

生物脱氮工艺过程中 N_2O 的释放机理及 减排影响因素研究进展*

何德明 尹志轩[#] 刘长青 王迪迪 孔令营
(青岛理工大学环境与市政工程学院, 山东 青岛 266033)

摘要 污水生物脱氮工艺过程中除了 N_2 的产生,还会释放大量的温室气体 N_2O ,是大气中 N_2O 的主要人为排放源。减少污水生物脱氮工艺过程中 N_2O 的产生已经成为污水处理行业面临的新挑战,近年已迅速成为国内外的研究热点。综述了 N_2O 在传统以及新型污水生物脱氮工艺过程中的释放机理及释放途径,统计了国内外文献中不同类型生物脱氮工艺过程中 N_2O 的释放因子,经对比发现新型脱氮工艺如同步硝化/反硝化、短程硝化/反硝化和短程硝化/厌氧氨氧化工艺过程的 N_2O 释放因子均高于传统两段式硝化/反硝化工艺;结合 N_2O 释放机理讨论了不同生物脱氮工艺中 N_2O 减排的主要影响因素,并进一步展望了未来污水生物处理中 N_2O 减排研究方向。

关键词 N_2O 生物脱氮 释放因子 减排影响因素

DOI:10.15985/j.cnki.1001-3865.2021.08.022

Research progress of N_2O emission mechanism and emission reduction influencing factors in biological nitrogen removal process HE Deming, YIN Zhixuan, LIU Changqing, WANG Didi, KONG Lingying. (School of Environmental and Municipal Engineering, Qingdao University of Technology, Qingdao Shandong 266033)

Abstract: Besides N_2 , large amount of N_2O , a kind of strong greenhouse gas, can be also generated in the biological nitrogen removal process for wastewater treatment, which is the main anthropogenic discharge source of N_2O in the atmosphere. Reducing the generation of N_2O during biological nitrogen removal process has become a new challenge for the wastewater treatment industry, which has rapidly become an international research hotspot in recent years. In this paper, the emission mechanisms and emission pathways of N_2O in conventional and novel biological nitrogen removal processes were summarized, and the emission factor of N_2O for different biological nitrogen removal processes were compared. The result showed that the emission factors of novel biological nitrogen removal processes such as simultaneous nitrification-denitrification (SND), partial nitrification-denitrification (PND) and partial nitrification-anammox (PNA) were much higher than that of conventional two stage nitrification-denitrification process. Considering the N_2O emission mechanism, the N_2O emission reduction influencing factors for different biological nitrogen removal processes were further discussed. Moreover, the future research directions of N_2O emission reduction in wastewater biological treatment were prospected.

Keywords: N_2O ; biological nitrogen removal; emission factor; influencing factors for emission reduction

全球气候变化是当今世界面临的重大环境问题之一。作为一种强温室气体, N_2O 的增温潜势是 CO_2 的265倍,生命周期长达121年,对全球气候变暖有持续性作用^[1]。在光的催化作用下, N_2O 还可以进一步转化为造成臭氧层破坏的 NO ^[2],对生态环境造成不利影响。

污水处理厂脱氮处理过程中可产生大量 N_2O , N_2O 的排放量可占污水处理厂碳足迹总排放量的 $3/4$ ^[3],与因能耗造成的间接碳排放相当^[4]²⁹,已被证实是大气中 N_2O 的主要人为排放源^[5]。近年来,随

着污水处理规模的增大和污水氮排放标准的提高,污水处理过程中 N_2O 排放量也有增加趋势^[6]。据报道,2020年污水处理厂全年 N_2O 排放量为1449万t^[7]。氮污染物由水环境转移到了大气环境,这与污水处理行业低碳可持续发展的理念相悖,污水处理过程中 N_2O 的排放问题已经引起了国内外研究者的广泛关注。

近年来随着新型脱氮工艺如同步硝化/反硝化(SND)、短程硝化/反硝化(PND)和短程硝化/厌氧氨氧化(PNA)的深入研究和应用,弥补了传统脱氮工艺高处理成本和低脱氮效率的缺陷^[4]²⁹,^[8]¹⁰⁸,特别

第一作者:何德明,男,1996年生,硕士研究生,主要从事生物脱氮过程中副产物释放及减量化研究。[#] 通讯作者。

* 国家重点研发计划项目(No.2017YFC0403404);青岛理工大学环境科学与工程一流学科开放课题(No.QUTSEME201929)。

是在高氨氮或低 C/N 废水处理方面具有十分显著的优势。目前新型脱氮工艺的N₂O释放问题已经逐渐得到了研究者的关注^{[9],[10]2734},但仍缺乏各类新型脱氮工艺与传统两段式硝化/反硝化脱氮工艺过程中N₂O释放量的对比研究。因此,本研究综述了生物脱氮工艺过程中N₂O的产生机理,对比了传统两段式硝化/反硝化工艺和新型脱氮工艺的N₂O释放因子,讨论了各生物脱氮工艺过程的N₂O减排影响因素,并进一步展望了温室气体N₂O在未来污水处理领域的减排研究发展方向。

