

不同质量浓度硝态氮在潮白河模拟河床中去除效果研究

王西涵, 王莹, 刘云, 杨丽虎, 梁琼, 张茜茜, 王浚亦

引用本文:

王西涵, 王莹, 刘云, 等. 不同质量浓度硝态氮在潮白河模拟河床中去除效果研究[J]. *农业环境科学学报*, 2022, 41(1): 144-152.

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.11654/jaes.2021-0635>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

同步硝化反硝化菌(*Alcaligenes faecalis* WT14)养殖污水脱氮效果研究

陈均利, 张树楠, 戴桂金, 张苗苗, 吴金水, 刘锋

农业环境科学学报. 2020, 39(8): 1811-1817 <https://doi.org/10.11654/jaes.2020-0325>

养殖肥液不同灌溉强度下硝化-脲酶抑制剂-生物炭联合阻控氮淋溶的研究

杨涵博, 罗艳丽, 赵迪, 赖睿特, 张克强, 梁军锋, 沈丰菊, 王凤

农业环境科学学报. 2020, 39(10): 2363-2370 <https://doi.org/10.11654/jaes.2020-0471>

双氰胺减少铵态氮肥施用后潮土 N_2O 排放的机制

马兰, 李晓波, 马舒坦

农业环境科学学报. 2021, 40(12): 2801-2808 <https://doi.org/10.11654/jaes.2021-0459>

洱海北部表流人工湿地氮截留的长效性及影响因子

梁启斌, 侯磊, 李能发, 陈鑫, 王克勤

农业环境科学学报. 2020, 39(7): 1585-1593 <https://doi.org/10.11654/jaes.2019-1324>

黄腐酸改性膨润土对氮素淋失和氮肥利用率的影响

孔柏舒, 焦树英, 李永强, 沈玉文, 李焱, 张子胥, 付春雨

农业环境科学学报. 2020, 39(10): 2371-2379 <https://doi.org/10.11654/jaes.2020-0838>



关注微信公众号, 获得更多资讯信息

王西涵, 王莹, 刘云, 等. 不同质量浓度硝态氮在潮白河模拟河床中去除效果研究[J]. 农业环境科学学报, 2022, 41(1): 144-152.
WANG X H, WANG Y, LIU Y, et al. Removal effect of nitrate nitrogen at different concentrations in a simulated riverbed of the Chaobai River[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2022, 41(1): 144-152.



开放科学 OSID

不同质量浓度硝态氮在潮白河模拟河床中去除效果研究

王西涵^{1,2}, 王莹¹, 刘云^{1*}, 杨丽虎^{2*}, 梁琼¹, 张茜茜¹, 王浚亦¹

(1.北京农学院, 农业农村部华北都市农业重点实验室, 北京 102206; 2.中国科学院地理科学与资源研究所, 陆地水循环及地表过程院重点实验室, 北京 100101)

摘要:近年来再生水逐渐成为城市景观河流的主要用水来源,但再生水含有较高氮元素,容易造成水体与地下水污染。河床底泥对 NO_3^- -N有一定的截留与去除作用,本实验通过河槽装置模拟潮白河河床,探究低、中、高3种 NO_3^- -N质量浓度水平下河槽系统中底泥对 NO_3^- -N的去除效果。结果表明:水体中 NO_3^- -N质量浓度为5、10、20 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时 NO_3^- -N去除率分别为67.8%、63.0%、55.0%。河槽10 cm处和下部70 cm处对 NO_3^- -N去除效果较好。底层排出水中pH与 NO_3^- -N质量浓度相关性较强,底泥中50 cm与70 cm处反硝化作用强度与溶解氧质量浓度紧密相关;随着温度降低,溶解氧质量浓度升高,反硝化作用减弱, NO_3^- -N去除效果变差。底泥中 NO_3^- -N的去除主要通过土壤淋溶作用、同化作用、反硝化作用与异化还原作用等共同作用;部分氮素以同化作用形成的有机氮和异化还原作用形成的 NH_4^+ -N留存于底泥中。研究表明,河床底泥对再生水河道具有一定的净化效果。

关键词:再生水;模拟河床; NO_3^- -N; NO_2^- -N; NH_4^+ -N;去除效果

中图分类号:X52 文献标志码:A 文章编号:1672-2043(2022)01-0144-09 doi:10.11654/jaes.2021-0635

Removal effect of nitrate nitrogen at different concentrations in a simulated riverbed of the Chaobai River

WANG Xihan^{1,2}, WANG Ying¹, LIU Yun^{1*}, YANG Lihu^{2*}, LIANG Qiong¹, ZHANG Xiqi¹, WANG Junyi¹

(1.Key Laboratory for Northern Urban Agriculture of Ministry of Agriculture and Rural Affairs, Beijing University of Agriculture, Beijing 102206; 2. Key Laboratory of Water Cycle and Related Land Surface Processes, Institute of Geographic Sciences and Natural Resources Research, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100101, China)

Abstract: In recent years, reclaimed water has gradually become the primary water source for urban landscape rivers; however, reclaimed water contains high nitrogen contents, which can cause water and groundwater pollution. The riverbed sediment exhibits an interception and removal effect on NO_3^- -N. In this experiment, a channel device was used to simulate the riverbed of Chaobai River to explore the removal effect of the channel system on NO_3^- -N under three NO_3^- -N concentration levels: low, medium, and high. The results showed that the removal efficiencies of NO_3^- -N were 67.8%, 63.0%, and 55.0% when the concentrations of NO_3^- -N were 5, 10 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$, and 20 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$, respectively. The removal effect on NO_3^- -N was improved at 10 cm and 70 cm below the river channel, with a strong correlation between pH and NO_3^- -N concentration in the bottom effluent. The denitrification intensity at 50 cm and 70 cm in sediment was closely related to the

收稿日期:2021-06-02 录用日期:2021-08-16

作者简介:王西涵(1997—),女,北京人,硕士研究生,从事水环境生态方向的研究。E-mail:1242897934@qq.com

*通信作者:刘云 E-mail:housqly@126.com; 杨丽虎 E-mail:yanglihu@igsrr.ac.cn

基金项目:国家自然科学基金重点项目(41730749);北京市自然科学基金-教委联合重点项目(KZ201810020025);北京市自然科学基金项目(8192007);国家自然科学基金项目(40871232);北京高等学校高水平人才交叉培养实培计划大学生毕业设计(科研类)项目(PXM2020_014207_000009)

Project supported: The Key Program of the National Natural Science Foundation of China (41730749); The Natural Science Foundation-Joint Education Commission of Beijing, China(KZ201810020025); The Natural Science Foundation of Beijing, China(8192007); The National Natural Science Foundation of China (40871232); Graduation Project of Cross Training Program for High Level Talents in Beijing Universities (PXM2020_014207_000009)

concentration of dissolved oxygen. As the temperature decreased, the dissolved oxygen concentration increased, denitrification decreased, and the removal effect of NO_3^- -N worsened. The removal effect of NO_3^- -N was primarily caused by soil leaching, assimilation, denitrification, and dissimilatory reduction. Some nitrogen was retained in the sediment as organic nitrogen formed by assimilation and NH_4^+ -N produced by dissimilatory reduction. The study shows that the riverbed sediment exhibits a purification effect on the reclaimed water channel, which can provide a reference for the safe recharge of reclaimed water to rivers and lakes.

