

方知库  
Eco-Environmental  
Knowledge Web

# 环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

长江经济带PM<sub>2.5</sub>空间异质性和驱动因素的地理探测

王丽丽, 刘笑杰, 李丁, 孙颖琦



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2022年3月

第43卷 第3期

Vol.43 No.3

目次

2000~2020年天津PM<sub>2.5</sub>质量浓度演变及驱动因子分析 ..... 蔡子颖, 郝团, 韩素芹, 唐颖潇, 杨旭, 樊文雁, 姚青, 邱晓滨(1129)

天津市PM<sub>2.5</sub>-O<sub>3</sub>复合污染特征及来源分析 ..... 肖致美, 徐虹, 高璟寰, 蔡子颖, 毕温凯, 李鹏, 杨宁, 邓小文, 戴运峰(1140)

基于随机森林模型的武汉市城区大气PM<sub>2.5</sub>来源解析 ..... 张志豪, 陈楠, 祝波, 陶卉婷, 成海容(1151)

华北南部重污染城市周边区域二次气溶胶的化学特征及来源解析 ..... 任秀龙, 胡伟, 吴春苗, 胡偲豪, 高娜娜, 张崇崇, 岳亮, 王金喜, 樊景森, 牛红亚(1159)

“大气十条”实施结束川南城市群秋季霾污染过程中水溶性离子特征 ..... 吴安南, 黄小娟, 何仁江, 李金建, 叶秋麟, 吴涛, 肖智丹, 刘子锐, 王跃思, 张小玲, 张军科(1170)

郑州市典型污染过程PM<sub>10</sub>中重金属浓度、来源及健康风险评估 ..... 翟诗婷, 王申博, 张栋, 赵孝因, 杨洁茹, 刘洋, 陈红阳, 张瑞芹(1180)

长江经济带PM<sub>2.5</sub>空间异质性和驱动因素的地理探测 ..... 王丽丽, 刘笑杰, 李丁, 孙颖琦(1190)

长三角地区PM<sub>2.5</sub>浓度对土地利用/覆盖转换的空间异质性响应 ..... 周丽霞, 吴涛, 蒋国俊, 张建珍, 濮励杰, 徐飞, 解雪峰(1201)

“2+26”城市春节和元宵节期间污染特征、气象影响和预报回顾分析 ..... 朱媛媛, 王晓斐, 汪巍, 刀谔, 王帅, 陈善荣(1212)

基于小波变换的山西省PM<sub>2.5</sub>污染特征及影响因素 ..... 张可可, 胡冬梅, 闫雨龙, 彭林, 段小琳, 尹浩, 王凯, 邓萌杰(1226)

中国地表臭氧浓度估算及健康影响评估 ..... 赵楠, 卢毅敏(1235)

湖南省臭氧污染基本特征分析及长期趋势变化主控因素识别 ..... 刘妍妍, 杨雷峰, 谢丹平, 泽仁央宗, 黄志烟, 杨俊, 赵鹏, 韩静磊, 贾文超, 袁自冰(1246)

山东半岛近地面O<sub>3</sub>浓度时空变化及潜在源区解析 ..... 李乐, 刘旻霞, 肖仕锐, 王思远, 米佳乐(1256)

COVID-19疫情期间雄安新区VOCs的变化特征、臭氧生成潜势及来源解析 ..... 刘新军, 王淑娟, 刘程, 范莉茹, 付翠轻, 齐莹, 宿文康(1268)

淄博市城区臭氧超标期间的VOCs污染特征与来源解析 ..... 王帅, 王秀艳, 杨文, 王雨燕, 白瑾丰, 程颖(1277)

淄博市夏季城区与背景点VOCs污染特征比较 ..... 秦涛, 徐勃, 王信梧, 李丽明, 杨文, 王晓丽, 耿春梅(1286)

四川省餐饮源挥发性有机物组分特征和清单 ..... 钱骏, 韩丽, 陈军辉, 王斌, 姜涛, 徐晨曦, 李英杰, 王成辉, 王波(1296)

餐饮源气相与颗粒相多环芳烃排放特征 ..... 李源速, 吴爱华, 童梦雪, 栾胜基, 李鹭(1307)

堆肥厂不同工作区空气真菌的多样性与群落结构 ..... 于奥园, 邢礼军, 孙兴滨, 仇天雷, 王旭明, 高敏(1315)

城市扬尘污染主要成因与精准治尘思路 ..... 李廷昆, 冯银厂, 毕晓辉, 张裕芬, 吴建会(1323)

黄河干流水质评价与时空变化分析 ..... 刘彦龙, 郑易安(1332)

典型山地城市河流营养元素空间分布特征及影响因素分析:以重庆市清水溪为例 ..... 王超, 叶秋, 贾伯阳, 何文战, 党超军, 黄焱, 杜浪(1346)

三峡库区支流的河-湖两态及其对沉积物不同形态磷含量的影响 ..... 黄伟, 张研, 罗晓佼, 张磊(1356)

派河及其支流溶解性有机质分子组成特征 ..... 詹亚, 尹浩, 冯景伟, 冯艾荣, 胡艳云, 张刘, 郑刘根(1365)

粤港澳大湾区典型潮间带环境多介质中Cd形态空间分布特征及其影响因素 ..... 崔新月, 莫武秋, 廖建波(1375)

骆马湖及主要入湖河流表层水体中抗生素的赋存特征及风险评估 ..... 龚润强, 赵华璋, 高占欣, 胡冠九, 卜元卿, 张圣虎, 邱惠(1384)

宁夏第三排水沟中抗生素的污染特征与生态风险评估 ..... 李富娟, 高礼, 李凌云, 卜兰香, 陶红, 杨桂钦(1394)

百年来北方湖泊沉积物PAHs的变化特征及其对人类活动的响应 ..... 龚雄虎, 赵中华, 丁琪琪, 张路, 姚书春, 薛滨(1404)

长江流域河流和湖库的浮游细菌群落差异 ..... 胡愈忻, 张静, 黄杰, 段春建, 李天翠, 刘威, 王英才, 胡圣(1414)

河套平原灌溉间隙期乌梁素海水体细菌群落结构特征 ..... 史玉娇, 李文宝, 张博尧, 姚国旺, 史小红(1424)

不同空间尺度的景观结构对袁河浮游细菌群落的影响 ..... 舒旺, 王鹏, 丁明军, 张华, 黄高翔, 聂明华(1434)

鄱阳湖白鹤保护区微塑料表面微生物群落结构特征 ..... 刘淑丽, 简敏菲, 邹龙, 胡启武(1447)

微塑料对变形杆菌生物膜生长发育的影响 ..... 陶辉, 戚怡婷, 于多, 杨兰, 顾颖, 厉彦辉(1455)

乌梁素海低密度微塑料聚合物沉降规律 ..... 刘禹, 史小红, 张生, 郝若男, 孙标, 赵胜男(1463)

老化前后微塑料对富里酸的吸附 ..... 宋亚丽, 俞娅, 郑磊, 汪华, 朱文芳(1472)

天津市滨海河流N<sub>2</sub>O扩散通量及控制因子 ..... 汤梦瑶, 胡晓康, 王洪伟, 王云仓, 常素云, 王松庆, 钟继承(1481)

铁矿石和生物炭添加对潜流人工湿地污水处理效果和温室气体排放及微生物群落的影响 ..... 陈鑫童, 郝庆菊, 熊艳芳, 胡剑, 江长胜(1492)

降雨径流污染风险等级识别与优化方法 ..... 齐小天, 张质明, 赵鑫, 胡文翰, 刘迪(1500)

基于贝叶斯网络的给水管网消毒副产物生成因素分析 ..... 江杉杉, 王臻宇, 高权, 杨愿愿, 高方舟, 华佩, 应光国(1512)

聚硫代酰胺修饰活性炭对Au(III)的选择性吸附效果与机制 ..... 赵文金, 张顺, 安晓强, 兰华春, 刘会娟, 曲久辉(1521)

F/M对活性污泥微生物生态网络的影响 ..... 张冰, 孙展朝, 文湘华(1529)

城乡融合区土壤元素地球化学特征与源解析:以天府新区青龙片区为例 ..... 刘书准, 王德伟, 施泽明, 唐亮, 章凤英, 廖程, 李晓雨, 徐文斌(1535)

基于总量与形态的矿区周边土壤重金属生态风险与健康风险评估 ..... 王蕊, 陈楠, 张二喜(1546)

湖南锡矿山周边土壤-农作物系统镉迁移转换特征及污染评价 ..... 张龙, 宋波, 黄凤艳, 肖乃川, 顿梦杰(1558)

生物炭负载氧化石墨烯对离子型稀土土壤中重金属的阻控效应 ..... 杨士, 刘祖文, 龙培, 毕永顺, 林苑, 左华伟(1567)

溶解性有机质强化棉花修复镉污染土壤 ..... 闵涛, 罗彤, 陈丽丽, 茹思博, 李俊华(1577)

铁锰氧化物-微生物负载生物炭材料对镉和砷的吸附机制 ..... 连斌, 吴骥子, 赵科理, 叶正钱, 袁峰(1584)

不同冬小麦品种镉富集转运及离子组特征差异 ..... 刘畅, 徐应明, 黄青青, 陶雪莹, 王林, 孙灼兵, 赵立杰(1596)

镉胁迫下不同小麦品种对镉的积累特性 ..... 任超, 任或仲, 王浩, 朱利文, 李竞天, 杜倩倩, 李萍(1606)

嘉陵江滨岸带不同土地利用类型对土壤细菌群落多样性的影响 ..... 刘坤和, 薛玉琴, 竹兰萍, 徐飞, 朱志豪, 张拓, 张富斌(1620)

