

doi: 10.12068/j.issn.1005-3026.2018.06.023

# 碳源对地下渗滤系统脱氮及产生 N<sub>2</sub>O 的影响

李海波, 李英华, 徐新阳, 汪思琪

(东北大学 资源与土木工程学院, 辽宁 沈阳 110819)

**摘 要:** 生活污水经沉淀预处理后投配到地下污水渗滤系统 (SWIS) 中进行深度脱氮处理. 考察了在 SWIS 基质中添加有机碳源对脱氮效果、脱氮微生物活性及 N<sub>2</sub>O 产生量和转化率的影响. 研究表明: 碳源的添加有利于促进微生物的反硝化作用, 但过量添加会促进其他菌群的生长而抑制脱氮菌群的优势活性, 从而削弱系统的脱氮能力. 当有机质质量分数由 2.0% 提高到 9.5% 时, SWIS 对污水中 COD、氨氮及总氮平均去除率分别降低了 10.9%、19.5% 和 24%; N<sub>2</sub>O 产率和转化率均随着碳源添加量的增加而下降. 相关分析表明, 硝化细菌、反硝化细菌数量对数值分别与 N<sub>2</sub>O 转化率呈显著正、负相关关系 ( $R^2$  分别为 0.994 及 0.959), 说明 SWIS 中微生物硝化-反硝化作用尤其上层硝化反应是 N<sub>2</sub>O 产生的主要途径.

**关 键 词:** 地下渗滤; 生活污水; 碳源; 脱氮; N<sub>2</sub>O

中图分类号: X 703.1      文献标志码: A      文章编号: 1005-3026(2018)06-0877-05

## Effect of Carbon Source on Nitrogen Removal and N<sub>2</sub>O Generation in Subsurface Wastewater Infiltration System

LI Hai-bo, LI Ying-hua, XU Xin-yang, WANG Si-qi

(School of Resources & Civil Engineering, Northeastern University, Shenyang 110819, China. Corresponding author: LI Ying-hua, E-mail: liyinghua1028@126.com)

**Abstract:** Domestic wastewater was infiltrated through a subsurface wastewater infiltration system (SWIS) for depth denitrification treatment after precipitation. Influence of carbon source addition on nitrogen removal, denitrification microbial activity, N<sub>2</sub>O generation and conversion rate was analyzed. The results showed that carbon source was conducive to the promotion of microbial denitrification, but adding excess would promote substantial growth of other bacterial groups and inhibit the advantages of denitrification activity and nitrogen removal efficiency. When the organic content increased from 2.0% to 9.5%, removal efficiency for COD, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N and TN decreased by 10.9%, 19.5% and 24%, respectively and N<sub>2</sub>O generation and conversion rate declined. Correlation analysis showed that the nitrifier and denitrifier quantity exhibited significantly positive and negative correlation with N<sub>2</sub>O conversion ( $R^2$  = 0.994 and 0.959), respectively, suggesting that N<sub>2</sub>O production was the result of the interaction of nitrification and denitrification, and mainly derived from nitrification process in upper layer.

**Key words:** subsurface wastewater infiltration system; domestic wastewater; carbon source; nitrogen removal; N<sub>2</sub>O

地下污水渗滤系统 (subsurface wastewater infiltration system, SWIS) 是应用较为广泛的分散式污水处理技术. 其技术内涵是: 将污水有控制地投配到具有一定渗透性和除污能力的土层中, 通过土壤生态系统的自我调控机制, 污染物在土壤、微生物和植物的联合作用下得以去除<sup>[1]</sup>. SWIS 具有运行费用低、管理简单、生态服务功能良好等优点<sup>[1]</sup>.