Keywords: reclaimed water; simulated river bed; NO_3^- -N; NO_2^- -N; NH_4^+ -N; removal efficiency

近年来城市化进程加剧导致水资源短缺,再生水逐渐成为城市景观河流的主要补给来源^[1]。与天然水相比,再生水含有氮、磷、重金属及有机污染物等,大量排进城市河流后,易引起河道污染^[2-3]。北京市潮白河-顺义段为再生水回补的天然河道,由城北减河入口的污水处理厂排入经过二级生化处理的再生水,其出水水质指标中总氮质量浓度高于地表水Ⅲ类水质标准,并主要以 NO_3^- -N 形式存在。 NO_3^- -N 是植物生长所需氮的主要来源,是水生植物生命活动的基础^[4-5]。而较高的 NO_3^- -N 会导致水体溶解氧降低,引起水中生物和植物的异常生长,造成水体富营养化,危害水体环境及水生态系统。同时,河水中污染物经过河床底泥进入地下水,对地下水水质有直接影响,进而对人体健康造成威胁^[6-7]。

河床底泥可视为一个渗滤系统,通过物理、化学和生物反应对再生水中污染物起到去除作用^[8]。潘维艳^[9]通过室内土柱实验得出 NO_3^- -N 质量浓度随水流方向逐渐下降,定流速补水下 NO_3^- -N 平均去除率高于 90%。吴振斌等^[10]的研究表明,复合垂直流人工湿地系统对 NO_3^- -N 的去除率为 56.96%。ASANO 等^[11]发现 NO_3^- -N 在河床沉积物中可发生异化还原及反硝化作用,使河岸渗滤系统对 NO_3^- -N 的去除率几乎达到 100%。闫雅妮等^[12]在室内设置地表水地下水交替实验装置,得出 NO_3^- -N 的衰减是同化合成有机氮、反硝化作用及异化还原作用的共同结果, NO_3^- -N 在底泥潜流带介质中通过吸附和微生物合成有机氮的方式被截留;随后其又以河岸带沉积物为实验对象,验证了上述的第一个理论^[13]。众多研究表明,污染物质量浓度、水力条件、温度、pH、溶解氧等对反硝化等作用均有影响^[14-16]。目前,有关不同 NO_3^- -N 质量浓度水平的研究相对较少。景观河道中污染程度和 NO_3^- -N 质量浓度不同,对环境的影响也不同。本实验主要探究不同 NO_3^- -N 质量浓度条件下,河道底泥对再生水中 NO_3^- -N 的净化能力,并简析 NO_3^- -N 的去除机制。

实验采用潮白河再生水补给河道河岸带土壤进行河槽实验,在改变外源输入 NO_3^- -N 质量浓度的情

况下,分析温度、pH 和溶解氧等因素的变化,探究河槽中 NO_3^- -N、 NO_2^- -N、 NH_4^+ -N 的质量浓度变化规律,讨论河道底泥沉积物对 NO_3^- -N 的去除效果及机制,为再生水安全利用提供数据支撑和理论支持。

1 材料与方法

1.1 实验材料

实验用土取自潮白河向阳闸附近河岸带的非表层土壤,取土深度为 10~100 cm,土样采集后剔除杂物,过 10 mm 筛,搅拌均匀后填入河槽,土壤中砂粒含量为 97.1%,粉粒和黏粒含量不足 3%。根据《土壤农化分析》^[17]测定土壤理化性质:pH 7.32, NO_3^- -N 4.58 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, NH_4^+ -N 2.66 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,有机质 5.32 $\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。实验用 NO_3^- -N 溶液用自来水配制,室内实验用水采用超纯水。

1.2 实验方法

1.2.1 实验设计

采用河槽模拟装置进行实验,示意图与实物图见图 1。河槽装置长 6 m、宽 0.8 m、高 1.2 m,以直径约为 10 mm 和 2.5 mm 的粗细石粒各铺底 5 cm,上方填装实验用土,厚度为 90 cm,模拟河流底泥构造。实验设置 3 个 NO_3^- -N 质量浓度水平,分别为 5、10、20 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。供试水样采用人工配制,在自来水中加入一定量的硝酸钾和醋酸钠配制 NO_3^- -N 溶液,C:N 为 2:1^[12]。用水泵将 NO_3^- -N 溶液通入河槽,调整河槽底部排水阀门,使流入与流出速率均为 150 $\text{mL}\cdot\text{min}^{-1}$,控制水头在底泥表层以上 5~10 cm。在 10、20、30、50 cm 和 70 cm 深度处放置由聚乙烯管和多孔陶瓷管组成的土壤溶液提取器^[18],采样时将聚乙烯管与密封瓶连接,用脚踏吸引器抽取瓶中空气,利用负压取水。5 个深度各设置 3 组平行,从进水与闸门排出的底层水取样,共 17 个采样点。

3 个 NO_3^- -N 质量浓度水平下,每个浓度 20 d 为一周期,前 10 d 每日取样,后 10 d 每 2 d 取一次样。第一周期(N1, NO_3^- -N 质量浓度为 5 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$)为 2019 年 8 月 23 日至 9 月 11 日,第二周期(N2, NO_3^- -N 质量浓度为

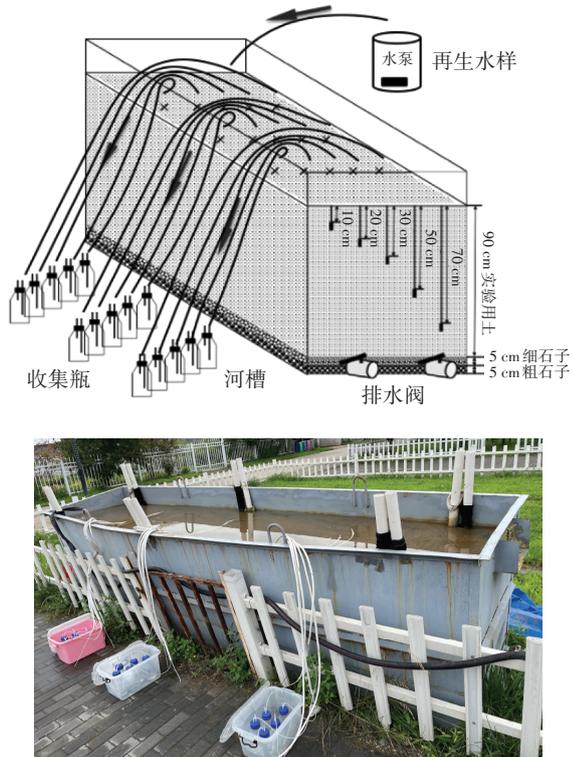


图1 河槽实验装置示意图和实物图

Figure 1 Schematic diagram and physical diagram of channel experimental device

NO_3^- -N 质量浓度为 $10 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$) 为 2019 年 9 月 16 日至 10 月 5 日, 第三周期 (N3, NO_3^- -N 质量浓度为 $20 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$) 为 2019 年 10 月 8 日至 10 月 27 日。测定指标为温度、pH、DO (溶解氧)、 NO_3^- -N、 NO_2^- -N 和 NH_4^+ -N。河槽露天放置在室外草坪中, 水样在室内进行测试分析。