蚯蚓/钾改性生物炭对As污染红壤中细菌多样性和群落结构的影响 ..... 苏倩倩, 李莲芳, 朱昌雄, 叶婧, 刘雪, 耿兵, 田云龙, 黄晓雅(1630)

DA-6和EDDS施用对龙葵生长、Cd吸收和土壤细菌群落结构的影响 ..... 罗洋, 孙丽, 刘方, 任军, 郭金梅, 闫修民(1641)

地膜覆盖对农田土壤养分和生态酶计量学特征的影响 ..... 胡志娥, 肖谋良, 王双, 董瑶瑶, 鲁顺保, 陈剑平, 葛体达(1649)

增温和增雨对黄土丘陵地撂荒地土壤呼吸的影响 ..... 王兴, 钟泽坤, 朱玉帆, 王佳懿, 杨改河, 任成杰, 韩新辉(1657)

秸秆还田、地膜覆盖及施肥对冬小麦田N<sub>2</sub>O和N<sub>2</sub>排放的影响 ..... 彭毅, 李惠通, 张少维, 阳婷, 王筱斐, 周春菊, 王林权(1668)

基于Meta分析的不同生产条件下秸秆还田对土壤挥发性的影响 ..... 赵政鑫, 王晓云, 田雅洁, 王锐, 彭青, 蔡焕杰(1678)

施肥对农田土壤抗生素抗性基因影响的整合分析 ..... 冉继伟, 肖琼, 黄敏, 蔡岸冬, 张文菊(1688)

《环境科学》征订启事(1331) 《环境科学》征稿简则(1403) 信息(1462, 1511, 1605)

# 铁矿石和生物炭添加对潜流人工湿地污水处理效果和温室气体排放及微生物群落的影响

陈鑫童<sup>1</sup>, 郝庆菊<sup>1,2</sup>, 熊艳芳<sup>1</sup>, 胡剑<sup>1</sup>, 江长胜<sup>1,2\*</sup>

(1. 西南大学资源环境学院, 重庆 400715; 2. 重庆市农业资源与环境研究重点实验室, 重庆 400716)

**摘要:** 人工湿地中基质的种类和填充方式会影响人工湿地中微生物的多样性及丰度, 进而影响污水处理效果. 通过在温室构建空白-人工湿地(CW0)、铁矿石-人工湿地(CW1)、生物炭-人工湿地(CW2)和铁矿石+生物炭-人工湿地(CW3)这4组湿地, 研究不同填料人工湿地系统的污水处理效果和温室气体排放及微生物群落结构的差异. 结果表明, 添加铁矿石或者生物炭能够提高-0.12%~1.7%的COD去除率. 添加生物炭能够分别提升22.48%的 $\text{NH}_4^+$ -N和6.82%的 $\text{NO}_3^-$ -N去除率, 并分别降低83.91%的 $\text{CH}_4$ 和30.81%的 $\text{N}_2\text{O}$ 排放通量. 添加铁矿石能够降低1.12%的 $\text{NH}_4^+$ -N去除率, 提高3.98%的 $\text{NO}_3^-$ -N去除率, 并分别降低33.29%的 $\text{CH}_4$ 和25.2%的 $\text{N}_2\text{O}$ 排放通量. 添加生物炭或者铁矿石均能够增加放线菌门(Actinobacteria)与变形菌门(Proteobacteria)的相对丰度, 有利于COD的去除. 添加生物炭处理基质中微生物的Ace、Chao、Sobs和Shannon指数最大, Simpson指数最小, 添加铁矿石的处理则相反, 表明添加生物炭处理系统中微生物群落丰富度以及多样性最大, 铁矿石的添加会降低人工湿地处理系统的微生物群落的丰富度以及多样性. 添加生物炭或者铁矿石能增加*Dechloromonas*、*Thauera*和*Saccharimonadales*等反硝化菌属的相对丰度, 有利于湿地脱氮. 添加生物炭能够增加*nosZ*、*nirS*和*nirK*功能基因的丰度, 有利于反硝化过程的发生. 添加生物炭能够增加*pmoA*功能基因的丰度, 降低*mcrA*功能基因的丰度, 抑制 $\text{CH}_4$ 的产生, 也能增加甲烷氧化菌的丰度, 促进 $\text{CH}_4$ 氧化过程的发生. 添加铁矿石虽然增加*mcrA*功能基因的丰度, 但 $\text{Fe}^{3+}$ 与产甲烷菌争夺电子供体, 抑制 $\text{CH}_4$ 的产生.

**关键词:** 人工湿地; 铁矿石; 生物炭; 微生物群落; 功能基因

中图分类号: X16; X172 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2022)03-1492-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.202107036

## Effects of Hematite and Biochar Addition on Wastewater Treatment Efficiency, Greenhouse Gas Emission, and Microbial Community in Subsurface Flow Constructed Wetland

CHEN Xin-tong<sup>1</sup>, HAO Qing-ju<sup>1,2</sup>, XIONG Yan-fang<sup>1</sup>, HU Jian<sup>1</sup>, JIANG Chang-sheng<sup>1,2\*</sup>

(1. College of Resources and Environment, Southwest University, Chongqing 400715, China; 2. Chongqing Key Laboratory of Agricultural Resources and Environment, Chongqing 400716, China)

**Abstract:** The type and structure of the substrate in constructed wetland affects the diversity and abundance of microorganisms, thereby influencing the effect of sewage treatment. In this study, four groups of wetlands were constructed in the greenhouse: blank-constructed wetland (CW0), hematite-constructed wetland (CW1), biochar-constructed wetland (CW2), and hematite + biochar-constructed wetland (CW3), to study the differences in sewage treatment effects, greenhouse gas emissions, and microbial community structures of constructed wetland systems under different filler substrates. The results showed that the addition of hematite or biochar increased the COD removal rate of -0.12% to 1.7%. The addition of biochar increased the removal rate of  $\text{NH}_4^+$ -N by 22.48% and  $\text{NO}_3^-$ -N by 6.82% and reduced the emission flux of  $\text{CH}_4$  by 83.91% and  $\text{N}_2\text{O}$  by 30.81%. The addition of hematite reduced the removal rate of  $\text{NH}_4^+$ -N by 1.12%, increased the removal rate of  $\text{NO}_3^-$ -N by 3.98%, and reduced the emission flux of  $\text{CH}_4$  by 33.29% and  $\text{N}_2\text{O}$  by 25.2%. Adding biochar or hematite increased the relative abundances of Actinobacteria and Proteobacteria, which was beneficial to the removal of COD. The Ace, Chao, Sobs, and Shannon indexes in the substrate treated with biochar were the largest, and the Simpson index was the smallest. The treatment with hematite was the opposite, indicating that the richness and diversity of microbial communities in the treatment system with biochar was the largest. Adding hematite reduced the richness and diversity of the microbial community in the constructed wetland system. Adding biochar or hematite increased the relative abundances of *Dechloromonas*, *Thaurea*, *Saccharimonadales*, and other denitrifying bacteria, which was beneficial to wetland denitrification. The addition of biochar increased the abundances of *nosZ*, *nirS*, and *nirK* functional genes, which were conducive to the occurrence of denitrification. The addition of biochar increased the abundances of *pmoA* functional genes, reduced the abundance of *mcrA* functional genes, and inhibited the production of  $\text{CH}_4$ . It also increased the abundance of methanotrophic bacteria and promoted the occurrence of the  $\text{CH}_4$  oxidation process. Although the addition of hematite increased the abundance of *mcrA* functional genes,  $\text{Fe}^{3+}$  competed with methanogens for electron donors and inhibited the production of  $\text{CH}_4$ .

**Key words:** subsurface constructed wetland; hematite; biochar; microbial community; functional gene

人工湿地是一个综合的生态系统,能脱氮除磷、去除COD和重金属等污染物<sup>[1]</sup>,因其投资低,景观

收稿日期: 2021-07-05; 修订日期: 2021-08-17

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)

作者简介: 陈鑫童(1996~),男,硕士研究生,主要研究方向为水污染控制, E-mail: 1011325772@qq.com

\* 通信作者, E-mail: jiangcs@126.com

效果好, 现已大规模应用到河流污染修复中<sup>[2]</sup>. 传统的人工湿地结构相对简单, 致使  $O_2$  扩散不均匀, 污水处理效果受到一定影响. 而基质的结构与类型会显著影响湿地处理效果, 近年来有研究发现<sup>[3]</sup>, 改变湿地的填料基质有利于改善  $O_2$  的分布状况, 从而增强污染物的去除效果. 生物炭具有较大的比表面积和多孔的介质结构, 可以为微生物提供附着空间<sup>[4]</sup>. 改变湿地的基质结构在提升湿地的污水处理效果的同时, 微生物的群落结构也会随之改变. Li 等<sup>[5]</sup>的研究发现, 在表面流湿地增加生物炭可以显著提高微生物丰度, 进而有较好的氮去除率. 铁具有可变的价态, 能提升对于污染物的去除效果<sup>[6]</sup>,  $Fe^{2+}$  作为电子供体可辅助反硝化过程, 增强人工湿地的脱氮能力<sup>[7]</sup>. Ma 等<sup>[8]</sup>的研究发现, 在表面流湿地添加铁可以增加反硝化类微生物, 促进铁与氮之间发生氧化还原反应, 进而提高氮的去除率, 磷酸盐与铁发生反应生成  $Fe_3(PO_4)_2$ , 进而提高 P 的去除率. Zhou 等<sup>[9]</sup>的研究发现, 在未曝气人工湿地装置中添加 15% 的生物炭, 能分别提升 21.8% 的 COD 和 12.9% 的  $NH_4^+-N$  去除率. 乔雯雯等<sup>[10]</sup>的研究发现, 与空白对照相比, 在人工湿地中添加 40% 的黄铁矿, 对 COD、TN 和  $NO_3^- -N$  的去除率分别提升 5.5%、14.1% 和 7.5%.