1 生物脱氮过程中N₂O产生机理

在传统的生物脱氮工艺过程中,导致N₂O产生的主要微生物是氨氧化菌(AOB)^[11-12]和反硝化菌^[13]。已有研究报道发现,N₂O的排放与AOB中亚硝酸盐还原酶(nirK)和一氧化氮还原酶(norB)的基因表达密切相关^{[10]2738},尤其是当AOB缺少氧化亚氮还原酶(N₂OR)时,AOB反硝化途径(见图1)对N₂O产生的贡献尤为显著。例如,缺乏N₂OR的亚硝酸菌属(*Nitrosomonas*)^[14-17]可以通过AOB反硝化产生N₂O^[18],从而在硝化过程中主导N₂O的释放。此外,硝化过程中AOB将NH₄⁺氧化为NO₂⁻时产生的中间体NH₂OH不完全氧化^[19],以及NH₂OH氧化过程中NOH的非生物分解作用和生成的NO的还原作用也会导致N₂O释放^[20-21]。其中,非生物作用导致的N₂O产生量极小(占比<1%),在各研究中通常被忽略^[22]。而近年TERADA等^{[23]2748}通过同位素技术在短程硝化生物反应器中发现,生物与非生物耦合过程(即NH₂OH与NO₂⁻的相互反应)也可以导致N₂O的大量释放^[24-25]。这一发现打破了AOB反硝化和NH₂OH的不完全氧化途径主导硝化过程中产生N₂O的传统观点,因此多途径产生N₂O的机理仍需深入研究和验证。而反硝化过程除了可以产生中间产物N₂O外,也通常被认为是N₂O消耗步骤^{[8]108}。但溶解氧过高或电子供体不足等环境条件容易导致N₂OR活性降低,从而减少反硝化过程对N₂O的消耗,造成反硝化中间产物N₂O的积累和释放^{[26],[27]3077}。OTTE等^[28]发现反硝化过程中溶解氧浓度的升高会抑制N₂OR活性,从而导致副球菌属(*Paracoccus*)等反硝化菌属持续产生N₂O^[29-30]。此外,反硝化碳源类型也会通过影响反硝化功能微生物的群落结构或N₂OR活性,进而影响N₂O的释放^{[27]3076}。SONG

等^{[31]2382}研究发现,当采用乙酸作为反硝化碳源时,潜在的N₂O还原菌脱氯单胞菌属(*Dechloromonas*)和红长命菌属(*Rubrivivax*)丰度明显提高,N₂O还原速率明显提高,N₂O的释放量显著降低;而以甲醇作为碳源时,不具备N₂O还原能力的嗜甲基菌属(*Methylobacter*)是主要的菌属,从而导致了N₂O的大量释放。

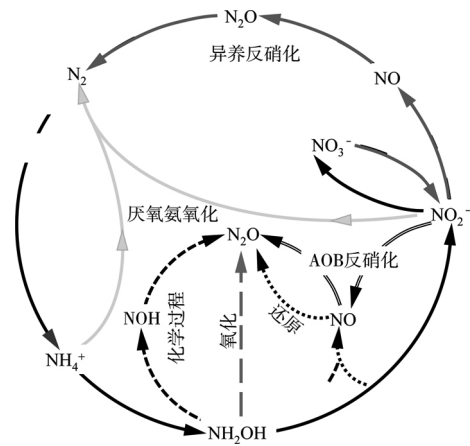


图1 生物脱氮过程N₂O产生途径
Fig.1 N₂O production pathway in biological nitrogen removal process

近年来随着分子生物学在污水处理领域的广泛应用,研究者们发现了多种能够产生N₂O的非传统脱氮功能微生物,如氨氧化古菌(AOA)、自养反硝化菌、异养硝化菌和好氧反硝化菌等。利用同位素等现代分析技术,可以探究这些微生物产生N₂O的途径及其贡献率。JUNG等^[32]通过同位素技术证明了与奇古菌门(Thaumarchaeota)相关的部分土壤AOA菌株可以通过硝化菌反硝化产生N₂O;然而STIEGLMEIER等^[33]通过同位素技术研究AOA的代谢途径时却发现,*Nitrosopumilus maritimus*和*Nitrososphaera viennensis*(两种AOA)均不能通过AOA主导的硝化菌反硝化途径产生N₂O。因此AOA是否通过硝化菌的反硝化途径产生N₂O还有待进一步确认。而自养反硝化菌主导的N₂O释放量受电子供体数量、电子受体类型(NO₂⁻或NO₃⁻)以及反应条件(如pH、温度)的影响^[34-36]。例如常见的自养反硝化菌硫杆菌属(*Thiobacillus*)^[37]在电子供体过量时可以减少N₂O的释放;与NO₃⁻相比,以NO₂⁻为电子受体时N₂O的释放量更高^[37]。虽然自养反硝化菌在N₂O释放影响因素方面与异养反硝化菌有相似之处,但其产生N₂O的微生物学机理仍需进一步研究。异养硝化菌和好氧反硝化菌对N₂O排放贡献随着SND工艺的应用而逐渐被关注。LI等^[38]认为

好氧反硝化是 SND 过程中 N_2O 产生的主要来源。CHAI 等^{[39]55} 在 SND 工艺中发现好氧反硝化和异养硝化途径在强化氮去除效果的同时增加了 N_2O 的释放。但 YANG 等^[40-41] 在研究中分离了能同时进行异养硝化和好氧反硝化的菌株 *Pseudomonas putida* YH, 发现其对不同氨氮负荷、pH、温度和 C/N 具有较强的适应能力, 而且其在表现出良好脱氮效果的同时产生的 N_2O 可以说微不足道。但鉴于实际污水水质以及污水处理系统中微生物种群的复杂性, 不同类型生物脱氮工艺中各种生物或非生物途径释放 N_2O 的机理并不相同, 需要结合分子生物学、同位素技术等手段针对特定脱氮工艺深入研究。

目前新型生物脱氮工艺 SND、PND 和 PNA 均含有硝化或短程硝化过程, 因此各工艺在硝化阶段 N_2O 的释放途径与传统两段式硝化/反硝化工艺类似^{[4]29, [42-44], [45]5052, [46]6465-6469, [47]822-824, [48]128, [49]7083-7084}。而尚无研究表明 N_2O 的释放与厌氧氨氧化菌的生理代谢有关, 因此 PNA 工艺的 N_2O 主要是在短程硝化过程相关的途径中产生。