1.2.2 分析方法

实验水体的水质指标检测参考国家环境保护局《水和废水监测分析方法》^[9], NO_3^- -N、 NO_2^- -N 和 NH_4^+ -N 分别采用紫外分光光度法、重氮偶合分光光度法和纳氏试剂比色法测定, 温度、pH 和 DO 采用 HQ11d 便携式分析仪 (美国哈希 HACH) 测定。

1.2.3 数据处理

采用 Excel 2015 进行数据统计, SPSS 17.0 软件进行相关性分析, Origin 2018b 进行图表制作。 NO_3^- -N 去除率由进水 NO_3^- -N 质量浓度与河槽系统中 NO_3^- -N 质量浓度计算得出。

NO_3^- -N 去除率计算公式为:

$$R_c = (C_j - C_d) / C_j \times 100\%$$

式中: R_c 为 NO_3^- -N 去除率, %; C_j 为进水 NO_3^- -N 质量浓度, $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$; C_d 为河槽系统中 NO_3^- -N 质量浓度, $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。

2 结果与分析

2.1 底泥中温度、pH 及 DO 变化

河槽系统中水体温度受室外天气影响较大。N1 温度为 $25 \sim 30 \text{ }^\circ\text{C}$, N2 温度在 $23 \text{ }^\circ\text{C}$ 上下波动, N3 水温逐渐下降, 由 $23 \text{ }^\circ\text{C}$ 降至 $13 \text{ }^\circ\text{C}$ 。

由图 2 可知, N1 底泥中各深度 pH 在前 7 d 呈下降趋势, 在第 12 d 达到一个小峰值后逐渐稳定在 7.4 左右。N2 各深度 pH 在 7.4~7.8 间波动。N3 时各深度 pH 在前 10 d 较稳定, 后 10 d 10 cm 和 20 cm 处 pH 升至 7.7。各周期底层水 pH 远高于河槽中各深度 pH, N1、N2 和 N3 分别为 8.48~9.11、9.01~9.21、8.85~9.25。

N1 底泥中各深度 DO 水平为 $2 \sim 6 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 第 9 d 开始波动较大, 表明底泥微生物反应活动较为剧烈。N2 底泥各深度 DO 水平为 $4 \sim 7 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 在 8~10 d 达到高峰。N3 底泥各深度 DO 水平为 $5 \sim 9 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 整体呈现先上升后下降的趋势。3 个周期下温度整体降低, DO 质量浓度整体升高。

2.2 底泥中 NO_3^- -N、 NO_2^- -N 和 NH_4^+ -N 质量浓度变化

3 种 NO_3^- -N 质量浓度下 NO_3^- -N、 NO_2^- -N 和 NH_4^+ -N 质量浓度随时间变化关系见图 3。实验中 N1 时 NO_3^- -N 质量浓度较为平稳, N2 和 N3 波动较大, 各周期 10、20、30 cm 处变化趋势相似, 统称浅层底泥; 50、70 cm 处变化趋势相似, 统称深层底泥。N1 河槽中 NO_3^- -N 质量浓度为 $3 \sim 6 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 整体呈下降趋势。N2 与 N3 分别在前 5 d 和前 7 d 浅层底泥 NO_3^- -N 质量浓度降低, 深层底泥质量浓度升高。N2 第 9、10 d 时 NO_3^- -N 质量浓度波动较大, 因这两日出现的降雨对河槽中各反应有一定影响。N3 在 12~20 d 时浅层底泥质量浓度增加, 深层底泥质量浓度减少。最终河槽中 N1、N2 和 N3 的 NO_3^- -N 质量浓度分别稳定在 $2 \sim 4$ 、 $3 \sim 6$ 、 $5 \sim 8 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。底层水 NO_3^- -N 质量浓度在 N1 时由 $4.84 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 降至 $1.93 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 在 N2 时由 $1.6 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 升至 $3.3 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 在 N3 第 5~7 d 由 $0.91 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 骤增至 $9.2 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 后在 $8 \sim 10 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 小幅波动。

NO_2^- -N 在 N1 和 N2 时底泥各深度中质量浓度较低, 为 $0 \sim 0.1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$; N3 时 NO_2^- -N 质量浓度在前 9 d 较为稳定, 第 9 d 开始于 10、20、30、50 cm 和 70 cm 处质量浓度依次骤增, 最后稳定在 $0.4 \sim 0.5 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。对于底层排出水, N1 和 N2 时 NO_2^- -N 质量浓度明显高于河槽中质量浓度, 分别于第 14 d 和第 10 d 升至最大值 $0.33 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $0.27 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 而后逐渐下降, N3 则在前 10 d 于 $0 \sim 0.3 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 波动强烈, 后期稳定在 $0.1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$

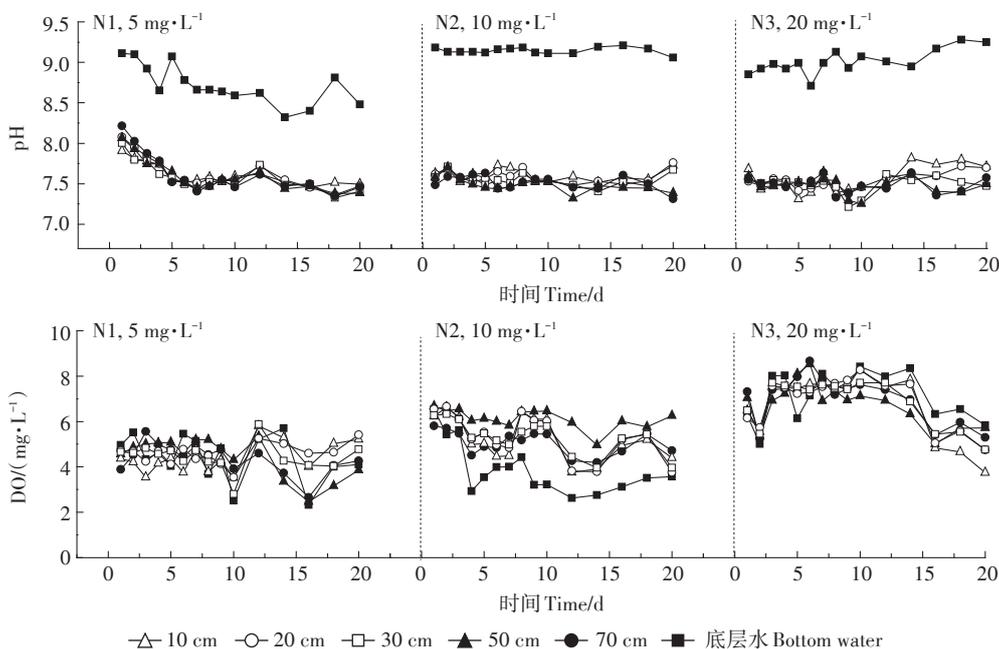


图2 3种 $\text{NO}_3\text{-N}$ 质量浓度下各深度pH、DO随时间的变化

Figure 2 Temporal variation of pH, DO concentrations at different depths under three $\text{NO}_3\text{-N}$ concentrations

