DOI:10.11918/j.issn.0367-6234.201612121

外碳源投量对亚硝酸型反硝化过程 N_2O 释放影响

吕永涛,闫建平,张 瑶,刘 婷,曾玉莲,王 磊

(西安建筑科技大学 环境与市政工程学院,陕西省膜分离重点实验室,西安 710055)

摘 要: 为实现 N_2O 的减量化控制或资源化利用,接种普通活性污泥,以乙酸钠和硝酸盐为基质,通过淘洗反硝化聚磷菌,在SBR中以厌氧/缺氧交替运行的方式启动内源反硝化,单周期内约50%的 NO_3^- -N转化为 NO_2^- -N,N_2O 释放速率随着亚硝酸的积累逐渐增大,N_2O 转化率(释放量占TN去除的比例)为2.04%.在此基础上,分别取缺氧末和厌氧末污泥,对比研究胞内聚合物PHB合成前后,外碳源投加量(碳氮比为0,0.75和2.50)对亚硝酸型反硝化过程 N_2O 释放特性的影响,结果表明,外碳源存在时,N_2O 释放量随总碳源的增加呈略微减少的趋势,转化率在0.24% ~1.61%;而当仅利用内源物质进行反硝化时,N_2O 的转化率高达15.90%,单位SS最大释放速率达71.29 μg/(min·g),释放量是其余条件下的14~26倍.表明单独利用PHB进行亚硝酸型反硝化会大幅增加 N_2O 的释放.

关键词: 内源反硝化;碳氮比;N_2O;PHB;亚硝酸

中图分类号: X703.1 **文献标志码:** A **文章编号:** 0367-6234(2018)08-0039-06

Effect of external carbon source dosage on N_2O emission from denitrification using nitrite as the electron acceptor

LÜ Yongtao, YAN Jianping, ZHANG Yao, LIU Ting, ZENG Yulian, WANG Lei

(School of Environmental and Municipal Engineering, Key Laboratory of Membrane Separation of Shanxi Province, Xi'an University of Architecture and Technology, Xi'an 710055, China)

Abstract: To eliminate N_2O emission or utilize it for energy recovery, a laboratory-scale SBR inoculated with common activated sludge with acetate and nitrate additions decoupled, was conducted for endogenous denitrification running with anaerobic/anoxic cycles without DPAOs. During one cycle, approximately 50% of nitrate was converted to nitrite, N_2O emission rate increased with nitrite accumulation, and 2.04% of removed nitrogen was emitted as nitrous oxide (N_2O). Batch tests were conducted to compare the emission of N_2O that was influenced by external carbon source dosage (C/N was 0, 0.75 and 2.50) using nitrite as the electron acceptor before and after poly-β-hydroxybutyrate (PHB) was synthesized. The results showed that, the N_2O emission was slightly decreased with the increase of total carbon source, and the N_2O conversion ratio was between 0.24% and 1.61%. 15.90% of N_2O conversion ratio was obtained in the absence of external organic carbon, the maximum N_2O emission rate was 71.29 μg/(min·g), and the N_2O emission was 14-26 times higher than that of the other batch test results, indicating that when the PHB was the sole electron donor, the endogenous denitrification could produce more N_2O using nitrite as the electron acceptor.

