

## 猪场污水高氨氮负荷处理过程中温室气体的排放特征

杨一铭, 王恩全, 隋倩雯, 陈梅雪, 郑蕊, 魏源送

### 引用本文:

杨一铭, 王恩全, 隋倩雯, 陈梅雪, 郑蕊, 魏源送. 猪场污水高氨氮负荷处理过程中温室气体的排放特征[J]. 农业环境科学学报, 2024, 43(3): 688-695.

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.11654/jaes.2023-0310>

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

#### 有机无机肥配施对苹果园温室气体排放的影响

马艳婷, 赵志远, 冯天宇, SOMPOUVISETThongsouk, 孔旭, 翟丙年, 赵政阳

农业环境科学学报. 2021, 40(9): 2039-2048 <https://doi.org/10.11654/jaes.2020-1477>

#### 畜禽粪便堆肥过程中碳氮损失及温室气体排放综述

袁京, 刘燕, 唐若兰, 马若男, 李国学

农业环境科学学报. 2021, 40(11): 2428-2438 <https://doi.org/10.11654/jaes.2021-0986>

#### 巢湖圩区再生稻田甲烷及氧化亚氮的排放规律研究

王天宇, 樊迪, 宋开付, 张广斌, 徐华, 马静

农业环境科学学报. 2021, 40(8): 1829-1838 <https://doi.org/10.11654/jaes.2021-0181>

#### 双氰胺减少铵态氮肥施用后潮土 $N_2O$ 排放的机制

马兰, 李晓波, 马舒坦

农业环境科学学报. 2021, 40(12): 2801-2808 <https://doi.org/10.11654/jaes.2021-0459>

#### 厢作免耕下生态种养对稻田 $CH_4$ 和 $N_2O$ 排放的影响

陈璐, 陈灿, 黄璜, 任勃, 王忍, 梁玉刚, 周晶

农业环境科学学报. 2021, 40(6): 1354-1365 <https://doi.org/10.11654/jaes.2021-0015>



关注微信公众号, 获得更多资讯信息

杨一铭, 王恩全, 隋倩雯, 等. 猪场污水高氨氮负荷处理过程中温室气体的排放特征[J]. 农业环境科学学报, 2024, 43(3): 688–695.

YANG Y M, WANG E Q, SUI Q W, et al. Greenhouse gas emissions during the treatment of swine wastewater with high ammonia[J]. Journal of Agro-Environment Science, 2024, 43(3): 688–695.



开放科学 OSID

# 猪场污水高氨氮负荷处理过程中温室气体的排放特征

杨一铭<sup>1,2,3</sup>, 王恩全<sup>1,2,3</sup>, 隋倩雯<sup>1,3\*</sup>, 陈梅雪<sup>1,3\*</sup>, 郑蕊<sup>4</sup>, 魏源送<sup>1,2,3</sup>

(1. 中国科学院生态环境研究中心环境模拟与污染控制国家重点联合实验室, 北京 100085; 2. 中国科学院大学, 北京 100049; 3. 中国科学院生态环境研究中心水污染控制实验室, 北京 100085; 4. 安平县弘嘉环保科技有限公司, 河北 衡水 053600)

**摘要:**为探讨畜禽养殖污水高氨氮负荷处理过程中的温室气体排放, 本试验对缺氧/好氧(A/O)中试工程处理猪场沼液过程进行采样, 对温室气体特性及影响因素进行了监测分析。结果表明: A/O工艺CH<sub>4</sub>平均排放通量为1 454.76 mg·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>, 平均排放因子为0.85%, 缺氧池排放占比最高, 占总排放量的56.0%; N<sub>2</sub>O平均排放通量为101.25 mg·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>, 平均排放因子为0.64%, 好氧池排放占比最高, 占总排放量的87.1%。NO<sub>2</sub>-N的积累会促使N<sub>2</sub>O排放, 但对CH<sub>4</sub>排放有抑制作用。硝化细菌和反硝化细菌的反硝化反应可能是猪场污水处理过程中N<sub>2</sub>O的主要排放途径。

**关键词:**温室气体排放; 畜禽养殖污水; 污水处理; 甲烷; 氧化亚氮; 高氨氮负荷

中图分类号: X713; X701 文献标志码: A 文章编号: 1672-2043(2024)03-0688-08 doi:10.11654/jaes.2023-0310

## Greenhouse gas emissions during the treatment of swine wastewater with high ammonia

YANG Yiming<sup>1,2,3</sup>, WANG Enquan<sup>1,2,3</sup>, SUI Qianwen<sup>1,3\*</sup>, CHEN Meixue<sup>1,3\*</sup>, ZHENG Rui<sup>4</sup>, WEI Yuansong<sup>1,2,3</sup>

(1. State Key Joint Laboratory of Environment Simulation and Pollution Control, Research Center for Eco-Environment Sciences, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100085, China; 2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China; 3. Laboratory of Water Pollution Control Technology, Research Center for Eco-Environment Sciences, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100085, China; 4. Anping Hongjia Environmental Protection Technology Co., Ltd., Hengshui 053600, China)

**Abstract:** To explore the greenhouse gas emissions during livestock wastewater treatment processes under a high ammonia loading rate, this study sampled the anoxic/aerobic (A/O) process during the treatment of swine digestate at the pilot scale. We monitored the characteristics of GHG emissions and analyzed the influencing factors. The results indicated that the CH<sub>4</sub> emission flux of the A/O process was 1 454.76 mg·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup> and the emission factor was 0.85%. The largest source of CH<sub>4</sub> emissions was the anoxic tank, accounting for 56.0% of the total emissions. The N<sub>2</sub>O emission flux was 101.25 mg·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup> and the N<sub>2</sub>O emission factor was 0.64%. The largest source of N<sub>2</sub>O emissions was the aerobic tank, accounting for 87.1%. An accumulation of NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N contributes to N<sub>2</sub>O emissions but inhibits CH<sub>4</sub> emissions. The denitrification reactions of nitrifying bacteria and denitrifying bacteria may be the main emission pathways of N<sub>2</sub>O during the treatment of swine wastewater.