左右。整体来看,各周期底层水中,N1和N2的中期 $\text{NO}_2\text{-N}$ 质量浓度最高,N3前期 $\text{NO}_2\text{-N}$ 波动较大,质量浓度较高,后期质量浓度降低并趋于稳定。最终底层水 $\text{NO}_2\text{-N}$ 质量浓度为 $\text{N1} > \text{N2} > \text{N3}$ 。

$\text{NH}_4\text{-N}$ 质量浓度随时间无明显变化规律,3个周期各深度分别在 $0.040\sim 0.134$ 、 $0.031\sim 0.151$ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $0.051\sim 0.139$ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 范围内波动。N1、N2和N3浅层底泥 $\text{NH}_4\text{-N}$ 平均质量浓度均高于深层底泥平均质量浓度。底层水 $\text{NH}_4\text{-N}$ 质量浓度基本高于底泥中各深度质量浓度,3个周期分别为 $0.098\sim 0.278$ 、 $0.068\sim 0.141$ 、 $0.057\sim 0.253$ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$,各周期结束时底层水 $\text{NH}_4\text{-N}$ 质量浓度为 $\text{N1} > \text{N2} > \text{N3}$ 。

2.3 $\text{NO}_3\text{-N}$ 去除率

2.3.1 底层水 $\text{NO}_3\text{-N}$ 去除率

3种 $\text{NO}_3\text{-N}$ 质量浓度水平下,河槽系统底层出水中 $\text{NO}_3\text{-N}$ 质量浓度及系统对 $\text{NO}_3\text{-N}$ 去除率随时间的变化见图4。由图4a可知,实验期间,各 $\text{NO}_3\text{-N}$ 质量浓度水平下底层水中 $\text{NO}_3\text{-N}$ 质量浓度随时间呈现不同的变化趋势。N1时 $\text{NO}_3\text{-N}$ 质量浓度整体呈降低趋势,第14 d起趋于平稳,质量浓度变化范围为 $1.77\sim 5.59$ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$,去除率整体升高,周期结束时稳定在67.8%(图4b)。N2时底层水 $\text{NO}_3\text{-N}$ 质量浓度范围为 $1.67\sim 6.38$ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$,其出水 $\text{NO}_3\text{-N}$ 质量浓度在第5 d大

幅升高,在第9、10 d降雨时较低,最终稳定在 3 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 左右。N2时 $\text{NO}_3\text{-N}$ 去除率为29%~81%,前12 d去除率高于N1,14~20 d低于N1。N3时底层水 $\text{NO}_3\text{-N}$ 质量浓度变化较大,前5 d低于 2.2 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$,第6、7 d骤增至 9 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 以上,远高于N1、N2;去除率也由90%左右降至50%左右。各周期结束时N1、N2和N3的去除率分别为67.8%、63.0%和55.0%,去除率随 $\text{NO}_3\text{-N}$ 质量浓度增大而减小。

2.3.2 不同深度处 $\text{NO}_3\text{-N}$ 去除率

图5为3种 $\text{NO}_3\text{-N}$ 质量浓度下不同深度 $\text{NO}_3\text{-N}$ 质量浓度和相应土层的去除率。由图5a可知,3种 $\text{NO}_3\text{-N}$ 质量浓度水平下底泥中 $\text{NO}_3\text{-N}$ 质量浓度也随进水质量浓度由低到高,分别为 $2.74\sim 3.69$ 、 $3.85\sim 5.69$ 、 $6.05\sim 7.57$ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$,浅层底泥(10、20、30 cm)中 $\text{NO}_3\text{-N}$ 质量浓度随深度增加而增加,深层底泥(50、70 cm)中 $\text{NO}_3\text{-N}$ 质量浓度随深度增加而降低。由图5b可知,底泥中3种 $\text{NO}_3\text{-N}$ 质量浓度下,除20 cm处外, $\text{NO}_3\text{-N}$ 进水质量浓度越高,各深度去除率越高。N1中10 cm和70 cm处去除率较高,分别为48.0%和54.3%,N2中10、50 cm和70 cm处去除率较高,分别为51.5%、54.7%和57.2%,N3各深度去除率都大于50%,最高是10 cm和70 cm处,分别为63.8%和66.4%。说明河槽表层和下部对 $\text{NO}_3\text{-N}$ 去除效果较好。

