secondary effluent via internal-electrolysis constructed wetlands at low temperature in winter [J]. *Environmental Science*, 2018, **39** (2): 758-764.
- [50] Mannina G, Ekama G A, Capodici M, *et al.* Influence of carbon to nitrogen ratio on nitrous oxide emission in an integrated fixed film activated sludge membrane bioreactor plant [J]. *Journal of Cleaner Production*, 2018, **176**: 1078-1090.
- [51] 李秀娟. 反硝化除磷脱氮工艺中 N₂O 的产生及减量化控制 [D]. 济南: 山东大学, 2012.
- Li X J. Research on the emission and reduction control of N₂O from denitrifying Phosphate removal system [D]. Ji'nan: Shandong University, 2012.
- [52] Hu Z, Zhang J, Xie H J, *et al.* Effect of anoxic/aerobic phase fraction on N₂O emission in a sequencing batch reactor under low temperature [J]. *Bioresource Technology*, 2011, **102** (9): 5486-5491.

CONTENTS

Transmission of Coronavirus via Aerosols and Influence of Environmental Conditions on Its Transmission	LI Xue, JIANG Jing-kun, WANG Dong-bin, <i>et al.</i> (3091)
Impacts of Meteorology and Emission Variations on PM _{2.5} Concentration Throughout the Country During the 2020 Epidemic Period	LU Shi-ze, SHI Xu-rong, XUE Wen-bo, <i>et al.</i> (3099)
Factors and Their Interaction Effects on the Distribution of PM _{2.5} in the Yangtze River Delta Based on Grids	HUANG Xiao-gang, ZHAO Jing-bo, XIN Wei-dong (3107)
Application of ARIMA Model for Mid- and Long-term Forecasting of Ozone Concentration	LI Ying-ruo, HAN Ting-ting, WANG Jun-xia, <i>et al.</i> (3118)
Pollution Characteristics and Sources of Wintertime Atmospheric Brown Carbon at a Background Site of the Yangtze River Delta Region in China	ZHAO Yu, WU Can, WANG Yi-qian, <i>et al.</i> (3127)
Spatio-temporal Variation Characteristics Monitored by Remotely Sensed Technique of PM _{2.5} Concentration and Its Influencing Factor Analysis in Sichuan Basin, China	LI Meng-zhen, ZHANG Ting-bin, YI Gui-hua, <i>et al.</i> (3136)
Construction of Continuous Dynamic Model for River Networks and Its Application in Simulation of Spatiotemporal Migration of Typical Biocides	XING Cheng, ZHANG Qian-qian, CAI Ya-ya, <i>et al.</i> (3147)
Response of Riverine Nitrogen Exports to Land Use Pattern and Hydrological Regime in the Jiulong River Watershed	HUANG Ya-ling, HUANG Jin-liang (3156)
Correlation Between Microplastics Pollution and Eutrophication in the Near Shore Waters of Dianchi Lake	YUAN Hai-ying, HOU Lei, LIANG Qi-bin, <i>et al.</i> (3166)
Analysis of Water Quality and Exchange Flux of Interstitial Water-Overlying Water in Sediments of Baiyangdian Entrance Area in Summer	ZHANG Tian-na, ZHOU Shi-lei, CHEN Zhao-ying, <i>et al.</i> (3176)
Distribution Characteristics and Pollution Evaluation of Nitrogen and Organic Matter in Overlying Water and Sediment of Guyun River and Jinshan Lake in Zhenjiang City	YUAN Lu-bin, XING Shu-yu, LIU Xin, <i>et al.</i> (3186)
Spatial Distribution Characteristics of Phosphorus Fractions and Release Risk in Sediments of Honghu International Importance Wetland	LIU Yong-jiu, HUANG Su-zhen, ZHANG Lu, <i>et al.</i> (3198)
Pollution Distribution and Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in River Sediments from the Ancient Town of Suzhou	BAI Dong-rui, ZHANG Tao, BAO Jun-song, <i>et al.</i> (3206)