**Keywords:** greenhouse gas emissions; livestock wastewater; wastewater treatment; methane; nitrous oxide; high ammonia loading rate

收稿日期: 2023-04-20 录用日期: 2023-08-21

作者简介: 杨一铭(1999—), 女, 河北沧州人, 硕士研究生, 从事污水脱氮温室气体排放研究。E-mail: yangyiming21@mailsucas.ac.cn

\*通信作者: 隋倩雯 E-mail: qwsui@rcees.ac.cn; 陈梅雪 E-mail: mxchen@rcees.ac.cn

基金项目: 中国农业科学院国际农业科学计划项目(CAAS-ZDRW202110); 中国科学院生态环境研究中心自主部署项目(RCEES-TDZ-2021-26); 国家重点研发计划项目(2018YFD1100600, 2021YFC3200601); 中国科学院青年创新促进会项目(2021042)

**Project supported:** International Science & Technology Innovation Program of Chinese Academy of Agricultural Sciences (CAAS-ZDRW202110); Self-Deployed Project of Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences (RCEES-TDZ-2021-26); National Key Research and Development Program of China (2018YFD1100600, 2021YFC3200601); The Youth Innovation Promotion Association of Chinese Academy of Sciences (2021042)

畜禽养殖污水中含有浓度较高的有机物和氮污染物,其污水储存与处理过程是重要的温室气体排放源。养殖污水处理过程温室气体排放是农业活动中畜禽和粪便管理温室气体排放的组成部分。由于养殖污水产生量大、排放集中,规模化养殖场较多采用硝化、反硝化等污水处理技术去除常规污染物如化学需氧量(COD)、氨氮等,实现污水处理后排放或回用。养殖废弃物管理过程温室气体( $\text{CH}_4$ 和 $\text{N}_2\text{O}$ )排放核算主要遵循《2006年IPCC国家温室气体清单编制指南》,并参考粪便管理产生的 $\text{CH}_4$ 和 $\text{N}_2\text{O}$ 直接排放的缺省排放因子。由于养殖污水水质差异大,污水处理工艺是影响温室气体排放的重要影响因素<sup>[1]</sup>,为了更准确地核算养殖污水处理过程中温室气体排放情况,需对污水水质和处理工艺开展排放因子的试验分析。

有关研究表明,污水处理过程中的 $\text{CH}_4$ 排放因子为0.06%~25.00%,主要受不同处理工艺的影响<sup>[1]</sup>,厌氧工艺(Anaerobic ammonia oxidation, Anammox)的 $\text{CH}_4$ 排放因子较高<sup>[2]</sup>,而以好氧和非生物处理为主的污水处理过程中 $\text{CH}_4$ 的排放因子通常较低<sup>[3]</sup>。有研究<sup>[4]</sup>针对不同处理工艺建立相应 $\text{CH}_4$ 排放因子体系,认为我国污水处理厂 $\text{CH}_4$ 平均排放因子为0.78%。污水处理过程是重要的 $\text{N}_2\text{O}$ 排放源,硝化反应、反硝化反应是 $\text{N}_2\text{O}$ 产生的主要生物反应过程<sup>[4]</sup>, $\text{N}_2\text{O}$ 排放约占进水氮负荷的0~14.60%<sup>[5]</sup>。在畜禽养殖污水方面,Wang等<sup>[6-7]</sup>开展了猪场厌氧消化液储存过程中 $\text{CH}_4$ 和 $\text{N}_2\text{O}$ 等温室气体排放的研究,结果表明受进水污染物浓度、溶解氧(Dissolved oxygen, DO)、pH等因素影响,猪场污水储存过程中 $\text{CH}_4$ 排放因子为0.1%~1.9%, $\text{N}_2\text{O}$ 排放因子(占进水TN)为0.04%~2.26%。现有污水处理过程温室气体排放研究主要集中在城镇水务行业,而畜禽养殖污水生物处理过程 $\text{CH}_4$ 和 $\text{N}_2\text{O}$ 的排放特性报道较少,因此难以指导养殖污水处理过程温室气体排放的核算。

畜禽养殖污水中含有的大量氨氮,增加了传统生物脱氮工艺处理成本,而厌氧氨氧化工艺由于具有运行能耗低、无需外加碳源等优点,在高氨氮污水生物脱氮方面受到广泛关注<sup>[8]</sup>。高氨氮负荷会产生较高浓度的游离氨(Free ammonia, FA),从而抑制亚硝酸盐氧化菌(Nitrite oxidizing bacteria, NOB),有利于厌氧氨氧化反应进行。厌氧氨氧化反应由胍( $\text{N}_2\text{H}_4$ )脱氢产生 $\text{N}_2$ ,理论上厌氧氨氧化反应不产生 $\text{N}_2\text{O}$ ,是一种低温室气体排放特性的污水处理工艺<sup>[9]</sup>。在氮转化复合工艺中,影响 $\text{N}_2\text{O}$ 排放的因素需深入研究。以

往研究较多在实验室小试装置中开展<sup>[4-5]</sup>。但受污水处理厂运行控制条件以及监测条件限制等的影响,对实际污水处理厂的现场监测研究相对较少,所获得的温室气体排放监测数据也比较缺乏。

针对高氨氮畜禽养殖污水处理过程温室气体排放底数不清的问题,选取以缺氧/好氧(A/O)作为代表的典型污水处理工艺,以猪场厌氧消化液为处理对象,对河北衡水某猪场污水处理中试装置开展了采样监测,该装置存在一定的厌氧氨氧化脱氮效果。本试验数据将为高氨氮养殖污水过程温室气体排放提供参数支持。

## 1 材料与方法

### 1.1 猪场污水处理装置和采样点概述

本试验选取河北省衡水市某猪场的污水处理中试装置开展现场试验。该装置采用A/O工艺处理猪场厌氧消化液,采用推流模式,污水依次经过调节池、缺氧池、好氧池、二沉池,实现碳、氮污染物的去除。装置长6 m、宽2 m,处理规模 $5\sim 10\text{ m}^3\cdot\text{d}^{-1}$ ,进水COD和氨氮负荷分别为 $1.0\sim 1.5\text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{d}^{-1}$ 和 $0.26\sim 0.30\text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{d}^{-1}$ 。其中缺氧池池容 $2.20\text{ m}^3$ ( $1.0\text{ m}\times 1.0\text{ m}\times 2.2\text{ m}$ )、好氧池池容 $13.20\text{ m}^3$ ( $3.0\text{ m}\times 2.0\text{ m}\times 2.2\text{ m}$ ),好氧池末端向缺氧池前段回流比为150%~200%,由二沉池至缺氧池的污泥回流比为100%~150%。现场监测期间,水温在 $25\text{ }^\circ\text{C}$ 左右。装置中活性污泥具有厌氧氨氧化活性,为 $0.04\text{ kg N}\cdot\text{kg}^{-1}\text{ MLSS}\cdot\text{d}^{-1}$ 。

