

曝气对垂直流湿地处理水产养殖废水脱氮的影响

张世羊¹, 常军军², 高毛林³, 李 谷^{1*}

(1. 农业部淡水生物多样性保护重点开放实验室, 中国水产科学研究院长江水产研究所, 武汉 430223;
2. 云南大学工程技术研究院, 昆明 650091; 3. 上海海洋大学海洋科学学院, 上海 201306)

摘要: 人工湿地作为一种有效的污水处理技术, 现已被逐渐拓展到水产养殖业中。鉴于其与养殖竞争有限土地资源的弊端, 如何构建节地高效型湿地成为未来研究的重点。曝气增氧是强化潜流湿地净化效能的重要措施之一, 但是关于曝气强度以及净化效率与影响因素的关系仍缺乏深入系统的研究。为此, 该文设计构建了7组不同要素组合的垂直流湿地小试系统, 同步或分阶段探讨了曝气强化对垂直流湿地脱氮的影响。研究结果表明, 无论曝气与否, 构建的7组湿地系统于试验运行工况下都存在明显的硝化过程, 且空气复氧和植物根系泌氧足以弥补硝化作用耗氧量。曝气增氧进一步强化了湿地内部的矿化和硝化过程; 鉴于养殖废水不缺乏碳源(该研究各组湿地进水碳氮比在28.4~30.6之间), 湿地内部的反硝化几率增大, 导致曝气后总氮的去除效率提高。但是曝气条件下过高的溶解氧又会进一步抑制反硝化过程, 从而也会导致系统总氮去除速率的下降。因此, 对垂直流湿地而言, 曝气强度不是愈高愈好。为了获得更高的脱氮效率, 建议可以通过延长水力停留时间或者在垂直流湿地尾部增设水平潜流湿地来补充反硝化过程, 进而提高系统对总氮的去除效果。

关键词: 水产养殖; 脱氮; 废水; 人工湿地; 曝气; 净化效率; 影响因素; 硝化-反硝化

doi: 10.11975/j.issn.1002-6819.2015.09.036

中图分类号: S2; S9

文献标志码: A

文章编号: 1002-6819(2015)-09-0235-07

张世羊, 常军军, 高毛林, 等. 曝气对垂直流湿地处理水产养殖废水脱氮的影响[J]. 农业工程学报, 2015, 31(9): 235—241.

Zhang Shiyang, Chang Junjun, Gao Maolin, et al. Impact of artificial aeration on nitrogen removal from aquaculture wastewater treated by vertical-flow constructed wetland[J]. Transactions of the Chinese Society of Agricultural Engineering (Transactions of the CSAE), 2015, 31(9): 235—241. (in Chinese with English abstract)

0 引言

水产养殖在中国国民经济中占有举足轻重的地位。然而伴随水产养殖业的快速发展, 养殖废水排放带来的环境污染问题也越显突出。人工湿地作为一种新型的污水处理技术, 已经在全球环境领域内引起了高度重视。近年来, 有关人工湿地在水产养殖废水处理中的应用逐渐有所报道^[1-4]。由于研究时间较短, 对其影响因素的认识还不够全面。溶解氧对潜流湿地至关重要, 它不仅影响植物的生理生化反应, 微生物的种类、数量、活性和分布, 还能对基质的理化特性、好氧、缺氧和厌氧功能层的分布等造成影响^[5-7]。对氮素而言, 湿地内部溶解氧水平高低和分布与硝化-反硝化过程密切相关, 从而最终影响到脱氮效果^[8-9]。一般潜流湿地内部的溶解氧主要来源于处理水源、空气复氧以及植物根系泌氧。因为有机物的矿化、氨氮的硝化等属耗氧过程, 潜流湿地内部通常处“缺氧”状态, 导致脱氮的关键环节硝化过程受限^[10]。曝气增氧是改善和提高湿地内部氧化环境、强化硝化作用的重要举措之一。

已有资料证明, 曝气增氧能不同程度地提高湿地系统对氮磷、有机物的净化效能^[11-14]。然而关于垂直潜流湿地曝气强化处理低浓度水产养殖废水的研究鲜见报道。与工业或生活污水相比, 水产养殖废水具有污染物浓度低、排放量大等特征。因此, 该文试图在高水力负荷(平均1.85 m/d)、短停留时间(平均4.6 h)运行工况下, 探讨曝气强化对垂直流湿地处理低浓度养殖废水脱氮效果的影响, 分析各氮素的净化效能与影响因素的关系, 揭示氮素在垂直潜流湿地内部的转化过程, 最终为垂直潜流湿地在水产养殖中的应用提供建议和帮助。

1 材料与方法

1.1 湿地设计与构建

研究湿地位于中国水产科学研究院长江水产研究所荆州窑湾基地(30°16' N, 112°18' E), 该区域属典型亚热带气候。湿地是利用池埂边的狭长空地构建而成, 按流态划分为垂直潜流类型。试验共构建了7个人工湿地小试系统, 有关湿地具体构建如下:

湿地轮廓由砖块混凝土构成, 构建尺寸为2.0 m长×1.5 m宽×1.0 m深。填充基质为煤渣、陶粒或碎石, 基质填充深度为80 cm, 粒径在10~20 mm。植物选取本地区根系发达、生物量大、多年生的湿生植物再力花(*Thalia dealbata*)、美人蕉(*Canna indica*)或芦苇(*Phragmites australis*)。进水管(Φ32 mm)布于基质表面, 排水管

收稿日期: 2014-11-16 修订日期: 2015-04-14

基金项目: 国家科技支撑计划(2012BAD25B05-01); 国家自然科学基金(31202034); 现代农业产业技术体系(CARS-46)

作者简介: 张世羊, 男, 副研究员, 研究方向: 湿地生态工程。武汉 中国水产科学研究院长江水产研究所, 430223。Email: zhangshiyang7@126.com

(Φ50 mm) 埋于基质底部, 进、排水管材质均为 PVC; 进、排水管表面钻有 4 排、间距 5 cm、孔径 Φ5~6 mm 的小孔, 进、排水管小孔分布于水管贴近基质一面。排水管一端与可调节湿地水位的排空管 (Φ75 mm) 连接, 另一端与竖管 (Φ75 mm) 相连, 竖管略高于基质表面且顶部加盖密封 (防止后续开展曝气试验漏气)。竖管内部扦插聚乙烯软管 (内径×外径=10 mm×13mm), 软管一端与 PVC 总供气管 (Φ50 mm) 相连, 另一端与纳米微孔曝气管 (内径×外径=10 mm×15mm) 连接, 纳米微孔曝气管穿插在排水管内部, 长度与排水管相当 (图 1)。PVC 总供气管与一台鼓风机 (功率: 1.6 kW; 出气量: 150 m³/h; 气压 28 000 Pa; 型号: 2DG420-H36; 产地: 深圳) 相连。有关湿地的其他设计和运行特征详见表 1。