Keywords: endogenous denitrification; C/N; nitrous oxide; PHB; nitrite

N_2O 是一种强温室气体,温室效应约为 CO_2 的300倍[1],同时又是一种可再生能源物质,利用其替代 O_2 与 CH_4 混合燃烧可提高约37%的热值[2-3].探究 N_2O 的释放机制可为污水脱氮过程中其减量化控制或资源化利用提供理论支持.N_2O 是反硝化的中间产物,因此,反硝化过程的释放几乎不可避免.研究表明,pH、DO质量浓度、亚硝酸质量浓度、碳氮比等因素均会影响反硝化过程中 N_2O 的释放[4-7],其中,碳源是主要的影响因素之一.研究发现,当外部碳源受限时,微生物会利用PHB(poly-β-hydroxybutyrate)作电子供体进行内源反硝化(ED, endogenous denitrification),此过程中会增加 N_2O 的释放[8-10].众所周知,反硝化聚磷菌(DPAOs, denitrifying phosphate-accumulating organisms)和反硝化聚糖菌(DGAOs, denitrifying glycogen-accumulating organisms)均可进行内源反硝化,且二者往往同时存在[2,11],究竟哪种微生物是 N_2O 释放的主要贡献者尚不清楚,尤其是在未涉及磷去除的情况下,内源反硝化过程 N_2O 释放特性的研究尚不

收稿日期: 2016-12-25
基金项目: 国家自然科学基金(51108367);陕西省建设厅科技发展计划项目(2015-K61)
作者简介: 吕永涛(1980—),男,副教授,硕士生导师;
王 磊(1971—),男,教授,博士生导师
通信作者: 王 磊,wl0178@126.com

多见.

本课题借助SBR反应器,通过淘洗DPAOs获得了内源反硝化的效果,在此基础上分别探究胞内聚合物PHB合成前后,外碳源投量对PHB水平及亚硝酸型反硝化过程N_2O释放特性的影响,旨在为N_2O的释放控制或资源化利用提供依据.

1 实 验

1.1 实验装置及运行

实验采用圆柱形SBR反应器,有效容积3 L,排水比为2/3.通过先后分别投加乙酸钠和硝酸盐,形成厌氧/缺氧交替运行的环境启动SBR,单周期时间为8 h,其中厌氧进水5 min,厌氧搅拌150 min,厌氧沉淀30 min,厌氧出水10 min,缺氧进水5 min,缺氧搅拌240 min,缺氧沉淀30 min,缺氧出水10 min.本实验阶段MLSS维持在3 000 mg/L左右(VSS与SS比约为0.7).反应器运行期间通过水浴加热维持温度在(26±1)℃.

1.2 接种污泥与实验废水

实验污泥接种自西安市某污水处理厂A^2/O回流污泥,接种量为3 L,初始污泥质量浓度为4 500 mg/L,实验采用人工配制废水,厌氧进水成份主要为:0.26 g/L CH_3COONa,缺氧进水成份主要为0.29 g/L KNO_3,其余配水基质均为1.0 g/L $NaHCO_3$、0.01 g/L NH_4Cl、0.1 g/L $CaCl_2$、0.1 g/L $MgSO_4$以及微量元素Ⅰ和Ⅱ[2],驯化过程中仅添加少量的KH_2PO_4用以维持微生物的正常生长需求($\rho(PO_4^{3-}-P)\approx1$ mg/L),所有药品均为分析纯.

1.3 批式实验装置及方案

批式实验采用气密性良好的圆柱形反应器,有效容积1.0 L.采用高纯N_2曝气,以多孔气泡石作为微孔曝气器,曝气量维持在0.4 L/min.

实验保持NO_2^--N质量浓度不变,通过投加不同量的无水乙酸钠设定不同的碳氮比.实验分为A、B组,其中A组实验污泥取自SBR母反应器缺氧末(此时微生物体内PHB含量最少),B组实验污泥取自SBR母反应器厌氧末(此时微生物体内储存的PHB最多).各组配水如表1所示,A组实验开始前,取缺氧末1 L泥水混合液沉淀后用去离子水反复清洗实验污泥4次,然后弃去上清液将污泥等分成3份置于3个小型SBR装置中(此时MLSS约为1 000 mg/L),再分别向A_1、A_2、A_3中加入配置好的基质,使混合液总体积为1 L,随后加盖并立即曝N_2.B组实验操作与A组相同.

1.4 水质分析

NO_2^--N、NO_3^--N、PO_4^{3-}-P均按照国家环保总局颁布的标准方法[12]进行测定,其中NO_2^--N采用N-(1-萘基)-乙二胺光度法,NO_3^--N采用紫外分光光度法,PO_4^{3-}-P采用钼酸铵分光光度法;TOC采用multi N/C 2100s测定;MLSS和MLVSS采用标准重量法.

