

固体碳源生物膜处理地下水硝酸盐污染的脱氮性能研究^{*}

张立秋^{1,2} 雷志娟^{1,2} 李淑更^{2,3#} 黄凤丹^{1,2} 邵兵^{1,2} 朱晓辉^{1,2}

(1.广州大学土木工程学院,广东 广州 510006;

2.珠江三角洲水质安全与保护教育部重点实验室,广东 广州 510006;

3.广州大学环境科学与工程学院,广东 广州 510006)

摘要 采用聚己内酯(PCL)为固体碳源和生物膜载体,研究填充率和水力停留时间(HRT)对生物膜反应器脱氮的影响。结果表明:(1)40%(体积分数)的填充率较合适,4 h为最佳HRT。此时反应器硝酸盐氮去除率为88%,出水硝酸盐氮质量浓度平均值为8.80 mg/L。(2)丛毛单胞菌属(*Comamonas*)、热单胞菌属(*Thermomonas*)、固氮螺菌属(*Azospira*)和长绳菌属(*Longilinea*)为反应器的主要菌属,且填充率40%的反应器以上菌属相对丰度总和最高(70%)。

关键词 地下水 可生物降解聚合物 固体碳源 填充率 高通量测序

DOI:10.15985/j.cnki.1001-3865.2020.08.001

Nitrogen removal performance of solid carbon source biofilm reactor for treatment of nitrate-contaminated groundwater ZHANG Liqiu^{1,2}, LEI Zhijuan^{1,2}, LI Shugeng^{2,3}, HUANG Fengdan^{1,2}, SHAO Bing^{1,2}, ZHU Xiaohui^{1,2}. (1. School of Civil Engineering, Guangzhou University, Guangzhou Guangdong 510006; 2. Key Laboratory for Water Quality and Conservation of the Pearl River Delta, Ministry of Education, Guangzhou Guangdong 510006; 3. School of Environmental Science and Engineering, Guangzhou University, Guangzhou Guangdong 510006)

Abstract: Using polycaprolactone (PCL) as a solid carbon source and biofilm carrier, the effect of filling rate and hydraulic retention time (HRT) on nitrogen removal in biofilm reactors was studied. The results showed that: (1) 40% filling rate was more appropriate, and 4 h was the best HRT. At this time, the average removal rate of nitrate nitrogen in the reactor was 88%, and the average mass concentration of nitrate nitrogen in the effluent was 8.80 mg/L. (2) *Comamonas*, *Thermomonas*, *Azospira* and *Longilinea* were the main bacterial genera of the reactor, and when the filling rate was 40%, the total relative abundance of the reactor was the highest (70%).

Keywords: groundwater; BDPs; solid carbon source; filling rate; high-throughput sequencing

面对淡水资源短缺现状,优质地下水成为重要饮水水源之一。但工业“三废”乱排,农业生产过量施肥及生活污水、实验室废水、医院污水等排放导致地下水硝酸盐污染^[1-2]。近30年来,污染问题并未得到有效解决,对人体健康存在严重危害,还存在水环境富营养化等威胁。据《2018年中国生态环境状况公报》显示,2018年全国10 168个地下水监测点中,水质为较差和极差级监测点占86.2%,其中超标指标包括“三氮”,表明我国大面积的地下水硝酸盐污染成为亟待解决的问题^[3]。

目前,常见的水体硝酸盐去除技术是物理化学和生物处理技术,由于生物处理技术高效低耗,生物反硝化脱氮使用更广泛^[4]。生物反硝化的重要影响

因素是有机碳源,往往地下水中有有机碳含量都较低,过程中需要投加有机碳为反硝化提供能量。目前,有机碳源包括液体和固体碳源。常用的液体碳源如甲醇、乙醇等在运行中存在投加量控制难、成本高、运行复杂等问题。作用于固相反硝化中的固体碳源可克服液体碳源造成的风险并提供碳源和生物膜载体^[5]。目前,固体碳源可分为天然材料和人工合成的可生物降解聚合物(BDPs)。天然材料取材便捷、成本较低但成分复杂,且释碳持续时间短。而BDPs供碳能力强,浸出物不影响出水水质^[6]。因此,在生物反硝化脱氮过程中BDPs类固体碳源研究更值得关注。研究表明,聚己内酯(PCL)、聚-β-羟丁酸、聚丁二酸丁二醇酯、聚羟基戊酸酯和聚乳酸等应用于