由于构筑物池体水面面积较小,调节池、缺氧池和二沉池均设置1个采样点,置于池体中心;好氧池设置两个采样点,分别置于池体入水口处和池体中心。

本次试验时间为2022年9月5—7日,根据污水在反应器内的流向,共设置5个测试点位,为增加采集气体的代表性,尽可能增加集气罩的覆盖面积和采集时长。集气罩底面积约占单一池体液面面积的10%,每个点位每日采集3个平行样品。每日每个点位采样时间固定,总采样时间在7:00—19:00,每个集气罩测定时长约2 h。水质样品采集后当天检测,温室气体样品在采集后一周内进行分析检测。

### 1.2 温室气体采样和分析方法

#### 1.2.1 气态温室气体的采样方法

动态箱气体采样布置图如图1所示。气体样品采集采用PVC材质漂浮型气体通量罩,采气罩内空间为正方体,尺寸为 $0.24\text{ m}\times 0.24\text{ m}\times 0.24\text{ m}$ ,取样面积

为0.057 6 m<sup>2</sup>;采气罩凭借密闭环绕的漂浮物(PP管)漂浮于水面上,由采气罩上的定位孔将其固定于水面的采样点,尽量减小水面波动所导致的采气罩晃动。将采气罩漂浮于采样点上,采用动态箱法进行气体采集<sup>[3]</sup>,利用气泵将气体从采气罩进气口鼓入采气罩内,采气罩出气口处连接气管。采用湿式流量计(北京金志业仪器设备有限公司,LMF-2)对出气口气体流量进行测定,并用采气袋采集气体。

动态箱法气体排放通量的计算公式如式(1):

$$F=(C_2-C_1)/A \times Q \quad (1)$$

式中: $F$ 为气体排放通量,mg·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>;  $A$ 为覆盖液体面积,m<sup>2</sup>;  $Q$ 为气体外溢流量,m<sup>3</sup>·h<sup>-1</sup>;  $C_2$ 为集气罩出气口的气体浓度,mg·m<sup>-3</sup>;  $C_1$ 为环境气体浓度,mg·m<sup>-3</sup>。

气体质量浓度和体积分数的换算按式(2)计算,排放因子按式(3)和式(4)计算:

$$C = \frac{P\omega}{RT} \cdot M \quad (2)$$

$$Q_e = C \cdot Q_g \quad (3)$$

$$\omega_e = Q_e / (c_{in} \cdot Q_{in}) \quad (4)$$

式中: $C$ 为采样点处气体排放浓度,mg·L<sup>-1</sup>;  $\omega$ 为气体的体积分数,10<sup>-6</sup>;  $P$ 为采样时的大气压强,Pa;  $T$ 为采

样时的气温,K;  $R$ 为比例系数,8.314 J·mol<sup>-1</sup>·K<sup>-1</sup>;  $M$ 为气体的摩尔质量,以氮计,g·mol<sup>-1</sup>;  $Q_e$ 为气体排放量,mg·h<sup>-1</sup>;  $Q_g$ 为好氧池气体溢出流量,m<sup>3</sup>·h<sup>-1</sup>;  $\omega_e$ 为CH<sub>4</sub>或N<sub>2</sub>O的排放因子,%;  $c_{in}$ 为进水中COD或NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N的浓度,mg·L<sup>-1</sup>;  $Q_{in}$ 为进水流量,m<sup>3</sup>·h<sup>-1</sup>。

### 1.2.2 溶解态气体采样和分析方法

溶解态气体通过顶空平衡法进行测定<sup>[10]</sup>。采用60 mL医用注射器,从反应器中取30 mL水样,再抽取30 mL高纯氮气,在注射器中使水样上方形成气室,并用三通封闭注射器顶部。在室温下将注射器剧烈振荡5 min,使溶解性气体析出进入注射器上部,静置10 min,使气液两相达到平衡,最后将注射器上部的气体推入12 mL真空瓶,利用气相色谱测定浓度。

溶解态气体的计算公式如式(5):

$$C_w = [(C_{A1} - C_A) \times V_{A1} + \alpha \times C_{A1} \times V_w] / V_w \quad (5)$$

式中: $C_w$ 为水体中溶解的所测气体的浓度,μmol·L<sup>-1</sup>;  $C_{A1}$ 为实验中达到平衡时采样瓶空气样中所测气体的浓度,μmol·L<sup>-1</sup>;  $C_A$ 为采样时同地点大气中所测气体的浓度,μmol·L<sup>-1</sup>;  $V_{A1}$ 为采样瓶中顶空气体的体积,L;  $V_w$ 为水样的体积,L;  $\alpha$ 为布氏系数(Bunsen coefficient)

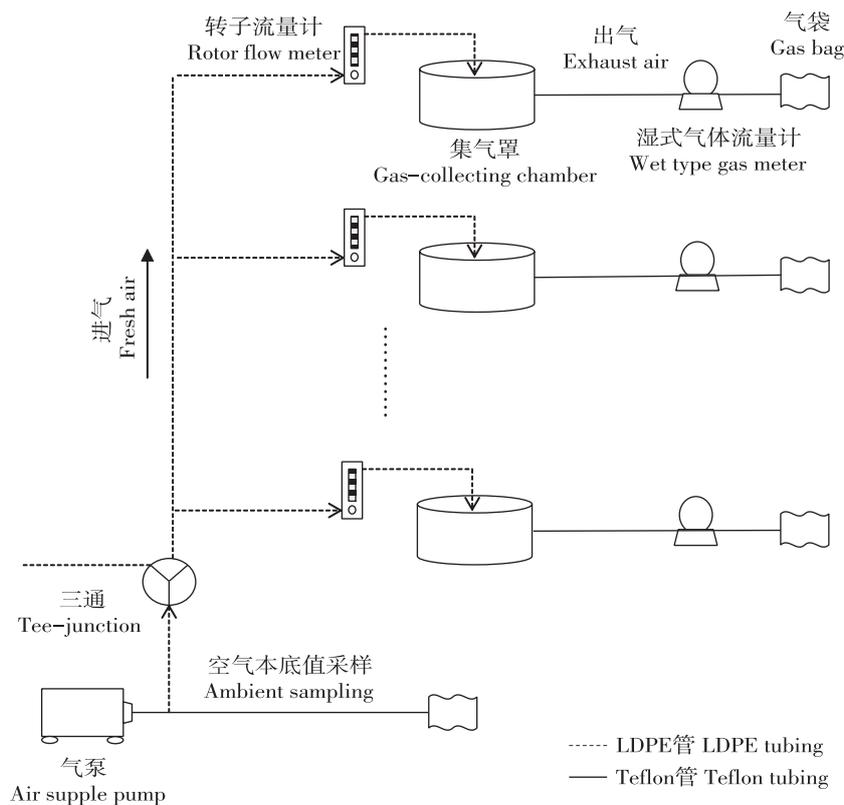


图1 动态箱气体采样试验布置图

Figure 1 Dynamic chamber gas sampling arrangement diagram

cient), mol·L<sup>-1</sup>。

### 1.3 气体和水质测试方法

采用安捷伦 GC-7890A 气相色谱仪进行 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O 的分析测定, CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O 的检出限分别为 0.36 mg·m<sup>-3</sup> 和 0.06 mg·m<sup>-3</sup>, 并采用 Thermo 17i 氨分析仪对气体中 NO 和 NH<sub>3</sub> 浓度进行测试, NO 和 NH<sub>3</sub> 的检出限分别为 0.01 mg·m<sup>-3</sup> 和 0.008 mg·m<sup>-3</sup>。