有研究发现<sup>[11]</sup>, 在人工湿地处理系统中添加生物炭和铁矿石均能改善 TN 的去除效果, 添加生物炭能够实现  $CH_4$  与  $N_2O$  的减排, 相比空白对照系统,  $CH_4$  与  $N_2O$  分别减排了 83.91% 和 30.81%, 但添加铁矿石的作用不大. 湿地中微生物除了能去除污染物外, 还具有指示污染物净化的能力<sup>[12]</sup>.

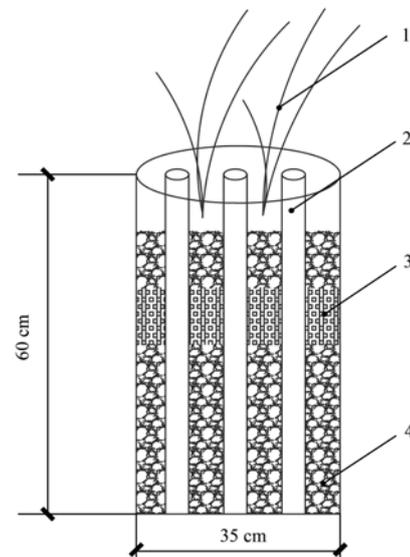
目前关于人工湿地废水处理效果及微生物群落影响的研究大多集中在单一的基质或者不同的湿地结构, 研究不同基质下废水处理效果和温室气体排放与微生物群落和功能基因的关系并不多见. 为此, 本研究拟采用高通量测序技术, 从微观上分析人工湿地处理系统中添加铁矿石、生物炭和联合添加铁矿石与生物炭后的微生物群落差异, 采用 qPCR 技术分析功能基因的丰度差异, 以期为人工湿地系统的污染物处理和温室气体减排提供更多理论支撑.

## 1 材料与方法

### 1.1 实验材料

本实验地点位于重庆市北碚区西南大学玻璃温室内, 采用水平潜流人工湿地系统, 实验装置和处理见文献[11]. 如图 1 所示, 装置材料为聚乙烯塑料圆桶, 其内径和高度分别为 35 cm 和 60 cm, 桶内基

质填料的高度为 40 cm. 按生物炭或者赤铁矿的添加比例分为 4 组: 第 1 组 CW0 作为空白对照, 第 2 组 CW1 添加 15% 的赤铁矿, 第 3 组 CW2 添加 15% 的生物炭, 第 4 组 CW3 为 15% 的生物炭和 15% 的赤铁矿所混合. 生物炭或赤铁矿填料均放置于装置中上部, 上下皆由砾石填充, 其中上层砾石厚度为 5 cm. 每组处理系统分别设置两个重复. 生物炭的粒径为 0.8 ~ 1.0 cm, 铁矿石的粒径为 1 ~ 3 cm, 砾石的粒径为 1 ~ 3 cm, 所买填料水洗干净后进行填充, 在装置中均匀布置 3 根 PVC 穿孔管, 用于提取微生物. 湿地植物选择使用菖蒲, 按照  $30 \text{株} \cdot \text{m}^{-2}$  的密度均匀布置在装置中, 活性污泥取自北碚区污水处理厂.



1. 菖蒲; 2. PVC 穿孔管; 3. 减排物质; 4. 砾石填料

图 1 人工湿地处理系统装置示意

Fig. 1 Schematic diagram of constructed wetland treatment system

人工湿地系统稳定后, 自 2019 年 4 月 17 日起运行至 10 月 8 日, 共计 174 d. 本实验设置进水 COD/TN 为 10:1, 进水采用人工配制的生活污水, 具体成分参照文献[11], 本实验采用间歇性进水. 经测, 每 L 人工配制生活污水中含 COD、 $NH_4^+-N$ 、 $NO_3^- -N$ 、TN 和 DO 分别为:  $(443.18 \pm 5.20)$ 、 $(42.12 \pm 0.37)$ 、 $(1.76 \pm 0.022)$ 、 $(43.73 \pm 0.58)$  和  $(7.80 \pm 0.11)$  mg.

### 1.2 取样与检测

本实验采用间歇性进水, 设置水力停留时间为 4 d, 待处理系统稳定后, 每隔 4 d 自装置进出水口取样进行分析, 每个装置分别取 300 mL 水样测定其中 TP、TN、 $NO_3^- -N$ 、 $NH_4^+ -N$  和 COD, 水质分析和温室气体的测定均参见文献[11]. 系统稳定运行一段时间以后, 微生物持续地生长, 自微生物的采样管中, 选取其中 5 ~ 30 cm 的基质, 每个采样点取 2 个

样品,加入磷酸缓冲溶液搅拌后去除溶液中的碎屑和植物根茎,随后提取其中悬浮液,经高速离心取沉淀物冷藏后送至上海美吉生物医药科技有限公司进行分析。

### 1.3 DNA 提取与 PCR 扩增检测

提取的 DNA 冷冻保存,完成基因组 DNA 抽提后,利用 1% 琼脂糖凝胶电泳检测抽提的基因组 DNA. PCR 采用 TransGen AP221-02,每个样本 3 个重复,将同一样本的 PCR 产物混合后用 2% 琼脂糖

凝胶电泳检测,使用 AxyPrepDNA 凝胶回收试剂盒 (AXYGEN 公司) 切胶回收 PCR 产物, Tris\_HCl 洗脱; 2% 琼脂糖电泳检测. 参照电泳初步定量结果,将 PCR 产物用 QuantiFluor™-ST 蓝色荧光定量系统 (Promega 公司) 进行检测定量,继而进行高通量测序分析。

构建各个功能基因的质粒,采用实时荧光定量 PCR 仪依次测定 5 个主要功能基因的丰度, *nosZ*、*nirS*、*nirK*、*mcrA* 和 *pmoA* 的引物序列如表 1 所示。

表 1 荧光定量 PCR 引物

Table 1 Primers for fluorescence quantitative PCR

基因	引物	引物序列(5'-3')
<i>nosZ</i>	nosZ-F	AGA ACG ACC AGC TGA TCG ACA
	nosZ-R	TCC ATG GTG ACG CCG TGG TTG
<i>nirS</i>	nirSed3aF	GTC AAC GTC AAG GAG ACG GG
	nirSR3ed	GAC TTC GGA TGC GTC TTGA
<i>nirK</i>	nirKFlaCu	ATC ATG GTS CTG CCG CG
	nirKR3Cu	GCC TCG ATC AGR TTG TGG TT
<i>mcrA</i>	MLlF	GGT GGT GTM GGA TTC ACC ACA RTA YGC WAC AGC
	MLrR	TTC ATT GCR TAG TTW GGR TAG TT
<i>pmoA</i>	A189F	GGN GAC TGG GAC TTC TGG
	Mb661R	CCG GMG CAA CGT CYT TACC

### 1.4 数据处理

本实验中数据的统计与分析在 Microsoft Excel 2010 中完成,在 Origin 8.0 上完成制图,在上海美吉生物医药科技有限公司的 I-Sanger 云平台进行微生物的分类学分析和多样性分析。

## 2 结果与讨论

### 2.1 不同填料基质的人工湿地污水处理效果

CW0、CW1、CW2 和 CW3 系统出水 COD、 $\text{NH}_4^+$ -N、 $\text{NO}_3^-$ -N 和 TN 的浓度如表 2 所示, COD 的去除率分别为 92.09%、91.97%、93.03% 和

93.79%,在人工湿地系统添加铁矿石对 COD 的去除无显著影响 ( $P > 0.05$ ),但添加生物炭能够显著增加 COD 的去除率 ( $P < 0.05$ ).  $\text{NH}_4^+$ -N 的去除率分别为 45.04%、43.92%、67.52% 和 65.19%,添加生物炭能够显著增加  $\text{NH}_4^+$ -N 的去除率 ( $P < 0.05$ ).  $\text{NO}_3^-$ -N 的去除率分别为 84.66%、88.64%、91.48% 和 82.95%,  $\text{NO}_3^-$ -N 浓度非常低,  $\text{NH}_4^+$ -N 为水中 TN 的主要存在形式. TN 的去除率分别为 43.40%、42.85%、65.61% 和 64.26%,添加铁矿石与空白对照无显著差异 ( $P > 0.05$ ),添加生物炭显著增加对 TN 的去除率 ( $P < 0.05$ ).

表 2 出水水质基本指标/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$

Table 2 Basic indicators of effluent quality/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$

处理	$\rho(\text{COD})$	$\rho(\text{TN})$	$\rho(\text{NH}_4^+\text{-N})$	$\rho(\text{NO}_3^-\text{-N})$
CW0	34.99 ± 1.60	24.75 ± 0.96	23.15 ± 0.43	0.27 ± 0.041
CW1	35.57 ± 1.69	24.99 ± 0.72	23.62 ± 0.38	0.20 ± 0.060
CW2	30.87 ± 1.65	15.04 ± 0.61	13.68 ± 0.26	0.15 ± 0.037
CW3	27.52 ± 2.37	15.63 ± 0.61	14.66 ± 0.65	0.30 ± 0.16

### 2.2 不同填料基质的人工湿地温室气体减排效果

各处理系统在实验运行期间的  $\text{CH}_4$  和  $\text{N}_2\text{O}$  的平均排放通量如表 3 所示,与 CW0 相比, CW1、CW2 和 CW3 中的  $\text{CH}_4$  平均排放通量分别减少了 33.29%、83.91% 和 82.77%, CW1、CW2 和 CW3 中的  $\text{N}_2\text{O}$  平均排放通量分别减少了 25.2%、30.81% 和 23.5%,添加生物炭或铁矿石均显著减少  $\text{CH}_4$  与  $\text{N}_2\text{O}$  的排放 ( $P < 0.05$ ).