第一作者:张立秋,男,1978年生,博士,教授,研究方向为污水处理技术。* 通讯作者。

* 国家自然科学基金资助项目(No.51478127、No.51708140);广州市科技计划项目(No.201510010051);广州大学研究生创新研究资助计划项目(No.2018GDJC-M45)。

固相反硝化处理硝酸盐污水都具有良好的脱氮效能^[7-9]。由于处理水质的情况不一,碳源种类和系统工艺选择是一直以来研究的方向,而系统运行条件决定着工艺能否发挥最佳处理效果。罗国芝等^[10]⁵⁷⁸利用 PCL 作为碳源处理水产养殖水,固定床生物反应器在水力停留时间(HRT)为 6 h 时,硝酸盐氮的处理效果最好。LI 等^[11]研究三级脱氮技术处理污水处理厂二级出水,结果表明,以 PCL 为滤料的生物滤池具有良好的脱氮效能且在低温下仍有一定反硝化能力。材料填充过少导致水中微生物可利用有机物量偏少从而引起不完全反硝化,脱氮性能差,同时增加温室气体排放量;反之则浪费资源,也会导致出水中有机物浓度过高而造成二次污染。目前,相关研究局限于使用外加碳源生物膜反应器载体填料的选择^[12-14],探究 PCL 填充率并结合 HRT 因素提高脱氮性能方面鲜有报道。

本研究采用 PCL 为碳源和生物膜载体,研究填充率和 HRT 对生物膜反应器脱氮的影响,通过分析反应器的脱氮性能及微生物群落结构等,优化反应器运行性能,为建立长久高效的硝酸盐污染地下水生物修复技术提供理论依据。

1 材料与方法

1.1 实验材料

PCL 外购,是直径 2~3 mm 的白色椭圆形颗粒,平均分子量约 80 000,表面光滑,但具有良好的生物降解性,经微生物降解后表面会变粗糙。

实验进水由硝酸钾、磷酸二氢钾配制,保持氮磷质量比为 20:1,模拟硝酸盐污染地下水;添加氯化钙和无水硫酸镁供微生物生长。

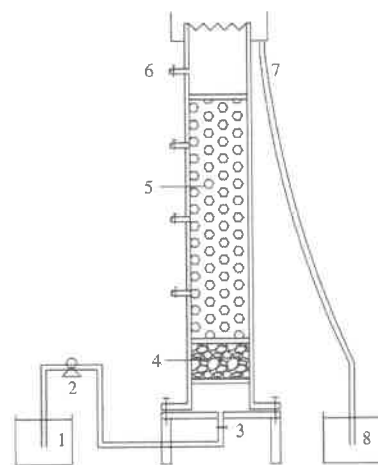
实验接种污泥取自广州市某污水处理厂二沉池。

1.2 实验装置

采用有机玻璃组成上流式生物膜反应器,由蠕动泵控制进水,装置示意图见图 1。柱内直径 7 cm,柱高 50 cm。

1.3 实验方法

将填料与砂砾洗净填于 3 个完全相同的反应器中使得其填充率(体积分数)分别为 20%、40%、60%,编号为反应器 1~3,采用快速挂膜法进行挂膜启动,将进水与接种污泥按照体积比 1:1 混合均匀,加入反应器搅拌,使接种污泥与填料充分接触,静置 24 h 后,保持 2.5 mL/min 流速开始连续进水,进行反硝化微生物驯化,每天测定出水的硝酸盐氮、亚硝酸盐氮、氨氮、COD 浓度。当连续 3 d 出水的硝