水质指标中, pH 采用 pH 计 (FE20, Mettler Toledo, 上海) 进行测定; DO 及温度使用手持多参数便携仪 (WTW, Multi 340i, 德国) 测定; 全部水样经过 0.45 μm 的滤头过滤后在紫外分光仪 (TU-1901, China) 中进行测定, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N、NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 均采用《水和废水监测分析方法》(第四版) 中的方法, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 采用纳氏试剂光度法测定, NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N 采用 N-(1-萘基)-乙二胺光度法测定, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 采用紫外分光光度法测定; COD 采用快速消解法, 在 DR6000 光谱仪 (HACH, USA) 中测定。

游离氨浓度的计算如式(6)<sup>[11]</sup>:

$$C_{FA} = \frac{17}{14} \times \frac{c_{NH_4^+} \times 10^{pH}}{K_a/K_w + 10^{pH}} \quad (6)$$

式中:  $C_{FA}$  为游离氨浓度, mg·L<sup>-1</sup>;  $c_{NH_4^+}$  为氨氮浓度, mg·

L<sup>-1</sup>;  $K_a$  为氨的电离常数;  $K_w$  为水的电离常数。

### 1.4 统计分析

采用 Excel 2010、Origin 8.0、SPSS 25.0 进行数据的处理和分析。采用 Canoco 5 进行 PCA、RDA 分析, 探讨气体排放量与各水质参数之间的关系。

## 2 结果与分析

### 2.1 水质参数浓度变化

猪场污水在 A/O 工艺处理各阶段的水质参数如图 2 所示。COD、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 平均进水浓度分别为 3 126.67、1 294.00 mg·L<sup>-1</sup>, 出水中 COD、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 的浓度分别为 1 386.67、714.33 mg·L<sup>-1</sup>。整个运行阶段, COD、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 的平均去除率分别为 55.18%、44.72%。

由于装置高负荷运行, COD 发生了部分去除。为促进厌氧氨氧化发生, 中试装置采用高氨氮负荷、低 DO 条件运行。FA 和 DO 是抑制亚硝酸盐氧化细菌 (Nitrite oxidizing bacteria, NOB) 的重要因素<sup>[12]</sup>。好氧池 DO 浓度为 0.10~0.25 mg·L<sup>-1</sup>, 通过公式(6)计算, 缺氧池、好氧池中 FA 浓度分别为 149.78、106.34 mg·L<sup>-1</sup>。在好氧池中发生了 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 的去除和 NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N 的积累。NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N 是由氨氧化细菌 (Ammonia oxidizing bacteria, AOB) 产生, 根

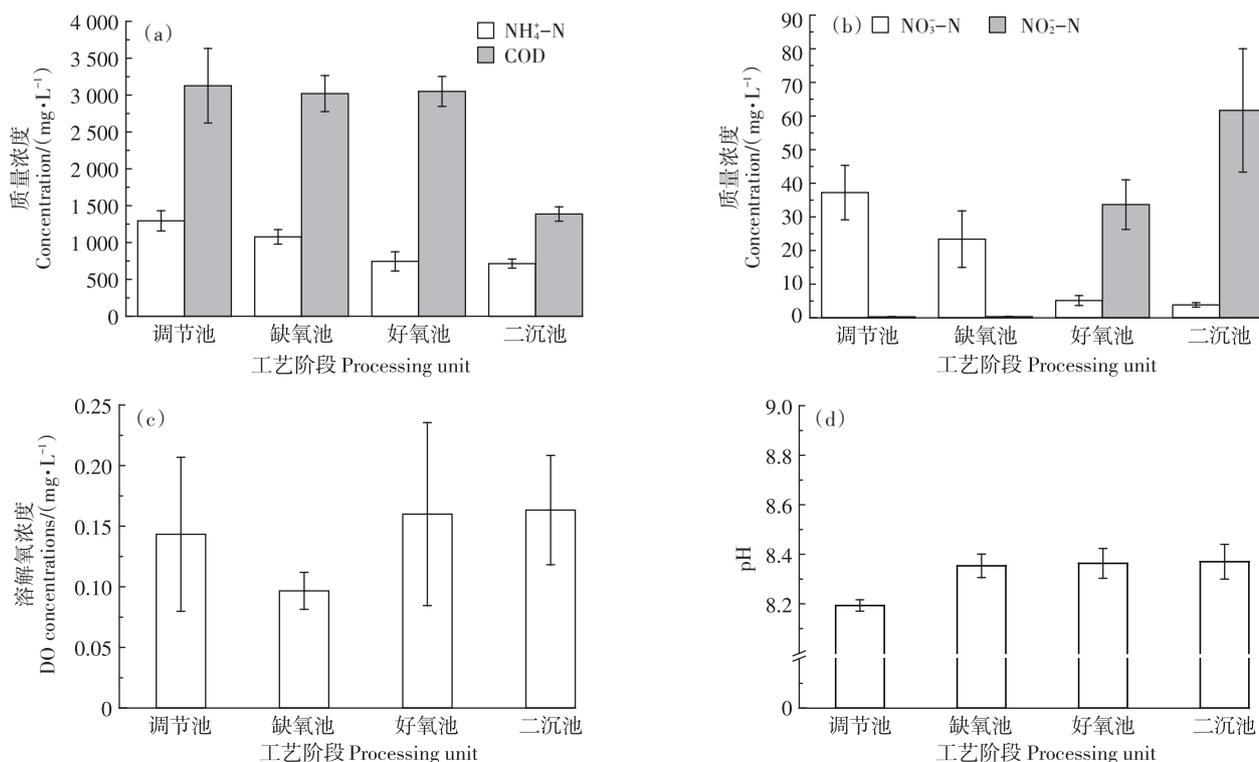


图2 猪场污水在 A/O 工艺处理各阶段的水质参数

Figure 2 Water quality parameters of pig farm sewage treated by A/O process

据Chen等<sup>[13]</sup>的研究,AOB比NOB对环境的适应性更强,当出现环境刺激受到抑制时,AOB比NOB恢复得更快,导致出现NO<sub>2</sub>-N的积累。分析推测,低DO和高FA是导致NOB抑制的主要因素。

