

## 异位生态组合修复技术对九龙江支流水体不同形态氮的去除效应

刘杰, 方宏达, 李剑捷, 刘婉欣, 何俊铭, 林佳慧, 蓝伟斌, 郭沛涌

### 引用本文:

刘杰, 方宏达, 李剑捷, 刘婉欣, 何俊铭, 林佳慧, 蓝伟斌, 郭沛涌. 异位生态组合修复技术对九龙江支流水体不同形态氮的去除效应[J]. *农业环境科学学报*, 2023, 42(8): 1790–1802.

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.11654/jaes.2022-0921>

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

#### 水生植物对不同氮磷水平养殖尾水的综合净化能力比较

冯优, 陈庆锋, 李金业, 郭贝贝, 刘婷, 李磊

*农业环境科学学报*. 2020, 39(10): 2397–2408 <https://doi.org/10.11654/jaes.2020-0816>

#### 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>

#### 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>

#### 九龙江河口养虾塘氧化亚氮排放通量及影响因素

金宝石, 谢建国, 闫鸿远, 杨平, 曾从盛

*农业环境科学学报*. 2021, 40(9): 2031–2038 <https://doi.org/10.11654/jaes.2021-0248>

#### 不同处理梯度污水对细菌群落和酶活性的影响

吴晓斐, 何源, 黄治平, 张丹丹, 郑宏艳, 丁健

*农业环境科学学报*. 2020, 39(9): 2026–2035 <https://doi.org/10.11654/jaes.2020-0155>



关注微信公众号, 获得更多资讯信息

刘杰, 方宏达, 李剑捷, 等. 异位生态组合修复技术对九龙江支流水体不同形态氮的去除效应[J]. 农业环境科学学报, 2023, 42(8): 1790-1802.

LIU J, FANG H D, LI J J, et al. The removal effect of ex-situ combined ecological remediation technology on different forms of nitrogen in Jiulong River tributary[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2023, 42(8): 1790-1802.

# 异位生态组合修复技术对九龙江支流水体不同形态氮的去除效应

刘杰<sup>2</sup>, 方宏达<sup>1\*</sup>, 李剑捷<sup>2</sup>, 刘婉欣<sup>3</sup>, 何俊铭<sup>2</sup>, 林佳慧<sup>2</sup>, 蓝伟斌<sup>3</sup>, 郭沛涌<sup>2</sup>

(1. 集美大学港口与海岸工程学院, 福建 厦门 361021; 2. 华侨大学化工学院环境科学与工程系, 福建 厦门 361021; 3. 中科同恒环境科技有限公司, 福建 厦门 361021)

**摘要:**为探讨异位生态修复技术对水体不同形态氮的去除效应及去除机理,分析异位生态组合修复技术对水体氮形态百分含量影响及不同氮形态与环境因子的相关性,本文以实际工程九龙江支流浦林溪段污染水体异位生态组合修复系统为依托开展研究。结果表明:异位生态组合修复技术对 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的去除率平均值为88.03%,显著高于对其他形态氮的去除率( $P<0.05$ ),具有最好的去除效应;对水体中总氮(TN)和可溶性总氮(DTN)的去除效应明显,去除率平均值分别为73.35%和77.67%。泥膜共生高效混凝净水系统对 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 有一定的去除效应,出水 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 浓度为 $7.72\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。生态塘1对 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除效应最好且具有稳定性,去除率为63.55%,出水 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 浓度为 $2.19\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。生态塘2处理后 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 和 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的出水浓度分别降至 $0.99$ 、 $0.73\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $0.58\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。生态塘3对 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 的去除效应最好, $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 出水浓度为 $0.64\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。在各异位生态修复技术处理单元中,水体氮以可溶性无机氮(DIN)为主要存在形式。泥膜共生高效混凝净水系统、生态塘1、生态塘3中的 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 在DIN中所占比例最高,分别为62.51%、37.02%、37.88%。生态塘2中 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 在DIN中占比最高,为45.23%。各异位生态组合修复处理单元出水不同氮形态与环境因子(溶解氧、温度、pH和浊度)之间表现出不同的相关性。研究表明,异位生态组合修复技术主要通过悬浮污泥滤沉技术、微生物硝化、反硝化作用、沉水植物直接吸收及植物增效作用实现对不同形态氮的去除,其对污染水体修复效果良好。

**关键词:**异位生态组合修复技术;不同形态氮;去除效应;环境因子

中图分类号:X52 文献标志码:A 文章编号:1672-2043(2023)08-1790-13 doi:10.11654/jaes.2022-0921

## The removal effect of ex-situ combined ecological remediation technology on different forms of nitrogen in Jiulong River tributary

LIU Jie<sup>2</sup>, FANG Hongda<sup>1\*</sup>, LI Jianjie<sup>2</sup>, LIU Wanxin<sup>3</sup>, HE Junming<sup>2</sup>, LIN Jiahui<sup>2</sup>, LAN Weibin<sup>3</sup>, GUO Peiyong<sup>2</sup>

(1. College of Harbour and Coastal Engineering, Jimei University, Xiamen 361021, China; 2. Department of Environmental Science and Engineering, College of Chemical Engineering, Huaqiao University, Xiamen 361021, China; 3. ZKTH Environmental Technology Co., Ltd., Xiamen 361021, China)

**Abstract:** The study aims to identify the effects and mechanisms of removing different forms of nitrogen from the water, the influence of ex-situ ecological combined remediation technologies on nitrogen concentrations in water, and the correlation between different nitrogen forms and environmental factors. The results discussed in this paper are based on a project involving an ex-situ combined remediation system for contaminated water in Pulin Creek, a tributary of the Jiulong River. The results demonstrated that the average removal rate of  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  by ex-

收稿日期:2022-09-18 录用日期:2023-03-08

作者简介:刘杰(2000—),女,河北邢台人,学士,主要研究方向为环境生态学。E-mail:llljie2021@163.com

\*通信作者:方宏达 E-mail:hongdafang@126.com

基金项目:国家自然科学基金项目(20777021);福建省自然科学基金项目(2017J01018);厦门市高校科研院所产学研项目(3502Z20193051)

Project supported: The National Natural Science Foundation of China (20777021); The Natural Science Foundation of Fujian Province, China (2017J01018); Industry-University-Research Project of Scientific Research Institutes of Universities in Xiamen (3502Z20193051)

situ ecological combined remediation technology was 88.03%, which was significantly higher than that of other forms of nitrogen ( $P < 0.05$ ); the removal effect of total nitrogen (TN) and dissolved total nitrogen (DTN) in water is noticeable, with average removal rates of 73.35% and 77.67%, respectively. The  $\text{NH}_4^+ - \text{N}$  removal rate of the sludge-membrane symbiotic high-efficiency coagulation water purification system has a specific removal, and the  $\text{NH}_4^+ - \text{N}$  concentration in the effluent is  $7.72 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ . In Ecological pond 1, the  $\text{NH}_4^+ - \text{N}$  has the best and most stable removal treatment. The  $\text{NH}_4^+ - \text{N}$  removal rate of Ecological pond 1 is 63.55%, and the content of  $\text{NH}_4^+ - \text{N}$  in the effluent is  $2.19 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ . The  $\text{NO}_3^- - \text{N}$ ,  $\text{NO}_2^- - \text{N}$  and  $\text{NH}_4^+ - \text{N}$  concentration in the effluent of the Ecological pond 2 are 0.99, 0.73  $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$  and  $0.58 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ , respectively. Ecological pond 3 had the best removal effect for  $\text{NO}_3^- - \text{N}$ , with a content of  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  in the effluent of  $0.64 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ . Among all the ex-situ ecological remediation treatment units, the main form of nitrogen in water is dissolved inorganic nitrogen (DIN). The proportion of  $\text{NH}_4^+ - \text{N}$  in DIN is highest in the sludge-membrane symbiotic high-efficiency coagulation water purification system, Ecological pond 1, and Ecological pond 3, at 62.51%, 37.02%, and 37.88%, respectively. In Ecological pond 2,  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  accounts for the highest proportion of DIN (45.23%). In various ecological combination remediation treatment units, different forms of nitrogen are associated with environmental factors (DO, temperature, pH, and turbidity). The study discovered that ex-situ ecological combined remediation technology mainly removes different forms of nitrogen through suspended sludge filtration and sedimentation technology, microbial nitrification and denitrification, absorption of submersed macrophytes, and plant synergy and has a good remediation effect on polluted water.