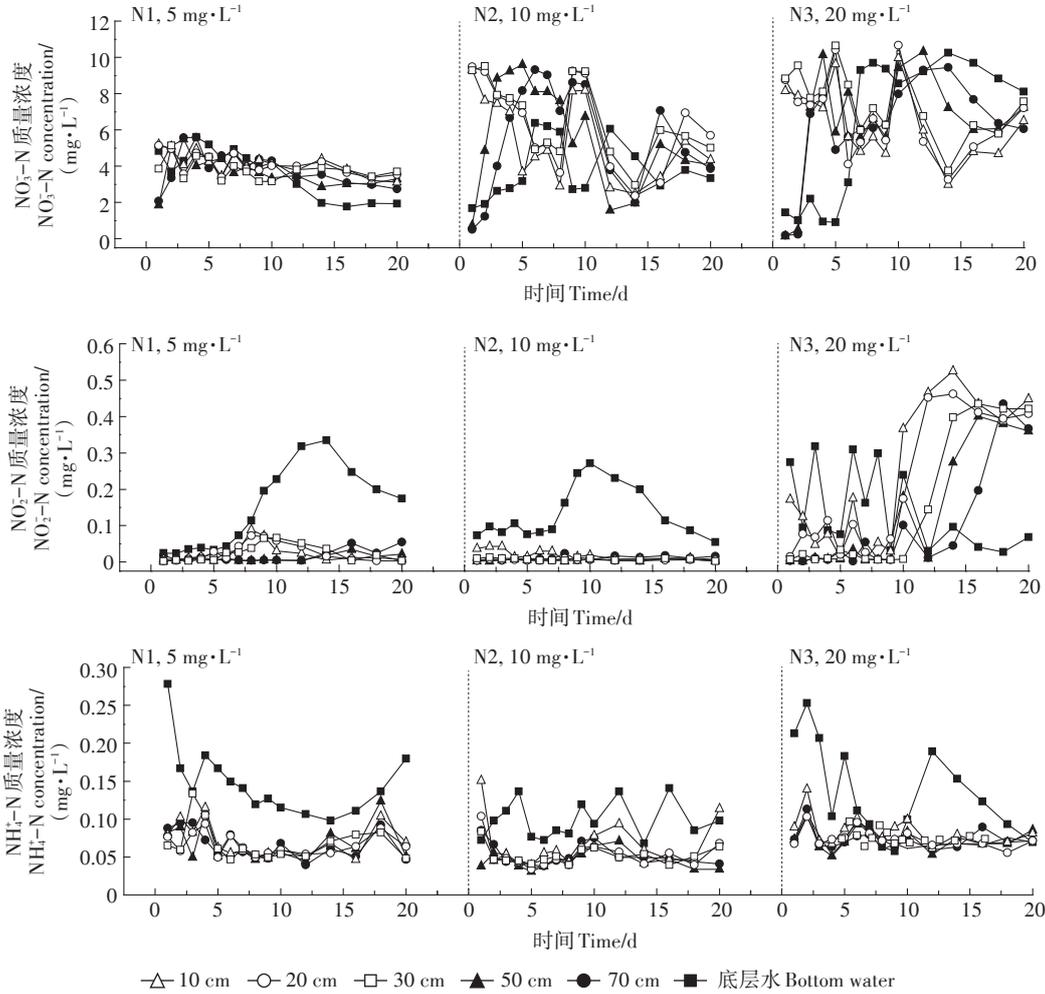


图3 3种NO₃-N质量浓度下各深度NO₃-N、NO₂-N和NH₄-N质量浓度的变化

Figure 3 Temporal variation of NO₃-N, NO₂-N and NH₄-N concentrations at different depths under three NO₃-N concentrations

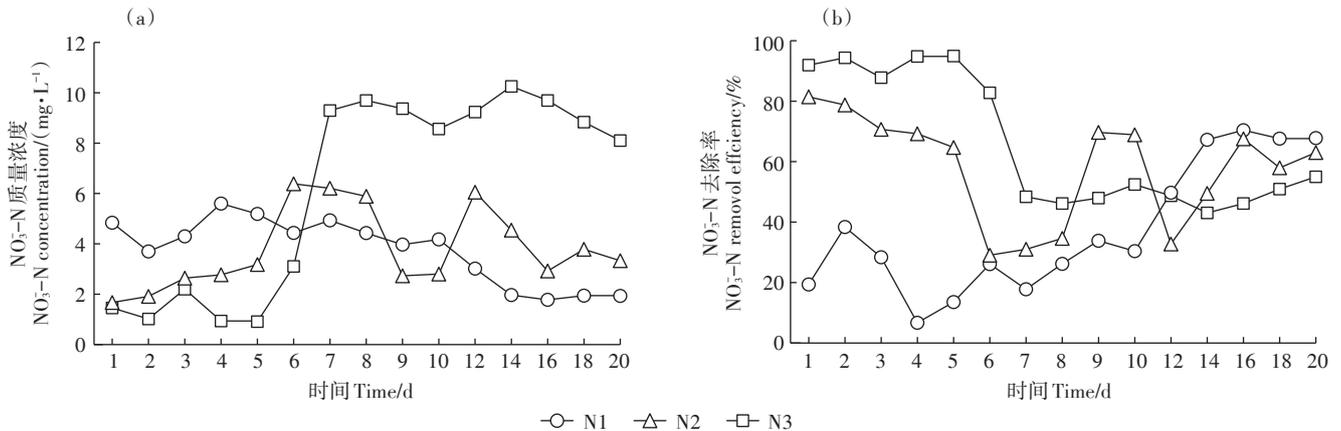


图4 3种NO₃-N质量浓度下底层出水NO₃-N质量浓度以及NO₃-N去除率随时间的变化

Figure 4 Temporal variation of NO₃-N concentration in effluents and NO₃-N removal efficiency under three NO₃-N concentrations

3 讨论

3.1 NO₃-N去除效果的影响因素

3种NO₃-N质量浓度水平下(N1、N2、N3)底泥水

中pH为7~8,硝化与反硝化等细菌活性较高,适宜在底泥中发生硝化与反硝化等反应^[20]。N1时前7 d pH下降明显,因实验用底泥取自自然土体,含有较丰富的钙、镁、钾、钠等碱性盐基物质,实验进行中其随水

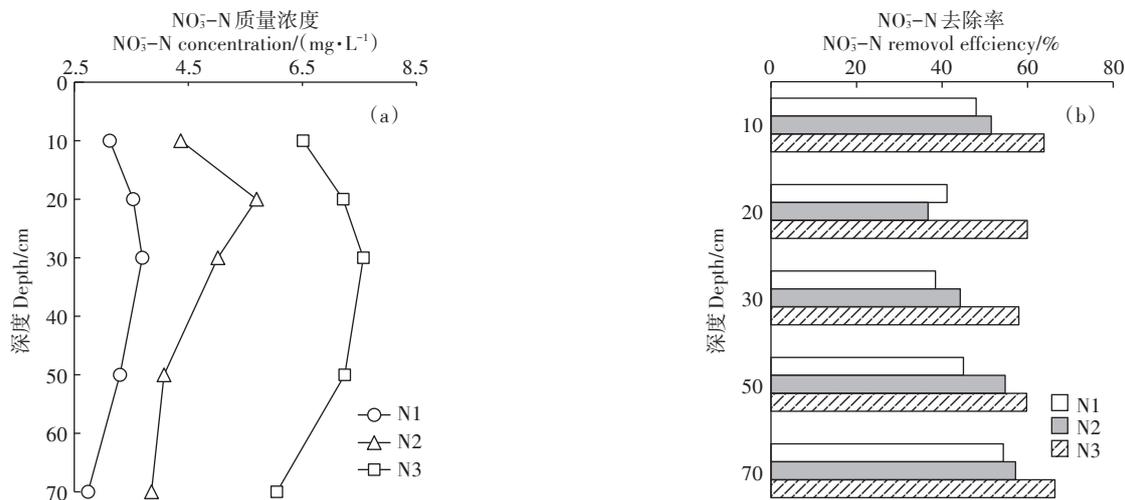


图5 3种NO₃-N质量浓度下不同深度处NO₃-N质量浓度以及去除率的变化

Figure 5 Temporal variation of NO₃-N concentration and NO₃-N removal efficiency at different depths under three NO₃-N concentrations

流向下积累,使pH随底泥深度增加而增大,直至第7 d各深度pH相近,底泥本体包含的盐类物质接近淋溶完毕。由图6可知,3个周期底层水中NO₃-N质量浓度与pH的相关性分析结果表明,N1和N3时二者呈正相关性($P<0.05$),N2时呈负相关性($P<0.05$)。硝化作用产酸,反硝化和异化还原反应耗酸^[21],说明河槽系统中pH变化与NO₃-N参与的各反应有关。

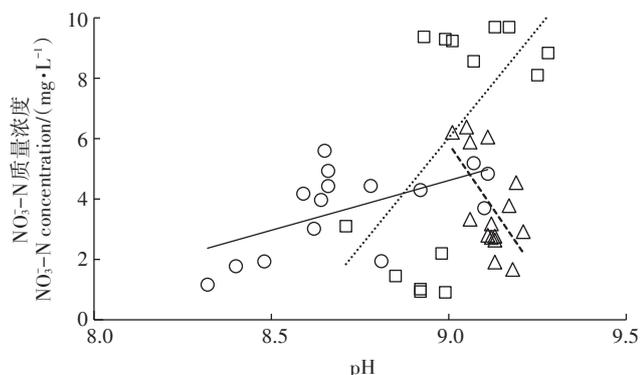
底泥中DO主要通过影响微生物硝化和反硝化反应,间接影响氮的形态转化^[22]。由表1可知,N1、N2和N3下50 cm和70 cm处DO质量浓度与NO₂-N质量浓度均呈显著负相关($P<0.05$),说明DO质量浓度越