表1 批式实验配水组分

Tab.1 Composition of the medium used for batch tests

分组	基质/(mg·L^{-1})		微量元素/(mg·L^{-1})		
	COD	NO_2^--N	$MgSO_4$	$CaCl_2$	$NaHCO_3$
A_1、B_2	0	40	100	100	1 000
A_2、B_2	30	40	100	100	1 000
A_3、B_3	100	40	100	100	1 000

1.5 曝气阶段N_2O气体采集分析与计算

反应产生的气体先后经由饱和的亚硫酸钠溶液和98%的浓硫酸去除氧气和水蒸汽后,用气密性良好的气体采样针收集5 mL气样,然后用PE 600气相色谱仪对其中的N_2O进行分析,所用色谱柱为Porapak Q填充柱,检测器为电子捕获检测器(ECD),以20 mL/min高纯N_2作为载气,进样口、柱温箱和检测器的温度分别为150、50和380 ℃,所有气体样品均测定3次.采集时间分别在曝N_2的第0、0.5、1、2、3、5、8、10、15、20、30、40、50、60、70、80、90、100、120、140、160、180分钟.

N_2O释放速率与释放量分别通过下式计算:

$$w_{N_2O}=Q\cdot C_{N_2O}\cdot M_{N_2O}\cdot p/(R\cdot T\cdot V_L\cdot\rho_{MLSS}),\tag{1}$$

$$m_{N_2O}=\sum_2^n\left[\frac{(w_{N_2O,n-1}+w_{N_2O,n})}{2}\cdot\Delta t\cdot V_L\cdot\rho_{MLSS}\right].\tag{2}$$

式中:w_{N_2O}为单位MLSS N_2O释放速率(μg/(min·g)),Q为曝气阶段的体积流量(L/min),C_{N_2O}为所测得的N_2O体积分数($10^{-6}m^3/m^3$),M_{N_2O}为N_2O摩尔质量(44.02 g/mol),p为大气压强(101 kPa),R为气体常数(8.314 L·kPa/(K·mol)),T为温度(K),V_L为反应器有效容积(L),ρ_{MLSS}为混合液悬浮固体质量浓度(g/L),m_{N_2O}为N_2O释放量(mg),Δt为N_2O气体采样时间间隔(min).

1.6 胞内聚合物PHB预处理及测定

取反应器内60 mL泥水混合液经离心浓缩并去掉上清液,然后用超声波细胞破碎仪破碎,取3 mL破碎后的泥样于10 mL的哈希管中,依次加入2 mL 10%酸化甲醇和2 mL氯仿并立即密封,置于HACH消解仪中于100 ℃消解240 min,消解结束后于微量振荡器中剧烈震荡30 min并用冰水冷却,之后在4 ℃低温条件下离心10 min,用1 mL卡介苗注射器

吸取底层的氯仿相并用 0.22 μm 有机滤头过滤于 1.5 mL 的进样瓶中. 气相色谱分析条件：采用 Agilent 6890N 气相色谱仪测定泥样中的 PHB，色谱柱型号为(19091M－133－HP－5，30 m×0.320 mm×0.25 μm)，检测器为氢火焰离子检测器(FID)，进样量为 1 μL，分流比为 2.7∶1，载气为高纯 N_2，采用恒流模式，流量为 0.7 mL/min，进样口温度 250 ℃，柱温箱升温程序：初始值 50 ℃，停留 1 min，之后以 10 ℃/min升温至120 ℃，然后以 120 ℃/min 升温到 270 ℃且停留 6 min. 检测器温度为 300 ℃，氢气流量为45 mL/min，空气流量为450 mL/min. 所有样品均测定 2 次取平均值.