### 2.2 温室气体的排放特征

气态CH<sub>4</sub>和溶解态CH<sub>4</sub>的排放情况如图3所示,两者变化规律较为相似。不同池体气体排放分布的PCA如图4a所示,调节池和缺氧池监测到较高的CH<sub>4</sub>排放量,两池体中气态CH<sub>4</sub>排放通量分别为549.61、835.36 mg·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>,溶解态CH<sub>4</sub>的浓度分别为14 080.32、8 474.40 mg·m<sup>-3</sup>。好氧池和二沉池的气态CH<sub>4</sub>的排放通量和溶解态CH<sub>4</sub>的浓度较低,好氧池和二沉池的气态CH<sub>4</sub>排放通量分别为32.39、37.40 mg·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>,溶解态CH<sub>4</sub>的浓度分别为678.08、540.76 mg·m<sup>-3</sup>。各处理单元气态CH<sub>4</sub>的排放量从高到低依次为缺氧池>调节池>好氧池入水口>二沉池>好氧池中部;缺氧池的气

态CH<sub>4</sub>排放量最高,占总排放量的56.0%。各处理单元溶解态CH<sub>4</sub>浓度从高到低依次为调节池>缺氧池>好氧池>二沉池。从数据监测分析来看,调节池和缺氧池是CH<sub>4</sub>产生和排放的主要位点。经测算,采样监测期间的平均CH<sub>4</sub>排放因子为0.85%,与Osada等<sup>[14]</sup>在猪场污水监测中所获得的CH<sub>4</sub>排放因子0.91%较为接近。

综上所述,缺氧单元的CH<sub>4</sub>排放通量大于好氧单元,这是因为缺氧池具有较高的COD且为厌氧环境容易产生CH<sub>4</sub>。而好氧池中底部曝气,DO浓度高于缺氧池,该环境不易产生CH<sub>4</sub>。溶解态CH<sub>4</sub>的浓度趋势呈现与气态CH<sub>4</sub>排放通量相似的结果,调节池和缺氧池的溶解态CH<sub>4</sub>浓度远高于好氧池和二沉池,该现象与Wang等<sup>[15]</sup>对A/A/O运行工艺的污水厂监测的结果相同,缺氧池和调节池的DO浓度较低,低DO浓度有利于CH<sub>4</sub>的生成,而好氧池DO浓度高且充分的

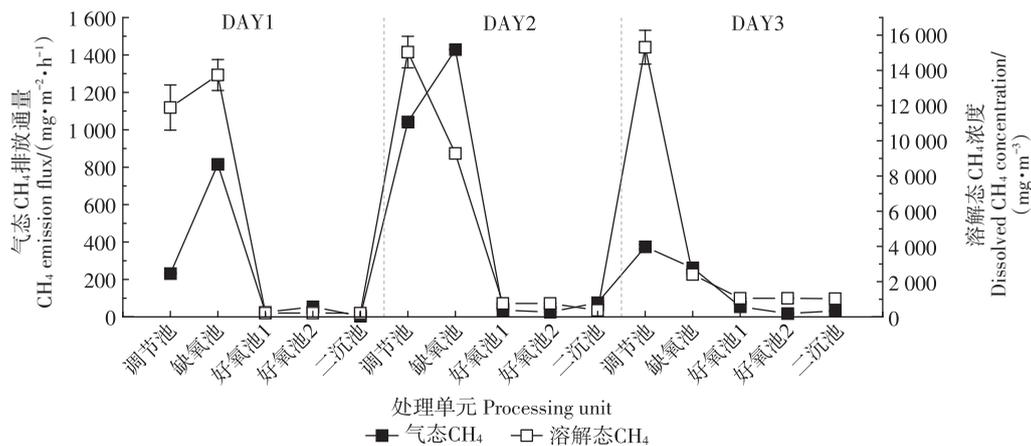


图3 气态CH<sub>4</sub>排放通量和溶解态CH<sub>4</sub>浓度

Figure 3 CH<sub>4</sub> emission flux and dissolved CH<sub>4</sub> concentration in each processing unit

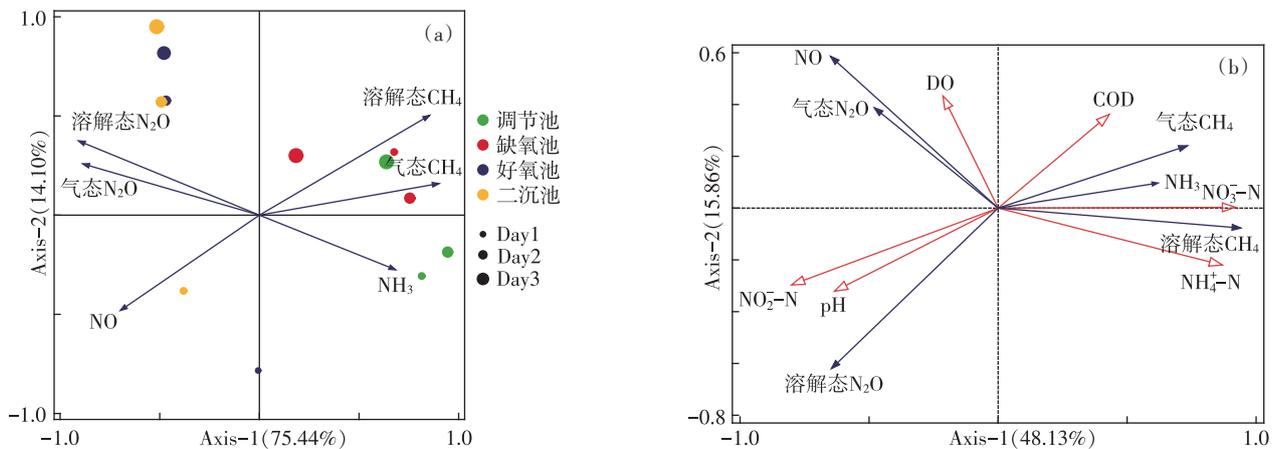


图4 气体排放分布的PCA分析(a)及受水质参数影响的RDA分析(b)

Figure 4 PCA analysis of gas emission distribution(a) and RDA analysis influenced by water quality parameters(b)