1—进水箱;2—蠕动泵;3—进水口;4—砂砾;5—填料;
6—取样口;7—出水口;8—出水桶

图 1 实验装置示意图

Fig.1 Experimental equipment

酸盐氮质量浓度相对误差在 5% 内,认为反应器稳定运行,驯化结束。然后以 3.5 mL/min 流速继续运行。实验进程分 3 个阶段,依次保持进水硝酸盐氮分别约为 80、160、120 mg/L,各运行一段时间观察脱氮效果。计算 PCL 的损耗率。实验最后一天分别取 3 个反应器中附着在 PCL 上的生物膜进行高通量测序,对应编号为 C1~C3。

以最优填充率填充 5 个反应器,保持 HRT 分别为 22、16、10、4、2 h 挂膜,编号为反应器 A、B、C、D、E。

1.4 化学分析

水样经过 0.45 μm 定性滤纸过滤,硝酸盐氮、亚硝酸盐氮、氨氮按照文献^[15]进行检测,总有机碳(TOC)使用岛津 TOC-L 系列 TOC 分析仪测定。

1.5 扫描电镜观察

反应运行结束后,取表面生物膜成熟的 PCL 颗粒,经自来水冲洗后,使用超声波清洗仪(SB-5200DTD)清洗颗粒,晾干后使用扫描电镜(日本电子 JSM-7001F)进行扫描。

1.6 微生物多样性分析

1.6.1 DNA 提取与检测

实验采用 PowerSoil DNA Isolation Kit 试剂盒(MoBio 公司,美国)提取生物膜中的 DNA,并严格按照试剂盒说明进行操作。

1.6.2 聚合酶链式反应(PCR)扩增

利用 Qubit3.0 DNA 检测试剂盒对基因组 DNA 精确定量,以确定 PCR 应加入的 DNA 量。PCR 所用的引物已融合了 Miseq 测序平台 V3~V4 通用引物(341F 引物和 805R 引物)。采用梯度

PCR 方法,得出不同退火温度下扩增的结果,选取最佳条件进行扩增。

1.6.3 生物群落结构分析说明

采用 16S rRNA 分类法对 97% 相似水平的操作分类单元(OTU)代表序列开展分类学分析,进行物种注释,并统计群落组成。

2 结果与分析

2.1 填充率对系统脱氮的影响

由图 2 和图 3 可见,随着填充率的增加,出水硝酸盐氮浓度降低,总阶段去除率增加。第 1 阶段时,反应器 1、2 在前 4 天波动较大,之后 3 个反应器硝酸盐氮去除率为 97%,差别不大。第 2 阶段时,反应器 1 脱氮效果逐渐变差,出水硝酸盐氮浓度最高达 59.48 mg/L,分析原因认为,进水氮负荷提高后系统通过微生物分解的有机物不足以完成完全反硝化,造成出水中硝酸盐氮含量不断增加;反应器 2 前期出水硝酸盐氮浓度有轻微波动,这是因为系统中生物量一定,进水氮负荷增加后,微生物的增长速度