研究表明: 微生物硝化-反硝化作用是 SWIS 脱氮的主要途径<sup>[2]</sup>. 反硝化过程以碳源为

电子供体,以硝态氮( $\text{NO}_3^- - \text{N}$ )为电子受体,主要发生在渗滤系统的中下层.然而,由于污水中绝大部分有机物在渗滤系统表层(或亚表层)被迅速降解<sup>[3]</sup>,在系统中下部由污水带来的有机物含量较低,导致反硝化作用的电子供体不足,限制反硝化反应的顺利进行.以往研究认为,在土壤基质中适量添加有机碳源可有效促进系统反硝化作用<sup>[4]</sup>.通过对类似污水生态处理系统(如:潜流人工湿地)的研究发现<sup>[5-6]</sup>,在反硝化过程中, $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 还原产生 $\text{NO}$ ,而 $\text{NO}$ 被一氧化氮还原酶( $\text{N}_{\text{or}}$ )还原产生中间产物 $\text{N}_2\text{O}$ , $\text{N}_2\text{O}$ 再经氧化亚氮还原酶( $\text{N}_{\text{os}}$ )作用转化为最终产物 $\text{N}_2$ . $\text{N}_{\text{os}}$ 对溶解氧、温度、氧化还原电位等环境因子极为敏感,极易失活.当SWIS中 $\text{N}_{\text{os}}$ 活性较低甚至丧失活性时, $\text{N}_2\text{O} \rightarrow \text{N}_2$ 的还原反应即终止,造成大量 $\text{N}_2\text{O}$ 释放.然而,也有学者持相反看法.Maeda等指出<sup>[6]</sup>,来源于硝化过程的 $\text{N}_2\text{O}$ 释放量与 $\text{NO}_3^-$ 浓度呈显著正相关关系.此时,土壤孔隙中游离氧浓度高, $\text{N}_2\text{O}$ 更易逸出系统;反硝化过程中, $\text{N}_2\text{O}$ 向大气扩散受阻而使其逸出量减少.因此,外源性碳源输入是否对释放 $\text{N}_2\text{O}$ 产生影响? $\text{N}_2\text{O}$ 究竟产生于硝化过程还是反硝化过程?其释放量与硝化和反硝化细菌的相关性如何?本文采用模拟实验方法,利用经沉淀预处理的实际生活污水进行研究,以揭示碳源添加对SWIS脱氮效率、脱氮微生物活性及 $\text{N}_2\text{O}$ 释放量的影响.

1 实验材料与方法

1.1 模拟系统

模拟实验装置主体为有机玻璃柱,内径30 cm,高130 cm(图1).基质表层下55 cm处设散水管,装置底部设U型集水槽及阀门.采用自制的气体分层采样器收集上、中、下层气体.采样器由三层有机玻璃套管组成,长度分别为25,50,75 cm,直径分别为2,3,4 cm.取气器下方装有直径为1 cm的横向有机玻璃管,两端均匀分布取样孔并密封,用尼龙网包裹,防止异物堵塞.采气器连接气袋,收集到的气体存于气袋中待测.距装置顶部20、40、60、80及100 cm处设取样口.污水经沉淀预处理后排入储存池,经蠕动泵投配到SWIS中.进出水水样分别采自储存池和SWIS出水口.

1.2 实验材料

SWIS基质由农田土、牛粪及炉渣等按一定体积比组成,配方1#、2#、3#和4#的有机质分别为

2.0%、4.5%、7.0%和9.5%.污水取自沈阳某校园化粪池,经沉淀(3 h)后投配到SWIS.实验期间SWIS进水污染物平均质量浓度为: $\text{COD}(292 \pm 10.7) \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ , $\text{NH}_4^+ - \text{N}(20.7 \pm 1.5) \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ , $\text{NO}_3^- - \text{N}(2.67 \pm 0.3) \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ , $\text{NO}_2^- - \text{N}(0.50 \pm 0.1) \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ , $\text{TP}(4.0 \pm 0.4) \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ , $\text{BOD}_5(210 \pm 8.8) \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ , $\text{TN}(27.6 \pm 2.0) \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ .

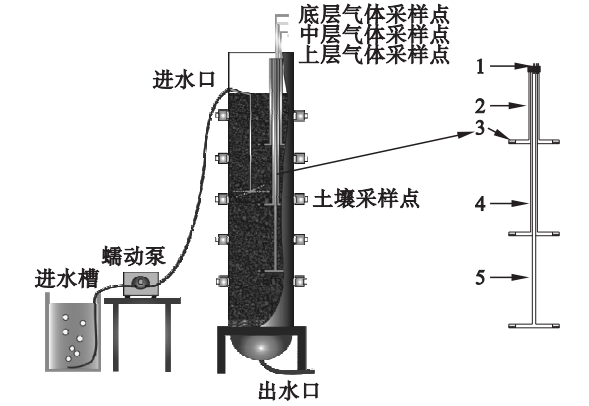


图1 SWIS装置图及气体采样器  
Fig. 1 Experimental device and gas collector  
1—取气口; 2—外层管; 3—集气孔; 4—中间层; 5—内层管.

1.3 实验方法

SWIS进水水力负荷 $0.16 \text{ m}^3 \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ ,干湿交替运行,控制落干和配水时间比为12 h:12 h.分别在进水期0~4 h,4~8 h,8~12 h和落干期0~4 h,4~8 h,8~12 h采集 $\text{N}_2\text{O}$ 样品.采气时密闭SWIS的顶端集气装置,1 h后二次采集 $\text{N}_2\text{O}$ 样品,以装置封闭前后 $\text{N}_2\text{O}$ 浓度的差值代表1 h内的产量;之后打开控制阀使SWIS处于敞开状态,直到集气装置再次被封闭.在基质层20,40,60,80和100 cm采集样品,测定硝化和反硝化细菌数量.

1.4 分析方法

水质指标、微生物含量和土壤性质的测定分别参考标准方法<sup>[7-8]</sup>. $\text{N}_2\text{O}$ 含量采用Agilent 7890A型气相色谱分析仪测定(美国安捷伦公司),电子捕获检测器及柱温分别是330℃,60℃,采用外标法定量. $\text{N}_2\text{O}$ 产率和转化率的计算公式如下:

$$\rho = \frac{44}{22.4} \cdot \frac{273}{273 + \theta} \cdot \varphi_v, \quad (1)$$
$$F = \frac{\Delta m}{A \cdot \Delta t} = \frac{V \cdot \Delta \rho}{A \cdot \Delta t} = \frac{H}{\Delta t} \cdot (\rho_2 - \rho_1). \quad (2)$$

式中: $\rho$ 为 $\text{N}_2\text{O}$ 质量浓度, $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$ ;  $\text{N}_2\text{O}$ 摩尔质量 $44 \text{ g} \cdot \text{mol}^{-1}$ ;气体摩尔体积 $22.4 \text{ L} \cdot \text{mol}^{-1}$ ;  $\theta$ 为气样温度,℃;  $\varphi_v$ 为 $\text{N}_2\text{O}$ 的体积分数;  $F$ 为 $\text{N}_2\text{O}$

产率,  $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ ;  $V$  为集气体积,  $\text{m}^3$ ;  $\Delta t$  为集气密闭时间,  $\text{h}$ ;  $\Delta\rho$  为  $\Delta t$  时间内  $\text{N}_2\text{O}$  质量浓度变化,  $\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$ ;  $A$  为集气装置占地面积,  $\text{m}^2$ ;  $H$  为集气装置高度,  $\text{m}$ ;  $\rho_1, \rho_2$  分别为密封前后  $\text{N}_2\text{O}$  质量浓度,  $\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$ .