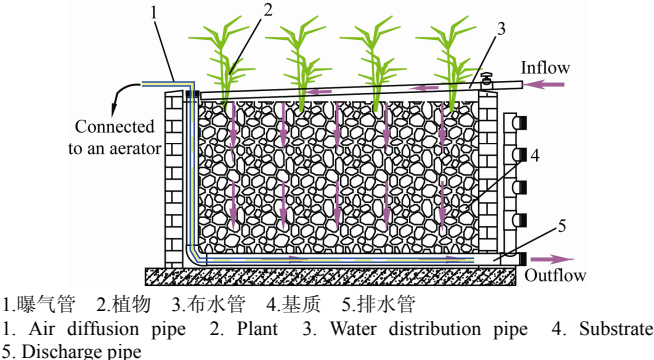


图 1 垂直流人工湿地结构示意图
Fig.1 Schematic diagram of pilot-scale vertical-flow constructed wetland

1.2 湿地运行与数据采集

一般地即使栽种植物或填充基质相同, 湿地之间仍可能会存在细微差别, 如孔隙率 (表 1)、植物生物量、基质微生物群落结构等。同时, 随着湿地运行时间的延长, 外界环境因素的变化 (如气象条件的改变) 及湿地自身的演替也会对系统净化效能造成影响。因此, 在兼顾湿地之间差异、外界环境因素变化及湿地自身演替基础上, 试验将构建的 7 个人工湿地小试系统分为 2 组: 即 A 组 (编号为 A1~A4, 表 1) 栽种植物相同, 填充基质不同; B 组 (编号为 B1~B3) 植物不同, 基质相同。

| 表 1 7 个垂直流湿地设计和运行特征 | | | | | | |
|--|--|----------------------------------|----------------------------------|-----------|---------------|---------|
| Table 1 Structural and operational characteristics of seven pilot-scale vertical-flow constructed wetlands | | | | | | |
| 湿地 编号 No. | 组合类型 Combination type | 孔隙率 Porosity ε | 水力负荷 HLR/(m d ⁻¹) | | 停留时间 HRT/h | |
| | | | Mean±SD | Range | Mean±SD | Range |
| A1 | 煤渣 Cinder×再力 (Ci×T) 花(<i>Thalia dealbata</i>) | 0.38 | 1.67±0.36 | 1.01~2.02 | 4.6±1.3 | 3.6~7.2 |
| A2 | 煤渣 Cinder×再力 (Ci×T) 花(<i>Thalia dealbata</i>) | 0.41 | 1.75±0.54 | 1.01~2.74 | 4.9±1.5 | 2.9~7.8 |
| A3 | 陶粒 Ceramisite×再力 (Ce×T) 花(<i>Thalia dealbata</i>) | 0.46 | 1.69±0.27 | 1.15~2.02 | 5.3±1.1 | 4.4~7.6 |
| A4 | 陶粒 Ceramisite×再力 (Ce×T) 花(<i>Thalia dealbata</i>) | 0.45 | 1.65±0.35 | 1.15~2.02 | 5.4±1.3 | 4.2~7.4 |
| B1 | 碎石 Gravel×再力 (G×T) 花(<i>Thalia dealbata</i>) | 0.40 | 1.97±0.44 | 1.30~2.59 | 4.1±1.0 | 2.9~5.9 |
| B2 | 碎石 Gravel×美人 (G×C) 蕉(<i>Canna indica</i>) | 0.42 | 1.99±0.47 | 1.30~2.88 | 4.3±1.1 | 2.8~6.3 |
| B3 | 碎石 Gravel×芦苇 (G×P) (<i>Phragmites australis</i>) | 0.44 | 1.94±0.38 | 1.30~2.45 | 4.5±1.0 | 3.4~6.5 |

两组湿地系统于 2010 年 3 月底建成, 随即投入生产运行。湿地处理养殖废水来自附近养殖池塘。池塘主养品种为草鱼、鲫鱼或黄颡鱼, 配养适量鲢、鳙。在本试验之前, 湿地系统的运行水力负荷控制在 1.0~1.5 m/d, 水力停留时间约为 5.4~8.1 h。所有湿地系统雨天停止运行。为了探讨曝气对垂直流湿地脱氮的影响, 本试验分 2 个阶段进行:

阶段 1: 针对 A 组湿地进行 (同一时段、不同湿地, 避免天气和进水变化对系统脱氮的影响), 将该组填充 2 种不同基质的 4 个湿地 (表 1) 进一步分为 2 个亚组: 即曝气处理组 A2(Ci×T)、A4(Ce×T) 和未曝气对照组 A1(Ci×T)、A3(Ce×T), 4 个湿地同时运行。

阶段 2: 针对 B 组湿地进行 (同一湿地、不同时段, 避免湿地之间差异对系统脱氮的影响), 对该组湿地 (B1(G×T)、B2(G×C)、B3(G×P)) 分别进行曝气与未曝气处理, 且分别于不同时间段完成, 即首先于未曝气状况下对该组湿地进行持续跟踪观察, 然后再进行曝气跟踪观察。

阶段 1 曝气和未曝气试验同步完成于 2013 年 7 月 19 日至 8 月 5 日, 阶段 2 未曝气试验完成于 2013 年 7 月 1 日至 12 日, 曝气试验完成于同年 7 月 18 日至 8 月 5 日。具体于各阶段分别对 2 组湿地系统 (A、B) 的进出水温度 Temp、溶解氧 (dissolved oxygen, DO)、pH 值、电导率 (electronic conductivity, EC)、总氨氮 (total ammonia nitrogen, TAN)、亚硝氮 NO₂-N、硝态氮 NO₃-N、总氮 (total nitrogen, TN)、高锰酸盐指数 COD_{Mn} 等进行测定, 其中在线指标用 YSI 水质在线分析仪 (Pro Plus, Yellow Springs, Ohio, USA) 现场测定, 其他化学指标分析参照国家标准方法^[15]。各阶段湿地采取底部出水方式 (见图 1), 且每种运行方式下持续采样 7 次 (雨天除外), 采样频率为连续或隔日进行。