2 不同类型生物脱氮工艺 N_2O 释放因子

基于国内外研究报道, 图 2 汇总统计并展示了不同类型生物脱氮工艺过程中 N_2O 的释放因子。从图 2 可以看出, 传统两段式硝化/反硝化工艺 N_2O 释放因子基本在 0.03%~2.70% 波动。除厌氧氨氧化和一段式 PNA 工艺以外, 其他工艺过程的 N_2O 释放因子均高于传统两段式硝化/反硝化工艺。其中, 当硝化和反硝化同步进行时, N_2O 释放因子普遍较高, 平均释放因子为 7.0%, 约为传统两段式硝化/反硝

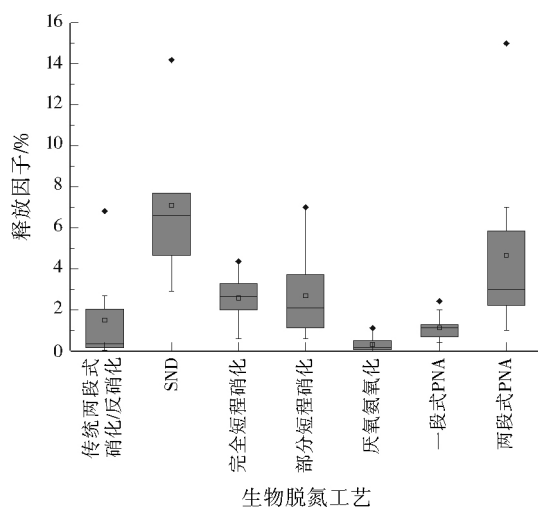


图 2 不同类型生物脱氮工艺过程的 N_2O 释放因子
Fig.2 N_2O emission factors for different types of biological nitrogen removal processes

化工艺的 5 倍。ZHANG 等^{[50]551} 在好氧序批式活性污泥反应器 (SBR) 中发现 SND 工艺的 N_2O 释放因子可高达 14.2%。SND 工艺的高 N_2O 排放主要是由于在低溶解氧、低 C/N 等限制条件下, 硝化和反硝化过程所涉及的常规 N_2O 产生途径均可能释放 N_2O , 而异养硝化和好氧反硝化等非传统途径对 N_2O 的贡献同样不能忽视。CHAI 等^{[39]54-57} 采用酶抑制剂方法探究 SND 工艺过程中不同途径对于 N_2O 的贡献率, 发现异养硝化和好氧反硝化途径对系统氨氮去除率的贡献可占 55.4%, 且同时贡献了较高的 N_2O 释放量 (约占系统 N_2O 总释放量的 51%)。

完全短程硝化 (氨氮转化率 >90%) 以及部分短程硝化 (氨氮转化率 50% 左右) 工艺 N_2O 平均释放因子十分接近, 均为 2.6% 左右。短程硝化过程通常需要在低氧环境下进行, 因此短程硝化过程中 NH_2OH 的不完全氧化途径在 N_2O 释放过程中可能占主导作用^{[23]2751-2753}。此外, 短程硝化的产物亚硝酸盐的积累也可能会增强 AOB 对 N_2O 的排放贡献, 从而导致短程硝化过程 N_2O 的高排放。然而, CHUA 等^[51] 在连续进水实验中发现添加的 30 mg/L 亚硝酸盐氮对短程硝化过程的 N_2O 产生并无强化效应, 因此认为 NH_2OH 的不完全氧化也可以在亚硝酸盐积累的情况下占据主导。近年来, 研究者们开始利用同位素等先进技术研究短程硝化过程中 N_2O 的释放过程。RATHNAYAKE 等^{[49]7083-7084} 利用同位素位点偏好 (SP) 技术发现, 在曝气初始阶段 65% 的 N_2O 通过 NH_2OH 的氧化过程产生, 随后 AOB 反硝化途径逐渐强化, 释放的 N_2O 与 NH_2OH 的氧化途径相匹配。杨玉兵等^{[45]5055-5056} 同样采用同位素 SP 技术研究却发现, 短程硝化过程中超过 90% 的 N_2O 是通过 AOB 反硝化途径产生的; 而 TERADA 等^{[23]2749-2751} 通过同位素 SP 技术发现通过 $^{15}NH_2OH$ 和 $^{14}NO_2^-$ 反应的生物与非生物耦合途径占据了 46% 的 N_2O 贡献, 主导了 N_2O 的排放。以上采用同位素 SP 技术的研究结论各不相同, 造成短程硝化过程中 N_2O 释放的主导途径尚不明确, 从而导致不同研究中 N_2O 释放因子出现明显差异。从 N_2O 释放因子波动范围来看, 部分短程硝化比完全短程硝化波动稍大, 控制短程硝化中溶解氧水平不同会导致氨氮转化率差异从而导致 N_2O 产量差异。短程硝化完成程度与溶解氧有显著的相关性, 低溶解氧通常会致导致低氨氮转化率^{[52]29}。

厌氧氨氧化反应器产生的 N_2O 十分有限, 释放

因子通常小于1%^[53]。厌氧氨氧化通常与短程硝化过程耦合可形成两种运行方式的PNA工艺,且两种运行方式均发现有N₂O排放^[54],然而不同运行方式却对N₂O产生量影响显著^[55]。其中一段式PNA工艺为短程硝化和厌氧氨氧化在同一个反应器中进行,N₂O释放因子基本在0.4%~2.4%波动;而两段式PNA工艺可被认为是部分短程硝化反应器和厌氧氨氧化反应器的串联组合,N₂O释放因子平均值为4.7%,均高于短程硝化和厌氧氨氧化。OKABE等^{[46]6462-6469}采用微电极、荧光原位杂交技术和抑制剂方法发现厌氧氨氧化反应器中N₂O的产生可能源于厌氧氨氧化颗粒内部的异养反硝化菌。除异养反硝化菌外,两段式PNA工艺的厌氧氨氧化反应器中通常还可能同时存在AOB,从而增加了N₂O的产生量^{[47]824}。