表 3 温室气体排放通量

Table 3 Flux of greenhouse gas emission

处理	$\text{CH}_4$ 排放通量 / $\text{mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$	$\text{N}_2\text{O}$ 排放通量 / $\mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$
CW0	34.18 ± 6.38	451.88 ± 61.92
CW1	22.80 ± 3.90	338.00 ± 36.67
CW2	5.50 ± 0.89	312.67 ± 36.64
CW3	5.89 ± 1.20	345.70 ± 34.27

### 2.3 微生物群落丰富度和多样性

通过高通量测序分析得到 1 776 个 OTUs, 范围囊括 47 门、102 纲、222 目、340 科、541 属和 937 种. 高通量测序分析所达到文库的覆盖率均大于 0.99, 说明样本中序列没有被测出的概率极低. Simpson 指数和 Shannon 指数反映微生物群落的多样性, Simpson 指数越大, 说明群落多样性越低, Shannon 指数越大, 说明群落多样性越高, Chao、Ace 和 Sobs 指数反映微生物群落的丰富度, Ace、Chao 和 Sobs 指数越大, 反映群落的丰富度越高. 如表 4 所示, CW2 处理的 Ace、Chao、Sobs 和 Shannon 指数均为各个处理系统中的最高值, 而 Simpson 指数为各个处理

系统中的最小值, 表明 CW2 处理系统的微生物群落丰富度以及多样性最大, 在人工湿地中添加生物炭能够显著地提升微生物群落的丰富度以及多样性. CW1 处理系统的 Ace、Sobs 和 Shannon 指数均小于 CW0 处理系统, 而其 Simpson 指数大于 CW0 处理系统, 表明铁矿石的添加会降低人工湿地系统中微生物群落的丰富度以及多样性. CW3 处理系统的 Ace、Chao、Sobs 和 Shannon 指数介于 CW2 处理系统与 CW0 处理系统之间, 表示添加生物炭的作用效果大于铁矿石的添加, 生物炭的有机质含量丰富, 能够为微生物的生长提供大量碳源, 生物炭具有较大的比表面积, 可以为微生物提供适宜的生存条件.

表 4 不同填料基质人工湿地微生物丰富度和多样性

Table 4 Microbial richness and diversity of constructed wetlands with different filler substrates

处理	指数					
	Ace	Chao	Sobs	Simpson	Shannon	Coverage
CW0	1 451.38	1 446.63	1 295	0.062 8	4.55	0.995
CW1	1 394.39	1 455.54	1 142	0.068 8	4.32	0.992
CW2	1 623.02	1 617.25	1 400	0.062 6	4.73	0.993
CW3	1 580.26	1 588.89	1 365	0.057 9	4.63	0.993

### 2.4 微生物群落结构

#### 2.4.1 门水平微生物群落结构

不同基质人工湿地处理系统在门水平上的微生物群落结构如图 2 所示, 对微生物的检测频率大于 2% 做主要分析, 在 4 个人工湿地处理系统中, 相对丰度最高的为放线菌门 (Actinobacteria), 4 个处理系统中相对丰度分别达到了 43.16%、49.31%、43.47% 和 47.72%, 其次为变形菌门 (Proteobacteria), 相对丰度分别达到 18.04%、23.06%、24.94% 和 21.59%, 变形菌门下的大量的菌属参与 C、N 和 S 等的循环<sup>[18]</sup>, 并且促进硝化和反硝化的发生, 在湿地系统中对于有机物的降解和脱氮除磷起重要作用. 再其次为拟杆菌门 (Bacteroidetes)、酸杆菌门 (Acidobacteria)、绿弯菌门 (Chloroflexi)、厚壁菌门 (Firmicutes)、螺旋体菌门 (Spirochaetes)、迷踪菌门 (Elusimicrobia), 以上各处理系统的 9 门类的微生物相对丰度之和均占总菌门相对丰度的 95% 以上, 这 9 种门类的微生物在人工湿地处理系统中起主要作用. 绿弯菌门可以通过光合作用, 以 CO<sub>2</sub> 为碳源来产生能量<sup>[19]</sup>, 添加生物炭促进了有机物的分解. 硝化螺旋菌门 (Nitrospirae) 在各处理系统中相对丰度分别达到 0.037%、0.07%、0.41%、0.16%, 在湿地系统中添加生物炭能够显著地提升硝化螺旋菌门的相对丰度, 与 CW0 相比, CW2 和 CW3 对于 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 的去除率分别提高了 22.48% 和 20.15%, 硝化螺旋菌门中有丰富的含有硝化功能的

细菌, 是一类革兰氏阴性细菌, 在其属水平上硝化细菌 (*Nitrospira*) 能够氧化亚硝态氮和把氨分子氧化为硝态氮<sup>[20]</sup>. 人工湿地中主要依靠微生物的氧化分解作用去除有机污染物<sup>[21]</sup>, 放线菌门和变形菌门下的菌属能够分解有机物与去除 COD, CW2 和 CW3 中 COD 的去除率显著高于 CW0 和 CW1, 添加生物炭能够增加微生物的多样性和丰富度, 系统稳定运行后, 测定平均出水 COD 浓度, 添加铁矿石的作用效果不显著, 降低了 0.12% 的 COD 去除率 ( $P > 0.05$ ), 添加生物炭能够提高 0.94% 的 COD 去除率 ( $P < 0.05$ ), 联合添加提高了 1.7% 的 COD 去除率 ( $P < 0.05$ ).

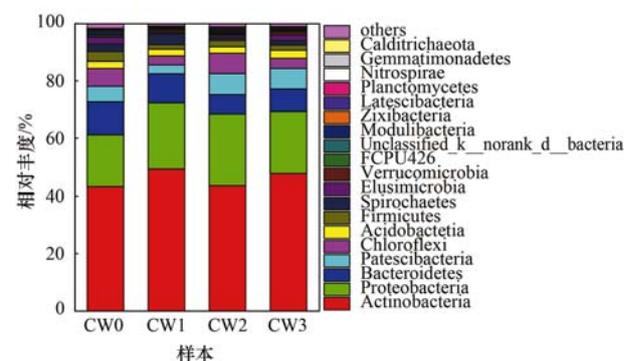


图 2 不同湿地基质中门水平细菌群落结构组成分布

Fig. 2 Taxonomy of the relative abundances of bacterial communities at the phylum level in the substrates of different constructed wetlands

#### 2.4.2 属水平微生物群落结构

不同基质人工湿地处理系统在属水平上的微生物群落结构如图 3 所示, 对微生物的检测频率大于

2% 做主要分析. 棒状丙酸菌属 (*Propioniciclava*) 的相对丰度分别为 6.02%、5.34%、1.52% 和 3.87%, 属于放线菌门类, 是一种革兰氏阳性菌类且兼性厌氧, 可以在一定程度上耐氧, 利用葡萄糖和其他碳水化合物产生大量的丙酸和乙酸<sup>[22]</sup>. *Saccharimonadales* 属于 骸骨细菌门 (*Patescibacteria*), 在 4 个处理系统中的相对丰度分别为 3.88%、1.53%、4.88% 和 4.93%, 在湿地系统中, *Saccharimonadales* 作用于反硝化的过程<sup>[23]</sup>. 微白霜菌属 (*Micropruia*) 是属于放线菌门, 在 4 个处理系统中的相对丰度分别为 1.1%、2.96%、4.1% 和 6.5%, 微白霜菌属对于  $\text{NH}_4^+$ -N 和 COD 具有较好的去除率<sup>[24]</sup>, 有利于脱氮除磷<sup>[25]</sup>, 添加生物炭能够显著增加  $\text{NH}_4^+$ -N 和 TN 的去除率, 进水中氮的主要来源是  $\text{NH}_4^+$ -N, 各处理系统对于 TN 的去除率和  $\text{NH}_4^+$ -N 的去除率相类似. 与 CW0 相比, CW2 和 CW3 对于  $\text{NH}_4^+$ -N 的去除率分别提高了 22.48% 和 20.15%, 一方面, 生物炭具有良好的吸附作用, 能够吸附  $\text{NH}_4^+$ -N; 另一方面, 在湿地系统添加生物炭或铁矿石均能够显著增加微白霜菌属的相对丰度. *Norank\_f\_Bacteroidetes\_vadinHA17* 的相对丰度分别为 4.1%、3.69%、2.17%、2.76%, 是革兰氏阴性的厌氧菌, 具有一定的水解和酸化能力, 能够促进纤维素的水解<sup>[26]</sup>. 尿杆菌属 (*Uliginosibacterium*) 是一种红环菌目的聚磷菌<sup>[27]</sup>, 在各个处理系统中的相对丰度分别为 2.81%、5.19%、1.29%、2.44%, 尿杆菌属是一种革兰氏阴性菌, 并且严格需氧<sup>[28]</sup>. 陶厄氏菌 (*Thauera*) 在各个系统中的相对丰度分别为 0.14%、0.42%、2.67% 和 3.18%, 在氧气不存在的情况下, 能够利用芳香化合物作为碳源, 进而可以实现污泥的脱氮以及膨胀<sup>[29]</sup>. 脱氯单胞菌 (*Dechloromonas*) 是一种典型的脱氮菌, 在各处理系统中的相对丰度分别为 0.64%、2.13%、0.74% 和 0.61%, 脱氯单胞菌能够降解硝酸盐<sup>[30]</sup>. 生物炭的添加可以提高  $\text{NO}_3^-$ -N 的去除率, 同 CW0 相比, CW2

对于  $\text{NO}_3^-$ -N 的去除率提高了 6.82%, 陶厄氏菌属和脱氯单胞菌属具有反硝化能力<sup>[31]</sup>, 同时也能参与有机物的降解, 能以硝酸盐为电子受体, 在有机碳源存在下去除  $\text{NO}_3^-$ -N, 对一些芳香族化合物进行矿化<sup>[32]</sup>, 在湿地系统中添加生物炭或铁矿石均能够增加陶厄氏菌属和脱氯单胞菌属的相对丰度, 这与 Deng 等<sup>[33]</sup>的研究结果一致.