1.3 数据分析

本文采用一阶动力学方程模拟湿地中各氮素去除的动态过程, 其方程可表征为^[16]:

$$k = \text{HLR} \times (\ln C_i - \ln C_e) / (h_w \times \varepsilon) \quad (1)$$

式中: k 为一价去除率常数, d⁻¹, 代表湿地系统的去除能力; HLR 为水力负荷, m/d; C_i 为进水污染物质量浓度, mg/L; C_e 为出水污染物质量浓度, mg/L; h_w 为基质填充深度, 0.8 m; ε 为基质孔隙率, 算法为 (湿地总体积-基质体积)/湿地总体积, 即湿地的有效容积, 孔隙率越大, 湿地容纳水体的能力越强。

成组 t -test 用于检验湿地进出水间理化特征差异, 协方差分析用于探讨不同运行方式 (曝气与未曝气) 及组配方式 (不同基质和植物组合) 对湿地净化效果的影响, 多重比较选择 LSD (方差齐) 或 Games-Howell (方差不齐)^[17], 分析在 SPSS 17.0 软件中完成。采用多元排序分析探讨各氮素去除率常数与湿地进出水理化特征的关系。因为部分氮素的去除率常数存在负值, 故分析方法选择 RDA (redundancy analysis), 分析在 CANOCO 4.5 软件中完成。

2 结果与分析

2.1 各组湿地进出水理化特征比较

比较各组湿地进出水溶解氧, 发现曝气后湿地出水溶解氧显著增加, 而未曝气条件下湿地出水溶解氧也有增加趋势, 个别甚至达到了显著水平 (表 2), 这与空气

中氧气的溶入以及植物根部泌氧有关^[18-20]。氮素营养物方面, 无论曝气与否, 湿地出水总氮、总氮与进水相比都显著降低; 类似地, 亚硝氮除极个别外 (未曝气组 A3(Ce×T)), 出水浓度也呈显著降低趋势; 无论曝气与否, 硝态氮的出水浓度都显著增加 (表 2)。

表 2 两个不同运行阶段各组湿地进出水理化特征

Table 2 Physicochemical characteristics of inflow and outflow for various combined wetlands under two operating stages

| 参数 Parameters | | 温度 Temperature/ °C | 溶解氧 DO/ (mg·L ⁻¹) | pH 值 | 电导率 EC/ (μS·cm ⁻¹) | 总氮氮 TAN/ (mg·L ⁻¹) | NO ₂ -N/ (mg·L ⁻¹) | NO ₃ -N/ (mg·L ⁻¹) | TN/ (mg·L ⁻¹) | COD _{Mn} / (mg·L ⁻¹) | COD _{Mn} / NO _x |
|------------------|---|--------------------------|----------------------------------|-----------|-----------------------------------|-----------------------------------|--|--|------------------------------|--|--|
| 进水 Inflow | 阶段 1 曝气 Aerated、未 Stage 1 曝气 Non-aerated | 31.5±0.7 | 2.80±1.37 | 7.52±0.31 | 549±15 | 2.09±0.43 | 0.12±0.03 | 0.45±0.18 | 4.47±0.43 | 16.2±2.8 | 28.4 |
| | 阶段 2 曝气 Aerated | 31.3±0.7 | 2.40±0.49 | 7.54±0.35 | 549±15 | 2.13±0.44 | 0.11±0.03 | 0.44±0.18 | 4.53±0.42 | 16.4±4.1 | 29.8 |
| | 阶段 2 未曝气 Stage 2 Non-aerated | 30.0±0.9 | 1.81±0.63 | 7.41±0.25 | 551±34 | 1.56±0.52 | 0.14±0.06 | 0.35±0.13 | 3.91±0.66 | 15.0±3.8 | 30.6 |
| | 曝气 Ci×T | 31.5±0.6 | 5.64±0.57*** | 7.58±0.11 | 540±14 | 0.52±0.07*** | 0.03±0.03** | 2.34±0.26*** | 3.46±0.34*** | | |
| 出水 Outflow | 阶段 1 Aerated Ce×T | 31.5±0.6 | 5.83±0.25** | 7.72±0.14 | 540±15 | 0.53±0.04*** | 0.05±0.04** | 2.53±0.21*** | 4.01±0.46* | | |
| | 阶段 1 未曝气 Ci×T | 31.4±0.7 | 3.46±1.92 | 7.17±0.25 | 557±14 | 0.54±0.06*** | 0.03±0.01*** | 2.09±0.14*** | 3.29±0.37*** | | |
| | 阶段 1 Non-aerated Ce×T | 31.5±0.6 | 3.52±0.95 | 7.40±0.13 | 546±16 | 0.84±0.24*** | 0.17±0.06* | 1.49±0.70** | 3.79±0.49** | | |
| | 阶段 2 曝气 G×T | 31.5±0.5 | 5.40±0.19*** | 7.77±0.20 | 543±12 | 0.64±0.21** | 0.02±0.02** | 2.00±0.35*** | 3.18±0.38*** | | |
| | 阶段 2 Aerated G×C | 31.4±0.5 | 5.62±0.16*** | 7.79±0.18 | 538±13 | 0.62±0.21*** | 0.02±0.01*** | 2.38±0.26*** | 3.57±0.39*** | | |
| | 阶段 2 G×P | 31.5±0.4 | 4.63±0.44*** | 7.68±0.22 | 551±23 | 0.62±0.17*** | 0.02±0.01*** | 1.28±0.53** | 2.57±0.75** | | |
| | 阶段 2 未曝气 G×T | 29.8±0.9 | 2.45±0.43* | 7.44±0.12 | 536±17 | 0.92±0.98* | 0.02±0.01** | 1.97±0.52*** | 3.63±1.20 | | |
| | 阶段 2 G×C | 29.8±0.9 | 3.39±0.18** | 7.42±0.09 | 535±14 | 0.86±0.99* | 0.03±0.01** | 1.77±0.32*** | 3.63±1.49 | | |
| | 阶段 2 Non-aerated G×P | 29.8±1.0 | 2.39±0.71 | 7.36±0.16 | 548±20 | 0.92±1.03* | 0.04±0.02** | 1.79±0.42*** | 3.60±1.42 | | |
| | | | | | | | | | | | |
| | | | | | | | | | | | |
| | | | | | | | | | | | |

注: NO_x = NO₂-N+NO₃-N; 各组湿地进出水理化参数的显著差异用星号标出; * $P < 0.05$, ** $P < 0.01$, *** $P < 0.001$ 。

Note: NO_x = NO₂-N+NO₃-N; Significant differences in parameters between inflow and outflow were marked with asterisks; * $P < 0.05$, ** $P < 0.01$, *** $P < 0.001$ 。