3 生物脱氮工艺N₂O减排影响因素

生物脱氮工艺过程中N₂O的产生量与工艺类型、进水水质以及操作运行条件等均有密切关系(见表1)。对于特定的生物脱氮工艺来说,应考虑不同的N₂O减排影响因素。下面将基于工艺类型分别进行具体描述。

表1 生物脱氮工艺N₂O减排影响因素
Table 1 Factors influencing N₂O emission reduction in biological nitrogen removal processes

生物脱氮工艺	N ₂ O减排应考虑的因素
传统两段式硝化/反硝化	硝化过程:氨氮负荷、溶解氧(曝气速率) 反硝化过程:有机碳源类型、C/N、pH
SND	溶解氧、有机碳源类型、C/N
PND	溶解氧、有机碳源类型、C/N
PNA	溶解氧、氨氮、无机碳源

3.1 传统两段式硝化/反硝化工艺

据报道,传统两段式硝化/反硝化工艺中的N₂O大部分在好氧硝化过程中产生^[56]。因此氨氮和溶解氧作为硝化过程的生化反应基质,其浓度水平对N₂O的产量具有显著影响^[57]。刘国华等^[58]将进水氨氮降低至45.6 g/(m³·d)时,发现好氧阶段N₂O累积释放量比进水氨氮为78.6、117.6 g/(m³·d)时分别减少了84%和96%。由于好氧阶段是N₂O释放的重要阶段^[59-60],SUN等^{[61]4224}发现通过合理调节曝气强度可以在维持最低N₂O释放量的同时,还能有效减少N₂O从水中吹脱。SUN等^{[62]543}将SBR中好氧段溶解氧从0.6 mg/L提高至1.2 mg/L,发现保证充足的氧气供应可使N₂O产生量降低61%。由于90%以上的N₂O释放是由于曝气阶段的吹脱

作用导致,将SBR中30 min缺氧和90 min好氧分别调整至60 min缺氧和60 min好氧时,可以降低好氧阶段曝气的吹脱作用和好氧阶段溶解氧对缺氧阶段反硝化作用的抑制,使N₂O释放量再减少30%^{[62]543}。

反硝化具有产生和消耗N₂O的双重作用,充足的碳源(C/N(以质量比计,下同)>5.2)和适宜的pH(6~7)均有利于反硝化活动的正常进行,从而减少N₂O的释放^{[63]26-27}。碳源会影响各种反硝化酶的活性,进而影响N₂O的产生和消耗速率。优化碳源类型及碳源浓度水平可以提高N₂OOR的活性,促进反硝化过程对N₂O的消耗。SONG等^{[31]2383}发现乙酸作为反硝化碳源时N₂O还原速率是甲醇为碳源时的3.1倍,从而减少了44%的N₂O释放量。然而LEE等^{[63]21}使用乙酸作为反硝化碳源时观察到N₂O的释放量反而比甲醇为碳源时更多,且N₂OOR基因*nosZ*并未在乙酸为碳源的生物样品中检测出。以上研究结果的不同可能是不同系统中功能性微生物种群对碳源的适应能力不同导致的。

通过对比文献报道的研究结果,发现与两段式缺氧/好氧(AO)反应器和间歇运行的SBR相比,具有延时曝气特点的氧化沟(OD)可以有效减少硝化和反硝化过程N₂O的产生^{[61]4224-4226,[64]581}。MASUDA等^{[64]589}调查了日本3座污水处理厂温室气体排放量,发现OD的N₂O总产量最少,而两段式AO和AO的污水处理厂总N₂O排放量分别是OD的1.4、3.0倍,这是由于OD具有更长的污泥停留时间和水力停留时间,此外OD的曝气方式也减缓了N₂O的溢出。SUN等^{[61]4224-4226}对比了中国3座污水处理厂的N₂O排放情况,同样也发现OD工艺的N₂O释放因子仅为0.25%,远低于AO和SBR的1.37%和2.69%。

3.2 新型生物脱氮工艺

3.2.1 SND

在保证SND脱氮效率的同时,若要减少N₂O的产生就要严格控制溶解氧、有机碳源类型、C/N等条件。吕锡武等^[65]研究发现,通过控制SND过程的溶解氧在较低水平(0.5 mg/L)可以在保证硝化效果的同时提高反硝化效率,从而提高总氮去除率并减少N₂O的溢出。ZHANG等^{[50]550-553}比较了AO间歇运行以及全好氧运行的SBR中SND运行效果,发现AO间歇运行的总氮去除效率更高,且N₂O转化率也减少了2/3。LIANG等^[66]对比了不同碳源

类型(葡萄糖、乙酸)以及不同 C/N(4,7)对 SND 脱氮效果和 N_2O 释放速率的影响,发现采用更容易被微生物利用的乙酸为碳源且 C/N 提高至 7 时,虽然比硝化速率没有明显变化,但却显著提高了比反硝化速率,从而使总氮去除率由 41.2% 提高到 90.3%,而 N_2O 释放速率降低了 91%。

3.2.2 PND

短程硝化过程是 PND 工艺过程产生 N_2O 的主要途径。溶解氧升高对 AOB 反硝化的抑制作用可以减少 N_2O 的释放。杨玉兵等^[45]⁵⁰⁵¹采用人工配水的研究中发现,溶解氧从 0.5 mg/L 提高到 2.5 mg/L,不仅可以提高比氨氧化速率,还可以减少短程硝化过程 N_2O 的产生量。而刘越等^[67]在采用实际污水的试验中发现,溶解氧控制在 0.6~1.2 mg/L 时可以保持较高的硝化速率和较高的 N_2O 还原速率,从而有效减少 N_2O 释放。不同研究中最佳溶解氧的不同可能与进水水质有关。此外,短程反硝化过程中亚硝酸盐的产生和积累对 N_2OR 活性具有抑制作用,也可以导致 N_2O 的产生^[68]。ZHANG 等^[69]的研究采用甘露醇替代乙酸作为反硝化外加碳源,发现 *nosZ* 丰度显著增加,污泥的生物活性也有相应提高,从而缓和了亚硝酸盐对 N_2OR 的抑制,有效减少了短程反硝化中 N_2O 的释放。