曝气使得水中溶解态 $\text{CH}_4$ 被氧化去除或被吹脱至空气中,使得后续二沉池中溶解态 $\text{CH}_4$ 也呈现较低的浓度。

气态 $\text{N}_2\text{O}$ 、 $\text{NO}$ 和溶解态 $\text{N}_2\text{O}$ 的排放情况如图5所示。尽管同步监测了 $\text{NH}_3$ 排放,但所监测到的 $\text{NH}_3$ 排放量很少,为 $0\sim 18.91\text{ mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ ,Osada等<sup>[14]</sup>在对猪场污水处理过程的监测中也得到了相似的结果,认为 $\text{NH}_3$ 排放量在研究中可忽略不计。与 $\text{CH}_4$ 排放特征不同,调节池和缺氧池 $\text{N}_2\text{O}$ 的排放量较低,调节池和缺氧池的气态 $\text{N}_2\text{O}$ 排放通量分别为 $0.59$ 、 $4.18\text{ mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ ,溶解态 $\text{N}_2\text{O}$ 的浓度分别为 $3.86$ 、 $33.42\text{ mg}\cdot\text{m}^{-3}$ 。好氧池和二沉池的气态 $\text{N}_2\text{O}$ 的排放通量和溶解态的 $\text{N}_2\text{O}$ 浓度较高,好氧池和二沉池的气态 $\text{N}_2\text{O}$ 排放通量分别为 $53.89$ 、 $42.59\text{ mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ ,溶解态 $\text{N}_2\text{O}$ 的浓度分别为 $1\ 449.05$ 、 $2\ 297.71\text{ mg}\cdot\text{m}^{-3}$ 。各处理单元气态 $\text{N}_2\text{O}$ 的排放通量从高到低依次为好氧池>二沉池>缺氧池>调节池;由于好氧池的排放通量较高且池体面积较大,好氧池的气态 $\text{N}_2\text{O}$ 排放通量最高,占总排放量的87.1%。各处理单元溶解态 $\text{N}_2\text{O}$ 浓度从高到低依次为二沉池>好氧池>缺氧池>调节池。研究表明,好氧池和二沉池是A/O工艺 $\text{N}_2\text{O}$ 产生和排放的主要工艺单元。

调节池和缺氧池的 $\text{N}_2\text{O}$ 排放量较少,原因可能是由于COD充足,反硝化反应较好地去除了 $\text{N}_2\text{O}$ ,Gruber等<sup>[16]</sup>通过同位素技术发现在底物充足的缺氧区会发生异养菌反硝化反应和硝化菌反硝化反应还原 $\text{N}_2\text{O}$ ,因此不易发生 $\text{N}_2\text{O}$ 的积累,另外该部分污水处理过程中扰动较小也不易发生 $\text{N}_2\text{O}$ 的逸出。污水进入好氧池后,溶解态 $\text{N}_2\text{O}$ 浓度升高,相应地,其气态 $\text{N}_2\text{O}$ 排放通量也逐渐升高,受曝气吹脱作用的影响<sup>[17]</sup>,好氧池产生较高的气态 $\text{N}_2\text{O}$ 排放通量,为 $53.89\text{ mg}\cdot\text{m}^{-2}$ ·

$\text{h}^{-1}$ 。细菌反硝化反应是重要的 $\text{N}_2\text{O}$ 排放源,较高的 $\text{NO}_2^--\text{N}$ 浓度促使硝化细菌反硝化反应发生,通常认为 $\text{NO}_2^--\text{N}$ 的积累会使AOB以 $\text{NO}_2^--\text{N}$ 代替氧气作为末端电子受体的硝化反硝化活性增加<sup>[18]</sup>,导致较多的 $\text{N}_2\text{O}$ 排放。高 $\text{NO}_2^--\text{N}$ 浓度会增加硝化细菌反硝化和异养菌反硝化途径的 $\text{N}_2\text{O}$ 排放<sup>[16]</sup>。有研究<sup>[19]</sup>表明,厌氧氨氧化反应器的 $\text{N}_2\text{O}$ 排放过程中,73%的 $\text{N}_2\text{O}$ 是通过硝化菌反硝化和反硝化菌反硝化途径产生的,即使在好氧池中由于氧传递效率的原因在污泥内部仍存在厌氧环境发生反硝化反应<sup>[16]</sup>。本试验中,二沉池中仍存在较高的 $\text{N}_2\text{O}$ 的积累与释放现象,这可能与 $\text{NO}_2^--\text{N}$ 浓度较高有关<sup>[20-22]</sup>,因此应加强二沉池气体排放的监测。

$\text{NO}$ 作为反硝化途径中 $\text{N}_2\text{O}$ 的前体物质,从图5可以看出其排放趋势与气态 $\text{N}_2\text{O}$ 排放趋势相似,主要发生在好氧池和二沉池阶段,表明好氧池和二沉池均存在不充分的反硝化作用。据报道<sup>[23]</sup>,厌氧/好氧交替环境易促使硝化菌反硝化过程中的 $\text{N}_2\text{O}$ 产生,因此推测二沉池阶段产生的大量溶解态 $\text{N}_2\text{O}$ 极有可能来自于硝化细菌反硝化过程。

经测算,采样监测期间的 $\text{N}_2\text{O}$ 平均排放因子为0.64%。Osada等<sup>[14]</sup>监测猪场污水处理过程中的 $\text{N}_2\text{O}$ 排放因子为0.30%~9.10%。Kampschreue等<sup>[5]</sup>研究的污水厂中的 $\text{N}_2\text{O}$ 排放因子为0~14.60%。本试验测得的 $\text{N}_2\text{O}$ 排放因子与文献报道的数值范围一致,由于文献中 $\text{N}_2\text{O}$ 排放时空变异大,数据范围宽,导致 $\text{N}_2\text{O}$ 排放估算误差大,通过本试验更明确了猪场污水处理过程中 $\text{N}_2\text{O}$ 排放因子的取值范围。本试验中 $\text{N}_2\text{O}$ 的排放因子较低,可能是受环境温度的影响。Paudel等<sup>[24]</sup>的研究发现温度对 $\text{N}_2\text{O}$ 排放的影响是十分显著的,当