## 2 结果与讨论

### 2.1 $w_{\text{OM}}$ 对出水水质的影响

四组对比采用相同的进水水质、处理负荷、处理周期和干湿交替比,  $w_{\text{OM}}$  对出水水质和处理率的影响如图 2 所示. COD、BOD、氨氮、总氮去除率随  $w_{\text{OM}}$  增加而降低. COD 去除率由  $w_{\text{OM}}$  2.0% 时的  $(93.0 \pm 1.0)\%$  逐渐降低到  $w_{\text{OM}}$  9.5% 时的  $(82.3 \pm 1.0)\%$ . COD 的去除主要发生在基质上层<sup>[9-10]</sup>,  $w_{\text{OM}}$  升高导致部分有机物质溶出. 当  $w_{\text{OM}}$  由 2.0% 提高至 9.5% 时, 氨氮去除率由  $(92.7 \pm 0.3)\%$  降至  $(73.2 \pm 2.3)\%$ , 总氮去除率由  $(80.8 \pm$

$0.4)\%$  降至  $(56.8 \pm 0.8)\%$ . 由于有机物降解与硝化反应均在好氧条件下进行,  $w_{\text{OM}}$  升高时有机物降解使得上层氧化还原电位降低, 氨氮去除率偏低; 残留的有机物为反硝化提供充足碳源<sup>[11]</sup>, 硝态氮出水浓度低.

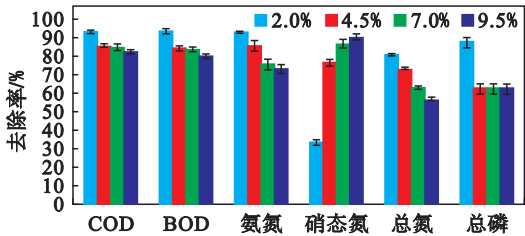


图2 不同有机质添加量下的出水水质  
Fig. 2 Effluent quality under varying organic matter additions

### 2.2 $w_{\text{OM}}$ 对脱氮微生物活性的影响

系统稳定运行后, 在基质层 20, 40, 60, 80 及 100 cm 取土壤样品, 分析硝化与反硝化细菌数量, 结果如图 3 所示.

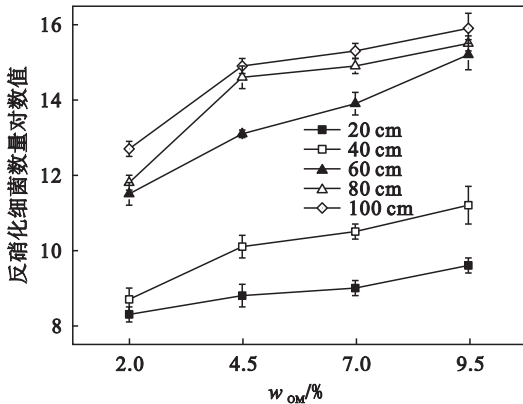
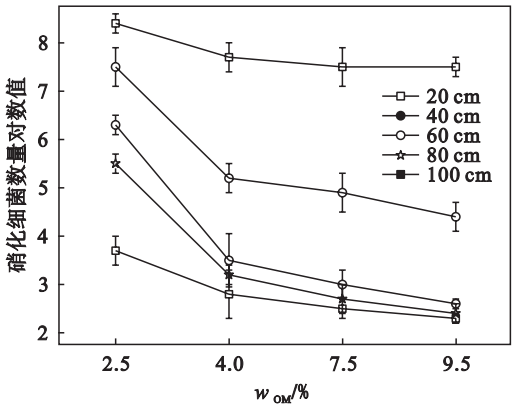


图3 生物基质层  $w_{\text{OM}}$  对硝化和反硝化细菌分布的影响  
Fig. 3 Effect of  $w_{\text{OM}}$  on nitrifier and denitrifier distribution

硝化细菌数量随深度增加而减少, 反硝化细菌与之相反. 当  $w_{\text{OM}}$  从 2.0% 提高到 9.5%, 80 cm 深度处, 硝化细菌和反硝化细菌数量对数值分别降低和提高 3 和 3.5 个数量级.  $w_{\text{OM}}$  升高时, 有机物的好氧降解消耗大量溶解氧, 氧化还原电位降低, 抑制了硝化细菌生长, 刺激了反硝化细菌的活性<sup>[12]</sup>. 同时, 基质的毛细力使得水流向上爬升空间有限, 0 ~ 20 cm 的氧化还原环境受  $w_{\text{OM}}$  影响较小, 细菌数量的变化较底层不显著.