**Keywords:** ex-situ ecological combined remediation technology; different forms of nitrogen; removal effect; environmental factors

氮是自然界中广泛存在的基本元素之一,也是构成生命的重要元素,但由于人类社会的生产活动,如快速的农业发展、城市化和燃烧排放,含氮污染物的排放量急剧增加,极大地改变了全球氮循环,与氮污染相关的环境问题也成为当今全球关注的问题<sup>[1-3]</sup>。从1977年到2005年,中国粮食年总产量从2.83亿t增加到4.84亿t,增长了71%,但同期合成氮肥的总施用量从707万t增加到2 621万t,增长了271%<sup>[4]</sup>。大量氮肥施用使得氮对生态系统的输入增加,而当陆地生态系统接近氮素平衡时,过量的氮则易进入湖泊、河流等水生生态系统,从而增加了水体富营养化的风险<sup>[5-6]</sup>。生活污水和雨水中的总氮(TN)含量分别为30~100  $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和0.30~2.74  $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ,被认为是水体富营养化的关键因素<sup>[7-9]</sup>。

随着全球水环境富营养化问题日益严重,氮去除技术的研究不断被重视。如电渗析、离子交换、渗透反应墙等技术对水体中氮的去除具有良好效果,但其在实际应用中往往存在运行费用高、运行条件复杂、易产生废物造成二次污染等问题<sup>[1]</sup>。此外,生物膜技术因具有处理效率较高、占地面积小等优点而被应用于受污染中小流水体的氮净化,但微生物挂膜过程易受水体水质、溶解氧(DO)等的影响,导致挂膜时间延长、挂膜质量不佳影响净化效果<sup>[10]</sup>。投加微生物菌剂技术具有能耗低、操作简单等特点,也被应用于污染河流氮去除,但其存在微生物菌剂易流失以及对原有生态系统造成破坏的隐患<sup>[11]</sup>。与单一修复技术相比,组合生态修复技术不仅修复效率更高,而且能使多种生态修复技术协同互补进而表现出更好的稳定

性<sup>[12]</sup>。冯喻等<sup>[13]</sup>探究了不同浓度污水的TN在模拟复合人工湿地中的去除效果,结果表明模拟复合人工湿地对低浓度模拟污水处理时的TN去除率为80.06%~92.88%,在处理高浓度模拟污水时,TN去除率为59.32%~86.07%。Jia等<sup>[14]</sup>研究了一种将沉淀池、多级人工湿地和污水处理厂相结合的地表径流综合处理系统,该系统将化学需氧量(COD)、 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 和TN的平均出水浓度分别降至10、0.5  $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和1.0  $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ,基本满足国家地表水环境质量Ⅲ级标准。

目前,许多学者对氮去除技术的研究证实了组合修复技术能够较好地实现水体氮的去除,但多数研究为人工模拟实验。在实际工程中,组合修复技术受温度条件<sup>[15-16]</sup>、进水负荷<sup>[17]</sup>、不同进水氮形态<sup>[18-19]</sup>等因素的影响,对于自然环境下异位组合修复技术脱氮性能的研究较少。此外,异位组合修复技术不同处理单元脱氮性能和稳定性各有差异,多种异位生态组合修复技术单元对污染物的去除机理也较为复杂,相关研究鲜见报道。因此,本研究以九龙江支流浦林溪段污染水体异位生态组合修复技术为依托的水质提升工程为例,探讨了异位生态修复技术对水体不同形态氮的去除效应及去除机理,分析了异位生态组合修复技术对水体氮形态百分含量影响及不同氮形态与环境因子的相关性,以期污染河流异位修复技术对水体修复机制的深入研究提供科学依据。

## 1 材料与方 法

### 1.1 工程区概况与工程设计

福建九龙江为福建省第二大河流,支流丰山溪

(浦口)总流域面积40.1 km<sup>2</sup>,有浯沧溪和浦林溪两条干流,总长22.8 km,流经石亭镇鳌门村、南山村等7个行政村。工程区域为浦林溪污染河段(24°38′29″N, 117°37′04″E),该水质提升工程采用异位生态组合修复技术,由4个相对独立的处理单元组合串联形成。为了应对浦林溪水质波动较大的问题,采用泥膜共生高效混凝净水系统对浦林溪污染水体(原水)的污染物进行去除和预处理后,再依次进入生态塘做进一步的处理。异位生态组合修复技术工艺流程如图1所示。

**泥膜共生高效混凝净水系统:**由自循环高密度悬浮污泥滤沉高效净水器、加药系统、污泥脱水系统组成。絮凝剂选用聚合氯化铝(PAC),投加量为107 mg·L<sup>-1</sup>,进水量为2 160 t·d<sup>-1</sup>。

**生态塘1:**有效容积15 095 m<sup>3</sup>(面积6 563 m<sup>2</sup>,水深2.3 m),工艺设计为围隔阻控、挂膜轻质滤料和底部曝气。塘内围隔共设置4条,沿水流方向围隔长度依次为46、65、57 m和39 m,宽度为7~21 m。挂膜滤料材质为低密度高分子聚乙烯,直径10~25 mm,长5~10 mm,堆积密度0.075~0.080 g·cm<sup>-3</sup>,微生物着床填料总用量90 m<sup>3</sup>。底部曝气装置风量7.25 m<sup>3</sup>·min<sup>-1</sup>,风压29.4 kPa。生态塘1水力停留时间为7.0 d。

**生态塘2:**有效容积9 766 m<sup>3</sup>(面积4 439 m<sup>2</sup>,水深2.2 m),塘底种植沉水植物矮型苦草,种植密度40株·m<sup>-2</sup>,微纳米曝气装置曝气量同生态塘1。生态塘2水力停留时间为4.5 d。

**生态塘3:**有效容积12 480 m<sup>3</sup>(面积5 673 m<sup>2</sup>,水深2.2 m),沉水植物选用矮型苦草,塘底种植密度40株·m<sup>-2</sup>,微纳米曝气装置曝气量同生态塘1。生态塘3水力停留时间为5.8 d。

### 1.2 样点布设与样品采集

自2021年5月至10月共采样8次。无降雨状态下,每隔14 d进行1次样品采集;如遇降雨、疫情防控则延长采样时间间隔。采样时间依次为5月29日、6月19日、7月6日、7月20日、8月3日、8月17日、8月31日及10月19日,分别用1~8表示。在浦林溪受污

染水体(原水)进水口布设采样点1#,在泥膜共生高效混凝净水系统出水口、生态塘1出水口、生态塘2出水口和生态塘3出水口(总出水口)依次布设采样点2#、3#、4#和5#。每个采样点分别采集3个500 mL、3个250 mL水样于聚乙烯水样瓶中,其中250 mL水样瓶加入H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>调节pH小于2[测TN和可溶性总氮(DTN)],然后将水样置于装有冰袋的保温箱中低温保存带回实验室,所有指标于采样24 h内完成测定。

### 1.3 样品测定

水样NO<sub>3</sub>-N、NO<sub>2</sub>-N和NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N分别采用紫外分光光度法、N-(1-萘基)-乙二胺光度法、纳氏试剂光度法测定,TN和DTN采用过硫酸钾氧化紫外分光光度法测定<sup>[20]</sup>。DO和温度采用便携式溶解氧仪测定,pH采用便携式pH计测定,浊度采用浊度计测定。

### 1.4 数据分析

数据采用Excel 2016和Origin 2018软件进行处理和绘图,利用SPSS 25软件进行显著性差异分析和Pearson相关性分析,其中,不同氮浓度差异采用单因素方差分析(ANOVA),不同形态氮去除率差异采用T-test检验,*P*<0.05认为有显著差异。

## 2 结果与分析

### 2.1 异位生态组合修复技术对氮的去除效应

#### 2.1.1 对不同形态氮的总去除率

如图2所示,异位生态组合修复技术对TN和DTN总去除率平均值分别为73.35%和77.67%,其对二者的去除率无显著差异(*P*>0.05)。异位生态组合修复技术对NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N有最好去除效应,总去除率平均值为88.03%,显著高于对其他形态氮的去除率(*P*<0.05)。异位生态组合修复技术对水体NO<sub>3</sub>-N的总去除率平均为35.16%,对NO<sub>2</sub>-N的去除率均值显著低于对TN和DTN的去除率(*P*<0.05)。

#### 2.1.2 对TN、DTN的去除效应

由图3和图4可知,异位生态组合修复技术对水体中TN和DTN的去除效应明显,出水中TN和DTN

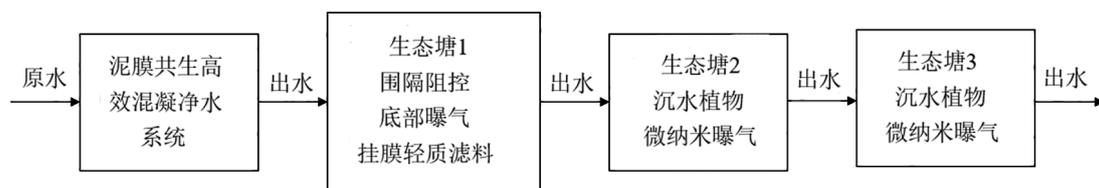


图1 异位生态组合修复技术工艺流程图

Figure 1 Process flow diagram of ex-situ ecological combined remediation technology

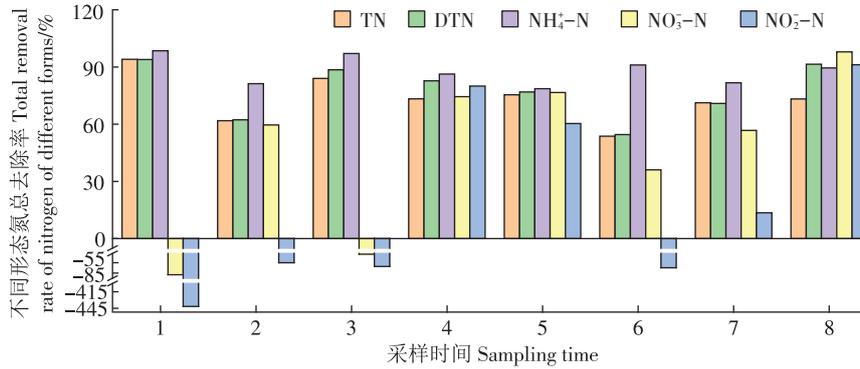
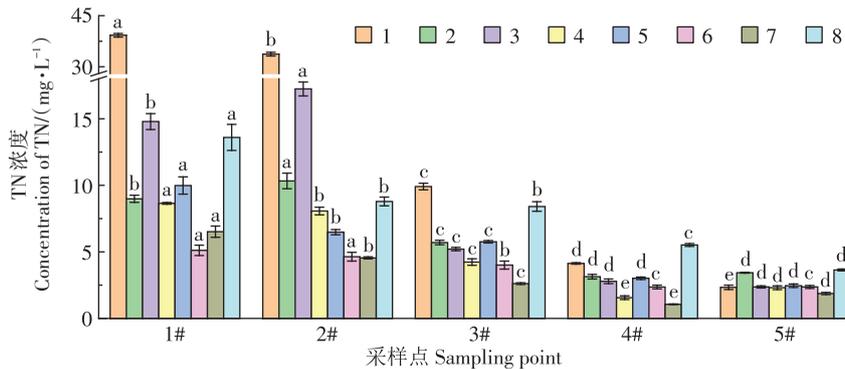