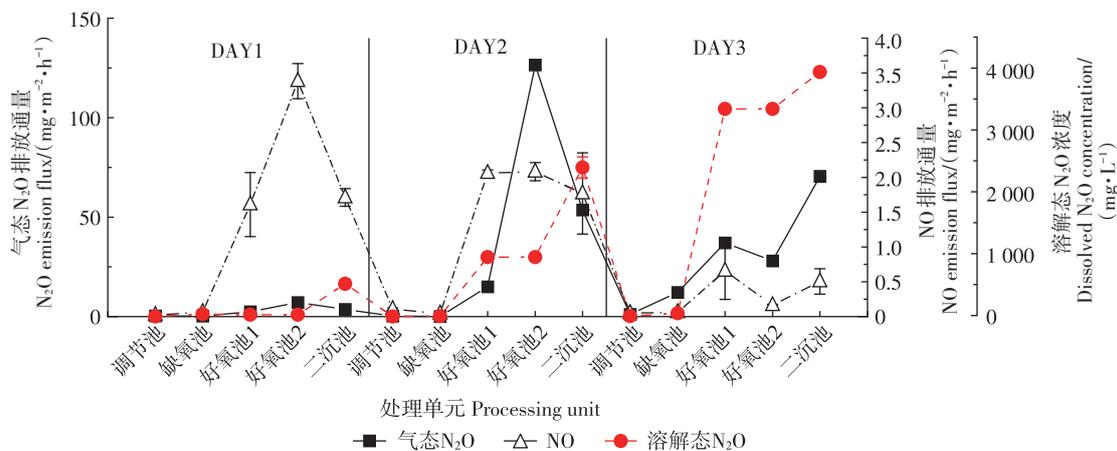


图5  $\text{NO}$ 和 $\text{N}_2\text{O}$ 排放情况

Figure 5  $\text{NO}$ ,  $\text{N}_2\text{O}$  emission flux and dissolved  $\text{N}_2\text{O}$  concentration in each processing unit

温度从24℃降至15℃时, N<sub>2</sub>O的排放量从1.11 mg·d<sup>-1</sup>升高至1.82 mg·d<sup>-1</sup>。温度越高N<sub>2</sub>O的排放量越少, 在Holtan-Hartwig等<sup>[25]</sup>的研究中也出现了相同现象, 这可能是由于相较于N<sub>2</sub>O生成酶, N<sub>2</sub>O还原酶受低温的影响更显著。本次采样为9月份, 温度较高(25℃), 因此N<sub>2</sub>O排放因子较低。

### 2.3 水质参数对温室气体排放的影响

水质参数与温室气体排放因子之间的斯皮尔曼相关性分析如表1所示, RDA分析如图4b所示。CH<sub>4</sub>排放因子与DO浓度之间未存在显著的相关性, 这可能是由于采样期间各池的DO浓度差别不大, 但溶解态CH<sub>4</sub>浓度与DO浓度的相关系数为-0.635, 说明DO对CH<sub>4</sub>的生成仍存在显著影响, 由于产甲烷菌都是严格厌氧菌, 氧气的存在会抑制水中CH<sub>4</sub>的形成和排放<sup>[15]</sup>。此外, NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N与CH<sub>4</sub>排放因子具有负相关关系, NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N可以有效抑制厌氧污水处理过程中CH<sub>4</sub>的产生<sup>[26]</sup>。CH<sub>4</sub>排放因子与pH没有显著相关性, 该试验期间各反应池的pH相对稳定, 所有处理单元的pH一直处于8.0~8.5之间, 表明该中试反应中pH对CH<sub>4</sub>排放的影响很小。

斯皮尔曼相关性和RDA表明, NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N均会影响N<sub>2</sub>O的生成。其中, NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N浓度越高、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N和NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N浓度越低, N<sub>2</sub>O的产生量越高。NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N的积累会导致N<sub>2</sub>O排放量的升高, 这可能是因为与其他反硝化酶相比, NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N更容易影响Nos酶的活性, 从而抑制N<sub>2</sub>O的还原, 导致N<sub>2</sub>O的积累<sup>[27]</sup>。Kuokkanen等<sup>[28]</sup>的研究也发现NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N的浓度与N<sub>2</sub>O排放之间存在相关性, 且NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N与N<sub>2</sub>O排放量的相关性最显著。另外, 近年来AOB被认为是N<sub>2</sub>O产生的主

要原因<sup>[29]</sup>, AOB中不存在N<sub>2</sub>O还原酶(N<sub>2</sub>OR), 使得N<sub>2</sub>O作为最终产物生成<sup>[30]</sup>, 特别是在NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N发生积累时, N<sub>2</sub>O以NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N作为末端电子受体, NO作为中间体而生成<sup>[23]</sup>。

## 3 结论

(1) 猪场污水高氨氮负荷处理过程中, CH<sub>4</sub>的产生和排放集中于非曝气池(调节池和缺氧池), CH<sub>4</sub>排放通量为1 454.76 mg·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>, CH<sub>4</sub>的平均排放因子为0.85%。

(2) N<sub>2</sub>O的产生和排放主要发生在好氧池和二沉池阶段, N<sub>2</sub>O排放通量为101.25 mg·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>, N<sub>2</sub>O排放因子为0.64%, 受NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N的影响较为明显, 硝化细菌和反硝化细菌的反硝化反应可能是高氨氮负荷的猪场污水处理过程中N<sub>2</sub>O的主要排放途径。

(3) 为进一步科学判定猪场规模、不同区域猪场环境条件、监测时间及时限等因素对温室气体排放特征的影响, 建议针对养殖场规模、环境条件开展污水处理过程的温室气体排放监测, 建立不同处理工艺、水质参数下的排放因子体系, 这将有利于形成更精准的排放数据, 并提出有效的减排技术。

### 参考文献:

- [1] 蔡博峰, 高庆先, 李中华, 等. 中国城市污水处理厂甲烷排放因子研究[J]. 中国人口·资源与环境, 2015, 25(4): 118-124. CAI B F, GAO Q X, LI Z H, et al. Study on the methane emission factors of wastewater treatment plants in China[J]. *China Population, Resources and Environment*, 2015, 25(4): 118-124.
- [2] CAKIR F Y, STENSTROM M K. Greenhouse gas production: a comparison between aerobic and anaerobic wastewater treatment technology[J]. *Water Research*, 2005, 39(17): 4197-4203.
- [3] CZEPIEL P, CRILL P, HARRISS R. Nitrous oxide emissions from municipal wastewater treatment[J]. *Environmental Science & Technology*, 1995, 29(9): 2352-2356.
- [4] 郝晓地, 杨振理, 于文波, 等. 污水处理过程N<sub>2</sub>O排放: 过程机制与控制策略[J]. 环境科学, 2023, 44(2): 1163-1173. HAO X D, YANG Z L, YU W B, et al. N<sub>2</sub>O Emission from the processes of wastewater treatment: mechanisms and control strategies[J]. *Environmental Science*, 2023, 44(2): 1163-1173.
- [5] KAMPSCHREUR M J, TEMMINK H, KLEEREBEZEM R, et al. Nitrous oxide emission during wastewater treatment[J]. *Water Research*, 2009, 43(17): 4093-4103.
- [6] WANG Y, DONG H, ZHU Z, et al. CH<sub>4</sub>, NH<sub>3</sub>, N<sub>2</sub>O and NO emissions from stored biogas digester effluent of pig manure at different temperatures[J]. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 2016, 217: 1-12.
- [7] WANG Y, ZHU Z P, LI X R, et al. NH<sub>3</sub>, N<sub>2</sub>O, and NO emissions from digested pig slurry stored under different temperatures: characteristics