## 2.5 不同处理下的功能基因丰度

采用 qPCR 技术测定 *nosZ*、*nirS*、*nirK*、*mcrA* 和 *pmoA* 等功能基因在不同基质人工湿地处理系统中的丰度, 结果如图 4 所示. *nosZ* (Nitrous Oxide Reductases) 基因在各人工湿地处理系统中的丰度分别为: CW0 ( $0.10 \times 10^8$  copies·g<sup>-1</sup>)、CW1 ( $0.12 \times 10^8$  copies·g<sup>-1</sup>)、CW2 ( $0.31 \times 10^8$  copies·g<sup>-1</sup>) 和 CW3 ( $0.17 \times 10^8$  copies·g<sup>-1</sup>), CW0、CW1、CW2 与 CW3 之间具有显著性差异 ( $P < 0.05$ ), CW0 与 CW1 之间没有显著性差异 ( $P > 0.05$ ). *nirS* 基因编码 cd1 型  $\text{NO}_2^-$  还原酶, *nirK* 基因编码 Cu 型  $\text{NO}_2^-$  还原酶<sup>[34]</sup>, *nirS* 和 *nirK* 均作用于  $\text{NO}_2^-$  还原为 NO 的过程. *nirS* 基因在各个处理系统中的丰度分别为: CW0 ( $0.52 \times 10^8$  copies·g<sup>-1</sup>)、CW1 ( $0.75 \times 10^8$  copies·g<sup>-1</sup>)、CW2 ( $3.73 \times 10^8$  copies·g<sup>-1</sup>) 和 CW3 ( $0.90 \times 10^8$  copies·g<sup>-1</sup>), 4 组处理系统之间均存在显著性差异 ( $P < 0.05$ ). *nirK* 基因在各处理系统中的丰度分别为: CW0 ( $0.55 \times 10^8$  copies·g<sup>-1</sup>)、CW1 ( $0.30 \times 10^8$  copies·g<sup>-1</sup>)、CW2 ( $0.83 \times 10^8$  copies·g<sup>-1</sup>) 和 CW3 ( $2.24 \times 10^8$  copies·g<sup>-1</sup>), 4 组处理系统之间均具有显著性差异 ( $P < 0.05$ ). Helen 等<sup>[35]</sup>的研究发现, 亚硝酸还原酶将亚硝酸盐还原为 NO, 添加生物炭促进了湿地的反硝化作用, 能够增加湿地的脱氮. *nosZ* 在反硝化过程中催化  $\text{N}_2\text{O}$  还原为  $\text{N}_2$ <sup>[36]</sup>, *nosZ* 基因一般作为完全反硝化的标志基因, 则表明在湿地系统添加生物炭促进了完全反硝化的过程<sup>[37]</sup>,  $\text{N}_2\text{O}$  产生于硝化过程和反硝化过程, 与 CW0 相比, CW1、CW2 和 CW3 中的  $\text{N}_2\text{O}$  平均排放通量分别降低了 25.2%、30.81% 和 23.5%, 添加生物炭或者铁矿石能够增加 *nosZ* 的丰度从而减少  $\text{N}_2\text{O}$  的排放, 与贺超卉等<sup>[38]</sup>的研究结果一致. 王庆等<sup>[39]</sup>的研究发现, 添加铁矿石进而增加  $\text{Fe}^{3+}$  则会抑制部分反硝化微生物的数量, 减少  $\text{N}_2\text{O}$  的排放. CW2 显著增加 *nirS* 基因的丰度, 且生物炭的作用效果强于铁矿石, CW1 对于  $\text{NH}_4^+$ -N 和  $\text{NO}_3^-$ -N 的去除效果不及 CW2, 并且与 CW0 相比, CW1 中反硝化菌属相对丰度的增加比例也不及 CW2. 刘杏认等<sup>[40]</sup>的研究发现, 在实验的初期, 添加生物炭的量与 *nirS* 和 *nirK*

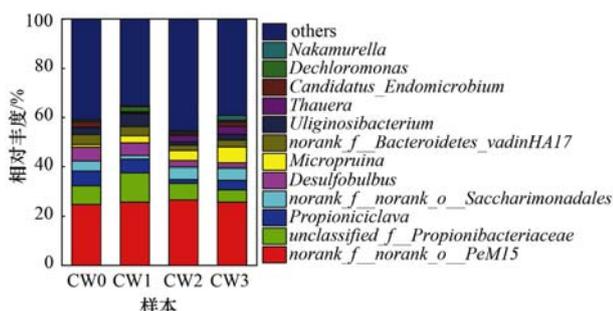


图 3 不同湿地基质中属水平细菌群落结构组成分布

Fig. 3 Taxonomy of the relative abundances of bacterial communities at the genus level in the substrates of different constructed wetlands

基因的丰度呈正相关关系,在实验后期,*nirK* 基因的丰度与生物炭添加量不具有显著的相关性,*nirK* 基因对于低量的生物炭较为敏感. 本研究中添加生物炭对于 *nirK* 基因丰度的影响较小,可能添加的生物炭量较多,影响了 *nirK* 基因对于生物炭的反应.

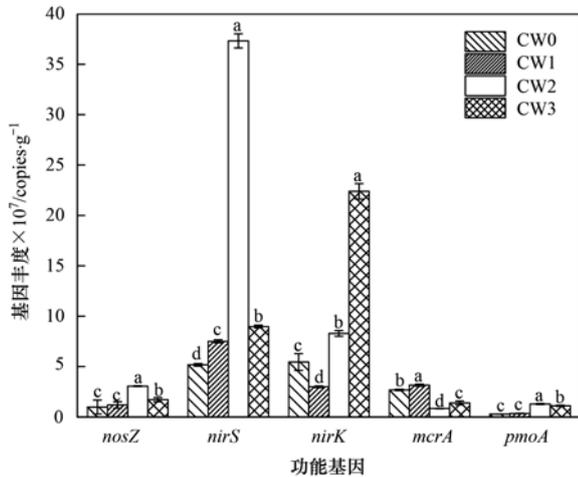


图4 不同湿地基质中功能基因丰度

Fig. 4 Abundance of functional genes in the substrates of different constructed wetlands

*mcrA* 基因编码  $\alpha$ -亚基,存在于产甲烷古菌,催化  $\text{CH}_4$  的生成<sup>[41]</sup>, *mcrA* 基因在各个处理系统中的丰度分别为: CW0 ( $0.27 \times 10^8 \text{ copies} \cdot \text{g}^{-1}$ )、CW1 ( $0.32 \times 10^8 \text{ copies} \cdot \text{g}^{-1}$ )、CW2 ( $0.08 \times 10^8 \text{ copies} \cdot \text{g}^{-1}$ ) 和 CW3 ( $0.14 \times 10^8 \text{ copies} \cdot \text{g}^{-1}$ ), 4 组处理系统之间均存在显著性差异 ( $P < 0.05$ ). *pmoA* 功能基因编码 pMMO 关键酶的一个亚基,几乎存在于所有的甲烷氧化菌<sup>[42]</sup>, *pmoA* 功能基因在各处理系统中的丰度分别为: CW0 ( $0.03 \times 10^8 \text{ copies} \cdot \text{g}^{-1}$ )、CW1 ( $0.04 \times 10^8 \text{ copies} \cdot \text{g}^{-1}$ )、CW2 ( $0.13 \times 10^8 \text{ copies} \cdot \text{g}^{-1}$ ) 和 CW3 ( $0.11 \times 10^8 \text{ copies} \cdot \text{g}^{-1}$ ), CW0 与 CW1 之间无显著差异 ( $P > 0.05$ ), CW0 与 CW1 和 CW2 之间存在显著差异 ( $P < 0.05$ ). 图 5 所示为部分甲烷氧化菌在属水平的 OTUs 分布,甲基暖菌属 (*Methylocaldum*)、甲基孢囊菌属 (*Methylocystis*)、甲基单胞菌属 (*Methylomonas*) 和甲基八叠球菌属 (*Methylosarcina*) 均能利用  $\text{O}_2$  作为电子受体,进而氧化  $\text{CH}_4$ <sup>[42]</sup>. 与 CW0 相比, CW1、CW2 和 CW3 中的  $\text{CH}_4$  平均排放通量分别降低了 33.29%、83.91% 和 82.77%, 添加生物炭或者铁矿石均能实现  $\text{CH}_4$  的减排, CW2 和 CW3 的减排效果显著高于 CW1, 一是 CW2 和 CW3 中 *pmoA/mcrA* 功能基因丰度的比值远高于 CW1, 二是生物炭巨大的比表面积对于  $\text{CH}_4$  还有一定的吸附作用. 添加生物炭或者铁矿石, 能够增加甲烷氧化菌的丰度, 甲烷氧化菌的丰度在 CW3 中增加效果最好, CW3 中  $\text{CH}_4$  减排效果不及 CW2, 可

能是 CW2 中 *pmoA/mcrA* 的比值高于 CW3. 添加生物炭能够增强甲烷的氧化过程, 这与 Sonoki 等<sup>[43]</sup> 的研究结果一致. Zehnder 等<sup>[44]</sup> 的研究发现  $\text{Fe}^{3+}$  能够促进  $\text{CH}_4$  的氧化过程,  $\text{Fe}^{3+}$  与产甲烷菌争夺电子供体, 抑制产甲烷过程, 添加铁矿石也能增加  $\text{CH}_4$  的减排.