图2 异位生态组合修复技术对不同形态氮的总去除率

Figure 2 Total removal rate of different forms of nitrogen by ex-situ ecological combinational remediation technology

的浓度均保持在相对较低水平,出水浓度平均值分别为 $2.60 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $1.89 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。各处理单元中,泥膜共生高效混凝净水系统处理后水体中TN的浓度存在显著性差异( $P < 0.05$ )。当泥膜共生高效混凝净水系统出水中TN浓度( $10.33 \sim 33.71 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ )较高时,生态塘1对TN和DTN去除率的平均值分别为61.72%和60.98%,生态塘2对TN和DTN去除率的平均值分别

为49.94%和47.86%。但当泥膜共生高效混凝净水系统出水中TN浓度( $4.55 \sim 8.79 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ )较低时,TN、DTN在生态塘2中的去除率比在生态塘1中的去除率分别高约15%~36%、9%~40%,其中生态塘2对TN的去除效应显著高于生态塘1( $P < 0.05$ )。生态塘3对TN和DTN的去除效应处于波动状态,但在出水中TN和DTN的浓度均保持在相对较低水平,出水浓度平



不同字母表示同一采样时间、不同采样点氮浓度有显著性差异( $P < 0.05$ )。下同。

Different letters indicate significant differences of the nitrogen concentration in same sampling time and different sampling points ( $P < 0.05$ ). The same below.

图3 异位生态组合修复技术对TN的去除效应

Figure 3 Removal effect of TN by ex-situ ecological combinational remediation technology

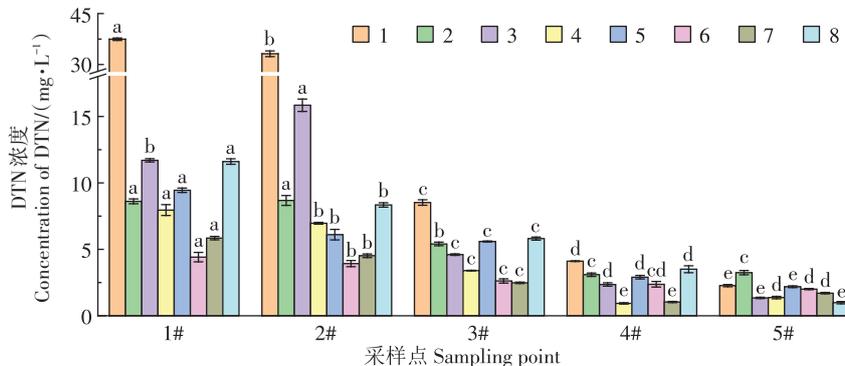


图4 异位生态组合修复技术对DTN的去除效应

Figure 4 Removal effect of DTN by ex-situ ecological combinational remediation technology

均值分别为  $2.60 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  和  $1.89 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。

### 2.1.3 对 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的去除效应

原水  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  浓度变化较大,变化范围为  $2.28 \sim 37.00 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。由图5可以看出,出水  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  浓度平均值为  $0.62 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ,与原水水体中  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  浓度存在显著性差异 ( $P < 0.05$ )。在各处理单元中,经泥膜共生高效混凝净水系统处理后  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  浓度有下降趋势,出水浓度为  $7.72 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。生态塘1、生态塘2对  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  的去除效应尤其明显,显著高于生态塘3对  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  的去除效应 ( $P < 0.05$ ),去除率最大值分别为  $89.28\%$  和  $90.77\%$ ,生态塘1、生态塘2出水  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  浓度分别为  $2.19$ 、 $0.58 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。 $\text{NH}_4^+\text{-N}$  在生态塘3中浓度变化较小,去除效应处于波动状态,最终  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  出水浓度较低,为  $0.20 \sim 1.10 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。

### 2.1.4 对 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 的去除效应

各处理单元  $\text{NO}_3^-\text{-N}$  浓度依次为  $1.88$ 、 $1.22$ 、 $0.99 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  和  $0.64 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。但异位生态组合修复技术对  $\text{NO}_3^-\text{-N}$  的去除效应因原水中  $\text{NO}_3^-\text{-N}$  浓度 ( $0.43 \sim 4.80 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ) 的不同而具有一定差异。如图6所示,当原水

中  $\text{NO}_3^-\text{-N}$  浓度 ( $0.43$ 、 $0.55 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ) 较低时,水体流经处理系统后  $\text{NO}_3^-\text{-N}$  浓度不降反升。其中,  $\text{NO}_3^-\text{-N}$  浓度在泥膜共生高效混凝净水系统中上升最多,在生态塘1和2中处于波动状态。生态塘3对  $\text{NO}_3^-\text{-N}$  的去除效应最好,显著高于泥膜共生高效混凝净水系统对  $\text{NO}_3^-\text{-N}$  的去除效应 ( $P < 0.05$ ),出水  $\text{NO}_3^-\text{-N}$  浓度为  $0.56 \sim 1.04 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。当原水中  $\text{NO}_3^-\text{-N}$  浓度较高时 ( $0.85 \sim 4.80 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ),各修复技术对  $\text{NO}_3^-\text{-N}$  的去除效应无显著差异 ( $P > 0.05$ ),最终  $\text{NO}_3^-\text{-N}$  出水浓度为  $0.10 \sim 1.26 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。

### 2.1.5 对 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 的去除效应

$\text{NO}_2^-\text{-N}$  在原水中浓度较低,进水平均浓度为  $0.70 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ,出水平均浓度为  $0.55 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。由图7可知,在各处理单元中,泥膜共生高效混凝净水系统处理后整体上  $\text{NO}_2^-\text{-N}$  浓度显著下降 ( $P < 0.05$ ),  $\text{NO}_2^-\text{-N}$  浓度最低为  $0.01 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。而水体流经生态塘1后  $\text{NO}_2^-\text{-N}$  浓度显著上升 ( $P < 0.05$ ),平均值达  $1.43 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。经生态塘2处理后  $\text{NO}_2^-\text{-N}$  浓度有明显下降趋势 ( $P < 0.05$ ),平均浓度降至  $0.73 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。在生态塘3中,  $\text{NO}_2^-\text{-N}$  的去除效应呈现波动趋势。

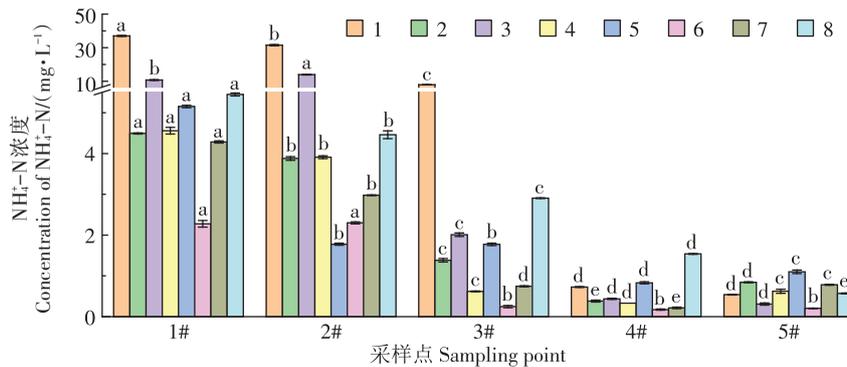


图5 异位生态组合修复技术对  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  的去除效应

Figure 5 Removal effect of  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  by ex-situ ecological combinational remediation technology

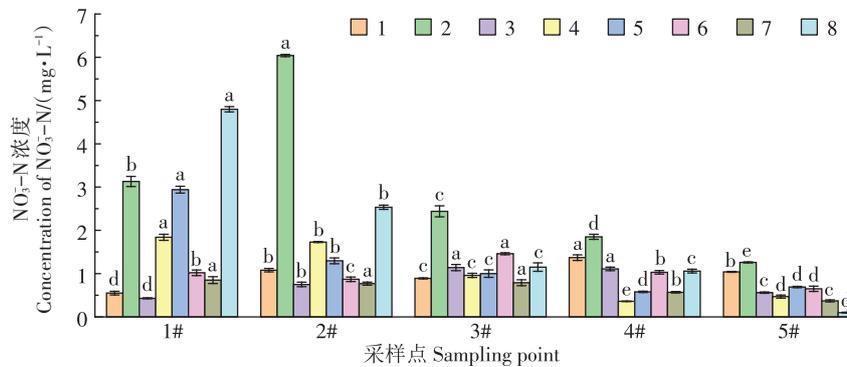


图6 异位生态组合修复技术对  $\text{NO}_3^-\text{-N}$  的去除效应

Figure 6 Removal effect of  $\text{NO}_3^-\text{-N}$  by ex-situ ecological combinational remediation technology

### 2.1.6 对COD的去除效应

如图8所示,出水中COD为23.58~47.66 mg·L<sup>-1</sup>,异位生态组合修复技术对COD总体去除率平均为52.33%。原水水体COD存在显著差异( $P<0.05$ ),当原水水体COD(135.93~355.70 mg·L<sup>-1</sup>)较高时,异位生态组合修复技术对COD总体去除率为64.94~87.00%。其中生态塘1对COD的去除效应显著高于泥膜共生高效混凝净水系统和生态塘3( $P<0.05$ ),生态塘1出水COD由进水的171.07~301.00 mg·L<sup>-1</sup>降至57.68~72.24 mg·L<sup>-1</sup>。当原水水体COD(41.64~71.24 mg·L<sup>-1</sup>)较低时,泥膜共生高效混凝净水系统对COD的去除效应最好,去除率为44.09%,出水COD平均值降至29.39 mg·L<sup>-1</sup>。