2.2 曝气对湿地净化效能的影响

曝气显著提高了湿地对总氮氮的百分比或面积去除率 (表 3), 且由表 4 的统计结果可知, 不同运行方式对总氮氮去除的影响显著。曝气能显著提高湿地系统对总氮氮的去除效率说明硝化作用是氮氮去除的主要途径。不同运行或组配方式对亚硝氮、硝态氮以及总氮的去除存在显著影响, 且二者的交互效应明显 (表 4)。进一步比较发

现, 曝气显著提升了湿地系统对亚硝氮、总氮的去除效果, 却降低了对硝态氮的去除作用。这是因为, 一方面曝气改善了湿地内部的氧化环境, 更多的氮氮在好氧环境下被氧化为硝酸盐, 而不稳定中间产物亚硝酸盐同样易被氧化为硝酸盐^[10]; 另一方面, 各组湿地系统的水力负荷相对较高 (表 1), 受控于较短的停留时间, 各组湿地系统的反硝化作用有限, 湿地出水中呈现硝酸盐累积现象^[16,19,21]。

表 3 曝气与未曝气条件下湿地对各氮素的百分比去除率和面积去除率比较

Table 3 Comparison of N percent reduction or mass removal by various wetlands under aerated or non-aerated state

| 参数 Parameters | 处理 Treatment | 类型 Type | 总氮氮 TAN/ (mg·L ⁻¹) | NO ₂ -N/ (mg·L ⁻¹) | NO ₃ -N/ (mg·L ⁻¹) | TN/ (mg·L ⁻¹) | DIN/ (mg·L ⁻¹) | Org-N/ (mg·L ⁻¹) |
|---|-----------------|------------|-----------------------------------|--|--|------------------------------|-------------------------------|---------------------------------|
| 百分比去除率 Percent reduction (PR)/% | 曝气 Aerated | Ci×T | 74.3±6.5 | 71.1±19.3a | -503.1±247.6 | 22.5±3.3ab | | |
| | | Ce×T | 73.7±5.4 | 54.9±32.6b | -551.9±262.3 | 10.2±7.8c | | |
| | | G×T | 67.9±15.1 | 81.0±11.6a | -416.4±232.7 | 29.5±6.8abc | | |
| | | G×C | 69.0±15.0 | 81.6±8.6a | -519.4±259.6 | 21.0±6.0bc | | |
| | | G×P | 69.5±12.1 | 86.3±8.6a | -210.6±123.3 | 42.8±17.8a | | |
| | 未曝气 Non-aerated | Ci×T | 73.0±6.6 | 77.6±9.1a | -435.0±205.4 | 26.1±8.9ab | | |
| | | Ce×T | 60.1±4.5 | -40.8±37.9b | -239.7±161.4 | 15.2±7.6c | | |
| | | G×T | 48.7±30.7 | 80.6±11.9a | -533.4±318.7 | 8.3±15.1abc | | |
| | | G×C | 53.6±30.9 | 78.8±11.1a | -455.9±216.3 | 9.5±19.3bc | | |
| | | G×P | 49.6±31.9 | 65.7±14.1a | -479.7±262.4 | 10.1±17.7a | | |
| | 曝气 Aerated | Ci×T | 2.74±1.00 | 0.14±0.07a | -3.25±0.94ab | 1.79±0.79ab | | |
| | | Ce×T | 2.60±1.02 | 0.10±0.06b | -3.43±0.95ab | 0.69±0.55c | | |
| | | G×T | 2.93±1.07 | 0.19±0.10a | -3.11±0.87a | 2.67±0.75abc | | |
| | | G×C | 2.89±1.00 | 0.19±0.10a | -3.87±1.08a | 1.86±0.62bc | | |
| | | G×P | 2.87±0.96 | 0.19±0.07a | -1.70±1.05b | 3.63±1.36a | | |
| 面积去除率 Mass removal rate (MR)/ (g·m ⁻² ·d ⁻¹) | 曝气 Aerated | Average | 2.81 | 0.16 | -3.07 | 2.13 | -0.11 | 2.23 |
| | | Ci×T | 2.59±0.94 | 0.15±0.05a | -2.74±0.77ab | 2.03±0.78ab | | |
| | | Ce×T | 2.11±0.51 | -0.08±0.08b | -1.89±1.10ab | 1.15±0.62c | | |
| | | G×T | 1.31±1.04 | 0.21±0.09a | -3.19±1.81a | 0.60±1.06abc | | |
| | | G×C | 1.51±1.06 | 0.21±0.09a | -2.87±1.20a | 0.65±1.40bc | | |
| | 未曝气 Non-aerated | G×P | 1.41±1.13 | 0.18±0.08a | -2.83±0.98b | 0.68±1.28a | | |
| | | Average | 1.79 | 0.13 | -2.70 | 1.02 | -0.79 | 1.81 |
| | | Ci×T | 2.59±0.94 | 0.15±0.05a | -2.74±0.77ab | 2.03±0.78ab | | |
| | | Ce×T | 2.11±0.51 | -0.08±0.08b | -1.89±1.10ab | 1.15±0.62c | | |
| | | G×T | 1.31±1.04 | 0.21±0.09a | -3.19±1.81a | 0.60±1.06abc | | |
| | | G×C | 1.51±1.06 | 0.21±0.09a | -2.87±1.20a | 0.65±1.40bc | | |
| | | G×P | 1.41±1.13 | 0.18±0.08a | -2.83±0.98b | 0.68±1.28a | | |
| | | Average | 1.79 | 0.13 | -2.70 | 1.02 | -0.79 | 1.81 |

注: 百分比去除率 PR = (进水质量浓度-出水质量浓度)/进水质量浓度×100%; 面积去除率 MR = HLR×(进水质量浓度-出水质量浓度); 各组湿地之间不同字母标注表示存在显著差异。DIN = TAN + NO₂-N + NO₃-N, Org-N = TN-DIN

Denote: Percent reduction (PR) was calculated by $(C_i - C_e)/C_i \times 100\%$ and mass removal (MR) by $(C_i - C_e) \times \text{HLR}$ (m·d⁻¹); C_i and C_e were inflow and outflow concentrations, g·m⁻³, respectively. Significant differences among five types of constructed wetlands were marked with different letters. DIN = TAN + NO₂-N + NO₃-N, Org-N = TN-DIN.