Spatio-temporal Distribution Characteristic and Risk Assessment of Heavy Metals in Soils Around Centralized Drinking Water Sources in Wuhan	ZHU Jing, HOU Yao-zong, ZOU Shu-cheng, <i>et al.</i> (3215)
Hydro-chemical Characteristics and Ion Origin Analysis of Surface Groundwater at the Shengjin Lake and Yangtze River Interface	CUI Yu-huan, WANG Jie, LIU You-cun, <i>et al.</i> (3223)
Identifying the Sources of Groundwater NO ₃ ⁻ -N in Agricultural Region of Qingdao	KOU Xin-yue, DING Jun-jun, LI Yu-zhong, <i>et al.</i> (3232)
Analysis of Phytoplankton Community Stability and Influencing Factors in a Tributary of the Three Gorges Reservoir	HE Shu-han, OUYANG Tian, ZHAO Lu, <i>et al.</i> (3242)
Distribution Characteristics and Influencing Factors of Phytoplankton Community in Harbin Urban River Network During Wet Season	LU Feng, LI Lei, QI Qing-song, <i>et al.</i> (3253)
Response of Microbial Community to Natural Organic Matter Input in Lake Sediments	JU Qi, ZHANG Qi, CAO Chi-cheng, <i>et al.</i> (3263)
Effects of Water Supply Quality and Social Activity on the Microbial Community in Baiyangdian Wetland	ZHAO Zhi-rui, WU Hui-qing, BI Yu-fang, <i>et al.</i> (3272)
Characteristics of Dissolved Organic Matter in Overlying Water During Algal Bloom Decay	LI Xiang, LI Zhi-chun, WANG Xuan, <i>et al.</i> (3281)
Water Pollution Characteristics and Source Apportionment in Rapid Urbanization Region of the Lower Yangtze River: Considering the Qinhuai River Catchment	MA Xiao-xue, GONG Chang, GUO Jia-xun, <i>et al.</i> (3291)
Contamination Characteristics of Surface Runoff in Densely Populated Areas in Downstream Yangtze River, China	GUO Wen-jing, ZHANG Zhi-yong, WEN Xue-zheng, <i>et al.</i> (3304)
Characteristics of Pollutant Dynamics Under Rainfall-Runoff Events in the Chaohe River Watershed	BAO Xin, JIANG Yan, HU Yu-cong (3316)
Influence of Impervious Surface Roughness on Accumulation and Erosion of Urban Non-Point Source Particles	SHAN Xi-huan, XIE Wen-xia, LIAO Yun-jie, <i>et al.</i> (3328)
Probabilistic Risk Assessment of Arsenic Exposure Through Drinking Water Intake in Chinese Residents	QIN Ning, LIU Yun-wei, HOU Rong, <i>et al.</i> (3338)
Removal Behavior of Protein-like Dissolved Organic Matter During Different Water Treatment Processes in Full-Scale Drinking Water Treatment Plants	LI Meng-ya, SONG Yu-ying, ZHANG Xiao-lan, <i>et al.</i> (3348)
Distribution of Heavy Metals and Their Corresponding Nanoparticles in Different Treatment Unit Processes in the Sewage Treatment Plant	WANG Du-jia, HE Shuai, ZHOU Xiao-xia (3358)
Metagenomic Analysis of Resistance Genes in Membrane Cleaning Sludge	DU Cai-li, LI Zhong-hong, LI Xiao-guang, <i>et al.</i> (3366)
Distribution and Removal of Antibiotic-Resistant Bacteria and Antibiotic Resistance Genes in Petrochemical Wastewater Treatment Plants	TANG Zhen-ping, XIAO Sha-sha, DUAN Yi, <i>et al.</i> (3375)
Treatment of Medium Ammonium Wastewater by Single-stage Partial Nitrification-ANAMMOX SMBBR	LÜ Kai, SHAO Xian-ming, WANG Kang-zhou, <i>et al.</i> (3385)