### 2.2 异位生态组合修复技术对水体氮形态百分含量的影响

水体中NO<sub>3</sub>-N、NO<sub>2</sub>-N和NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N为DIN的主要组成形式,由图9可见,原水中DIN占TN的76%~96%,同样,在各异位生态修复处理单元中,水体氮也以DIN为主要存在形式。由图10可见,原水中NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N为DIN

的主要形式,所占比例最高可达98%,最低为47%。流经异位生态组合修复技术各处理单元后,NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N在水体DIN中所占比例呈现下降趋势,而NO<sub>2</sub>-N和NO<sub>3</sub>-N占比具有上升趋势。但总体来看,经泥膜共生高效混凝净水系统处理后,NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N所占比例仍最高,平均占比62.51%。经生态塘1处理后,出水3种形态的氮均呈现不同程度的变化,NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N、NO<sub>2</sub>-N和NO<sub>3</sub>-N在DIN中的平均占比分别为37.02%、32.98%和30.01%,NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N占比显著下降( $P<0.05$ )。经生态塘2处理后,NO<sub>3</sub>-N、NO<sub>2</sub>-N和NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N三者的平均占比分别为45.23%、29.55%、25.21%,其中NO<sub>3</sub>-N占比显著高于NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N( $P<0.05$ )。经生态塘3处理后NO<sub>3</sub>-N占比呈下降趋势,NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N占比上升,NO<sub>3</sub>-N、NO<sub>2</sub>-N和NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N三者在水体DIN中的平均占比分别为33.63%、28.63%和37.88%。

### 2.3 异位生态组合修复技术氮形态与理化因子的相关性

由表1可知,经泥膜共生高效混凝净水系统处理后水体NO<sub>3</sub>-N与DO、pH呈极显著正相关( $P<0.01$ )。

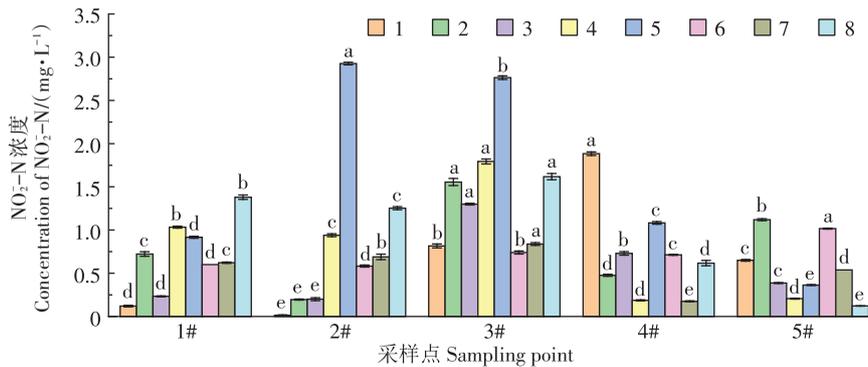


图7 异位生态组合修复技术对NO<sub>2</sub>-N的去除效应

Figure 7 Removal effect of NO<sub>2</sub>-N by ex-situ ecological combinational remediation technology

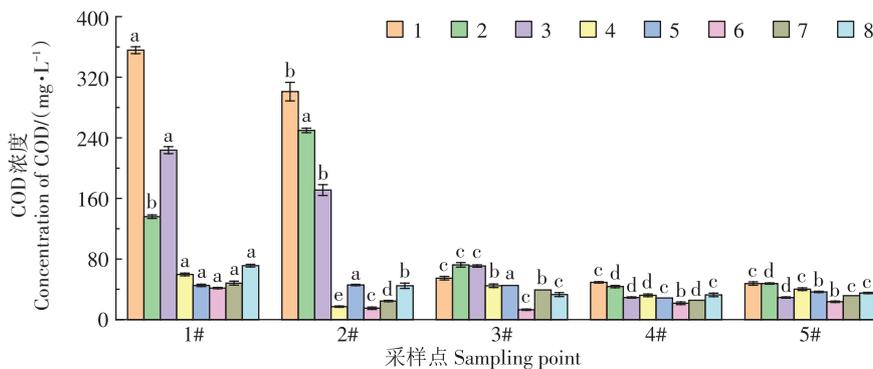


图8 异位生态组合修复技术对COD的去除效应

Figure 8 Removal effect of COD by ex-situ ecological combinational remediation technology

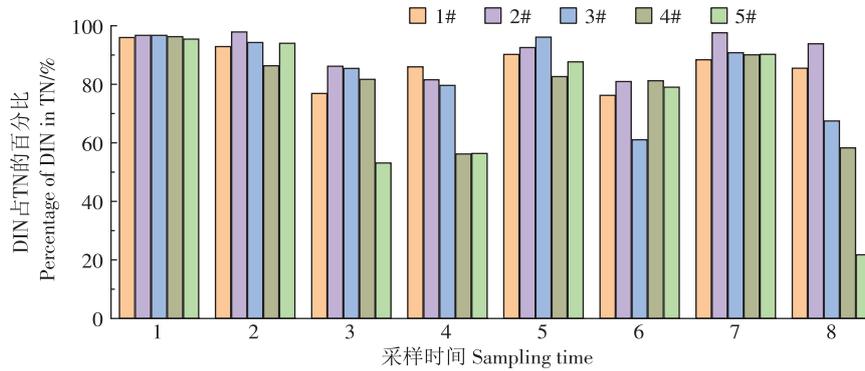


图9 异位生态组合修复技术中DIN占TN的百分比

Figure 9 The percentage of DIN to TN in ex-situ ecological combination remediation technology

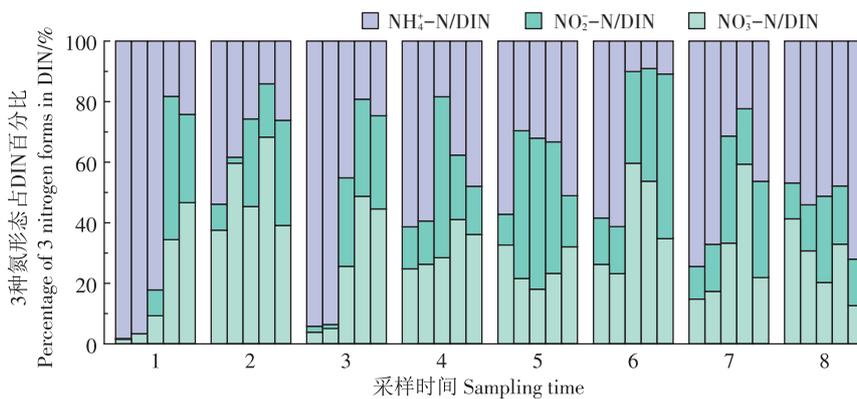


图10 异位生态组合修复技术中3种氮形态占DIN百分比

Figure 10 The percentage of 3 nitrogen forms to DIN in ex-situ ecological combination remediation technology

表1 不同形态氮与环境因子的相关性

Table 1 Correlation between different forms of nitrogen and environmental factors

处理单元 Treatment units	不同形态氮 Different forms of nitrogen	DO Dissolved oxygen	温度 Temperature	pH Pondus hydrogenii	浊度 Turbidity	处理单元 Treatment units	不同形态氮 Different forms of nitrogen	DO Dissolved oxygen	温度 Temperature	pH Pondus hydrogenii	浊度 Turbidity
泥膜共生 高效混凝 净水系统	NO <sub>3</sub> -N	0.675**	0.153	0.786**	-0.224	生态塘2	NO <sub>3</sub> -N	0.300	0.133	-0.270	-0.370
	NO <sub>2</sub> -N	-0.007	-0.035	0.216	0.256		NO <sub>2</sub> -N	0.293	-0.002	0.345	0.558**
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N	0.037	0.174	-0.122	0.080		NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N	-0.533**	-0.815**	0.318	0.265
	TN	0.133	0.222	-0.019	0.111		TN	-0.288	-0.637**	0.250	0.150
	DTN	0.119	0.199	-0.023	0.096		DTN	0.013	-0.297	0.121	0.246
生态塘1	NO <sub>3</sub> -N	0.502*	0.279	0.056	0.288	生态塘3	NO <sub>3</sub> -N	0.444*	0.603**	-0.347	-0.126
	NO <sub>2</sub> -N	-0.109	-0.163	-0.532**	0.823**		NO <sub>2</sub> -N	0.018	0.597**	0.000	-0.269
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N	0.013	-0.342	-0.685**	-0.009		NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N	-0.275	0.019	-0.883**	0.828**
	TN	-0.113	-0.601**	-0.846**	0.141		TN	-0.299	-0.617**	-0.178	0.012
	DTN	0.060	-0.381	-0.892**	0.339		DTN	0.099	0.557**	-0.488*	0.113

注:\*表示在0.05水平(双侧)显著相关;\*\*表示在0.01水平(双侧)极显著相关。

Note:\* indicates significant correlation at 0.05 level(bilateral);\*\* indicates a very significant correlation at 0.01 level(bilateral).