表 4 曝气与未曝气条件下湿地对氮素百分比去除的协方差分析

Table 4 Statistical results of covariance analysis of N percent reduction by various wetlands under aerated or non-aerated state

| 指标 Index | 变异来源 Source | 氮素百分比去除N percent reduction | | | | | 氮素面积去除N mass removal | | | | |
|--------------------|-------------------|----------------------------------|-----------|-------------------|---------------|--------------------|----------------------------------|-----------|-------------------|---------------|--------------------|
| | | 三类平方差 Type III Sum of Squares | 自由度 df | 均方 Mean Square | F值 F-value | P值 Significance | 三类平方差 Type III Sum of Squares | 自由度 df | 均方 Mean Square | F值 F-value | P值 Significance |
| TAN | State | 1487 | 1 | 1487 | 5.6 | 0.021 | 2.7 | 1 | 2.7 | 5.2 | 0.027 |
| | Combination | 936 | 4 | 234 | 0.9 | 0.477 | 1.4 | 4 | 0.4 | 0.7 | 0.611 |
| | State×Combination | 135 | 3 | 45 | 0.9 | 0.915 | 0.3 | 3 | 0.09 | 0.2 | 0.909 |
| NO ₂ -N | State | 11761 | 1 | 11761 | 39.9 | <0.001 | 0.05 | 1 | 0.05 | 22.9 | <0.001 |
| | Combination | 20782 | 4 | 5195 | 17.39 | <0.001 | 0.08 | 4 | 0.02 | 8.6 | <0.001 |
| | State×Combination | 7724 | 3 | 2575 | 8.6 | <0.001 | 0.02 | 3 | 0.01 | 3.2 | 0.029 |
| NO ₃ -N | State | 102121 | 1 | 102121 | 4.8 | 0.033 | 2.7 | 1 | 2.7 | 5.7 | 0.021 |
| | Combination | 170729 | 4 | 42682 | 2.0 | 0.108 | 8.5 | 4 | 2.1 | 4.5 | 0.003 |
| | State×Combination | 319720 | 3 | 106573 | 5.0 | 0.004 | 10.6 | 3 | 3.5 | 7.6 | <0.001 |
| TN | State | 1481 | 1 | 1481 | 10.2 | 0.002 | 10.3 | 1 | 10.3 | 12.1 | 0.001 |
| | Combination | 1841 | 4 | 460 | 3.2 | 0.021 | 11.8 | 4 | 3.0 | 3.5 | 0.014 |
| | State×Combination | 2655 | 3 | 885 | 6.1 | 0.001 | 18.9 | 3 | 6.3 | 7.4 | <0.001 |

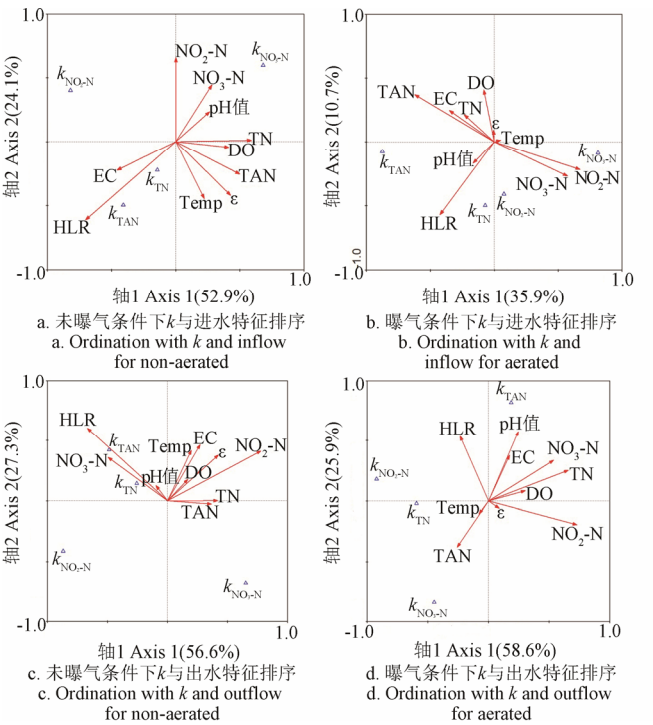
曝气提升了湿地系统对总氮的去除,可能原因是,一方面曝气增强了湿地内部好氧微生物活性,将更多的有机氮降解为氨氮,提高了湿地系统对有机氮的去除,如有机氮 Org-N 面积去除率由 1.81g/(m²·d)上升为 2.23g/(m²·d),见表 3;另一方面,如前所述,更多的氨氮在曝气条件下易被氧化为硝态氮,加上源水中充足的碳源(一般养殖水体因为鱼类粪便、残饵的蓄积不缺乏碳源,如本研究各组湿地进水的 COD_{Mn}/NO_x 值在 28.4~30.6 之间,表 2),水体中蓄积的硝态氮、亚硝氮被反硝化的几率增加(即便曝气后好氧环境的提高不利于反硝化过程),最终导致因反硝化作用增强带来的无机氮去除比例的增加(如无机氮 DIN 面积去除率由-0.79 g/(m²·d)上升为-0.11 g/(m²·d),表 3)。

多重比较结果表明,在囊括曝气条件下,陶粒×再力花(Ce×T)组合对亚硝氮的去除效率显著低于其他组合系统,碎石×芦苇(G×P)组合对硝态氮的面积去除率显著低于碎石×再力花(G×T)或碎石×美人蕉(G×C)组合;在总氮去除效率方面,陶粒×再力花(Ce×T)组合显著低于其他组合系统,而碎石×芦苇(G×P)组合有高于其他组合趋势(表 3)。上述结果表明湿地不同组配方式对各氮素的净化效率存在一定差异,这与 Akrotos 和 Tsihrantzis 报道的结果相一致,他们发现香蒲、细基质对氮磷的去除效率更高^[22]。曝气与湿地组配方式之间的显著交互相应(表 4)说明二者之间存在相互影响。以总氮的去除效果为例,煤渣×再力花(Ci×T)、陶粒×再力花(Ce×T)2 种组合曝气较未曝气脱氮效率有降低趋势,而另外 3 种组合:即碎石×再力花(G×T)、碎石×美人蕉(G×C)和碎石×芦苇(G×P)变化趋势与之相反,这可能归结于运行或组配方式的调整改变了湿地内部硝化-反硝化菌的种群分布,进而对脱氮效果造成影响^[23-24]。

2.3 影响湿地净化效能因素分析

将不同运行状态下各氮素去除率常数与湿地进出水理化特征进行 RDA 排序分析,结果如图 2 所示。从 RDA 统计结果来看,无论曝气与否,各氮素的去除率常数与湿地进出水理化特征间均存在极显著($P=0.002$,表 5)

的线性关系,说明湿地对各氮素的去除效果确实受控于监测的理化环境因子变异。由图 2 可知,前 2 个典型轴(轴 1、轴 2)包含了去除率常数 k 与进出水理化特征相关性的大部分信息(两轴解释的方差累积百分比在 46.6%~84.5%之间,平均为 73.0%),因此可以利用前 2 个典型轴来探讨去除率常数 k 与影响因素的关系。



注: Temp: 温度; DO: 溶解氧; EC: 电导率; TAN: 总氨氮; TN: 总氮; ϵ : 孔隙率; HTR: 水力停留时间

Note: Temp: Temperature; DO: dissolved oxygen; EC: electronic conductivity; TAN: total ammonia nitrogen; TN: total nitrogen; ϵ : porosity; HTR: hydraulic retention time.