低,NO₂-N质量浓度越高,即深层底泥中主要发生反硝化反应。低DO条件不利于硝化反应的发生,因此河槽系统深层底泥中反硝化反应强度与DO质量浓度紧密相关。SHAO等^[23]同样发现,DO大于4.2 mg·L⁻¹时,反硝化速率降低,因为DO质量浓度越高,反硝化反应越弱,NO₂-N质量浓度越低。

温度变化会影响细菌活性,温度下降会使反硝化速率和DO的消耗速率降低^[24]。3个周期的温度逐期降低,DO平均值逐期升高,NO₃-N去除率逐期降低。王子珏^[25]利用模型分析湿地系统脱氮过程,得到随水温升高,脱氮过程中各反应速率与总氮去除率升高的规律,这与本研究一致。

3.2 NO₃-N去除机理

3种NO₃-N质量浓度下各深度底泥中第1 d与最后1 d相比,浅层底泥(10、20、30 cm)NO₃-N质量浓度平均降低1.29、3.85、6.60 mg·L⁻¹,深层底泥(50、70 cm)质量浓度平均升高1.06、3.33、6.48 mg·L⁻¹,最后1 d时底层水中NO₃-N质量浓度分别为1.93、3.32、8.10 mg·L⁻¹。NO₃-N在底泥中会经历淋溶、吸附等物理作



○ N1 ———线性(N1) $y=3.2964x-25.054$ $R^2=0.3345$
 △ N2 - - - -线性(N2) $y=-17.181x+160.45$ $R^2=0.3540$
 □ N3 ·····线性(N3) $y=14.433x-123.87$ $R^2=0.3056$

图6 底层水中pH与NO₃-N质量浓度的关系

Figure 6 The relationship between pH and NO₃-N concentration in bottom water

表1 底泥中DO与NO₂-N的相关关系

Table 1 The correlation between DO and NO ₂ -N in sediment			
深度 Depth/cm	N1	N2	N3
50	-0.885**	-0.659*	-0.596*
70	-0.635*	-0.538*	-0.585*

注:**为在0.01级别(双尾)相关性显著;*为在0.05级别(双尾)相关性显著。

Note:** indicates the correlation is significant at 0.01 level (two tailed);* indicates the correlation is significant at 0.05 level (two tailed).

用和硝化、反硝化、同化、异化还原等复杂的生物化学反应,其质量浓度和形态可能发生改变,此处主要讨论 NO_3^- -N的去理机理:

(1)土壤淋溶作用。 NO_3^- -N带负电,不易被土壤胶体吸附,在土壤中移动性较强,易淋滤^[26]。3个周期的前期浅层底泥 NO_3^- -N质量浓度明显降低,深层底泥质量浓度明显升高,表明 NO_3^- -N随水流向下迁移。N1、N2和N3在50 cm处 NO_3^- -N质量浓度分别于第3、5、12 d升至最高点,70 cm处于之后1 d达到最大值。说明3个周期以来, NO_3^- -N淋溶时间增长。杨岚鹏等^[27]也认为随着时间的增加,土壤逐渐紧实,滤液在河槽系统中停留时间增加,淋溶速度也随之减慢。

(2)同化作用。微生物在生长繁殖过程中可将 NO_3^- -N合成为自身所需的有机氮而发生同化作用^[28],反应式为: $0.1429 \text{NO}_3^- + \text{C} + 0.2857 \text{H}_2\text{O} \rightarrow 0.1429 \text{C}_5\text{H}_7\text{NO}_2 + 0.1429 \text{OH}^- + 0.2858 \text{CO}_2$ ^[29]。本实验中3种 NO_3^- -N质量浓度水平下0~10 cm处 NO_3^- -N去除率均较高,因为在底泥-水界面上,碳源最充足,细菌大量繁殖,大量的 NO_3^- -N被细菌利用并合成有机氮^[30],这与潘维艳等^[31]在定水头淹水条件下土柱系统对 NO_3^- -N的去理效果类似。

(3)反硝化作用。 NO_3^- -N作为反硝化作用的中间产物,反映了反硝化作用的强弱。本实验3个 NO_3^- -N质量浓度水平下底层水 NO_3^- -N质量浓度为 $\text{N1} > \text{N2} > \text{N3}$,同时3个周期温度逐渐降低,细菌活性减弱,DO质量浓度升高,反硝化作用减弱, NO_3^- -N去除率降低。不同深度下,3个周期中深层底泥 NO_3^- -N去除率均较高,因为深层底泥中DO质量浓度较低,有利于反硝化作用的发生。这与潘维艳等^[31]得出的限定流速补水条件下,土柱下部对 NO_3^- -N也有一定去理作用的结论相似。

(4)异化还原作用。底泥环境中厌氧菌和兼性厌氧菌同样会将 NO_3^- -N异化还原成易被土壤吸附的 NH_4^+ -N,并留存于底泥中^[32],反应式为: $\text{NO}_3^- + 10\text{H}^+ + 8\text{e}^- \rightarrow \text{NH}_4^+ + 3\text{H}_2\text{O}$ ^[12]。本实验各周期之间底泥中 NH_4^+ -N质量浓度相差较小,因为河槽中土壤较多,吸附 NH_4^+ -N能力较强。李薇^[22]同样发现在 NO_3^- -N进水质量浓度为2~40 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时,排出水中 NH_4^+ -N质量浓度差别较小。不同深度下,浅层底泥中 NH_4^+ -N质量浓度高于深层底泥,因为在底泥-水界面处氮循环较强烈, NH_4^+ -N质量浓度显著上升^[8],且 NH_4^+ -N淋溶性较小,故多被吸附于浅层底泥。胡喆^[33]同样提出氮质量浓度较高的河流中,浅层底泥的 NH_4^+ -N不会向深层底