表1 CH<sub>4</sub>和N<sub>2</sub>O排放因子与水质参数的斯皮尔曼相关系数(*r*)  
Table 1 Spearman's correlation coefficients(*r*) for CH<sub>4</sub> and N<sub>2</sub>O emission factors and water quality parameters

水质参数 Water quality parameter	CH <sub>4</sub> 排放因子 CH <sub>4</sub> emission factor	N <sub>2</sub> O 排放因子 N <sub>2</sub> O emission factor
NO <sub>2</sub> <sup>-</sup> -N	-0.748**	0.811**
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> -N	0.808**	-0.631*
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N	0.734**	-0.608*
COD	0.378	-0.406
DO	-0.126	0.368
pH	-0.556	0.331

注:\*\*. 在0.01级别(双尾), 相关性极显著; \*. 在0.05级别(双尾), 相关性显著。

Note: \*\*. At 0.01 level (two-tailed), the correlation is highly significant; \*. At 0.05 level (two-tailed), the correlation is significant.

- and microbial mechanisms[J]. *Journal of Cleaner Production*, 2021, 319:128560.
- [8] JETTEN M S, WAGNER M, FUERST J, et al. Microbiology and application of the anaerobic ammonium oxidation (‘anammox’) process[J]. *Current Opinion Biotechnology*, 2001, 12(3):283–288.
- [9] SLIEKERS A O, DERWORT N, GOMEZ J L, et al. Completely autotrophic nitrogen removal over nitrite in one single reactor[J]. *Water Research*, 2002, 36(10):2475–2482.
- [10] TERRY R E, TATE R L, DUXBURY J M. The effect of flooding on nitrous-oxide emissions from an organic soil[J]. *Soil Science*, 1981, 132(3):228–232.
- [11] SHI Y J, WANG X H, YU H B, et al. Aerobic granulation for nitrogen removal via nitrite in a sequencing batch reactor and the emission of nitrous oxide[J]. *Bioresour Technology*, 2011, 102(3):2536–2541.
- [12] ZHANG F, YANG H, WANG J, et al. Effect of free ammonia inhibition on NOB activity in high nitrifying performance of sludge[J]. *RSC Advances*, 2018, 8(56):31987–31995.
- [13] CHEN J, ZHANG S, HAN X, et al. Nitrification of real sewage: start-up and maintenance by the side-stream heat-shock treatment[J]. *Water Science and Technology*, 2019, 79(4):753–758.
- [14] OSADA T, SHIRAIISHI M, HASEGAWA T, et al. Methane, nitrous oxide and ammonia generation in full-scale swine wastewater purification facilities[J]. *Frontiers of Environmental Science & Engineering*, 2017, 11(3):10.
- [15] WANG J, ZHANG J, XIE H, et al. Methane emissions from a full-scale A/A/O wastewater treatment plant[J]. *Bioresour Technology*, 2011, 102(9):5479–5485.
- [16] GRUBER W, MAGYAR P M, MITROVIC I, et al. Tracing N<sub>2</sub>O formation in full-scale wastewater treatment with natural abundance isotopes indicates control by organic substrate and process settings[J]. *Water Research X*, 2022, 15:100130.
- [17] DIAZ-VALBUENA L R, LEVERENZ H L, CAPPAS C D, et al. Methane, carbon dioxide, and nitrous oxide emissions from septic tank systems[J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, 45(7):2741–2747.
- [18] WUNDERLIN P, MOHN J, JOSS A, et al. Mechanisms of N<sub>2</sub>O production in biological wastewater treatment under nitrifying and denitrifying conditions[J]. *Water Research*, 2012, 46(4):1027–1037.
- [19] CHEN G, ZHANG Y, WANG X, et al. Optimizing of operation strategies of the single-stage partial nitrification-anammox process[J]. *Journal of Cleaner Production*, 2020, 256:120667.
- [20] LAW Y, LANT P, YUAN Z. The confounding effect of nitrite on N<sub>2</sub>O production by an enriched ammonia-oxidizing culture[J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47(13):7186–7194.
- [21] ALI T U, AHMED Z, KIM D J. Estimation of N<sub>2</sub>O emission during wastewater nitrification with activated sludge: effect of ammonium and nitrite concentration by regression analysis[J]. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 2014, 20(4):2574–2579.
- [22] YAN P, LI K, GUO J S, et al. Toward N<sub>2</sub>O 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.
- [23] CHEN H, ZENG L, WANG D, et al. Recent advances in nitrous oxide production and mitigation in wastewater treatment[J]. *Water Research*, 2020, 184:116168.
- [24] PAUDEL S R, CHOI O, KHANAL S K, et al. Effects of temperature on nitrous oxide(N<sub>2</sub>O) emission from intensive aquaculture system[J]. *Science of the Total Environment*, 2015, 518:16–23.
- [25] HOLTAN-HARTWIG L, DÖRSCH P, BAKKEN L R. Low temperature control of soil denitrifying communities: kinetics of NO production and reduction[J]. *Soil Biology & Biochemistry*, 2002, 34(11):1797–1806.
- [26] MOHANAKRISHNAN J, GUTIERREZ O, MEYER R L, et al. Nitrite effectively inhibits sulfide and methane production in a laboratory scale sewer reactor[J]. *Water Research*, 2008, 42(14):3961–3971.
- [27] 付昆明, 靳怡然, 刘凡奇, 等. 亚硝酸盐占比对反硝化及N<sub>2</sub>O释放的影响[J]. *环境工程学报*, 2021, 15(3):946–953. FUN K M, JIN Y R, LIU F Q, et al. Effect of the proportion of nitrite on denitrification and N<sub>2</sub>O release[J]. *Chinese Journal of Environmental Engineering*, 2021, 15(3):946–953.
- [28] KUOKKANEN A, BLOMBERG K, MIKOLA A, et al. Unwanted mainstream nitrification-denitrification causing massive N<sub>2</sub>O emissions in a continuous activated sludge process[J]. *Water Science and Technology*, 2021, 83(9):2207–2217.
- [29] NI B J, YUAN Z. Recent advances in mathematical modeling of nitrous oxides emissions from wastewater treatment processes[J]. *Water Research*, 2015, 87:336–346.
- [30] 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.