图 2 曝气与未曝气条件下各氮素去除率常数 k 与湿地进出水理化特征的冗余度分析(redundancy analysis, RDA)排序图
Fig.2 RDA (redundancy analysis) ordination plot based upon k of various N and inflow/outflow characteristics under aerated or non-aerated state

进一步分析排序图 2 发现,水力负荷与硝酸盐去除率常数呈负相关,与总氨氮、总氮的去除率常数呈正相关,且未曝气条件下水力负荷与各氮素 k 值的相关性较曝气条件下更强(图 2)。水力负荷与硝态氮 k 值的负相关可能是因为水力负荷越高,水力停留时间越短,进而湿地内部硝酸盐进行反硝化作用的时间也越短(对应去除速率越低);水力负荷与总氮 k 值的正相关可能是因为有机氮仍是该类水体氮素的重要组份(表 3),而过滤沉淀是湿地去除有机氮的主要途径,水力负荷越高,被截留于湿地中有机氮的组份也越高,进而导致总氮的去除率也越高。关于水力负荷与污染物去除率常数之间的线性关系也有文献报道^[25],如我们通过文献调研并结合自己的研究发现,用于处理水产养殖废水潜流湿地水力负荷与 COD、氨氮及总磷的去除率常数正相关^[16],这与本研究中总氨氮的 k 值与水力负荷正相关一致。此外,未曝气条件下水力负荷与各氮素 k 值的相关性强于曝气条件可能是因为曝气给湿地系统内部带来了更多的环境扰动,如氧化还原条件的改变、气体上浮等都会对湿地系统的净化效能造成影响,进而会分散水力负荷影响的权重。

表 5 曝气与未曝气条件下各氮素去除率常数与湿地进出水理化特征的 RDA 统计结果

Table 5 Statistical results of RDA based upon k of various N and inflow/outflow characteristics under aerated or non-aerated state

| 源 Source | 运行状态 Operating state | 项目 Item | 第一典型轴 显著性检验 Test of significance of first canonical axis | 所有典型轴 显著性检验 Test of significance of all canonical axes |
|-------------------------|----------------------------|--------------------|---|---|
| k -进水 k -inflow | 未曝气 Non-aerated | 特征值 /Eigenvalue | 0.53 | 0.82 |
| | | F 值/ F -ratio | 26.9 | 11.2 |
| | | P 值/ P -value | 0.002 | 0.002 |
| | 曝气 Aerated | 特征值 /Eigenvalue | 0.36 | 0.51 |
| | | F 值/ F -ratio | 13.4 | 2.5 |
| | | P 值/ P -value | 0.002 | 0.002 |
| k -出水 k -outflow | 未曝气 Non-aerated | 特征值 /Eigenvalue | 0.57 | 0.92 |
| | | F 值/ F -ratio | 31.3 | 27.1 |
| | | P 值/ P -value | 0.002 | 0.002 |
| | 曝气 Aerated | 特征值 /Eigenvalue | 0.59 | 0.91 |
| | | F 值/ F -ratio | 33.9 | 25.6 |
| | | P 值/ P -value | 0.002 | 0.002 |

未曝气条件下湿地进水 pH 值与硝态氮去除率常数 k 值的正相关(图 2a)以及曝气、未曝气条件下出水 pH 值与硝态氮 k 值的负相关性(图 2c、d)结果表明,硝态氮的去除速率与进水出酸碱度有一定关联,这是因为湿地内部的硝化作用属耗碱过程,硝化作用愈强烈,出水 pH 值降低愈多^[17]。曝气条件下进水 pH 值与硝态氮 k 值弱的负相关(图 2b)可能是因为曝气对湿地内部带来了扰动,导致二者相关性的变化趋势与未曝气相反。

在本研究中,未曝气条件下湿地进出水溶解氧除与亚硝氮的 k 值有一定负相关外,与其它氮素的 k 值相关性

不明显(图 2a、c);而在曝气条件下,湿地进出水溶解氧与氨氮的 k 值有一定的正相关,与其他氮素的 k 值负相关(图 2b、d)。未曝气条件下湿地进出水溶解氧与亚硝氮 k 值的负相关是因为亚硝氮为硝化过程的中间产物,状态不稳定,在好氧条件下容易被氧化为硝酸盐^[10]。曝气条件下出水溶解氧与氨氮 k 值的正相关(图 2d),说明湿地出水溶解氧水平愈高,湿地内部的硝化作用愈强,对应氨氮的去除率也愈高;相应地,由于水力停留时间较短,湿地出水中呈现硝酸盐累积现象,进而导致硝酸盐 k 值的降低。

由图 2b、d 可知,曝气条件下湿地进出水溶解氧与总氮的 k 值之间存在明显的负相关;进一步分析发现曝气条件下 5 种组合湿地的百分比去除率(相关系数 $r=-0.956$; $P=0.011$)或面积去除率($r=-0.930$; $P=0.022$)与出水溶氧间存在显著的负相关,这说明曝气条件下溶解氧愈高,总氮的去除效率愈低。分析原因如下:由表 2 可知,无论曝气与否,湿地出水溶氧解水平平均高于进水,说明大气复氧和植物根际泌氧足以弥补湿地内部的硝化作用耗氧量,曝气增氧只是强化了湿地内部的硝化作用过程。又如前所述,曝气与未曝气相比,有机氮和无机氮的去除比例都增大(分别增加了 0.42 和 0.68 g/(m²·d),表 3),湿地中总氮的去除主要依赖于硝化-反硝化过程。曝气虽然强化了湿地内部的硝化过程,但是过高的溶解氧也会对反硝化过程有一定的抑制效应,从而也会导致总氮 k 值的降低。