泥扩散,深层底泥中 NO_3^- -N会转化生成 NH_4^+ -N,故浅层底泥 NH_4^+ -N质量浓度较高,深层底泥 NH_4^+ -N质量浓度较低。

本实验中,土壤淋溶作用造成了河槽中 NO_3^- -N的物理迁移;生物化学作用下,有机氮同化、反硝化与异化还原作用共同造成 NO_3^- -N质量浓度的衰减,因为底泥-水界面氧气充足,且有外界碳源添加,氮循环中各反应强烈^[34],有机氮同化作用较强。 NO_3^- -N是反硝化作用与异化还原作用的共同基质,两种作用存在竞争关系。从能量角度看,微生物反硝化作用得到的能量为2 333.84 $\text{kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$,而异化还原作用得到的能量为679.60 $\text{kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$ ^[13],故微生物优先发生能够得到更多能量的反硝化作用。王飞^[35]提出对于潜流带中 NO_3^- -N的减少,反硝化作用占85%,异化还原作用占14%。闫雅妮等^[13]估算出沉积物中有机氮同化、反硝化作用以及异化还原作用对 NO_3^- -N衰减的贡献率分别为56.6%、26.6%和13.1%。本实验中,对于 NO_3^- -N的去理,有机氮同化与反硝化作用较强,异化还原作用较弱,各反应对 NO_3^- -N衰减的具体贡献率还有待进一步研究。本研究结果表明,模拟自然河道环境下,河道水体中不同 NO_3^- -N质量浓度会影响河槽系统中各形态氮的质量浓度,从而影响各反应的发生强度,造成不同的 NO_3^- -N去理效果。

4 结论

(1)河床底泥对水体中 NO_3^- -N有显著去理作用。水中 NO_3^- -N质量浓度为5、10、20 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时去理率分别为67.8%、63.0%和55.0%。

(2)河槽表层10 cm处和下部70 cm处对 NO_3^- -N去理效果最好,分别主要通过有机氮合成和反硝化作用去理 NO_3^- -N。

(3)底层排出水中pH与 NO_3^- -N质量浓度相关性较强;底泥中50 cm与70 cm处反硝化作用强度与溶解氧质量浓度紧密相关;随着温度降低,溶解氧质量浓度升高,反硝化作用减弱, NO_3^- -N去理效果变差。

(4)底泥中 NO_3^- -N衰减主要为土壤淋溶作用、同化作用、反硝化作用与异化还原作用等共同作用;部分氮素以同化作用形成的有机氮和异化还原作用形成的 NH_4^+ -N形式留存于底泥中。

参考文献:

- [1] 霍健.北京市中心城再生水发展历程及“十二五”发展规划[J].水利发展研究. 2011,11(7):57-60, 92. HUO J. Development process of

- reclaimed water in the central city of Beijing and development plan of the "12th Five Year Plan" [J]. *Water Conservancy Development Research*, 2011, 11(7): 57-60, 92.
- [2] 陈卫平, 吕斯丹, 王美娥, 等. 再生水回灌对地下水水质影响研究进展[J]. *应用生态学报*, 2013, 24(5): 1253-1262. CHEN W P, LÜ S D, WANG M E, et al. Effects of reclaimed water recharge on groundwater quality: A review[J]. *Chinese Journal of Applied Ecology*, 2013, 24(5): 1253-1262.
- [3] 李小牛, 周长松, 周孝德, 等. 污灌区浅层地下水污染风险评估研究[J]. *水利学报*, 2014, 45(3): 326-334. LI X N, ZHOU C S, ZHOU X D, et al. Study on risk assessment of groundwater pollution in sewage irrigation area[J]. *Journal of Hydraulic Engineering*, 2014, 45(3): 326-334.
- [4] 路璐, 杨培岭, 李云开, 等. 水生植物对河湖中回用的再生水富营养化的控制效应[J]. *农业工程学报*, 2011, 27(增刊2): 196-203. LU L, YANG P L, LI Y K, et al. Control effects of aquatic plants on eutrophication in reclaimed water rivers-lake[J]. *Transactions of the Chinese Society of Agricultural Engineering*, 2011, 27(Suppl 2): 196-203.
- [5] HU B, TENG Y G, ZHAI Y Z, et al. Riverbank filtration in China: A review and perspective[J]. *Journal of Hydrology*, 2016, 541: 914-927.
- [6] 王庆锁, 顾颖, 孙东宝. 巢湖流域地下水硝态氮含量空间分布和季节变化格局[J]. *生态学报*, 2014, 34(15): 4372-4379. WANG Q S, GU Y, SUN D B. Spatial and seasonal variations of nitrate-N concentration in groundwater within Chao Lake watershed[J]. *Acta Ecologica Sinica*, 2014, 34(15): 4372-4379.
- [7] 赵越, 陈建平, 吴丽. 农业地下水中氮素面源污染研究进展[J]. *环境污染与防治*, 2016, 38(5): 111. ZHAO Y, CHEN J P, WU L. Progress in the study of nitrogen non-point source pollution in agricultural groundwater[J]. *Environmental Pollution and Control*, 2016, 38(5): 111.
- [8] 陈平, 倪龙琦. 河湖底泥中氮磷迁移转化的研究进展[J]. *徐州工程学院学报(自然科学版)*, 2020, 35(2): 60-66. CHEN P, NI L Q. Research progress on nitrogen and phosphorus migration and transformation in river and lake sediment[J]. *Journal of Xuzhou Institute of Technology(Natural Science Edition)*, 2020, 35(2): 60-66.
- [9] 潘维艳. 再生水回补河湖条件下污染物的迁移转化机制研究[D]. 北京: 中国农业大学, 2017: 10-12. PAN W Y. Removal and transformation of pollutant during refilling rivers and lakes process[D]. Beijing: China Agricultural University, 2017: 10-12.
- [10] 吴振斌, 徐光来, 周培疆, 等. 复合垂直流人工湿地污水氮的去除效果研究[J]. *农业环境科学学报*, 2004, 23(4): 757-760. WU Z B, XU G L, ZHOU P J, et al. Removal effects of nitrogen in integrated vertical flow constructed wetland sewage treating system[J]. *Journal of Agro-Environmental Science*, 2004, 23(4): 757-760.
- [11] ASANO T, COTRUVO J A. Groundwater recharge with reclaimed municipal wastewater: Health and regulatory considerations[J]. *Water Research*, 2004, 38(8): 1941-1951.
- [12] 闫雅妮, 马腾, 张俊文, 等. 地下水与地表水相互作用下硝态氮的迁移转化实验[J]. *地球科学*, 2017, 42(5): 783-792. YAN Y N, MA T, ZHANG J W, et al. Experiment on migration and transformation of nitrate under interaction of groundwater and surface water[J]. *Earth Science*, 2017, 42(5): 783-792.
- [13] 闫雅妮, 廖曼, 王智真, 等. 河岸带介质中硝态氮衰减机制的实验研究[J]. *桂林理工大学学报*, 2020, 40(1): 218-223. YAN Y N, LIAO M, WANG Z Z, et al. Experimental study on the attenuation mechanism of nitrate in riparian zone medium[J]. *Journal of Guilin University of Technology*, 2020, 40(1): 218-223.
- [14] 许宽, 刘波, 王国祥, 等. 曝气和pH对城市污染河道底泥氮形态的影响[J]. *环境工程学报*, 2012, 6(10): 3553-3558. XU K, LIU B, WANG G X, et al. Influence of aeration and pH on nitrogen in urban heavily polluted river sediment[J]. *Chinese Journal of Environmental Engineering*, 2012, 6(10): 3553-3558.
- [15] 李金荣, 王莉, 陈婷, 等. 溶解氧影响河流底泥中氮释放的实验研究[J]. *中国农村水利水电*, 2012(5): 32-34, 38. LI J R, WANG L, CHEN T, et al. A study of DO on nitrogen releasing in the sediment of river[J]. *China Rural Water and Hydropower*, 2012(5): 32-34, 38.
- [16] REGNER J, BARRINGER J, WING A D, et al. Start-up performance of a full-scale riverbank filtration site regarding removal of DOC, nutrients, and trace organic chemicals[J]. *Chemosphere*, 2015, 127: 136-142.
- [17] 鲍士旦. 土壤农化分析[M]. 三版. 北京: 中国农业出版社, 2000: 204-208. BAO S D. Soil agrochemical analysis[M]. 3rd Edition. Beijing: China Agriculture Press, 2000: 204-208.
- [18] 刘彩堂, 宋献方, 于静洁. 一种土壤水分采集装置: 200520110649. 5[P]. 2006-08-23. LIU C T, SONG X F, YU J J. A device for suction of soil water: 200520110649. 5[P]. 2006-08-23.
- [19] 国家环境保护总局. 水和废水监测分析方法[M]. 四版. 北京: 中国环境科学出版社, 2002: 701-705. State Environmental Protection Administration. Methods for monitoring and analysis of water and wastewater[M]. 4th Edition. Beijing: China Environmental Science Press, 2002: 701-705.
- [20] 李一平, 逢勇, 向军. 太湖水质时空分布特征及内源释放规律研究[J]. *环境科学学报*, 2005, 25(3): 300-306. LI Y P, PANG Y, XIANG J. Analysis to the characteristics of temporal and spatial distribution of the pollutant and the law of release from sediment in Taihu Lake[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2005, 25(3): 300-306.
- [21] 黄瑞华, 吴耀国, 李云峰, 等. 硝态氮在河床垂向渗滤系统中环境行为的模拟实验[J]. *地球科学与环境学报*, 2006, 28(3): 92-96. HUANG R H, WU Y G, LI Y F, et al. Simulating experiment of NO₃-N in vertical system of riverbank filtration[J]. *Journal of Earth Sciences and Environment*, 2006, 28(3): 92-96.
- [22] 李薇. 溶解氧水平对富营养化水体底泥氮磷转化影响的研究[D]. 南京: 南京理工大学, 2014: 12-14. LI W. Study on the impact of DO on the release of nitrogen and phosphorus from sediment in eutrophic water[D]. Nanjing: Nanjing University of Technology, 2014: 12-14.
- [23] SHAO L, XU Z X, YIN H L, et al. Rice husk as carbon source and biofilm carrier for water denitrification[J]. *Journal of Biotechnology*, 2008, 136(Suppl): 662.
- [24] 杨磊, 林逢凯, 胥峥, 等. 底泥修复中温度对微生物活性和污染物释放的影响[J]. *环境污染与防治*, 2007, 29(1): 22-25, 29. YANG L, LIN F K, XU Z, et al. Effect of temperature on the activities of microorganism and the pollutants release in the bioremediation of the