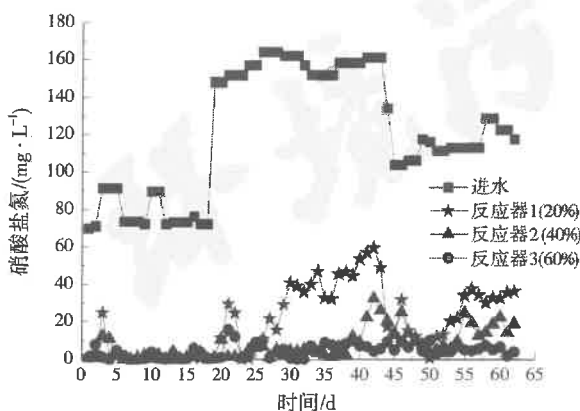


图 2 填充率对硝酸盐氮质量浓度的影响

Fig.2 Effect of filling rate on mass concentration of nitrate nitrogen

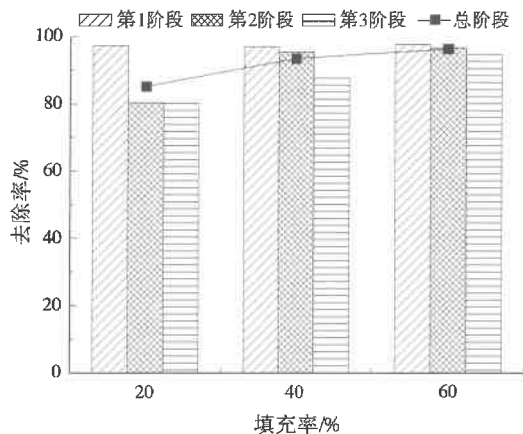


图 3 填充率对硝酸盐氮去除率的影响

Fig.3 Effect of filling rate on nitrate nitrogen removal rate

未能赶上增加的硝酸盐氮含量^[16]。第 3 阶段时,反应器 1、2 的脱氮效果先变好后变差,反应器 1 的出水硝酸盐氮降低至小于 1 mg/L 后立马反弹,逐渐上升至 33 mg/L 左右;反应器 2 在出水硝酸盐氮降低至小于 1 mg/L 后保持低质量浓度 5 d 后才上升,且保持在 14 mg/L 左右,可知反应器 2 脱氮效果恢复更快。反应器 2、3 硝酸盐氮总阶段去除率分别为 94% 和 96%。在填充率增加 20 个百分点的情况下,硝酸盐氮总阶段去除率仅增加 2 个百分点,造成资源浪费。

反应器 1 的填充率最少,可降解碳总量不足,生物膜载体面积减少,生物量不足,系统不稳定,材料降解利用效果也会变差,且填充高度 10 cm,氮污染物和释放的碳源未与微生物充分接触反应即被排出^[17]。反应器 3 填充率最大,释碳量大。在高碳氮比环境下,碳源可供其他微生物使用,如参与硝酸盐异化还原成铵(DNRA)过程的 DNRA 菌会与反硝化菌形成竞争关系产生氨氮而降低总氮去除率^[18-19]。因此,40% 的填充率较合适。

由图 4 可见,3 个反应器的 TOC 均随时间延长而呈逐渐波动下降趋势。第 1 阶段时,TOC 突然增加至 70 mg/L 左右,表明参与 PCL 生物降解的微生物适应环境进行大量生长。当出水 TOC 浓度处于稳定状态时,说明微生物降解碳与微生物反硝化耗碳处于动态平衡^[20]。第 2 阶段时,反应器 2、3 释碳量均有明显提高,TOC 增加量接近 25 mg/L,反应器 1 不断下降并稳定在 10 mg/L 左右。因为高分子聚合物的降解和反硝化脱氮是两个相互独立的过程,系统中氮负荷的改变,打破之前有机物产生和利用的平衡^[21-22]。第 3 阶段时,反应器 1、2、3 的 TOC 分别稳定在 10、20、30 mg/L 左右,说明反应器 3 释碳持续能力较好,但 TOC 浓度偏高。

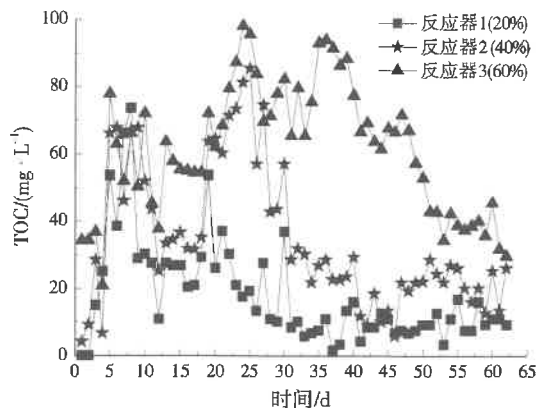


图 4 填充率对 TOC 的影响

Fig.4 Effect of filling rate on TOC

2.2 HRT 对系统脱氮的影响

由图 5、图 6 可见, HRT 对系统脱氮有明显的影响。当 HRT 为 22、16、10 h 时, 出水硝酸盐氮普遍低于 1 mg/L, 去除率都高于 95%。降低 HRT 到 4 h, 系统运行 68 d 后出水硝酸盐氮浓度明显上升, 去除率降为 88%, 出水硝酸盐氮质量浓度平均值为 8.80 mg/L。当 HRT 为 2 h 时, 系统保持良好脱氮效果 30 d, 出水硝酸盐氮逐渐上升到 40 mg/L 左右并保持 20 d, 之后完全失去脱氮能力, 去除率仅有 58%。由表 1 可知, 缩短 HRT 提升反应器容积负荷, 其容积去除负荷也不断增加。当 HRT 为 22、16、10、4 h 时, HRT 同样减少 6 h, 容积负荷增加量