### 2.3 $w_{\text{OM}}$ 对 $\text{N}_2\text{O}$ 产量和转化率的影响

当  $w_{\text{OM}}$  为 (2.0 ~ 9.5)% 时, SWIS 中  $\text{N}_2\text{O}$  产量及转化率 ( $\text{N}_2\text{O}$  中氮占进水总氮的质量分数) 的变化如图 4 所示.

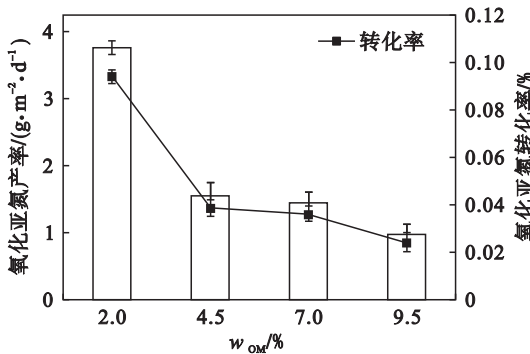


图4 生物基质层  $w_{\text{OM}}$  对  $\text{N}_2\text{O}$  产率与转化率的影响  
Fig. 4 Effect of  $w_{\text{OM}}$  on  $\text{N}_2\text{O}$  production and conversion rate

伴随  $w_{\text{OM}}$  增加,  $\text{N}_2\text{O}$  产率呈下降趋势, 由  $(3.75 \pm 0.5) \text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$  ( $w_{\text{OM}} = 2.0\%$ ) 降低到  $(0.98 \pm 0.3) \text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$  ( $w_{\text{OM}} = 9.5\%$ ). 尤其是

当  $w_{OM}$  大于 4.5% 时,  $N_2O$  的产率下降明显; 同时,  $N_2O$  转化率降低了 80% (图 4). 可见,  $w_{OM}$  对  $N_2O$  的释放影响显著.

基质层有机质含量较低有利于硝化反应与 COD 的降解顺利进行, 硝化反应释放  $N_2O$  产率较高; 因碳源不足, 反硝化反应进行不彻底, 总氮脱除及  $N_2O$  释放主要受反硝化过程制约. 随着  $w_{OM}$  提高, 氧化还原电位下降<sup>[9]</sup>. 虽然低氧化还原电位可促进反硝化反应顺利进行, 但由于反应底物 ( $NO_3^- - N$ ) 缺失, 反硝化反应对  $N_2O$  释放的贡

献较小<sup>[11]</sup>. 经相关分析得知, 硝化细菌数量与  $NH_4^+ - N$  去除率和  $N_2O$  转化率呈显著正相关关系 ( $R^2 = 0.9754$  和  $0.9946$ ); 反硝化细菌数量与  $NO_3^- - N$  去除率呈显著正相关关系 ( $R^2 = 0.9609$ ), 而与  $N_2O$  转化率呈显著负相关关系 ( $R^2 = 0.9591$ ).  $N_2O$  释放量随  $w_{OM}$  的增加而降低. 综合考虑, 建议基质层有机质质量分数范围  $2.0\% < w_{OM} < 4.5\%$ . 此时, SWIS 上、中、下基质层  $N_2O$  产生量如图 5 所示.