从净化效率与进出水浓度的关系来看,无论曝气与否,各氮素 k 值与出水浓度间均存在明显的负相关(图 2c、d),说明出水浓度愈高,净化效率愈低,合乎常理。另外,从进水浓度来看,无论曝气与否,硝态氮的 k 值与进水浓度间均存在明显的正相关,曝气条件下总氨氮的 k 值与进水浓度有一定的相关性,其他氮素的 k 值与进水浓度相关性不强(图 2a、b)。曝气条件下总氨氮的 k 值与进水浓度有一定的相关性是因为曝气条件下湿地的硝化作用增强;硝态氮的 k 值与进水浓度之间的正相关,说明硝酸盐负荷愈高,反硝化作用愈强,这之前推断的曝气条件下因不缺乏碳源,反硝化几率增大的结果相一致。

3 结论与建议

1) 针对试验构建的垂直潜流湿地系统,于高水力负荷(平均 HLR 1.85 m/d),短停留时间(平均水力停留时间 4.6 h)、高曝气强度(通气量约 30 m³/(m²·d),气水比约 16.2:1)运行工况下处理低浓度水产养殖废水,相比于进水的低溶氧水平(平均溶解氧 2.34 mg/L),湿地出水溶解氧呈增加趋势,空气复氧和植物根际泌氧足以弥补潜流湿地内部的硝化作用耗氧。曝气增氧提高了湿地出水含氧量,对温度、酸碱度及电导率的影响较弱

2) 无论曝气与否,试验构建的 7 组垂直潜流湿地系统都表现出明显的硝化作用,受控于较短的水力停留时间,湿地出水中呈现硝酸盐累积现象。曝气增氧进一步强化了湿地内部的矿化和硝化过程。在碳源充足前提下(如本研究各组湿地进水碳氮比在 28.4~30.6 之间),伴

随硝态氮负荷的增加,曝气后湿地内部的反硝化几率增大(即便溶解氧水平提高对反硝化过程不利),总氮去除效率(百分比和面积去除率)提高

3) RDA 分析表明,构建湿地系统对各氮素的去除效率确实受控于监测的理化环境因子变异(典型轴显著性检验 $P < 0.01$),其中水力负荷、溶解氧、进出水氮素浓度仍然是限制湿地净化效能的关键因子。因为硝化-反硝化是该组湿地脱氮的主要途径,硝态氮、氨氮的进水负荷与相应去除率常数的关联性更强

4) 与未曝气相比,曝气虽然提高了总氮的去除效率,但是在曝气条件下总氮的去除率常数与进出水溶解氧水平的负相关,暗示曝气条件下的高溶氧水平对反硝化过程也会有一定的抑制作用。这也说明,对垂直潜流湿地而言,曝气增氧强度不是愈高愈好。为了获得理想的脱氮效果,可以通过延长水力停留时间或者在垂直流湿地后增设水平潜流湿地补充反硝化,从而提高系统对总氮的去除效果。

参 考 文 献

- [1] Konnerup D, Trang N T D, Brix H. Treatment of fishpond water by recirculating horizontal and vertical flow constructed wetlands in the tropics[J]. *Aquaculture*, 2011, 313(1/2/3/4): 57—64.
- [2] 高峰, 杨朝晖, 李晨, 等. 秋茄人工湿地净化循环海水养殖废水效果[J]. *农业工程学报*, 2012, 28(17): 192—198. Gao Feng, Yang Zhaohui, Li Chen, et al. Effect of saline aquaculture wastewater treatment by constructed mangrove wetland[J]. *Transactions of the Chinese Society of Agricultural Engineering (Transactions of the CSAE)*, 2012, 28(17): 192—198. (in Chinese with English abstract)
- [3] 施永海, 张根玉, 刘建忠, 等. 半咸水人工湿地净化越冬养殖循环水的效果[J]. *农业工程学报*, 2012, 28(24): 179—187. Shi Yonghai, Zhang Genyu, Liu Jianzhong, et al. Effects of purification of recirculating water in over-winter aquaculture in brackish wastewater constructed wetland[J]. *Transactions of the Chinese Society of Agricultural Engineering (Transactions of the CSAE)*, 2012, 28(24): 179—187. (in Chinese with English abstract)
- [4] 臧维玲, 刘永士, 戴习林, 等. 低频率运转下人工湿地对养虾水的去氮作用及其动力学[J]. *农业工程学报*, 2013, 29(18): 210—217. Zang Weiling, Liu Yongshi, Dai Xilin, et al. Performance and dynamics of nitrogen removal in constructed wetlands at low frequency for shrimp culture[J]. *Transactions of the Chinese Society of Agricultural Engineering (Transactions of the CSAE)*, 2013, 29(18): 210—217. (in Chinese with English abstract)
- [5] Samso R, Garcia J. Bacteria distribution and dynamics in constructed wetlands based on modeling results[J]. *Sci Total Environ*, 2013, 461/462: 430—440.
- [6] Zhai Jun, Zou Jinsong, He Qiang, et al. Variation of dissolved oxygen and redox potential and their correlation with microbial population along a novel horizontal subsurface flow wetland[J]. *Environ Technol*, 2012, 33(17): 1999—2006.
- [7] Tao Min, He Feng, Xu Dong, et al. How artificial aeration improved sewage treatment of an integrated vertical-flow constructed wetland[J]. *Pol J Environ Stud*, 2010, 19(1): 183—191.
- [8] Chen Yi, Wen Yue, Cheng Jing, et al. Effects of dissolved oxygen on extracellular enzymes activities and transformation of carbon sources from plant biomass: Implications for denitrification in constructed wetlands[J]. *Bioresource Technol*, 2011, 102(3): 2433—2440.
- [9] Ding Yi, Song Xinshan, Wang Yuhui, et al. Effects of dissolved oxygen and influent COD/N ratios on nitrogen removal in horizontal subsurface flow constructed wetland[J]. *Ecol Eng*, 2012, 46: 107—111.
- [10] Vymazal J. Removal of nutrients in various types of constructed wetlands[J]. *Sci Total Environ*, 2007, 380(1/2/3): 48—65.
- [11] Zhang Lieyu, Zhang Lan, Liu Yongding, et al. Effect of limited artificial aeration on constructed wetland treatment of domestic wastewater[J]. *Desalination*, 2010, 250(3): 915—920.
- [12] Dong Huiyu, Qiang Zhimin, Li Tinggang, et al. Effect of artificial aeration on the performance of vertical-flow constructed wetland treating heavily polluted river water[J]. *J Environ Sci*, 2012, 24(4): 596—601.
- [13] Fan Jinlin, Wang Wengang, Zhang Bo, et al. Nitrogen removal in intermittently aerated vertical flow constructed wetlands: Impact of influent COD/N ratios[J]. *Bioresource Technol*, 2013, 143: 461—466.
- [14] Li Fengmin, Lu Lun, Zheng Xiang, et al. Three-stage horizontal subsurface flow constructed wetlands for organics and nitrogen removal: Effect of aeration[J]. *Ecol Eng*, 2014, 68: 90—96.
- [15] 国家环境保护总局《水和废水监测分析方法》编委会编. 水和废水监测分析方法[M]. 第四版. 北京: 中国环境科学出版社, 2002.
- [16] Zhang Shiyang, Li Gu, Chang Junjun, et al. Aerated enhanced treatment of aquaculture effluent by three-stage, subsurface-flow constructed wetlands under a high loading rate[J]. *Pol J Environ Stud*, 2014, 23(5): 1821—1830.
- [17] Zhang Shiyang, Li Gu, Wu Huiyi, et al. An integrated recirculating aquaculture system (RAS) for land-based fish farming: The effects on water quality and fish production[J]. *Aquacult Eng*, 2011, 45(3): 93—102.
- [18] Ye Jianfeng, Wang Liang, Li Dan, et al. Vertical oxygen distribution trend and oxygen source analysis for vertical-flow constructed wetlands treating domestic wastewater[J]. *Ecol Eng*, 2012, 41: 8—12.
- [19] Peng Lian, Hua Yumei, Cai Jianbo, et al. Effects of plants and temperature on nitrogen removal and microbiology in a pilot-scale integrated vertical-flow wetland treating primary domestic wastewater[J]. *Ecol Eng*, 2014, 64: 285—290.
- [20] Wu Haiming, Liu Jufeng, Zhang Jian, et al. Comparative quantification of oxygen release by wetland plants: electrode technique and oxygen consumption model[J]. *Environ Sci Pollut Res*, 2014, 21(2): 1071—1078.