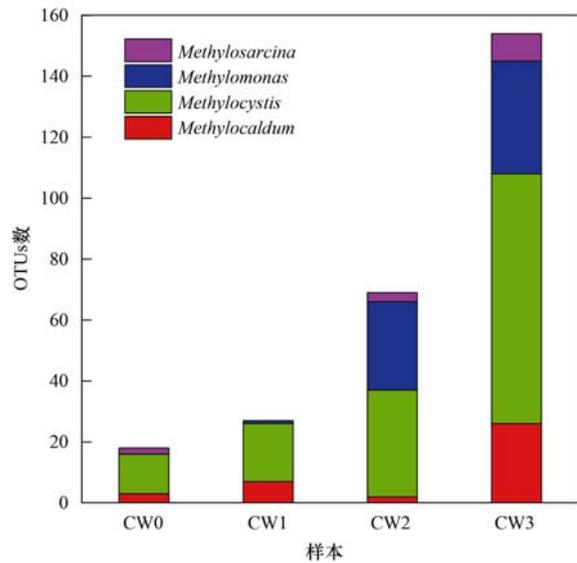


图5 不同湿地基质中甲烷氧化菌的 OTUs 分布

Fig. 5 Distribution of methanotrophic OTUs in the substrates of different constructed wetlands

### 3 结论

(1) 4 组人工湿地系统中 COD 去除率均达到 90% 以上, 添加生物炭或者联合添加均能提升 COD、 $\text{NH}_4^+$ -N 和 TN 的去除率, 添加铁矿石略微降低了 COD、 $\text{NH}_4^+$ -N 和 TN 的去除率, 表明添加生物炭可以较好提升 COD、 $\text{NH}_4^+$ -N 和 TN 的去除效果, 添加铁矿石的作用效果不明显, 生物炭的作用效果强于铁矿石.

(2) 在人工湿地系统添加生物炭或者铁矿石均能影响微生物的群落结构和相对丰度. 添加生物炭或者添加铁矿石均能够增加变形菌门的相对丰度, 变形菌门属水平有较多去除 COD 以及脱氮除磷的菌属, 增强湿地处理效果. 添加生物炭或者铁矿石能增加 *Dechloromonas*、*Thauera* 和 *Saccharimonadales* 等反硝化菌属的相对丰度, 有利于湿地脱氮.

(3) 在人工湿地系统添加生物炭或者铁矿石能改变功能基因 *nosZ*、*nirS*、*nirK*、*mcrA* 和 *pmoA* 的丰度, 并且能够增加反硝化菌属的相对丰度, 有利于反硝化反应的发生, 进而实现  $\text{N}_2\text{O}$  的减排, 也能够增加 *Methylocaldum*、*Methylocystis*、*Methylomonas* 和 *Methylosarcina* 等甲烷氧化菌属的丰度, 有利于甲烷氧化反应的发生, 进而实现  $\text{CH}_4$  的减排.

## 参考文献:

- [1] 贾滨洋, 刘宜. 人工湿地处理污水的机理与其应用前景[J]. 四川环境, 2008, 27(1): 81-86.  
Jia B Y, Liu Y. Mechanism and application prospect of wastewater treatment with constructed wetlands [J]. Sichuan Environment, 2008, 27(1): 81-86.
- [2] 吴海明, 袁佐栋, 张建, 等. 规模化人工湿地的温室气体释放通量[J]. 环境科学研究, 2016, 29(8): 1195-1199.  
Wu H M, Yuan Z D, Zhang J, et al. Greenhouse gas emissions from large-scale constructed wetlands [J]. Research of Environmental Sciences, 2016, 29(8): 1195-1199.
- [3] 王清华, 赵亚琦, 黄磊, 等. 间歇曝气生物炭湿地中污染物的去除特征及微生物种群结构[J]. 环境工程学报, 2021, 15(6): 2118-2125.  
Wang Q H, Zhao Y Q, Huang L, et al. Pollutant removal characteristics and microbial community structure in intermittent aerated constructed wetland adding with biochar [J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2021, 15(6): 2118-2125.
- [4] 孙耀胜, 么强, 刘竞依, 等. 生物炭材料在水体有机污染治理中的研究进展[J]. 环境科学与技术, 2021, 44(1): 170-180.  
Sun Y S, Yao Q, Liu J Y, et al. Research progress of biochar materials in treatment of organic pollution in water [J]. Environmental Science & Technology, 2021, 44(1): 170-180.
- [5] Li J, Fan J L, Liu D X, et al. Enhanced nitrogen removal in biochar-added surface flow constructed wetlands: dealing with seasonal variation in the north China [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2019, 26(4): 3675-3684.
- [6] Ma X C, Zhou W G, Fu Z Q, et al. Effect of wastewater-borne bacteria on algal growth and nutrients removal in wastewater-based algae cultivation system [J]. Bioresource Technology, 2014, 167: 8-13.
- [7] Song X S, Wang S Y, Wang Y H, et al. Addition of  $Fe^{2+}$  increase nitrate removal in vertical subsurface flow constructed wetlands [J]. Ecological Engineering, 2016, 91: 487-494.
- [8] Ma Y H, Dai W Q, Zheng P R, et al. Iron scraps enhance simultaneous nitrogen and phosphorus removal in subsurface flow constructed wetlands [J]. Journal of Hazardous Materials, 2020, 395, doi: 10.1016/j.jhazmat.2020.122612.
- [9] Zhou X, Wang X Z, Zhang H, et al. Enhanced nitrogen removal of low C/N domestic wastewater using a biochar-amended aerated vertical flow constructed wetland [J]. Bioresource Technology, 2017, 241: 269-275.
- [10] 乔雯雯, 王宇晖, 宋新山. 黄铁矿强化人工湿地反硝化处理含氮废水的研究[J]. 工业水处理, 2021, 41(4): 77-83.  
Qiao W W, Wang Y H, Song X S. Enhancement of denitrification by pyrite in constructed wetland for the treatment of nitrogen containing wastewater [J]. Industrial Water Treatment, 2021, 41(4): 77-83.
- [11] 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): 588-598.  
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): 588-598.
- [12] 裴希超, 许艳丽, 魏巍. 湿地生态系统土壤微生物研究进展[J]. 湿地科学, 2009, 7(2): 181-186.  
Pei X C, Xu Y L, Wei W. A review on soil microorganisms in wetland ecosystem [J]. Wetland Science, 2009, 7(2): 181-186.
- [13] Barbier B A, Dziduch I, Liebner S, et al. Methane-cycling communities in a permafrost-affected soil on Herschel Island, Western Canadian Arctic: active layer profiling of *mcrA* and *pmoA* genes [J]. FEMS Microbiology Ecology, 2012, 82(2): 287-302.
- [14] Kloos K, Mergel A, Rösch C, et al. Denitrification within the genus *Azospirillum* and other associative bacteria [J]. Australian Journal of Plant Physiology, 2001, 28(9): 991-998.
- [15] Hallin S, Lindgren P E. PCR detection of genes encoding nitrite reductase in denitrifying bacteria [J]. Applied and Environmental Microbiology, 1999, 65(4): 1652-1657.
- [16] Luton P E, Wayne J M, Sharp R J, et al. The *mcrA* gene as an alternative to 16S rRNA in the phylogenetic analysis of methanogen populations in landfill [J]. Microbiology, 2002, 148 (Pt 11): 3521-3530.
- [17] Kolb S, Knief C, Stubner S, et al. Quantitative detection of methanotrophs in soil by novel *pmoA*-targeted real-time PCR assays [J]. Applied and Environmental Microbiology, 2003, 69(5): 2423-2429.
- [18] Ansola G, Arroyo P, de Miera L E S. Characterisation of the soil bacterial community structure and composition of natural and constructed wetlands [J]. Science of the Total Environment, 2014, 473-474: 63-71.
- [19] Klatt C G, Liu Z F, Ludwig M, et al. Temporal metatranscriptomic patterning in phototrophic *Chloroflexi* inhabiting a microbial mat in a geothermal spring [J]. The ISME Journal, 2013, 7(9): 1775-1789.
- [20] Daims H, Lebedeva E V, Pjevac P, et al. Complete nitrification by *Nitrospira* bacteria [J]. Nature, 2015, 528(7583): 504-509.
- [21] 贾文林, 吴娟, 武爱国, 等. 碳氮比对人工湿地污水处理效果的影响[J]. 环境工程学报, 2010, 4(4): 767-770.  
Jia W L, Wu J, Wu A G, et al. Effect of influent C/N ratio on performance of wastewater treatment in constructed wetlands [J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2010, 4(4): 767-770.
- [22] 乐华爱, 金石运, 程光胜, 等. 丙酸杆菌属中的一个新种 [J]. 微生物学报, 1987, 27(2): 105-109.  
Yue H A, Jin S Y, Cheng G S, et al. A new species of genus *Propionibacterium* [J]. Acta microbiologica Sinica, 1987, 27(2): 105-109.
- [23] 刘文蓉. SBR 与生物接触氧化法对对硝基苯酚的降解研究 [D]. 泰安: 山东农业大学, 2020.  
Liu W R. Study on the degradation of PNP by SBR and biological contact oxidation process [D]. Taian: Shandong Agricultural University, 2020.
- [24] 李建婷, 纪树兰, 刘志培, 等. 16S rDNA 克隆文库方法分析好氧颗粒污泥细菌组成 [J]. 环境科学研究, 2009, 22(10): 1218-1223.  
Li J T, Ji S L, Liu Z P, et al. Analysis of bacterial composition of aerobic granular sludge with 16S rDNA clone library [J]. Research of Environmental Sciences, 2009, 22(10): 1218-1223.
- [25] 唐聪聪. 菌藻共生序批式泥膜系统脱氮除磷效能及作用机制研究 [D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2018.  
Tang C C. Performance and mechanism of algal-bacterial symbiosis system based on sequencing batch biofilm-sludge reactor for nitrogen and phosphorus removal [D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 2018.
- [26] Baldwin S A, Mattes A, Rezadehbashi M, et al. Seasonal