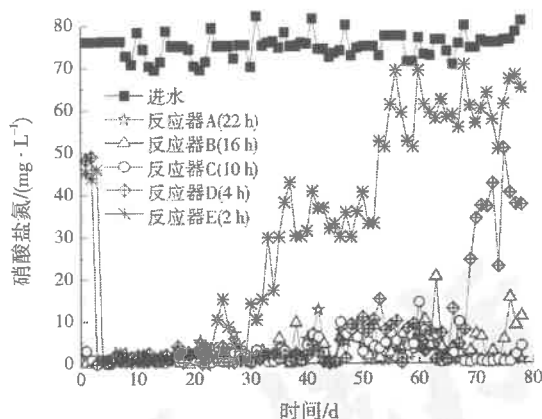


图 5 HRT 对硝酸盐氮质量浓度的影响
Fig.5 Effect of HRT on mass concentration of nitrate nitrogen

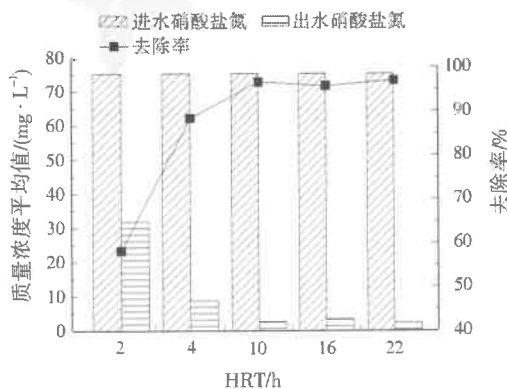


图 6 HRT 对硝酸盐氮去除率的影响
Fig.6 Effect of HRT on nitrate nitrogen removal rate

表 1 HRT 对硝酸盐氮容积负荷的影响
Table 1 Effect of HRT on nitrate nitrogen volumetric loading

HRT/h	容积负荷 /($\text{g} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$)	容积去除负荷 /($\text{g} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$)	容积负荷增加量 /($\text{g} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$)	容积去除负荷增加量 /($\text{g} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$)	容积负荷增加量 去除率 ¹⁾ /%
22	82.06	79.59			
16	112.84	107.93	30.78	28.34	92
10	180.54	174.49	67.70	66.56	98
4	451.35	398.31	270.81	223.82	83
2	902.70	520.27	451.35	121.96	27

注: ¹⁾ 容积负荷增加量去除率为容积去除负荷增加量与容积负荷增加量的比。

去除率都能达到 80%; 当 HRT 为 2 h 时, HRT 减少了 2 h, 容积负荷增加量去除率仅 27%, 说明在该条件下反应器脱氮效能提升力在 HRT 为 2~4 h 时快速降低。

HRT 过长, 系统进行完全反硝化, 脱氮效能提升却不大; HRT 过短, 进水与反应器填料接触时间也逐渐减少, 水中硝酸盐还未与微生物充分反应便流出, 且水流速度增大, 使得生物膜更易脱落, 生物量变少从而降低脱氮效能^[23]。故 HRT 为 4~10 h 都是较合理的选择。

如图 7 所示, 随着时间延长, 出水 TOC 总体先增加后降低。反应器 A、B、C 的出水 TOC 平均值都较高, 分别为 37.12、32.61、40.03 mg/L。这是由于初始填料堆积状态不同, 反应器孔隙率变化, 导致挂膜效果不同, 反应器 C 挂膜均匀, 微生物与填料接触面积增加, 有利于分解更多有机物释碳。反应器 D、F 中, 出水 TOC 平均值分别为 20.51、12.75 mg/L。HRT 减少, 进水氮负荷相应增大, 反硝化过程所需碳源量也增大, 出水 TOC 降低。考虑系统运行长久性与可行性, 4 h 为最佳 HRT。