Two-Stage Denitrification Process Performance with Solid Slow-Release Carbon Source	TANG Yi, MA Yong-wen, WAN Jin-quan, <i>et al.</i> (3392)
Effect of Ozone Dosage on Sludge Settleability and Biological Nutrient Removal in SBR System	LÜ Yong-tao, ZHU Chuan-shou, ZHANG Xu-yang, <i>et al.</i> (3400)
First Extended Anaerobic Phase Enhanced Nitrogen and Phosphorus Removal by Aerobic Granular Sludge Under Intermittent Gradient Aeration	ZHANG Yu-jun, LI Dong, WANG Xin-xin, <i>et al.</i> (3405)
Effect of Rate of Salinity Increase on the Performance and Microbial Community Structure of Sequencing Batch Reactors	GU Bai-ming, JIN Chun-ji, WEN Chun, <i>et al.</i> (3413)
Effects of Cold Acclimation on the Activity of Autotrophic Nitrogen Removal in Granular Sludge and Its Bacterial Population Structure	QIAN Fei-yue, LIU Yu-xin, WANG Jian-fang, <i>et al.</i> (3422)
Stabilization of Heavy Metals in Municipal Sludge Using a Slag-Based Modifying Agent	ZHANG Fa-wen, DONG Ming-kun, CHEN Chen-hui, <i>et al.</i> (3430)
Role of Land Use Changes on Ammonia Emissions from Agricultural Ecosystems in the Yangtze River Delta Region from 2000 to 2018	WANG Wen-jin, WANG Qing, ZHU An-sheng, <i>et al.</i> (3442)
Effects of Wheat Straw Hydrochar and Its Modified Product on Rice Yield and Ammonia Volatilization from Paddy Fields	HAN Chen, HOU Peng-fu, XUE Li-hong, <i>et al.</i> (3451)
Effects of Water and Fertilization Management on CH ₄ and N ₂ O Emissions in Double-rice Paddy Fields in Tropical Regions	LI Jin-qiu, SHAO Xiao-hui, GOU Guang-lin, <i>et al.</i> (3458)
Community Characteristics of Methanogens and Methanogenic Pathways in Salt-tolerant Rice Soil	YANG Yu-hong, HE Hui, MI Tie-zhu, <i>et al.</i> (3472)
Effect of Ferric-carbon Micro-electrolysis on Greenhouse Gas Emissions from Constructed Wetlands	ZHAO Zhong-jing, HAO Qing-ju, TU Ting-ting, <i>et al.</i> (3482)
Screening and Evaluation of Methods for Determining Available Lead (Pb) and Cadmium (Cd) in Farmland Soil	CHEN Ying, LIU Han-yi, LIU Na, <i>et al.</i> (3494)
Spatial Distribution Trends and Influencing Factors of Typical Heavy Metals in Subtropical Alpine Forest Soils: A Case Study from Ailao Mountain in Yunnan Province	LIU Xu, WANG Xun, WANG Ding-yong (3507)
Environmental Background Values of Heavy Metals and Physicochemical Properties in Different Soils in Shenzhen	LIN Ting, ZHAO Shu-hua, XI Xiu-ping, <i>et al.</i> (3518)
Screening of Amendments for Simultaneous Cd and As Immobilization in Soil	ZHOU Si-jiang, LIU Zhen-yan, XIONG Shuang-lian, <i>et al.</i> (3527)
Simultaneous Immobilization of Arsenic, Lead, and Cadmium in Paddy Soils Using Two Iron-based Materials	YUAN Feng, TANG Xian-jin, WU Ji-zi, <i>et al.</i> (3535)
Pollution Characteristics of Organophosphate Esters in Frozen Soil on the Eastern Edge of Qinghai-Tibet Plateau	LIU Li-ya, YIN Hong-ling, JIAN Lin-jie, <i>et al.</i> (3549)
Analysis of Spatial Distribution and Influencing Factors of Nitrogen and Phosphorus Fertilizer Application Intensity in Chengdu Plain	LIU Qi-xin, WANG Chang-quan, LI Bing, <i>et al.</i> (3555)
Different Responses of Soil Dissolved Organic Matter to Different Types of Compost	XI Bei-dou, WANG Yan, TAN Wen-bing, <i>et al.</i> (3565)