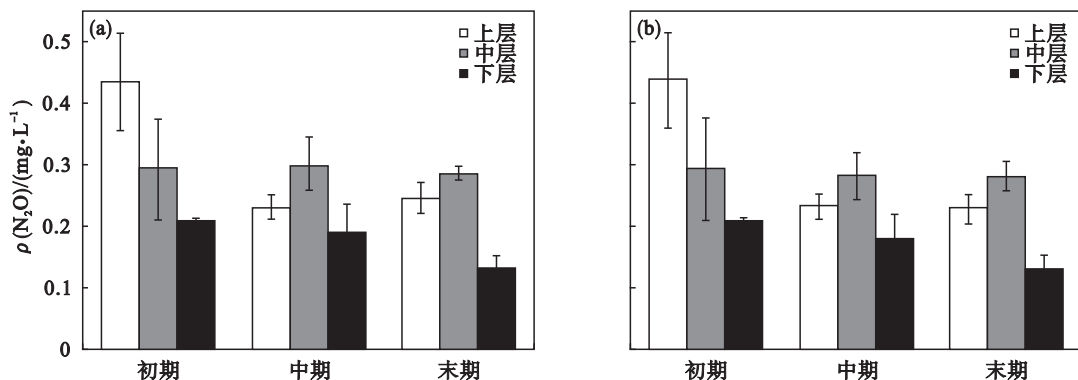


图 5 基质层不同深度  $N_2O$  质量浓度  
Fig. 5  $N_2O$  concentration at different depths

(a)—进水期; (b)—落干期.

进水初期, 上层  $N_2O$  浓度是下层浓度的 2 倍. 在水的重力作用下, 下层土壤达到最大含水率, 而透气性良好的上层土壤有利于硝化反应进行. 随着运行时间的延长, 上层和下层  $N_2O$  浓度均出现下降, 下层  $N_2O$  浓度下降显著. 初步分析认为, 随着溶解氧浓度下降,  $NO_2^- - N$  的累积激活了硝化菌的反硝化作用<sup>[6]</sup>. 然而, 随着落干时间的延长, 中层溶解氧浓度逐级恢复, 刺激  $N_{os}$  还原  $N_2O$ . 因此, 在落干期, 下层  $N_2O$  浓度呈下降趋势. 总体来看, SWIS 上层  $N_2O$  浓度在不同运行期均显著高于下层,  $N_2O$  产生量主要来源于上层的硝化过程.

### 3 结 论

1) 在基质层中添加过量碳源削弱 SWIS 脱氮能力. COD、氨氮和总氮去除率分别降低 10.9%、19.5% 及 24% (当  $w_{OM} = 2.0\% \rightarrow w_{OM} = 9.5\%$ ).

2) 添加碳源有利于降低  $N_2O$  产生量和转化率.  $N_2O$  产率降低了  $2.77 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ , 转化率降低了 80% (当  $w_{OM} = 2.0\% \rightarrow w_{OM} = 9.5\%$ ). 综合考虑 SWIS 脱氮效果和  $N_2O$  释放量, 建议基质层有机碳范围  $2.0\% < w_{OM} < 4.5\%$ .

3) SWIS 中  $N_2O$  产生是生物硝化过程和反硝化过程共同作用的结果, 其产生量主要来源于系统上层的硝化过程, 且随着运行时间的延长, 产生量逐渐降低至趋平.

### 参考文献:

- [1] Susilawati H L, Setyanto P, Ariani M, et al. Influence of water depth and soil amelioration on greenhouse gas emissions from peat soil columns [J]. *Soil Science and Plant Nutrition*, 2016, 62(1): 57–68.
- [2] Pengthamkeerati P, Modtad A. Nitrification inhibitor effects on nitrous oxide emission, nitrogen transformation, and maize (*Zea mays* L.) yield in loamy sand soil in Thailand [J]. *Communications in Soil Science and Plant Analysis*, 2016, 47(7): 875–887.
- [3] Jia W L, Zhang J, Li P Z, et al. Nitrous oxide emissions from surface flow and subsurface flow constructed wetland microcosms: Effect of feeding strategies [J]. *Ecological Engineering*, 2011, 37(11): 1815–1821.
- [4] Mander Ü, Maddison M, Soosaar K, et al. The impact of a pulsing water table on wastewater purification and greenhouse gas emission in a horizontal subsurface flow constructed wetland [J]. *Ecological Engineering*, 2015, 80(7): 69–78.
- [5] Bakken L R, Bergaust L, Liu B, et al. Regulation of denitrification at the cellular level: a clue to the understanding of  $N_2O$  emissions from soils [J]. *Philosophical Transactions of the Royal Society*, 2012, 367(1593): 1226–1234.

(下转第 891 页)