- microbial population shifts in a bioremediation system treating metal and sulfate-rich seepage[J]. *Minerals*, 2016, **6**(2), doi: 10.3390/min6020036.
- [27] 王中杰. 基于基因组学的红环菌目与其内聚磷菌属内细菌的种系发生分析与代谢特征研究[D]. 厦门: 厦门大学, 2018. Wang Z J. Phylogenetic and metabolic characteristics of *Rhodocyclales* and *Coandidatus* accumulibacter based on genomics [D]. Xiamen: Xiamen University, 2018.
- [28] Hwang W M, Kim S M, Kang K, *et al.* *Uliginosibacterium sedimnicola* sp. nov., isolated from freshwater sediment [J]. *International Journal of Systematic and Evolutionary Microbiology*, 2018, **68**(3): 924-929.
- [29] 杨华, 黄钧, 赵永贵, 等. 陶厄氏菌 *Thauera* sp. strain TN9 的鉴定及特性[J]. *应用与环境生物学报*, 2013, **19**(2): 318-323. Yang H, Huang J, Zhao Y G, *et al.* Identification and characterization of *Thauera* sp. Strain TN9[J]. *Chinese Journal of Applied and Environmental Biology*, 2013, **19**(2): 318-323.
- [30] Tan Z Y, Reinhold-Hurek B. *Dechlorosoma suillum* Achenbach *et al.* 2001 is a later subjective synonym of *Azospira oryzae* Reinhold-Hurek and Hurek 2000 [J]. *International Journal of Systematic and Evolutionary Microbiology*, 2003, **53**(4): 1139-1142.
- [31] Scholten E, Lukow T, Auling G, *et al.* *Thauera mechernichensis* sp. nov., an aerobic denitrifier from a leachate treatment plant [J]. *International Journal of Systematic Bacteriology*, 1999, **49**(3): 1045-1051.
- [32] Coates J D, Chakraborty R, Lack J G, *et al.* Anaerobic benzene oxidation coupled to nitrate reduction in pure culture by two strains of *Dechloromonas* [J]. *Nature*, 2001, **411**(6841): 1039-1043.
- [33] Deng C R, Huang L, Liang Y K, *et al.* Response of microbes to biochar strengthen nitrogen removal in subsurface flow constructed wetlands: Microbial community structure and metabolite characteristics [J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **694**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2019.133687.
- [34] 汪龙眠, 仇皓雨, 车昱晓, 等. NUA-DAS 生态滤池脱氮效果与反硝化菌特征研究[J]. *环境科学*, 2016, **37**(7): 2659-2665. Wang L M, Qiu H Y, Che Y X, *et al.* Nitrogen removal and the characteristics of denitrification bacteria using NUA-DAS ecofilter [J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(7): 2659-2665.
- [35] Helen D, Kim H, Tytgat B, *et al.* Highly diverse *nirK* genes comprise two major clades that harbour ammonium-producing denitrifiers [J]. *BMC Genomics*, 2016, **17**, doi: 10.1186/s12864-016-2465-0.
- [36] Philippot L. Denitrifying genes in bacterial and Archaeal genomes [J]. *Biochimica et Biophysica Acta (BBA)-Gene Structure and Expression*, 2002, **1577**(3): 355-376.
- [37] Brenzinger K, Dörsch P, Braker G. pH-driven shifts in overall and transcriptionally active denitrifiers control gaseous product stoichiometry in growth experiments with extracted bacteria from soil [J]. *Frontiers in Microbiology*, 2015, **6**, doi: 10.3389/fmicb.2015.00961.
- [38] 贺超卉, 董文旭, 胡春胜, 等. 生物质炭对土壤 $N_2O$ 消耗的影响及其微生物影响机理[J]. *中国生态农业学报(中英文)*, 2019, **27**(9): 1301-1308. He C H, Dong W X, Hu C S, *et al.* Biochar's effect on soil  $N_2O$  consumption and the microbial mechanism [J]. *Chinese Journal of Eco-Agriculture*, 2019, **27**(9): 1301-1308.
- [39] 王庆, 杨会翠, 王玲, 等. 添加水铁矿对水稻土 $N_2O$ 释放及反硝化微生物的影响[J]. *土壤学报*, 2016, **53**(5): 1306-1315. Wang Q, Yang H C, Wang L, *et al.* Effect of amending ferrihydrite on  $N_2O$  emission and denitrifying microorganisms in paddy soil [J]. *Acta Pedologica Sinica*, 2016, **53**(5): 1306-1315.
- [40] 刘杏认, 赵光昕, 张晴雯, 等. 生物炭对华北农田土壤 $N_2O$ 通量及相关功能基因丰度的影响[J]. *环境科学*, 2018, **39**(8): 3816-3825. Liu X R, Zhao G X, Zhang Q W, *et al.* Effects of biochar on nitrous oxide fluxes and the abundance of related functional genes from agriculture soil in the North China Plain [J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(8): 3816-3825.
- [41] 赖贞丽, 黄钢锋, 白丽萍. 甲基-辅酶 M 还原酶结构、功能及催化机制研究进展[J]. *生物工程学报*, 2021, **37**(12): 4147-4157. Lai Z L, Huang G F, Bai L P. Advances on structure, function, and catalytic mechanism of methyl-coenzyme M reductase [J]. *Chinese Journal of Biotechnology*, 2021, **37**(12): 4147-4157.
- [42] 李思琦, 臧昆鹏, 宋伦. 湿地甲烷代谢微生物产甲烷菌和甲烷氧化菌的研究进展[J]. *海洋环境科学*, 2020, **39**(3): 488-496. Li S Q, Zang K P, Song L. Review on methanogens and methanotrophs metabolised by methane in wetland [J]. *Marine Environmental Science*, 2020, **39**(3): 488-496.
- [43] Sonoki T, Furukawa T, Jindo K, *et al.* Influence of biochar addition on methane metabolism during thermophilic phase of composting [J]. *Journal of Basic Microbiology*, 2013, **53**(7): 617-621.
- [44] Zehnder A J B, Brock T D. Anaerobic methane oxidation: occurrence and ecology [J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 1980, **39**(1): 194-204.