3个生态塘出水TN与温度呈极显著负相关( $P < 0.01$ )。此外,生态塘1出水NO<sub>3</sub>-N与DO呈显著正相关( $P < 0.05$ ), NO<sub>2</sub>-N、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N、TN和DTN均与pH呈极显著负相关

( $P < 0.01$ ), NO<sub>2</sub>-N与浊度呈极显著正相关( $P < 0.01$ )。生态塘2出水NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N与DO和温度呈极显著负相关( $P < 0.01$ ), NO<sub>2</sub>-N与浊度呈极显著正相关( $P < 0.01$ )。

生态塘3出水 $\text{NO}_3^-$ -N、 $\text{NO}_2^-$ -N和DTN与温度呈极显著正相关( $P<0.01$ ), $\text{NO}_3^-$ -N与DO显著正相关( $P<0.05$ ), $\text{NH}_4^+$ -N与pH呈极显著负相关( $P<0.01$ ),与浊度呈极显著正相关( $P<0.01$ ),DTN与pH呈显著负相关( $P<0.05$ )。

### 3 讨论

#### 3.1 异位生态组合修复技术对氮的去除效应

泥膜共生高效混凝净水系统主要是利用自循环高密度悬浮污泥滤沉技术,通过添加絮凝剂PAC完成对原水悬浮物、COD等的去除和预处理。PAC是一种羟基化铝单体的聚合物,极易水解,水解后产生一些带正电荷的高价聚合离子<sup>[21]</sup>,水体中的细微颗粒或胶体污染物能够在高价聚合离子作用下进行吸附电中和、吸附架桥或吸附卷扫等作用,使这些细微物质脱离稳定状态,生成粗大的絮凝体,从水体中沉淀去除<sup>[22]</sup>。经泥膜共生高效混凝净水系统处理后,水体DO浓度升高2.19倍,极显著高于原水DO浓度( $P<0.01$ ),水体浊度降低85.91%,极显著低于原水浊度( $P<0.01$ )。但混凝主要是去除水中悬浮物和胶体物质,对于中性和溶解性的 $\text{NH}_4^+$ -N、TN的去除效果较差。另外,在水中其他污染物被去除的同时,大量有机碳也被去除,使得C/N降低,反硝化所需能量及电子供体不足,脱氮效率下降,导致 $\text{NO}_3^-$ -N、 $\text{NO}_2^-$ -N及TN去除效果不佳。

生态塘1中主要工艺为围隔阻控、挂膜滤料和曝气。本研究发现,生态塘1对 $\text{NH}_4^+$ -N去除效应最好且具有稳定性,去除率最高可达89.28%,对TN和DTN去除效应良好,去除率分别为38.03%和43.91%。这是由于围隔阻控工程技术形成塘内整体推流布局的水动力条件,并尽量避免塘内出现短流区。物理的沉淀和吸附、生物的同化利用等对水体中污染物质进行多级转化降解去除<sup>[23]</sup>,促进了水体污染物自然降解、净化功能。好氧微生物的氨化过程是耗氧过程,有研究表明,底部微孔曝气(MA)可显著提高池塘水体DO水平,MA增强了池底的氧化还原电位,促进好氧微生物的增长<sup>[24]</sup>。生态塘1中曝气工艺的存在保证了水体DO的浓度,DO能够满足好氧氨氧化细菌进行硝化反应,将 $\text{NH}_4^+$ -N转化为 $\text{NO}_3^-$ -N,实现 $\text{NH}_4^+$ -N的有效去除<sup>[25-26]</sup>。江成等<sup>[27]</sup>的研究也发现多段好氧式“生物+生态”组合工艺是硝化作用去除 $\text{NH}_4^+$ -N的关键。但在生态塘1中 $\text{NO}_3^-$ -N浓度并未出现明显上升趋势,且水体流经生态塘1后其pH有一定程度的升

高,这说明生态塘1中同时进行着反硝化反应。本工程中,挂膜滤料构造的厌氧/缺氧-好氧环境为微生物提供了良好生存环境,使得微生物在氮的去除方面有较大贡献,研究表明微生物的反硝化可去除54%~94%的TN<sup>[28]</sup>。生态塘1出水 $\text{NO}_2^-$ -N呈上升趋势,也说明了微生物进行着较为强烈的反硝化反应, $\text{NO}_2^-$ -N作为反硝化反应的中间产物,微生物在不同环境条件下的不同生物活性可能会造成反硝化过程中 $\text{NO}_2^-$ -N的积累<sup>[29]</sup>,其主要原因是碳缺乏会导致硝酸盐与亚硝酸盐反硝化过程中的电子竞争<sup>[30]</sup>。

生态塘2和生态塘3的主要工艺为沉水植物种植和微孔曝气。植物修复主要是通过植物或附着植物微生物进行降解、吸收、代谢作用来达到去除污染物的目的<sup>[31]</sup>。沉水植物直接吸收并同化水体中氮为生长所需的蛋白质、核酸等物质<sup>[32]</sup>。但植物对不同形态氮的吸收存在较大差异,研究表明<sup>[33-34]</sup>,当 $\text{NH}_4^+$ -N和 $\text{NO}_3^-$ -N同时存在时, $\text{NH}_4^+$ -N是植物、微生物吸收的首选氮源,这是因为吸收同化 $\text{NO}_3^-$ -N需要消耗更多能量。生态塘2对 $\text{NH}_4^+$ -N的去除效应较其他几种氮更为显著的原因之一可能就是微生物和植物的优先利用。但同化吸收并非沉水植物去除氮的主要机制,研究表明<sup>[35-38]</sup>,同化吸收对氮的去除仅占TN去除量的1.65%~15.69%,而植物增效作用对水体氮的去除率为33.45%~47.14%。沉水植物对水体氮去除的主要机制为沉水植物与微生物的协同转化<sup>[39]</sup>,通过沉水植物根际泌氧和分泌有机碳源等物质,增加微生物的丰度、多样性和植物根系的活性<sup>[40]</sup>,数量、活性增加的氮循环微生物与植物共同起到去除水体中氮的作用。此外,沉水植物可以通过光合作用增加水体DO浓度,且可形成以植物叶片、根系为中心的好氧-缺氧微环境<sup>[41]</sup>,有利于硝化反硝化作用的发生。生态塘2出水中 $\text{NH}_4^+$ -N、 $\text{NO}_3^-$ -N浓度仍较高,且 $\text{NO}_3^-$ -N浓度高于 $\text{NH}_4^+$ -N浓度,说明生态塘2中反硝化不完全。这可能是生态塘2中COD浓度和沉水植物根系分泌物不能提供充足碳源供反硝化细菌正常生长<sup>[42]</sup>,以致微生物反硝化作用不完全。而生态塘3对 $\text{NH}_4^+$ -N的去除效应显著低于生态塘2( $P<0.05$ ),同时也显著低于生态塘3对 $\text{NO}_3^-$ -N的去除效应( $P<0.05$ ),这可能是由于生态塘3水体浊度极显著高于生态塘2( $P<0.01$ ),使得生态塘3中沉水植物光合作用受到抑制,植物生长状况受影响,泌氧减少,水体DO浓度较低,硝化作用下降,反硝化作用增强,这与水体pH的变化也相吻合。

分析发现,当流经异位生态组合修复技术的水体

中氮素浓度具有较大差异时,各处理单元对氮的去除效应表现不同。通过将水体高浓度氮和低浓度氮分别与环境因子进行 Pearson 相关性分析,发现高浓度氮常与环境因子温度的相关性较大,呈显著或极显著负相关,即温度越高,水体氮浓度相对越低,氮的去除效应相对较高。而低浓度氮与 DO 相关性更强,生态塘 1 和生态塘 2 中低浓度 TN 和 DTN 与 DO 均呈现显著或极显著负相关性,当 DO 浓度较高时,氮浓度较低,脱氮性能上升。当流经异位生态组合修复技术的水体中各形态氮浓度相对较低时,各处理单元对其去除率往往不如水体较高浓度氮时的去除率,并且在水体氮浓度较低时出现氮浓度不降反升的现象。这可能是因为本研究中水体氮主要存在形态为  $\text{NH}_4^+-\text{N}$ , 去除  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  主要通过硝化反应,当 DO 浓度下降时不利于  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  的去除,因此对于 TN 和 DTN 的去除也会产生影响。Wu 等<sup>[43]</sup>的研究也发现当  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  的输入速率降低时,  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  去除率较低。此外,底泥中富集的内源污染物也可能通过分子扩散和浓度梯度扩散作用释放到水体<sup>[44-46]</sup>。燕文明等<sup>[47]</sup>的研究表明,  $\text{NO}_3^--\text{N}$ 、 $\text{NO}_2^--\text{N}$ 、 $\text{NH}_4^+-\text{N}$  作为水体环境中最“活泼”的氮赋存形态,能够从底泥中扩散迁移至水体中。进入生态塘 3 的水体经前置处理单元净化后氮浓度通常较低,但也有氮浓度较高的情况,这就导致了生态塘 3 对氮的去除率处于波动状态。

### 3.2 异位生态组合修复技术对水体氮形态百分含量的影响

水体中氮形态主要分为有机氮和无机氮。本实验中, DIN 为水体中主要存在形式,这与一些研究结果一致<sup>[48-49]</sup>。  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  是异养细菌分解含氮有机物质的主要产物<sup>[50]</sup>, 原水中  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  为水体 DIN 的主要形式,说明水体受有机污染较为严重<sup>[51]</sup>,这可能是由于河流上游建有养殖场。经泥膜共生高效混凝净水系统处理,水体  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  所占比例仍为最高,与原水相比有下降趋势但变化较小,这也可能与水流在泥膜共生高效混凝净水系统中停留时间较短有关。停留时间较短会增大进水负荷,过高的进水负荷会使水流发生过度流动,导致硝化作用缺乏,使得脱氮性能不佳<sup>[52]</sup>,进而使  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  所占比例变化较小。随着水体流经各处理单元,  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  所占比例呈下降趋势,  $\text{NO}_2^--\text{N}$  和  $\text{NO}_3^--\text{N}$  占比呈上升趋势。生态塘 1 中  $\text{NH}_4^+-\text{N}$ 、 $\text{NO}_2^--\text{N}$ 、 $\text{NO}_3^--\text{N}$  百分含量分别为 37.02%、32.98% 和 30.01%,生态塘 1 中  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  占比显著低于泥膜共生高效混凝净水系统中  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  占比 ( $P < 0.05$ )。这是由于生态塘