3.2.3 PNA

根据前文的统计分析,一段式 PNA 的 N_2O 释放比两段式 PNA 更低,且 PNA 工艺过程中 N_2O 主要是由短程硝化过程产生,因此 PNA 工艺的 N_2O 减排应主要关注短程硝化阶段。LV 等^[70]在研究中发现低溶解氧易导致 NH_2OH 的不完全氧化而产生 N_2O ,当溶解氧从 0.35 mg/L 提高到 0.80 mg/L,氨氧化速率提高了 3 倍而 N_2O 释放速率降低了一半。PI-JUAN 等^[52]²⁹也在颗粒式气提反应器中发现当溶解氧从 1.0 mg/L 提高到 4.5 mg/L, N_2O 释放因子由 6.0% 降低至 2.2%,而继续提高溶解氧至 7.5 mg/L, N_2O 释放因子并无显著改变。而对于厌氧氨氧化反应器中 N_2O 的减排,JIN 等^[71]将单一厌氧氨氧化反应器进水氨氮从 57 mg/L 降低到 36 mg/L,观察到 54% 的 N_2O 减量。而 ZHANG 等^[48]¹²⁷认为无机碳源控制在 55~130 mg/L 时,可以保证厌氧氨氧化反应器高氮去除率和低 N_2O 产生量。

4 结论与展望

温室气体 N_2O 作为生物脱氮工艺的附加产物,

近几年引起了国内外研究者的广泛关注。从生物脱氮机理来看, N_2O 产生途径主要为 AOB 反硝化、 NH_2OH 的不完全氧化和异养反硝化,各途径对 N_2O 释放的贡献也与工艺类型及运行条件有很大的相关性。新型脱氮工艺过程中,除厌氧氨氧化和一段式 PNA 工艺以外,其他工艺过程的 N_2O 释放因子均高于传统两段式硝化/反硝化工艺。因此新型脱氮工艺在保证经济高效脱氮优势的同时,也面临着 N_2O 的减排问题。结合国内外研究者的研究进展,预测未来生物脱氮过程削减 N_2O 的研究将会主要关注以下几个方面:

(1) AOA、自养反硝化菌、异养硝化菌和好氧反硝化菌等菌群对于 N_2O 产生的贡献机理需要进一步明确。微切片、微电极等微观分析技术,同位素技术和分子生物学技术在环境科学与工程领域方面的应用,为生物质微观结构、 N_2O 产生途径示踪和菌群功能解析提供了强大的技术支持,在工程系统宏观表现和微观现象以及内在机理之间搭建了一座桥梁,其普遍性规律的发现有可能使污水生物处理理论与实践获得突破。

(2) 反硝化过程是消耗 N_2O 的唯一途径,因此 N_2O 减排不仅需要依靠脱氮过程中工艺条件的优化,更需要关注反硝化对 N_2O 的消耗,其中特定反硝化微生物在 N_2O 还原方面的巨大潜力可能是污水处理厂未来 N_2O 减排的重要研究方向。

(3) 对实际污水处理工艺而言,实时定量监测及工艺参数调控是 N_2O 减排的重要前提,因此有必要建立标准化 N_2O 监测系统,并通过建立数学模型预测水质条件及工艺参数变化对 N_2O 释放的影响。

参考文献:

- [1] PACHAURI R K, ALLEN M R, BARROS V R, et al. Contribution of Working Groups I, II and III to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change[R]. Geneva: IPCC, 2014.
- [2] RAVISHANKARA A R, DANIEL J S, PORTMANN R W. Nitrous oxide (N_2O): the dominant ozone-depleting substance emitted in the 21st century[J]. Science, 2009, 326(5949): 123-125.
- [3] DAELMAN M R, VAN VOORTHUIZEN E M, VAN DONGEN L G, et al. Methane and nitrous oxide emissions from municipal wastewater treatment - results from a long-term study[J]. Water Science and Technology, 2013, 67(10): 2350-2355.
- [4] LI L, LING Y, WANG H, et al. N_2O emission in partial nitritat-