- sediment[J]. *Environmental Pollution and Control*, 2007, 29(1): 22-25, 29.
- [25] 王子珏. 处理低污染河水湿地内氮迁移转化过程模拟分析[D]. 上海: 上海交通大学, 2014: 22-24. WANG Z J. Simulation of nitrogen transfer processes in a constructed wetland for a lightly contaminated river[D]. Shanghai: Shanghai Jiao Tong University, 2014: 22-24.
- [26] 高太忠, 付海燕. 氮在河北平原包气带中的迁移转化机制[J]. 安全与环境学报, 2015, 15(1): 217-221. GAO T Z, FU H Y. Migration and transformation regularity of nitrogen in vadose zone in Hebei plain [J]. *Journal of Safety and Environment*, 2015, 15(1): 217-221.
- [27] 杨岚鹏, 李娜, 张军. pH对浅层地下水中“三氮”迁移转化的影响[J]. 中国农学通报, 2017, 33(30): 56-60. YANG L P, LI N, ZHANG J. Effect of pH value on migration and transformation of "three nitrogen" in shallow groundwater[J]. *Chinese Agricultural Science Bulletin*, 2017, 33(30): 56-60.
- [28] 程谊, 黄蓉, 余云飞, 等. 应重视硝态氮同化过程在降低土壤硝态氮质量浓度中的作用[J]. 土壤学报, 2017, 54(6): 1326-1331. CHENG Y, HUANG R, YU Y F, et al. Role of microbial assimilation of soil NO_3^- in reducing soil NO_3^- concentration[J]. *Acta Pedologica Sinica*, 2017, 54(6): 1326-1331.
- [29] 郭瑜, 彭党聪, 张新艳, 等. 硝态氮为唯一氮源时异养微生物增长特性[J]. 环境工程学报, 2014, 8(3): 882-886. GUO Y, PENG D C, ZHANG X Y, et al. Growth characteristics of heterotrophic bacteria with nitrate as a sole nitrogen source[J]. *Chinese Journal of Environmental Engineering*, 2014, 8(3): 882-886.
- [30] 夏绮文, 李炳华, 何江涛, 等. 潮白河再生水生态补给河道区浅层地下水氮转化[J]. 环境科学研究, 2021, 34(3): 618-628. XIA Q W, LI B H, HE J T, et al. Nitrogen transformation of shallow groundwater in the river area of ecological recharge of reclaimed water in Chaobai River[J]. *Research of Environmental Sciences*, 2021, 34(3): 618-628.
- [31] 潘维艳, 黄权中, 张子元, 等. 不同补水方式下砂壤土渗滤系统对硝态氮去除效果[J]. 农业工程学报, 2017, 33(8): 197-203. PAN W Y, HUANG Q Z, ZHANG Z Y, et al. Removal effect of nitrate nitrogen for sandy loam filtration system under different water supply conditions[J]. *Transactions of the Chinese Society of Agricultural Engineering*, 2017, 33(8): 197-203.
- [32] 杨杉, 吴胜军, 蔡延江, 等. 硝态氮异化还原机制及其主导因素研究进展[J]. 生态学报, 2016, 36(5): 1224-1232. YANG S, WU S J, CAI Y J, et al. The synergetic and competitive mechanism and the dominant factors of dissimilatory nitrate reduction progress: A review [J]. *Acta Ecologica Sinica*, 2016, 36(5): 1224-1232.
- [33] 胡喆. 南四湖沉积物-水体界面氮磷迁移转化规律研究[D]. 济南: 山东建筑大学, 2015. HU Z. Study on migration and transformation of nitrogen and phosphorus in the sediment-water interface of Nansi Lake[D]. Jinan: Shandong Jianzhu University, 2015.
- [34] RÜTTING T, BOECKX P, MÜLLER C, et al. Assessment of the importance of dissimilatory nitrate reduction to ammonium for the terrestrial nitrogen cycle[J]. *Biogeosciences*, 2011, 8(7): 1779-1791.
- [35] 王飞. 潜流带氮素迁移转化过程的影响因素研究[D]. 长春: 吉林大学, 2013. WANG F. Study on the influencing factors of transformation-transportation processes for nitrogen in hyporheic zone[D]. Changchun: Jilin University, 2013.