1 中安装有曝气装置对水体进行充氧,同时挂膜滤料为微生物提供了良好的生存环境,使好氧微生物、硝化细菌活性增强,硝化反应强烈,  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  转化为  $\text{NO}_3^--\text{N}$  或  $\text{NO}_2^--\text{N}$ <sup>[53]</sup>,使得  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  占比明显下降。生态塘 2 中  $\text{NO}_3^--\text{N}$ 、 $\text{NO}_2^--\text{N}$  和  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  三者的平均占比分别为 45.23%、29.55%、25.21%,其中  $\text{NO}_3^--\text{N}$  占比显著高于  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  占比 ( $P < 0.05$ ),可以看出  $\text{NO}_3^--\text{N}$  逐渐占据主导地位,  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  占比进一步下降。沉水植物茎叶表面是微生物栖息的良好生境, Körner<sup>[54]</sup>研究发现,沉水植物表面富集的大量硝化和反硝化细菌,有利于水体中的硝化和反硝化作用。但沉水植物的存在使得硝化速率高于反硝化速率<sup>[55]</sup>,这是由于沉水植物使得 DO 浓度相对较高,从而有利于硝化过程而不利于反硝化过程。周裔文等<sup>[56]</sup>研究发现,水体  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  浓度较高时沉水植物优先吸收环境中的  $\text{NH}_4^+-\text{N}$ ,待水体中  $\text{NO}_3^--\text{N}$  为主要氮形态时,沉水植物才开始吸收  $\text{NO}_3^--\text{N}$ 。这是由于  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  在被同化时不需要还原,而  $\text{NO}_3^--\text{N}$  需要先被还原才能利用<sup>[57]</sup>。因此,由于相对较高的硝化速率以及沉水植物对  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  的优先利用使  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  占比下降,  $\text{NO}_3^--\text{N}$  占比升高。生态塘 3 中  $\text{NO}_3^--\text{N}$ 、 $\text{NO}_2^--\text{N}$  和  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  三者的平均占比分别为 33.63%、28.63% 和 37.88%。与生态塘 2 相比,可以发现  $\text{NO}_3^--\text{N}$  占比呈下降趋势,  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  占比略有上升。这可能是因为相对生态塘 2 而言,生态塘 3 地势略低,且生态塘 3 四周植物较少,由于降雨及其他自然因素有较多泥沙进入生态塘 3,导致生态塘 3 浊度极显著高于生态塘 2 ( $P < 0.01$ ),生态塘 3 水体中沉水植物光合作用受抑, DO 减少,有利于反硝化反应。因此  $\text{NO}_3^--\text{N}$  占比下降,  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  占比升高。

### 3.3 氮形态与环境因子的相关性

本研究发现,泥膜共生高效混凝净水系统、生态塘 1 和生态塘 3 出水  $\text{NO}_3^--\text{N}$  浓度与 DO 呈极显著、显著正相关,这可能是由于 DO 的存在有利于硝化作用的进行<sup>[58]</sup>。  $\text{NO}_3^--\text{N}$  作为硝化作用终产物,当有利于硝化反应时,  $\text{NO}_3^--\text{N}$  浓度也会增加。Zhuang 等<sup>[59]</sup>的研究也发现曝气可以增强氨氧化,即 DO 增加有利于氨氧化反应产出  $\text{NO}_3^--\text{N}$ 。生态塘 2 出水  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  浓度与 DO 呈极显著负相关。类似地, Chen 等<sup>[60]</sup>在人工潜流湿地中发现, DO 降低有利于脱氮,但限制了  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  的去除,  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  浓度较高。Cui 等<sup>[61]</sup>研究发现,湿地对  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  的去除效率与 DO 呈显著正相关,即  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  浓度与 DO 呈负相关。这是由于较低的 DO 浓度使湿地出现厌氧条件,促进了反硝化作用,抑制了硝化作用。

3个生态塘TN均与温度具有极显著负相关,生态塘2出水 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 浓度与温度也具有极显著负相关性。段田莉等<sup>[62]</sup>发现人工湿地单一处理单元及组合工艺对TN、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的去除率与温度呈正相关,即TN、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 浓度与温度具有负相关性。Huang等<sup>[63]</sup>的研究表明,随着温度的升高,湿地TN、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的去除效果不断增加,且种植植物的湿地比未种植植物的湿地对温度变化更敏感。这是由于温度升高使得硝化细菌活性不断升高,繁殖速度加快,有利于TN、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的去除。同时温度也会影响植物的生理生态特征,增加沉水植物对无机氮的吸收,并影响根际微环境<sup>[64]</sup>。但生态塘3出水 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 和DTN与温度呈极显著正相关,可能是生态塘3底泥中的微生物对温度变化更为敏感,在温度的变化下使得底泥中氮释放。

泥膜共生高效混凝净水系统出水 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 与pH呈极显著正相关,这可能与pH升高会降低混凝对 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 的去除率有关。研究表明,混凝对 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 的去除效果最佳时的pH值为7<sup>[65]</sup>。而本研究中泥膜共生高效混凝净水系统pH范围为6.95~8.80,因此出现随pH升高 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 去除效应下降, $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 浓度增高的趋势,即 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 浓度与pH呈正相关。反硝化反应是一个产碱的过程,在反硝化进行的同时会产生 $\text{OH}^-$ 或消耗 $\text{H}^+$ <sup>[66]</sup>。生态塘1出水 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、TN和DTN均与pH呈极显著负相关,生态塘3出水 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 与pH也呈极显著负相关,DTN与pH呈显著负相关。杨诗笛等<sup>[48]</sup>在研究贵州草海岩溶湿地水体中不同形态氮变化规律时发现,水体 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、TN和DTN均与pH呈显著或极显著负相关,这与本研究结果一致。

生态塘1和生态塘2中 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 均与浊度呈极显著正相关( $P<0.01$ ),生态塘3中 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 与浊度具有极显著正相关性( $P<0.01$ )。  $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 作为反硝化的中间产物,反硝化反应增强, $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 浓度也会升高。因此生态塘1中 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 浓度与浊度具有极显著正相关性( $P<0.01$ )是因为浊度升高促进了反硝化反应。张红丽等<sup>[67]</sup>的研究也发现水体浊度与水体反硝化呈显著正相关。水中悬浮物的数量、颗粒大小、形状等都是影响水体浊度的重要因子,而浊度的大小主要是通过影响光照在水体中的分布,从而影响水生生物的光合速率及生长速率<sup>[68]</sup>。生态塘2中 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 与浊度呈极显著正相关( $P<0.01$ ),生态塘3中 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 与浊度呈极显著正相关性( $P<0.01$ )是因为浊度影响了沉水植物光合速率及生长速率,导致DO不足及植物代谢减弱,反硝化增强,硝化作用减弱。

## 4 结论

(1)异位生态组合修复技术对不同浓度氮的总去除效应具有较好稳定性,对受污染水体修复效率较高。对 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的去除率显著高于对其他形态氮的去除率( $P<0.05$ ),具有最好的去除效应,去除率平均为88.03%,出水 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 浓度平均为 $0.62\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ;对水体中TN和DTN的去除率分别为73.35%和77.67%,出水浓度分别为 $2.60\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $1.89\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ,显著高于对 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 的去除效应( $P<0.05$ )。

(2)不同异位生态组合修复技术单元对水中氮的去除机理具有差异。泥膜共生高效混凝净水系统通过吸附电中和、吸附架桥等作用实现对原水预处理;生态塘1氮的去除主要依靠微生物的硝化、反硝化作用;生态塘2氮去除的主要途径为植物增效作用下的硝化作用以及少量的植物吸收和微生物反硝化作用;生态塘3主要通过反硝化作用实现对氮的去除。

(3)各异位生态组合修复技术单元中,水体氮以DIN为主要存在形式;原水中DIN占TN的76%~96%, $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 为原水水体DIN的主要形式。泥膜共生高效混凝净水系统 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 在DIN中所占比例最高,平均为62.51%;生态塘1中 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 占比下降显著( $P<0.05$ ),降至37.02%;生态塘2中 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 占比显著高于 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 占比( $P<0.05$ ),分别为45.23%和25.21%;生态塘3中 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 占比呈下降趋势, $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 占比上升,分别为33.63%和37.88%。

(4)环境因子(DO、温度、pH和浊度)主要通过影响混凝效果、硝化-反硝化反应、植物及微生物生长代谢调控异位生态组合修复技术的氮去除过程。泥膜共生高效混凝净水系统出水 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 与DO、pH均呈极显著正相关。3个生态塘出水TN与温度呈极显著负相关( $P<0.01$ ),其他不同氮形态与环境因子(DO、温度、pH和浊度)之间表现出不同的相关性。

(5)由于工程时间安排及疫情防控原因,本研究样品采集频率与次数受到一定影响,为深入探究异位生态组合修复技术对水体不同形态氮的去除效应,建议今后类似研究进行全年采样分析。

## 参考文献:

- [1] 李思雯. 铁粉和沸石联合去除水中无机氮的性能及机理研究[D]. 杨凌:西北农林科技大学, 2021:1-9. LIS W. The performance and mechanism of combined zero valence iron and zeolite to remove inorganic nitrogen from water[D]. Yangling: Northwest A&F University,