- tion-anammox process[J]. Chinese Chemical Letters, 2020, 31 (1).
- [5] YE L, NI B J, LAW Y, et al. A novel methodology to quantify nitrous oxide emissions from full-scale wastewater treatment systems with surface aerators[J]. Water Research, 2014, 48: 257-268.
- [6] ZHAN X, HU Z, WU G. Greenhouse gas emission and mitigation in municipal wastewater treatment plants[M]. London: IWA Publishing, 2018.
- [7] MUTHURAMAN G, RAMU A G, MCADAM E, et al. Sustainable removal of N₂O by mediated electrocatalytic reduction at ambient temperature electro-scrubbing using electrogenerated Ni(II) electron mediator[J]. Journal of Hazardous Materials, 2019, 378: 120765.
- [8] MASSARA T M, MALAMIS S, GUIASOLA A, et al. A review on nitrous oxide N₂O emissions during biological nutrient removal from municipal wastewater and sludge reject water[J]. Science of the Total Environment, 2017, 596/597.
- [9] GONG Y K, PENG Y Z, WANG S Y, et al. Production of N₂O in two biologic nitrogen removal processes: a comparison between conventional and short-cut nitrogen removal processes [J]. Frontiers of Environmental Science & Engineering, 2014, 8 (4): 589-597.
- [10] AHN J H, KWAN T, CHANDRAN K. Comparison of partial and full nitrification processes applied for treating high-strength nitrogen wastewaters: microbial ecology through nitrous oxide production[J]. Environmental Science & Technology, 2011, 45(7).
- [11] BLUM J M, JENSEN M M, SMETS B F. Nitrous oxide production in intermittently aerated Partial Nitrification-Anammox reactor: oxalic N₂O production dominates and relates with ammonia removal rate[J]. Chemical Engineering Journal, 2018, 335: 458-466.
- [12] STEIN L Y. Insights into the physiology of ammonia-oxidizing microorganisms[J]. Current Opinion in Chemical Biology, 2019, 49: 9-15.
- [13] ZABOROWSKA E, LU X, MAKINIA J. Strategies for mitigating nitrous oxide production and decreasing the carbon footprint of a full-scale combined nitrogen and phosphorus removal activated sludge system[J]. Water Research, 2019, 162: 53-63.
- [14] FAN X Y, GAO J F, PAN K L, et al. Temporal dynamics of bacterial communities and predicted nitrogen metabolism genes in a full-scale wastewater treatment plant[J]. RSC Advances, 2017, 7(89): 56317-56327.
- [15] MI W, ZHAO J, DING X, et al. Treatment performance, nitrous oxide production and microbial community under low-ammonium wastewater in a CANON process[J]. Water Science & Technology, 2017, 76(12): 3468-3477.
- [16] MIAO J, SHI Y, ZENG D, et al. Enhanced shortcut nitrogen removal and metagenomic analysis of functional microbial communities in a double sludge system treating ammonium-rich wastewater [J]. Environmental Technology, 2018, 41 (14): 1877-1887.
- [17] KONG Q, LIANG S, ZHANG J, et al. N₂O emission in a partial nitrification system: dynamic emission characteristics and the ammonium-oxidizing bacteria community[J]. Bioresource Technology, 2013, 127: 400-406.
- [18] KOZLOWSKI J A, PRICE J, STEIN L Y. Revision of N₂O-producing pathways in the ammonia-oxidizing bacterium *Nitrosomonas europaea* ATCC 19718[J]. Applied and Environmental Microbiology, 2014, 80(16): 4930-4935.
- [19] WUNDERLIN P, MOHN J, JOSS A, et al. Mechanisms of N₂O production in biological wastewater treatment under nitrifying and denitrifying conditions[J]. Water Research, 2012, 46(4): 1027-1037.
- [20] LAW Y, NI B J, LANT P, et al. N₂O production rate of an enriched ammonia-oxidizing bacteria culture exponentially correlates to its ammonia oxidation rate[J]. Water Research, 2012, 46(10): 3409-3419.
- [21] LAW Y, YE L, PAN Y, et al. Nitrous oxide emissions from wastewater treatment processes [J]. Philosophical Transactions of the Royal Society B: Biological Sciences, 2012, 367 (1593): 1265-1277.
- [22] RODRIGUEZ CABALLERO A, PIJUAN M. N₂O and NO emissions from a partial nitrification sequencing batch reactor: exploring dynamics, sources and minimization mechanisms[J]. Water Research, 2013, 47(9): 3131-3140.
- [23] TERADA A, SUGAWARA S, HOJO K, et al. Hybrid nitrous oxide production from a partial nitrifying bioreactor: hydroxylamine interactions with nitrite[J]. Environmental Science & Technology, 2017, 51(5).
- [24] ZHU BARKER X, CAVAZOS A R, OSTROM N E, et al. The importance of abiotic reactions for nitrous oxide production [J]. Biogeochemistry, 2015, 126(3): 251-267.
- [25] DUAN H, YE L, ERLER D, et al. Quantifying nitrous oxide production pathways in wastewater treatment systems using isotope technology - a critical review [J]. Water Research, 2017, 122: 96-113.
- [26] PAN Y, YE L, NI B J, et al. Effect of pH on N₂O reduction and accumulation during denitrification by methanol utilizing denitrifiers[J]. Water Research, 2012, 46(15): 4832-4840.
- [27] 周晨, 潘玉婷, 刘敏, 等. 反硝化过程中氧化亚氮释放机理研究进展[J]. 化工进展, 2017, 36(8).
- [28] OTTE S, GROBBEN N G, ROBERTSON L A, et al. Nitrous oxide production by *Alcaligenes faecalis* under transient and dynamic aerobic and anaerobic conditions[J]. Applied and Environmental Microbiology, 1996, 62(7): 2421-2426.
- [29] SUENAGA T, RIYA S, HOSOMI M, et al. Biokinetic characterization and activities of N₂O-reducing bacteria in response