2.3 PCL 的表面结构观察及损耗率

由图 8(a)可观察到, 使用前 PCL 颗粒的表面光滑, 呈半椭圆状; 由图 8(b)可观察到, 使用后 PCL 颗粒的表面变得十分粗糙, 呈大小不同的坑洞; 由图 8(c)可观察到, 使用后 PCL 颗粒呈鳞状且表面有丝状菌、杆菌附着。说明 PCL 在反应过程中既是生物膜的载体也是生物脱氮的碳源。

经称量和计算, 填充率 20%、40%、60% 的 PCL 损耗率分别为 9%、12%、2%。由此可知, 填充率为 40% 时反应器的利用率较高。

2.4 微生物群落分布特征

如图 9 所示, 3 个样品生物膜的菌群相对丰度前四的菌门依次是变形菌门(Proteobacteria)、拟杆菌门(Bacteroidetes)、绿弯菌门(Chloroflexi)和厚壁菌门(Firmicutes)。其中, 变形菌门和拟杆菌门被广

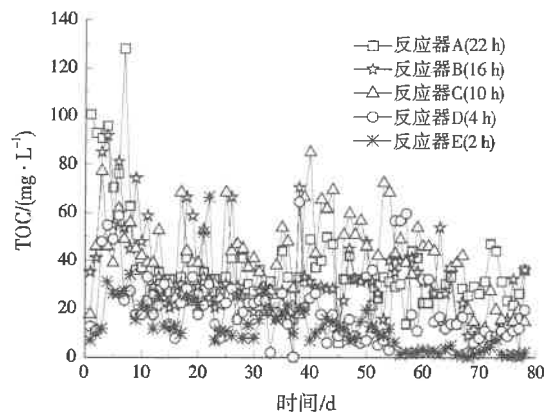


图7 HRT对TOC的影响
Fig.7 Effect of HRT on TOC

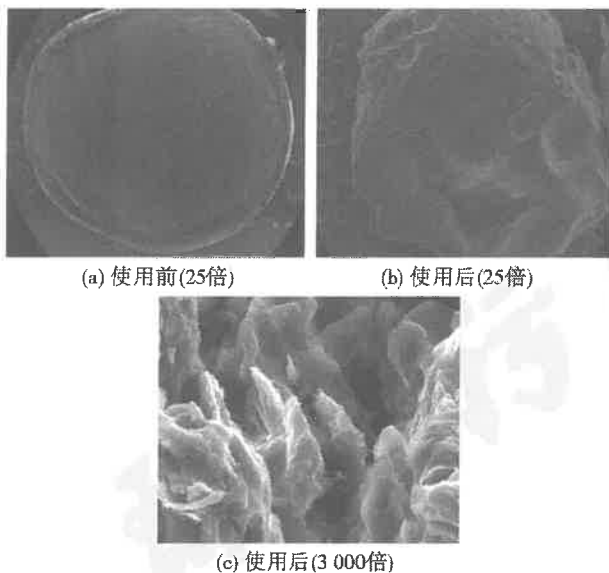


图8 PCL颗粒表面扫描电镜图

Fig.8 SEM images of PCL granule surface

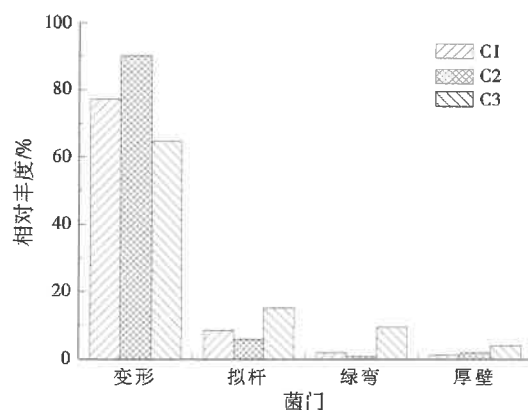


图9 生物膜样品中相对丰度为前四的菌门

Fig.9 Microflora with relative abundance ranked top four in biofilm samples

泛认为是反硝化细菌的主要菌门^[24-25],以有机物为营养来源,通过分解碳源方式完成反硝化作用,是脱氮系统中微生物的重要组成部分^[26-27]。C1、C2、C3中以上两菌门相对丰度总和分别达到86%、96%、