## CONTENTS

Analysis of Change and Driving Factors of PM <sub>2.5</sub> Mass Concentration in Tianjin from 2000 to 2020 .....	CAI Zi-ying, HAO Jian, HAN Su-qin, <i>et al.</i> (1129)
Characteristics and Sources of PM <sub>2.5</sub> -O <sub>3</sub> Compound Pollution in Tianjin .....	XIAO Zhi-mei, XU Hong, GAO Jing-yun, <i>et al.</i> (1140)
Source Analysis of Ambient PM <sub>2.5</sub> in Wuhan City Based on Random Forest Model .....	ZHANG Zhi-hao, CHEN Nan, ZHU Bo, <i>et al.</i> (1151)
Chemical Characteristics and Sources of Atmospheric Aerosols in the Surrounding District of a Heavily Polluted City in the Southern Part of North China .....	REN Xiu-long, HU Wei, WU Chun-miao, <i>et al.</i> (1159)
Characteristics of Water-soluble Ions in an Autumn Haze Process in the Southern Sichuan Urban Agglomeration After the Implementation of China's Air Pollution Prevention and Control Action Plan .....	WU An-nan, HUANG Xiao-juan, HE Ren-jiang, <i>et al.</i> (1170)
Concentration, Source, and Health Risk Assessment of PM <sub>1</sub> Heavy Metals in Typical Pollution Processes in Zhengzhou .....	ZHAI Shi-ting, WANG Shen-bo, ZHANG Dong, <i>et al.</i> (1180)
Geographical Detection of Spatial Heterogeneity and Drivers of PM <sub>2.5</sub> in the Yangtze River Economic Belt .....	WANG Li-li, LIU Xiao-jie, LI Ding, <i>et al.</i> (1190)
Spatial Heterogeneity of PM <sub>2.5</sub> Concentration in Response to Land Use/Cover Conversion in the Yangtze River Delta Region .....	ZHOU Li-xia, WU Tao, JIANG Guo-jun, <i>et al.</i> (1201)
Analysis of Pollution Characteristics, Meteorological Impact, and Forecast Retrospective During the Spring Festival and the Lantern Festival in "2 + 26" Cities .....	ZHU Yuan-yuan, WANG Xiao-fei, WANG Wei, <i>et al.</i> (1212)
Pollution Characteristics and Influencing Factors of PM <sub>2.5</sub> in Shanxi Province Based on Wavelet Transform .....	ZHANG Ke-ke, HU Dong-mei, YAN Yu-long, <i>et al.</i> (1226)
Estimation of Surface Ozone Concentration and Health Impact Assessment in China .....	ZHAO Nan, LU Yi-min (1235)
Analysis of Ozone Pollution Spatio-temporal Evolution Characteristics and Identification of Its Long-term Variation Driving Factor over Hunan Province .....	LIU Yan-yan, YANG Lei-feng, XIE Dan-ping, <i>et al.</i> (1246)
Temporal and Spatial Variation in O <sub>3</sub> Concentration Near the Surface of Shandong Peninsula and Analysis of Potential Source Areas .....	LI Le, LIU Min-xia, XIAO Shi-ni, <i>et al.</i> (1256)
Characteristics, Ozone Formation Potential, and Source Apportionment of VOCs During the COVID-19 Epidemic in Xiong'an .....	LIU Xin-jun, WANG Shu-juan, LIU Cheng, <i>et al.</i> (1268)
Characteristics and Source Analysis of VOCs Pollution During the Period of Ozone Exceeding the Standard in Zibo City .....	WANG Shuai, WANG Xiu-yan, YANG Wen, <i>et al.</i> (1277)
Comparison of VOCs Pollution Characteristics Between an Urban Site and a Background Site in Summer in Zibo .....	QIN Tao, XU Bo, WANG Xin-wu, <i>et al.</i> (1286)
Emission Characteristics and Inventory of Volatile Organic Compounds from Cooking in Sichuan Province .....	QIAN Jun, HAN Li, CHEN Jun-hui, <i>et al.</i> (1296)
Emission Characteristics of Gas-and Particle-Phase Polycyclic Aromatic Hydrocarbons from Cooking .....	LI Yuan-ju, WU Ai-hua, TONG Meng-xue, <i>et al.</i> (1307)
Diversity and Community Structure of Airborne Fungi in Different Working Areas of Composting Plants .....	YU Ao-yuan, XING Li-jun, SUN Xing-bin, <i>et al.</i> (1315)
Main Problems and Refined Solutions of Urban Fugitive Dust Pollution in China .....	LI Ting-kun, FENG Yin-chang, BI Xiao-hui, <i>et al.</i> (1323)
Water Quality Assessment and Spatial-temporal Variation Analysis in Yellow River Basin .....	LIU Yan-long, ZHENG Yi-an (1332)
Spatial Distribution and Influential Factors of Nutrients in Rivers of a Typical Mountainous City: A Case Study of the Qingshuixi River in Chongqing .....	WANG Chao, YE Qiu, JIA Bo-yang, <i>et al.</i> (1346)
River-Lake States in the Tributary of the Three Gorges Reservoir Area and Their Effects on the Phosphorus Content of Different Forms in the Sediment .....	HUANG Wei, ZHANG Xing, LUO Xiao-jiao, <i>et al.</i> (1356)
Molecular Signatures of Dissolved Organic Matter in the Paihe River and Its Tributaries .....	ZHAN Ya, YIN Hao, FENG Jing-wei, <i>et al.</i> (1365)
Multiphase Spatial Distribution Characteristics of Cd Morphology in Typical Intertidal Zones in the Guanglong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area and Its Influencing Factors .....	CUI Xin-yue, MO Wu-qiu, LIAO Jian-bo (1375)
Occurrence Characteristics and Risk Assessment of Antibiotics in the Surface Water of Luoma Lake and Its Main Inflow Rivers .....	GONG Run-qiang, ZHAO Hua-jin, GAO Zhan-qi, <i>et al.</i> (1384)
Contamination Characteristics and Ecological Risk Assessment of Antibiotics in the Third Drain of Ningxia .....	LI Fu-juan, GAO Li, LI Ling-yun, <i>et al.</i> (1394)
Historical Changes and Responses to Human Activities of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Lake Sediments from Northern China During the Past 100 Years .....	GONG Xiong-hu, ZHAO Zhong-hua, DING Qi-qi, <i>et al.</i> (1404)
Characteristics of Bacterioplankton Community Between River and Lake/Reservoir in the Yangtze River Basin .....	HU Yu-xin, ZHANG Jing, HUANG Jie, <i>et al.</i> (1414)
Characteristics of Bacterial Community Structure in Wuliangs Lake During an Irrigation Interval in Hetao Plain .....	SHI Yu-jiao, LI Wen-bao, ZHANG Bo-yao, <i>et al.</i> (1424)
Effects of Landscape Structures on Bacterioplankton Communities at Multi-spatial Scales in the Yuanhe River .....	SHU Wang, WANG Peng, DING Ming-jun, <i>et al.</i> (1434)
Microbial Community Structure on Microplastic Surface in the <i>Grus leucogeranus</i> Reserve of Poyang Lake .....	LIU Shu-li, JIAN Min-fei, ZOU Long, <i>et al.</i> (1447)
Influence of Microplastics on the Development of <i>Proteus</i> Biofilm .....	TAO Hui, QI Yi-ting, YU Duo, <i>et al.</i> (1455)
Deposition Law of Low-Density Microplastics Aggregation in Wuliangs Lake .....	LIU Yu, SHI Xiao-hong, ZHANG Sheng, <i>et al.</i> (1463)
Adsorption of Fulvic Acid on Virgin and Aging Microplastics .....	SONG Ya-li, YU Ya, ZHENG Lei, <i>et al.</i> (1472)
Diffusive Fluxes and Controls of N <sub>2</sub> O from Coastal Rivers in Tianjin City .....	TANG Meng-yao, HU Xiao-kang, WANG Hong-wei, <i>et al.</i> (1481)
Effects of Hematite and Biochar Addition on Wastewater Treatment Efficiency, Greenhouse Gas Emission, and Microbial Community in Subsurface Flow Constructed Wetland .....	CHEN Xin-tong, HAO Qing-ju, XIONG Yan-fang, <i>et al.</i> (1492)
Identification and Optimization Method of Rainfall-Runoff Pollution Risk Level .....	QI Xiao-tian, ZHANG Zhi-ming, ZHAO Xin, <i>et al.</i> (1500)
Factor Analysis of Disinfection Byproduct Formation in Drinking Water Distribution Systems Through the Bayesian Network .....	JIANG Shan-shan, WANG Zhen-yu, GAO Quan, <i>et al.</i> (1512)
Selective Adsorption of Au(III) by Activated Carbon Supported Polthioamides and Adsorption Mechanism .....	ZHAO Wen-jin, ZHANG Shen, AN Xiao-qiang, <i>et al.</i> (1521)
Impacts of F/M Ratio on Microbial Networks in Activated Sludge .....	ZHANG Bing, SUN Chen-xiang, WEN Xiang-hua (1529)
Geochemical Characteristics and Source Apportionment of Soil Elements in an Urban-rural Integration Area: A Case Study in the Qinglong Area of Tianfu New District .....	LIU Shu-huai, WANG De-wei, SHI Ze-ming, <i>et al.</i> (1535)
Ecological and Health Risk Assessments Based on the Total Amount and Speciation of Heavy Metals in Soils Around Mining Areas .....	WANG Rui, CHEN Nan, ZHANG Er-xi (1546)
Characteristics of Antimony Migration and Transformation and Pollution Evaluation in a Soil-Crop System Around a Tin Mine in Hunan Province .....	ZHANG Long, SONG Bo, HUANG Feng-yan, <i>et al.</i> (1558)
Effect of Controlling Heavy Metals in Soil of Rare Earth Mining Area by Biochar Supported Graphene Oxide .....	YANG Shi, LIU Zu-wen, LONG Bei, <i>et al.</i> (1567)
Enhanced Remediation of Cd Contaminated Soil by Cotton with DOM .....	MIN Tao, LUO Tong, CHEN Li-li, <i>et al.</i> (1577)
Novel Insight into the Adsorption Mechanism of Fe-Mn Oxide-Microbe Combined Biochar for Cd(II) and As(III) .....	LIAN Bin, WU Ji-zi, ZHAO Ke-li, <i>et al.</i> (1584)
Variations in Cadmium Accumulation and Transport and Ionic Traits Among Different Winter Wheat Varieties .....	LIU Chang, XU Ying-ming, HUANG Qing-qing, <i>et al.</i> (1596)
Cadmium Accumulation Characteristics of Different Heat Varieties Under Cadmium Stress .....	REN Chao, REN Yu-zhong, WANG Hao, <i>et al.</i> (1606)
Effect of Different Land Use Types on the Diversity of Soil Bacterial Community in the Coastal Zone of Jialing River .....	LIU Kun-he, XUE Yu-qin, ZHU Lan-ping, <i>et al.</i> (1620)
Effects of Earthworms/Biochar on Bacterial Diversity and Community in As-contaminated Red Soil .....	SU Qian-qian, LI Lian-fang, ZHU Chang-xiong, <i>et al.</i> (1630)
Effects of DA-6 and EDDS on Growth and Cd Uptake by <i>Solanum nigrum</i> L. and on the Soil Bacterial Community Structure .....	LUO Yang, SUN Li, LIU Fang, <i>et al.</i> (1641)
Effects of Plastic Mulch Film on Soil Nutrients and Ecological Enzyme Stoichiometry in Farmland .....	HU Zhi-e, XIAO Mou-liang, WANG Shuang, <i>et al.</i> (1649)
Effects of Warming and Increased Precipitation on Soil Respiration of Abandoned Grassland in the Loess-Hilly Regions .....	WANG Xing, ZHONG Ze-kun, ZHU Yu-fan, <i>et al.</i> (1657)
Effect of Film Mulching, Straw Retention, and Nitrogen Fertilization on the N <sub>2</sub> O and N <sub>2</sub> Emission in a Winter Wheat Field .....	PENG Yi, LI Hui-tong, ZHANG Shao-wei, <i>et al.</i> (1668)
Effects of Straw Returning on Soil Ammonia Volatilization Under Different Production Conditions Based on Meta-analysis .....	ZHAO Zheng-xin, WANG Xiao-yun, TIAN Ya-jie, <i>et al.</i> (1678)
Impacts of Fertilization on Soil Antibiotic Resistance Genes Across Croplands: A Meta-Analysis .....	RAN Ji-wei, XIAO Qiong, HUANG Min, <i>et al.</i> (1688)