- to various oxygen levels[J]. *Frontiers in Microbiology*, 2018, 9:697.
- [30] YOKOYAMA K, YUMURA M, HONDA T, et al. Characterization of denitrification and net N_2O -reduction properties of novel aerobically N_2O -reducing bacteria[J]. *Soil Science and Plant Nutrition*, 2016, 62(3):230-239.
- [31] SONG K, HARPER W F, HORI T, et al. Impact of carbon sources on nitrous oxide emission and microbial community structure in an anoxic/oxic activated sludge system[J]. *Clean Technologies and Environmental Policy*, 2015, 17(8).
- [32] JUNG M Y, WELL R, MIN D, et al. Isotopic signatures of N_2O produced by ammonia-oxidizing archaea from soils[J]. *The ISME Journal*, 2014, 8(5):1115-1125.
- [33] STIEGLMEIER M, MOOSHAMMER M, KITZLER B, et al. Aerobic nitrous oxide production through N-nitrosating hybrid formation in ammonia-oxidizing archaea[J]. *The ISME Journal*, 2014, 8(5):1135-1146.
- [34] REN Y, NGO H H, GUO W, et al. Linking the nitrous oxide production and mitigation with the microbial community in wastewater treatment: a review [J]. *Bioresource Technology Reports*, 2019, 7:100191-100201.
- [35] YANG W, ZHAO Q, LU H, et al. Sulfide-driven autotrophic denitrification significantly reduces N_2O emissions[J]. *Water Research*, 2016, 90:176-184.
- [36] XING L, OU L, ZHANG Y, et al. Nitrogen removal and N_2O emission during low carbon wastewater treatment using the multiple A/O process[J]. *Water, Air, & Soil Pollution*, 2017, 228(9):367.
- [37] PARK J H, SHIN H S, LEE I S, et al. Denitrification of high NO_3^- -N containing wastewater using elemental sulfur; nitrogen loading rate and N_2O production[J]. *Environmental Technology*, 2002, 23(1):53-65.
- [38] LI C, LIANG S, ZHANG J, et al. N_2O reduction during municipal wastewater treatment using a two-sludge SBR system acclimatized with propionate[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2013, 222:353-360.
- [39] CHAI H, XIANG Y, CHEN R, et al. Enhanced simultaneous nitrification and denitrification in treating low carbon-to-nitrogen ratio wastewater; treatment performance and nitrogen removal pathway[J]. *Bioresource Technology*, 2019, 280.
- [40] YANG L, WANG X H, XIAO Q, et al. Kinetic characteristics and N_2O production of a heterotrophic nitrifying bacterium *Pseudomonas putida* YH capable of tolerating adverse environmental conditions[J]. *Journal of Chemical Technology & Biotechnology*, 2019, 94(12):3941-3950.
- [41] YANG L, REN Y X, ZHAO S Q, et al. Isolation and characterization of three heterotrophic nitrifying-aerobic denitrifying bacteria from a sequencing batch reactor[J]. *Annals of Microbiology*, 2016, 66(2):737-747.
- [42] 陈虎, 王莹, 吕永康. 污水微生物脱氮过程中 N_2O 产生机理及影响因素研究进展[J]. *化工进展*, 2016, 35(12):4020-4025.
- [43] DU R, PENG Y, CAO S, et al. Characteristic of nitrous oxide production in partial denitrification process with high nitrite accumulation[J]. *Bioresource Technology*, 2016, 203:341-347.
- [44] YAN P, LI K, GUO J S, et al. Toward N_2O emission reduction in a single-stage CANON coupled with denitrification; investigation on nitrite simultaneous production and consumption and nitrogen transformation[J]. *Chemosphere*, 2019, 228:485-494.
- [45] 杨玉兵, 杨庆, 李洋, 等. 基于同位素技术的短程硝化过程 N_2O 产生途径[J]. *环境科学*, 2018, 39(11).
- [46] OKABE S, OSHIKI M, TAKAHASHI Y, et al. N_2O emission from a partial nitrification-anammox process and identification of a key biological process of N_2O emission from anammox granules[J]. *Water Research*, 2011, 45(19).
- [47] KAMPSCHEUR M J, VAN D W, WIELDERS H A, et al. Dynamics of nitric oxide and nitrous oxide emission during full-scale reject water treatment[J]. *Water Research*, 2008, 42(3).
- [48] ZHANG W, WANG D, JIN Y. Effects of inorganic carbon on the nitrous oxide emissions and microbial diversity of an anaerobic ammonia oxidation reactor[J]. *Bioresource Technology*, 2018, 250.
- [49] RATHNAYAKE R D, SONG Y, TUMENDELGER A, et al. Source identification of nitrous oxide on autotrophic partial nitrification in a granular sludge reactor [J]. *Water Research*, 2013, 47(19).
- [50] ZHANG F, LI P, CHEN M, et al. Effect of operational modes on nitrogen removal and nitrous oxide emission in the process of simultaneous nitrification and denitrification [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2015, 280.
- [51] CHUA F J D, SUN F, MUKHERJEE M, et al. Comparison of nitrous oxide emission between a partial and full nitrification enriched ammonia-oxidising culture [J]. *Chemosphere*, 2019, 220:974-982.
- [52] PIJUAN M, TORÀ J, RODRÍGUEZ CABALLERO A, et al. Effect of process parameters and operational mode on nitrous oxide emissions from a nitrification reactor treating reject wastewater[J]. *Water Research*, 2014, 49.
- [53] DESLOOVER J, DE CLIPPELEIR H, BOECKX P, et al. Floc-based sequential partial nitrification and anammox at full scale with contrasting N_2O emissions[J]. *Water Research*, 2011, 45(9):2811-2821.
- [54] 张珺, 陈辉, 姬玉欣, 等. 厌氧氨氧化脱氮工艺研究进展[J]. *化工进展*, 2014, 33(6):1589-1595.
- [55] CONNAN R, DABERT P, MOYA ESPINOSA M, et al. Coupling of partial nitrification and anammox in two- and one-stage systems; process operation, N_2O emission and microbial community[J]. *Journal of Cleaner Production*, 2018, 203:559-573.
- [56] 赵聪聪, 张建, 胡振, 等. 碳源类型对污水生物处理过程中氧化