80%,C2中反硝化菌门的相对丰度最高且为系统最主要菌门。

如图10所示,主要菌属为丛毛单胞菌属(*Comamonas*)、热单胞菌属(*Thermomonas*)、固氮螺菌属(*Azospira*)和长绳菌属(*Longilinea*),C1中相对丰度分别为46%、5%、1%、1%,C2中则分别为56%、11%、2%、1%,C3中则分别为32%、1%、1%、8%。丛毛单胞菌属为系统优势菌属,C2中相对丰度明显高于C1、C3。丛毛单胞、热单胞、固氮螺菌属均属于变形菌门,在系统中都发挥着反硝化功能。其中,丛毛单胞和固氮螺菌属既能进行反硝化作用,又能降解高分子聚合物^{[10]578}。以上两菌属在各样本的相对丰度均为C2>C1>C3。微生物群落结构随系统运行环境改变^[28]。因此,反应器2环境最适宜反硝化功能菌大量生长,主要菌属相对丰度总和最高(70%)。长绳菌属的功能是代谢多种大分子碳水化合物,分解结构顽固化合物^[29]。吉芳英等^[30]表示,厌氧微生物的存在可能对系统中溶解性的多聚体进行发酵,使大分子有机物转化为小分子乙酸,更易被反硝化细菌利用。

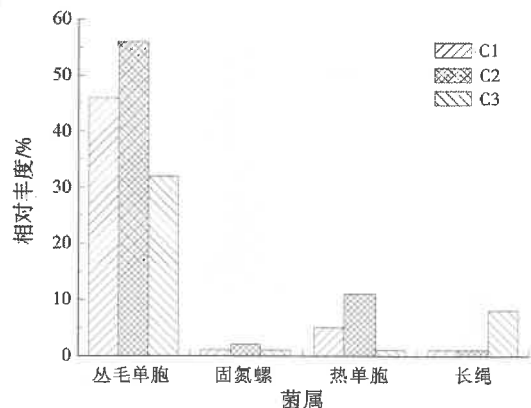


图10 生物膜样品中相对丰度≥1%的菌属

Fig.10 Species with relative abundance ≥1% in biofilm samples

3 结论

(1) 40%的填充率较合适,4 h为最佳HRT。此时反应器硝酸盐氮去除率为88%,出水硝酸盐氮质量浓度平均值为8.80 mg/L。

(2) 丛毛单胞菌属、热单胞菌属、固氮螺菌属和长绳菌属为反应器的主要菌属,且反应器2相对丰度总和最高(70%)。

参考文献:

- [1] 贾卓,杨国华,张赫轩,等.挠力河流域地下水氮污染特征分析[J].环境污染与防治,2018,40(4):418-422,434.