- [21] Cui Lihua, Ouyang Ying, Lou Qian, et al. Removal of nutrients from wastewater with *Canna indica* L. under different vertical-flow constructed wetland conditions[J]. Ecol Eng, 2010, 36(8): 1083—1088.
- [22] Akrotos C S, Tsihrantzis V A. Effect of temperature, HRT, vegetation and porous media on removal efficiency of pilot-scale horizontal subsurface flow constructed wetlands[J]. Ecol Eng, 2007, 29(2): 173—191.
- [23] Meng Panpan, Hu Wenrong, Pei Haiyan. Effect of different plant species on nutrient removal and rhizospheric microorganisms distribution in horizontal-flow constructed wetlands[J]. Environ Technol, 2014, 35(7): 808—816.
- [24] Zhong Fei, Wu Juan, Dai Yanran, et al. Bacterial community analysis by PCR-DGGE and 454-pyrosequencing of horizontal subsurface flow constructed wetlands with front aeration[J]. Appl Microbiol Biotechnol, 2015, 99(3): 1499—1512.
- [25] Lin Yingfeng, Jing Shuhren, Lee Deryuan, et al. Performance of a constructed wetland treating intensive shrimp aquaculture wastewater under high hydraulic loading rate[J]. Environ Pollut, 2005, 134(3): 411—421.

Impact of artificial aeration on nitrogen removal from aquaculture wastewater treated by vertical-flow constructed wetland

Zhang Shiyang¹, Chang Junjun², Gao Maolin³, Li Gu^{1*}

(1. Key Laboratory of Freshwater Biodiversity Conservation, Ministry of Agriculture of China, Yangtze River Fisheries Research Institute, Chinese Academy of Fishery Sciences, Wuhan 430223, China; 2. Research Institute of Engineering and Technology, Yunnan University, Kunming 650091, China; 3. College of Marine Sciences, Shanghai Ocean University, Shanghai 201306, China)

Abstract: Due to the serious trend of water pollution across the country, the problem of aquaculture wastewater discharge must be solved appropriately to achieve sustainability. As a novel technology for sewage treatment, constructed wetland (CW) has been gradually expanded to aquaculture. In view of the disadvantages in land dispute with pond aquaculture, how to develop or design a land-saving, high-efficiency CW will be the focus of future study. It is widely accepted that artificial aeration can enhance the purification efficiency of CW's subsurface flow on wastewater due to its capacity to improve the oxidation conditions, which is beneficial for organic matter degradation and nutrient removal. Nevertheless, more detailed studies on the impact of aeration intensity on treatment performance and the associated relationships with influencing factors are still lacking. In the present study, 7 pilot-scale vertical-flow CWs with different combinations of substrates and plants were configured and then systematically investigated in field for treating low-strength aquaculture wastewater with or without artificial aeration. An attempt to explore the impact of the aeration on nitrogen (N) removal or transformation within wetland bed was made. After a thorough comparison between aerated and non-aerated states investigated simultaneously or by stages, the results were depicted as follows: under the operating conditions characterized by high hydraulic loading(HLR) (mean value 1.85 m/d), short hydraulic retention time(HRT) (mean 4.6 h), strong aeration intensity (air flow rate 30 m³/(m²·d), air-water ratio 16.2:1) and low inflow dissolved oxygen (DO) (mean 2.34 mg/L), nitrification occurred obviously within all the systems no matter with or without aeration. DO replenished from atmospheric reoxygenation and plant roots appeared enough to cover the quantity consumed by nitrification and organic matter degradation. Artificial aeration enhanced the intensity of internal mineralization and nitrification. In virtue of no lack of available carbon source (for instance in the present case, the influent ratio of chemical oxygen demand to nitrogen (COD/N) ranged from 28.4 to 30.6), the probability for denitrification under the aerated state increased compared to the non-aerated state, which finally led to the elevation of purification performance on total N (TN). Nevertheless, if too much DO was presented under the aerated state, denitrification would further be restrained, which would conversely lead to the reduction of removal efficiency on TN. Therefore, for complete-drain vertical-flow systems, it is not the truth that the higher aeration intensity is, the better efficacy will be obtained. To obtain higher stable purification efficiency, a good suggestion is decreasing HLR or extending HRT or supplementing horizontal flows to vertical-flow systems to ensure complete denitrification. That strategy will be especially beneficial for TN removal.

Key words: aquaculture; nitrogen removal; wastewater; constructed wetland; artificial aeration; purification efficiency; influencing factors; nitrification-denitrification