- 2021:1-9.
- [2] DENG D L, PAN Y T, LIU G H, et al. Seeking the hotspots of nitrogen removal: a comparison of sediment denitrification rate and denitrifier abundance among wetland types with different hydrological conditions [J]. *Science of the Total Environment*, 2020, 737: 140253.
- [3] ZHANG Q, XU X J, ZHANG R C, et al. The mixed/mixotrophic nitrogen removal for the effective and sustainable treatment of wastewater: from treatment process to microbial mechanism[J]. *Water Research*, 2022, 226: 119269.
- [4] JU X T, XING G X, CHEN X P, et al. Reducing environmental risk by improving N management in intensive Chinese agricultural systems[J]. *National Academy of Sciences*, 2009, 106(9): 3041-3046.
- [5] MULHOLLAND P J, HELTON A M, POOLE G C, et al. Stream denitrification across biomes and its response to anthropogenic nitrate loading [J]. *Nature*, 2008, 452: 202-205.
- [6] KUYPERS M M M, MARCHANT H K, KARTAL B. The microbial nitrogen-cycling network[J]. *Nature Reviews Microbiology*, 2018, 16: 263-276.
- [7] HENZE M, COMEAU Y. Biological wastewater treatment: principles, modelling and design[M]. London: IWA Publishing, 2008: 35-36.
- [8] BISWAL B K, VIJAYARAGHAVAN K, TSEN-TIENG D L, et al. Biochar-based bioretention systems for removal of chemical and microbial pollutants from stormwater: a critical review[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2022, 422: 126886.
- [9] HUANG J, XU C C, RIDOUTT B G, et al. Nitrogen and phosphorus losses and eutrophication potential associated with fertilizer application to cropland in China[J]. *Journal of Cleaner Production*, 2017, 159: 171-179.
- [10] 戚科美. 人工水草对污染河流中氮磷等污染物的去除效果研究[D]. 济南: 山东师范大学, 2017: 12-13. QI K M. Research on the removal effect of artificial aquatic plants on nitrogen, phosphorus and other pollutants in polluted rivers[D]. Jinan: Shandong Normal University, 2017: 12-13.
- [11] 唐伟, 张远, 王书平, 等. 微生物菌剂在水体修复中的应用进展[J]. 环境工程技术学报, 2019, 9(2): 151-158. TANG W, ZHANG Y, WANG S P, et al. Application progress of microbial agents in water remediation[J]. *Journal of Environmental Engineering Technology*, 2019, 9(2): 151-158.
- [12] 唐相臣, 宁大亮, 周海燕, 等. 多种生态修复植物和人工载体对城市河流水质净化效果比较研究[J]. 水处理技术, 2016, 42(9): 101-104. TANG X C, NING D L, ZHOU H Y, et al. Removal effects of multiple ecological restoration plants and artificial carriers on water purification in urban river[J]. *Technology of Water Treatment*, 2016, 42(9): 101-104.
- [13] 冯喻, 黄炼, 郭秀贤, 等. 进水浓度对复合人工湿地脱氮除磷效果的研究[J]. 环境生态学, 2022, 4(10): 101-105, 110. FENG Y, HUANG L, GUO X X, et al. Removal of phosphorus and nitrogen of influent concentration by constructed wetlands[J]. *Environmental Ecology*, 2022, 4(10): 101-105, 110.
- [14] JIA L X, ZHOU Q, LI Y W, et al. Integrated treatment of suburb diffuse pollution using large-scale multistage constructed wetlands based on novel solid carbon: nutrients removal and microbial interactions[J]. *Journal of Environmental Management*, 2023, 326: 116709.
- [15] NSENGA KUMWIMBA M, BATOOL A, LI X Y. How to enhance the purification performance of traditional floating treatment wetlands (FTWs) at low temperatures: strengthening strategies[J]. *Science of the Total Environment*, 2021, 766: 142608.
- [16] WANG W H, WANG Y, WEI H S, et al. Stability and purification efficiency of composite ecological floating bed with suspended inorganic functional filler in a field study[J]. *Journal of Water Process Engineering*, 2020, 37: 101482.
- [17] 陈建. 复合型人工湿地强化脱氮研究[D]. 合肥: 合肥工业大学, 2020: 29-30. CHEN J. Study on enhanced nitrogen removal in compound constructed wetland[D]. Hefei: Hefei University of Technology, 2020: 29-30.
- [18] ZHANG L L, SUN Z Z, XIE J, et al. Nutrient removal, biomass accumulation and nitrogen-transformation functional gene response to different nitrogen forms in enhanced floating treatment wetlands[J]. *Ecological Engineering*, 2018, 112: 21-25.
- [19] 王若冰. 高氨氮河流旁路塘-湿地系统氮去除效果及其转化过程研究[D]. 邯郸: 河北工程大学, 2018: 37-39. WANG R B. Research on nitrogen removal efficiency and transformation process of high ammonia nitrogen river bypass pond-wetland system[D]. Handan: Hebei University of Engineering, 2018: 37-39.
- [20] 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: 254-282. State Environmental Protection Administration. Methods for monitoring and analysis of water and wastewater[M]. 4th Edition. Beijing: China Environmental Science Press, 2002: 254-282.
- [21] 王林. PAC与硅藻土强化混凝处理水中铜绿微囊藻影响因素的研究[D]. 广州: 华南理工大学, 2014: 14-16. WANG L. Study on influencing factors of *Microcystis aeruginosa* removal in water by enhanced coagulation with PAC combining diatomite[D]. Guangzhou: South China University of Technology, 2014: 14-16.
- [22] YANG Z L, GAO B Y, CAO B C, et al. Effect of  $\text{OH}^-/\text{Al}^{3+}$  ratio on the coagulation behavior and residual aluminum speciation of polyaluminum chloride (PAC) in surface water treatment[J]. *Separation and Purification Technology*, 2011, 80(1): 59-66.
- [23] 刘汝鹏, 曲莹, 于水利. 生态稳定塘系统在城市污水处理中的应用[J]. 水处理技术, 2006, 32(11): 68-70. LIU R P, QU Y, YU S L. Application of ecotypic stabilization pond system in municipal wastewater treatment[J]. *Technology of Water Treatment*, 2006, 32(11): 68-70.
- [24] WANG M, YI M M, LU M X, et al. Effect of in situ sediment remediation combining oyster shells and bottom microporous aeration on nitrogen removal and microbiota[J]. *Aquaculture Research*, 2019, 50(1): 331-341.
- [25] 罗茜平. 富氧曝气对黑臭河道氮磷及硫、铁迁移转化过程的影响研究[D]. 重庆: 重庆大学, 2018: 10-11. LUO X P. Effect of oxygen-enriched aeration on nitrogen, phosphorus, sulphur and iron migration and transformation in black-odor river[D]. Chongqing: Chongqing University, 2018: 10-11.