- [2] 王琪,王佳旭.我国地下水污染现状与防治对策研究[J].环境与发展,2017,29(3):106-107.
- [3] 生态环境部.2017年中国生态环境状况公报[R].北京:生态环境部,2018.
- [4] SIERRA ALVAREZ R, BERISTAIN CARDOSO R, SALAZAR M, et al. Chemolithotrophic denitrification with elemental sulfur for groundwater treatment[J]. Water Research, 2007, 41(6): 1253-1262.
- [5] 王静静,任莉,郎建峰.反硝化脱氮固体碳源材料研究进展[J].中国环境管理干部学院学报,2012,22(6):41-43.
- [6] 罗国芝,徐桂梅,刘倩,等.聚丁二酸丁二醇酯的释碳性研究[J].环境污染与防治,2014,36(1):5-8.
- [7] 王春喜,余关龙,张登祥,等.固定化反硝化菌联合固体碳源小球处理低碳氮比污水的性能研究[J].环境污染与防治,2018,40(8):870-874.
- [8] 刘佳,沈志强,周岳溪,等.聚丁二酸丁二醇酯(PBS)为反硝化固体碳源的脱氮特性研究[J].环境科学,2014,35(7):2639-2644.
- [9] WU W, YANG J, WANG J. Denitrification performance and microbial diversity in a packed-bed bioreactor using PCL as carbon source and biofilm carrier[J]. Applied Microbiology Biotechnology, 2013, 97(6): 2725-2733.
- [10] 罗国芝,侯志伟,高锦芳,等.不同水力停留时间条件下PCL为碳源去除水产养殖水体硝酸盐的效率及微生物群落分析[J].环境工程学报,2018,12(2).
- [11] LI P, ZUO J, WANG Y, et al. Tertiary nitrogen removal for municipal wastewater using a solid-phase denitrifying biofilter with polycaprolactone as the carbon source and filtration medium[J]. Water Research, 2016, 93(15): 74-83.
- [12] 张新波,宋姿,祁丽,等.聚氨酯海绵载体填充率对MBBR脱氮的影响[J].中国给水排水,2017,33(15):78-81.
- [13] 龚灵潇.缺氧/好氧生物膜工艺处理低碳氮比生活污水的脱氮特性[D].北京:北京工业大学,2013.
- [14] WANG J L, CHU L B. Biological nitrate removal from water and wastewater by solid-phase denitrification process[J]. Biotechnology Advances, 2016, 34(6): 1103-1112.
- [15] 国家环境保护总局《水和废水监测分析方法》编委会.水和废水监测分析方法[M].4版.北京:中国环境科学出版社,2002.
- [16] 何培芬,张立秋,李淑更,等.丝瓜络碳源模拟PRB去除地下水中硝酸盐[J].环境工程,2018,36(10):53-58.
- [17] 操家顺,姚博宇,薛朝霞,等.反硝化滤池应用新型陶粒滤料的水处理效果及反冲洗性能分析[J].应用化工,2018,47(11):25-29.
- [18] 韦宗敏.微好氧环境中硝酸盐异化还原成铵的影响研究[D].广州:华南理工大学,2012.
- [19] KRAFT B, TEGETMEYER H E, SHARMA R, et al. The environmental controls that govern the end product of bacterial nitrate respiration[J]. Science, 2014, 345(6197): 676-679.
- [20] 梁捷,缪恒峰,任洪艳,等.以聚己内酯作为生物反硝化固体碳源的研究[J].环境工程学报,2015,9(2):633-638.
- [21] 吉芳英,张千,徐璇,等.2种BDPs固相反硝化的脱氮效果对比[J].环境科学研究,2014,27(9):1080-1086.
- [22] 吴安琪.固体碳源反硝化生物膜反应器的脱氮性能研究[D].重庆:重庆大学,2017.
- [23] 唐婧.水力停留时间对天然纤维素类固体碳源反硝化滤池处理效果的影响[J].环境污染与防治,2019,41(3):307-311.
- [24] KONDAVEETI S, LEE S H, PARK H D, et al. Bacterial communities in a bioelectrochemical denitrification system: the effects of supplemental electron acceptors[J]. Water Research, 2014, 51: 25-36.
- [25] LU H, CHANDRAN K, STENSEL D. Microbial ecology of denitrification in biological wastewater treatment[J]. Water Research, 2014, 64(1): 237-254.
- [26] 赵文莉,郝瑞霞,王润众,等.复合碳源填料反硝化脱氮及微生物群落特性[J].中国环境科学,2015,35(10):3003-3009.
- [27] SONG H L, YANG X L, XIA M Q, et al. Co-metabolic degradation of steroid estrogens by heterotrophic bacteria and nitrifying bacteria in MBRs[J]. Journal of Environmental Science and Health, 2017, 52(12): 778-784.
- [28] ZHU S M, DENG Y L, RUAN Y J, et al. Biological denitrification using poly(butylene succinate) as carbon source and biofilm carrier for recirculating aquaculture system effluent treatment[J]. Bioresource Technology, 2015, 192(9): 603-610.
- [29] 李慧星,杜风光,薛刚.高通量测序研究酒精废水治理中厌氧活性污泥的微生物菌群[J].环境科学学报,2016,36(11):4112-4119.
- [30] 吉芳英,白婷婷,张千,等.固体碳源反硝化滤池脱氮效果及沿程生化特性[J].环境工程学报,2017,11(3):1347-1354.

编辑:黄 苇 (收稿日期:2019-10-08)