- 亚氮释放的影响[J].环境科学学报,2011,31(11):2354-2360.
- [57] 巩有奎,彭永臻.不同DO下亚硝态氮氧化菌硝化系统N₂O减量研究[J].环境污染与防治,2020,42(5):565-568.
- [58] 刘国华,庞毓敏,范强,等.进水氨氮负荷对污水生物脱氮过程中N₂O释放的影响[J].环境污染与防治,2015,37(7):18-22.
- [59] 刘国华,庞毓敏,齐鲁,等.SBR工艺污水生物脱氮过程中N₂O的释放特征[J].环境工程,2020,38(7):51-57.
- [60] 华佳,刘通,柏双友,等.垃圾渗滤液处理工艺中N₂O的释放规律及影响因素研究[J].环境工程,2018,36(6):52-57.
- [61] SUN S C, BAO Z Y, SUN D Z. Study on emission characteristics and reduction strategy of nitrous oxide during wastewater treatment by different processes[J]. Environmental Science and Pollution Research, 2015, 22(6).
- [62] SUN S, CHENG X, LIU Y, et al. Influence of operational modes and aeration rates on N₂O emission from urban sewage treatment using a pilot-scale sequencing batch reactor[J]. International Biodeterioration & Biodegradation, 2013, 85.
- [63] LEE Y Y, CHOI H, CHO K S. Effects of carbon source, C/N ratio, nitrate, temperature, and pH on N₂O emission and functional denitrifying genes during heterotrophic denitrification[J]. Journal of Environmental Science and Health, Part A, 2019, 54(1).
- [64] MASUDA S, SANO I, HOJO T, et al. The comparison of greenhouse gas emissions in sewage treatment plants with different treatment processes[J]. Chemosphere, 2018, 193.
- [65] 吕锡武, 稻森悠平, 水落元之. 同步硝化反硝化脱氮及处理过程中N₂O的控制研究[J]. 东南大学学报(自然科学版), 2001, 31(1):95-99.
- [66] LIANG H, LI X, WANG S, et al. Effects of carbon source on N₂O production in the process of simultaneous nitrification and denitrification via nitrite by aerobic granular sludge[J]. Applied Environmental Biotechnology, 2016, 1(2):1-8.
- [67] 刘越,李鹏章,彭永臻.短程硝化过程中硝化速率与N₂O产生速率的关系[J].化工学报,2015,66(11):4652-4660.
- [68] 巩有奎,李永波,苗志加.不同进水方式下短程反硝化过程中N₂O产量[J].环境工程,2018,36(10):59-63.
- [69] ZHANG X, WANG X, ZHANG J, et al. Reduction of nitrous oxide emissions from partial nitrification process by using innovative carbon source (mannitol)[J]. Bioresource Technology, 2016, 218:789-795.
- [70] LV Y, JU K, SUN T, et al. Effect of the dissolved oxygen concentration on the N₂O emission from an autotrophic partial nitrification reactor treating high-ammonium wastewater[J]. International Biodeterioration & Biodegradation, 2016, 114:209-215.
- [71] JIN Y, WANG D Q, ZHANG W J. Effects of substrates on N₂O emissions in an anaerobic ammonium oxidation (anammox) reactor[J]. SpringerPlus, 2016, 5:741.
- (上接第 1045 页)
- [2] 单天宇,刘秋辛,闫秀兰,等.镉砷复合污染条件下镉低吸收水稻品种对镉和砷的吸收和累计特征[J].农业环境科学学报,2017,36(10):1938-1975.
- [3] LIANG J, FENG C T, ZENG G M, et al. Spatial distribution and source identification of heavy metals in surface soils in a typical coal mine city, Lianyuan, China[J]. Environmental Pollution, 2017, 225:681-690.
- [4] PADOAN E, ROMÈ C, AJMONE MARSAN F. Bioaccessibility and size distribution of metals in road dust and roadside soils along a peri-urban transect[J]. Science of the Total Environment, 2017, 601/602:89-98.
- [5] BALTAS H, SIRIN M, GÖKBAYRAK E, et al. A case study on pollution and a human health risk assessment of heavy metals in agricultural soils around Sinop Province, Turkey[J]. Chemosphere, 2020, 241:125015.
- [6] LIU E F, WANG X Y, LIU H J, et al. Chemical speciation, pollution and ecological risk of toxic metals in readily washed off road dust in a megacity (Nanjing), China[J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2019, 173:381-392.
- [7] 韩春梅,王林山,巩宗强,等.土壤中重金属形态分析及其环境学意义[J].生态学杂志,2005,24(12):1499-1502.
- [8] 李泽琴,侯佳渝,王浆臻.矿山环境土壤重金属污染潜在生态风险评价模型探讨[J].地球科学进展,2008,23(5):509-516.
- [9] 于真真,刘恩峰,张恩楼,等.程海沉积物重金属时空变化及人为污染与潜在生态风险[J].环境科学,2017,38(10):4169-4177.
- [10] 朱晓东,韦朝阳,杨芬,包头白云鄂博地区重金属基线值的厘定及其在重金属污染分级评价中的应用[J].自然资源学报,2016,31(2).
- [11] 孙厚云,卫晓峰,甘凤伟,等.承德市滦河流域土壤重金属地球化学基线厘定及其累计特征[J].环境科学,2019,40(8):3753-3763.
- [12] 广西壮族自治区第一地质队.广西壮族自治区富川可达矿区硫、铜和铁、钨、锡、铅、锌勘探、普查报告[R].桂林:广西壮族自治区第一地质队,1969.
- [13] 朱立禄,阎百兴,王莉霞.第二松花江下游稻田土壤重金属含量特征及来源分析[J].应用生态学报,2010,21(11):2965-2970.
- [14] 汤洁,天琴,李海毅,等.哈尔滨市表土重金属地球化学基线的确定及污染程度评价[J].生态环境学报,2010,19(10):2408-2413.
- [15] 卢新哲,古安庆,张言午,等.基于环境地球化学基线的农用地重金属累计特征及其潜在生态危害风险研究[J].土壤学报,2019,56(2).
- [16] 范凯,韦朝阳,杨晓松.长沙市乔口镇土壤重金属地球化学基线值的厘定及应用[J].环境科学学报,2014,34(12):3076-3083.
- [17] WEI C Y, WEN H L. Geochemical baselines of heavy metals in the sediments of two large freshwater lakes in China: implications for contamination character and history[J]. Environmental Geochemistry and Health, 2012, 34(6):737-748.
- [18] 张菊,陈诗越,邓焕广,等.山东省部分水岸带土壤重金属含量及污染评价[J].生态学报,2012,32(10):3144-3153.
- [19] 中国环境监测总站.中国土壤元素背景值[M].北京:中国环境科学出版社,1990.