- [26] CHEN D, DAI T, WANG H Y, et al. Nitrate removal by a combined bioelectrochemical and sulfur autotrophic denitrification (CBSAD) system at low temperatures[J]. *Desalination and Water Treatment*, 2016, 57(41):19411-19417.
- [27] 江成, 桂双林, 熊继海, 等. 多段好氧式村镇污水处理与生态修复[J]. 给水排水, 2018, 44(4):41-46. JIANG C, GUI S L, XIONG J H, et al. Multi segment aerobic village wastewater treatment and ecological restoration[J]. *Water and Wastewater Engineering*, 2018, 44(4):41-46.
- [28] CHEN Y, WEN Y, ZHOU Q, et al. Effects of plant biomass on nitrogen transformation in subsurface-batch constructed wetlands: a stable isotope and mass balance assessment[J]. *Water Research*, 2014, 63:158-167.
- [29] CHEN C, SONG Y H, YUAN Y C. The operating characteristics of partial nitrification by controlling pH and alkalinity[J]. *Water*, 2021, 13:286.
- [30] CHEN D Y, CHEN X C, HUANG X B, et al. Controlling denitrification accompanied with nitrite accumulation at the sediment-water interface[J]. *Ecological Engineering*, 2017, 100:194-198.
- [31] MIRETZKY P, SARALEGUI A, CIRELLI A F. Aquatic macrophytes potential for the simultaneous removal of heavy metals (Buenos Aires, Argentina)[J]. *Chemosphere*, 2004, 57(8):997-1005.
- [32] 黄亚, 傅以钢, 赵建夫. 富营养化水体水生植物修复机理的研究进展[J]. 农业环境科学学报, 2005, 24(增刊):379-383. HUANG Y, FU Y G, ZHAO J F. Research progress on mechanisms of phytoremediation for eutrophic water[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2005, 24(Suppl):379-383.
- [33] HUA Y M, PENG L, ZHANG S H, et al. Effects of plants and temperature on nitrogen removal and microbiology in pilot-scale horizontal subsurface flow constructed wetlands treating domestic wastewater[J]. *Ecological Engineering*, 2017, 108:70-77.
- [34] 徐昇, 李欣, 钟萍, 等. 苦草根系对硝氮和氨氮的吸收[J]. 生态科学, 2012, 31(3):312-317. XU S, LI X, ZHONG P, et al. The uptake of nitrate and ammonium by the root of *Vallisneria spiralis* L. [J]. *Ecological Science*, 2012, 31(3):312-317.
- [35] 朱平, 王全金, 宋嘉骏. 沉水植物塘对生活污水的净化效果[J]. 工业水处理, 2013, 33(11):33-37. ZHU P, WANG Q J, SONG J J. Purifying effect of domestic sewage by using a submerged macrophyte pond[J]. *Industrial Water Treatment*, 2013, 33(11):33-37.
- [36] SCHULZ M, RINKE K, KHLER J. A combined approach of photogrammetrical methods and field studies to determine nutrient retention by submersed macrophytes in running waters[J]. *Aquatic Botany*, 2003, 76(1):17-29.
- [37] 崔理华, 朱夕珍, 骆世明, 等. 垂直流人工湿地系统对污水磷的净化效果[J]. 环境污染治理技术与设备, 2002, 3(7):13-17. CUI L H, ZHU X Z, LUO S M, et al. The purification efficiency of phosphorus by means of vertical-flow constructed wetlands treatment system [J]. *Techniques and Equipment for Environmental Pollution Control*, 2002, 3(7):13-17.
- [38] 李琳, 岳春雷, 张华, 等. 不同沉水植物净水能力与植株体细菌群落组成相关性[J]. 环境科学, 2019, 40(11):4962-4970. LI L, YUE C L, ZHANG H, et al. Correlation between water purification capacity and bacterial community composition of different submerged macrophytes[J]. *Environmental Science*, 2019, 40(11):4962-4970.
- [39] 李菲菲, 褚淑祎, 崔灵周, 等. 沉水植物生长和腐解对富营养化水体氮磷的影响机制研究进展[J]. 生态科学, 2018, 37(4):225-230. LI F F, CHU S Y, CUI L Z, et al. Research advances on the influence mechanisms of submerged plants growth and decomposition on nitrogen and phosphorus in eutrophic water[J]. *Ecological Science*, 2018, 37(4):225-230.
- [40] TÜRKER O C, TÜRE C, BÖCÜK H, et al. Role of plants and vegetation structure on boron (B) removal process in constructed wetlands [J]. *Ecological Engineering*, 2016, 88:143-152.
- [41] 王文林, 刘波, 韩睿明, 等. 沉水植物茎叶微界面及其对水体氮循环影响研究进展[J]. 生态学报, 2014, 34(22):6409-6416. WANG W L, LIU B, HAN R M, et al. Research advancements and perspectives on leaf and stem micro-interfaces in submerged macrophytes and its effect on water nitrogen cycling[J]. *Acta Ecologica Sinica*, 2014, 34(22):6409-6416.
- [42] 王伟亚, 张静, 侯红勋, 等. 2种不同根系类型植物脱氮除磷对比研究[J]. 环境保护科学, 2022, 48(6):110-115. WANG W Y, ZHANG J, HOU H X, et al. Research on comparison of nitrogen and phosphorus removal in two plants with different root systems[J]. *Environmental Protection Science*, 2022, 48(6):110-115.
- [43] WU H M, ZHANG J, GUO W S, et al. Secondary effluent purification by a large-scale multi-stage surface-flow constructed wetland: a case study in northern China[J]. *Bioresour Technol*, 2018, 249:1092-1096.
- [44] YIN H B, KONG M, HAN M X, et al. Influence of sediment resuspension on the efficacy of geoengineering materials in the control of internal phosphorous loading from shallow eutrophic lakes[J]. *Environmental Pollution*, 2016, 219:568-579.
- [45] MCGOLDRICK D J, MURPHY E W. Concentration and distribution of contaminants in lake trout and walleye from the Laurentian Great Lakes(2008-2012)[J]. *Environmental Pollution*, 2016, 217:85-96.
- [46] WU Z, LIU Y, LIANG Z Y, et al. Internal cycling, not external loading, decides the nutrient limitation in eutrophic lake: a dynamic model with temporal Bayesian hierarchical inference[J]. *Water Research*, 2017, 116:231-240.
- [47] 燕文明, 麻林, 向龙, 等. 沉积物-水界面中可交换态氮对不同菹草密度的响应[J]. 水资源保护, 2016, 32(2):119-122, 128. YAN W M, MA L, XIANG L, et al. Effects of different densities of *Potamogeton crispus* L. on exchangeable nitrogen at sediment-water interface [J]. *Water Resources Protection*, 2016, 32(2):119-122, 128.
- [48] 杨诗笛, 曹星星, 吴攀, 等. 贵州草海岩溶湿地水体不同形态氮的时空分布特征[J]. 生态学杂志, 2021, 40(1):93-102. YANG S D, CAO X X, WU P, et al. Temporal and spatial distribution characteristics of different forms of nitrogen in karst wetland in Caohai, Guizhou [J]. *Chinese Journal of Ecology*, 2021, 40(1):93-102.
- [49] QIN B Q, XU P Z, WU Q L, et al. Environmental issues of Lake Taihu, China[J]. *Hydrobiologia*, 2007, 581(1):3-14.
- [50] ZHONG J C, FAN C X, LIU G F, et al. Seasonal variation of potential

- denitrification rates of surface sediment from Meiliang Bay, Taihu Lake, China[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2010, 22(7):961-967.
- [51] 徐宁, 段舜山, 林秋奇, 等. 广东大中型供水水库的氮污染与富营养化分析[J]. *生态学杂志*, 2004, 23(3):63-67. XU N, DUAN S S, LIN Q Q, et al. Analysis on nitrogen pollution and eutrophication of the large and medium reservoirs for water supply in Guangdong Province[J]. *Chinese Journal of Ecology*, 2004, 23(3):63-67.
- [52] SAEED T, SUN G Z. A review on nitrogen and organics removal mechanisms in subsurface flow constructed wetlands: Dependency on environmental parameters, operating conditions and supporting media [J]. *Journal of Environmental Management*, 2012, 112:429-448.
- [53] 文倩. 曝气与组合微生物对封闭型黑臭水体的治理效果研究[D]. 绵阳: 西南科技大学, 2019:25-26. WEN Q. Study on the effect of aeration and combing microorganism on the treatment of closed black-odor water[D]. Mianyang: Southwest University of Science and Technology, 2019:25-26.
- [54] KÖRNER S. Nitrifying and denitrifying bacteria in epiphytic communities of submerged macrophytes in a treated sewage channel[J]. *Acta Hydrochimica et Hydrobiologica*, 1999, 27(1):27-31.
- [55] ZHANG D, WANG C, ZHOU Q H, et al. Sediments nitrogen cycling influenced by submerged macrophytes growing in winter[J]. *Water Science and Technology*, 2021, 83(7):1728-1738.
- [56] 周裔文, 许晓光, 韩睿明, 等. 水体氮磷营养负荷对苦草净化能力和光合荧光特性的影响[J]. *环境科学*, 2018, 39(3):1180-1187. ZHOU Y W, XU X G, HAN R M, et al. Effect of nutrient loadings on the regulation of water nitrogen and phosphorus by *Vallisneria spiralis* and its photosynthetic fluorescence characteristics[J]. *Environmental Science*, 2018, 39(3):1180-1187.
- [57] 徐兵兵, 卢峰, 黄清辉, 等. 东苕溪水体氮、磷形态分析及其空间差异性[J]. *中国环境科学*, 2016, 36(4):1181-1188. XU B B, LU F, HUANG Q H, et al. Forms of nitrogen and phosphorus and their spatial variability in East Tiaoxi River[J]. *China Environmental Science*, 2016, 36(4):1181-1188.
- [58] MA Y H, ZHENG X Y, HE S B, et al. Nitrification, denitrification and anammox process coupled to iron redox in wetlands for domestic wastewater treatment[J]. *Journal of Cleaner Production*, 2021, 300:126953.
- [59] 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.
- [60] CHEN D Y, GU X S, ZHU W Y, et al. Denitrification- and anammox-dominant simultaneous nitrification, anammox and denitrification (SNAD) process in subsurface flow constructed wetlands[J]. *Bioresource Technology*, 2019, 271:298-305.
- [61] CUI L J, WEI L, ZHANG Y Q, et al. Nitrogen removal in a horizontal subsurface flow constructed wetland estimated using the first-order kinetic model[J]. *Water*, 2016, 8:514.
- [62] 段田莉, 成功, 郑媛媛, 等. 高效垂直流人工湿地+多级生态塘深度处理污水厂尾水[J]. *环境工程学报*, 2017, 11(11):5828-5835. DUAN T L, CHENG G, ZHENG Y Y, et al. Advanced treatment of tail water from sewage plant by high-efficiency vertical flow constructed wetland-multistage ecological ponds[J]. *Chinese Journal of Environmental Engineering*, 2017, 11(11):5828-5835.
- [63] HUANG J, CAI W S, ZHONG Q S, et al. Influence of temperature on micro-environment, plant eco-physiology and nitrogen removal effect in subsurface flow constructed wetland[J]. *Ecological Engineering*, 2013, 60:242-248.
- [64] PICARD C R, FRASER L H, STEER D. The interacting effects of temperature and plant community type on nutrient removal in wetland microcosms[J]. *Bioresource Technology*, 2005, 96:1039-1047.
- [65] 宋相松. 吸附剂与混凝剂联合应用于再生水除氮的实验研究[D]. 郑州: 华北水利水电大学, 2016:27-29. SONG X S. The experimental study about nitrogen removal effect of adsorbent and coagulant production in the reclaimed water[D]. Zhengzhou: North China University of Water Resources and Electric Power, 2016:27-29.
- [66] SI Z H, SONG X S, WANG Y H, et al. Untangling the nitrate removal pathways for a constructed wetland-sponge iron coupled system and the impacts of sponge iron on a wetland ecosystem[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2020, 393:122407.
- [67] 张红丽, 尹国宇, 郑艳玲, 等. 沉积物再悬浮对长江口滩涂覆水体脱氮过程的影响[J]. *华东师范大学学报(自然科学版)*, 2020(3):78-87. ZHANG H L, YIN G Y, ZHENG Y L, et al. Response of nitrogen removal in the overlying water to sediment resuspension in the intertidal wetlands of the Yangtze Estuary[J]. *Journal of East China Normal University(Natural Science)*, 2020(3):78-87.
- [68] 陈扬. 星云湖水体环境与氮磷空间分布特征研究[D]. 昆明: 云南师范大学, 2020:8-11. CHEN Y. Characteristics of water environments and spatial distribution of nitrogen and phosphorus in Xingyun Lake[D]. Kunming: Yunnan Normal University, 2020:8-11.