2　结果与讨论

2.1　SBR 驯化过程中的氮素变化特性

图 1 为内源反硝化启动过程中氮、磷的变化趋势. 1～13 d，保持缺氧进水中 NO_3^-－N 和 PO_4^{3-}－P 质量浓度分别为(50±1.0) 和(15±1.0) mg/L，第 6 天后，缺氧出水中 PO_4^{3-}－P 质量浓度低于 1 mg/L，系统 TP 和 TN 的去除率分别达 93.33% 和 85%，SBR 获得了良好的反硝化除磷效果. 为淘洗 DPAOs，从第 15 天开始，逐渐降低缺氧段进水中 PO_4^{3-}－P 质量浓度至 1 mg/L(磷仅用于维持微生物的正常生长需求)，第 21 天开始，缺氧出水中 NO_2^-－N 开始积累并升至 28 mg/L，导致 TN 去除率降至 16% 以下，这是由于 DPAOs 的活性受到抑制所致，与 Zeng 等[13]的研究结果相吻合. 之后从第 50 天开始系统运行稳定，缺氧段 NO_3^-－N 的去除率为(85±1)%，但约 50% 的 NO_3^-－N 转化为 NO_2^-－N 而非其他气态产物(NO、N_2O 和 N_2 等)，TN 的去除率仅为(42±1)%. 表明系统中已富集了反硝化聚糖菌.

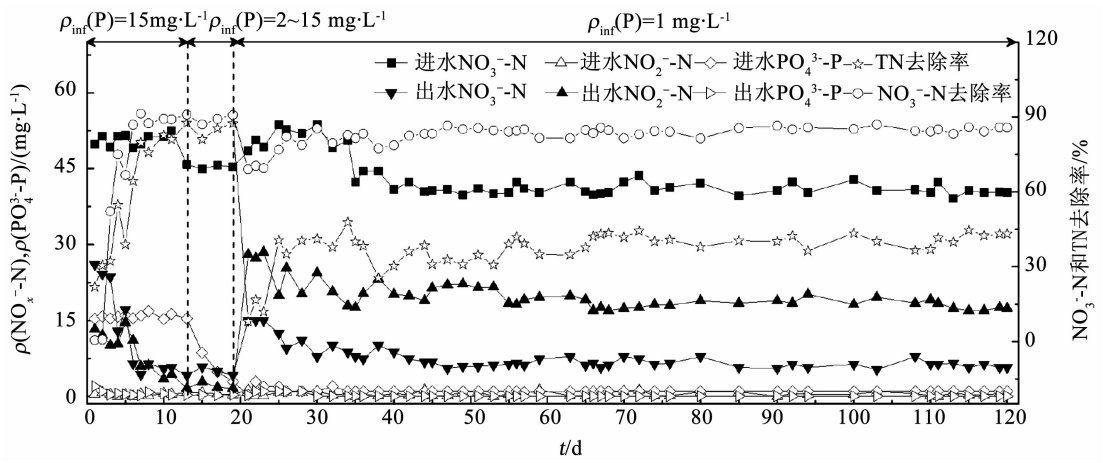


图 1　SBR 反应器缺氧进水和出水中 NO_x^-－N 和 PO_4^{3-}－P 的变化

Fig. 1　Time course profiles of the anoxic inlet and exit nitrogen and phosphate in the SBR

2.2　SBR 典型周期内碳、氮、磷的转化特性

图 2 为第 85 天 SBR 反应器内各污染物的变化情况，由于整个周期中没有涉及磷的吸取与释放($\Delta\rho(PO_4^{3-}-P)\leqslant 1$ mg/L)，几乎没有发生反硝化除磷. 在厌氧段：TOC 质量浓度由 74.60 mg/L 降低至 16.21 mg/L，同时，单位 VSS PHB 含量由 4.52 mg/g 逐渐升至38.02 mg/g，表明厌氧阶段 DGAOs 吸收乙酸钠合成了 PHB. 在缺氧段：NO_3^-－N 质量浓度由 42.36 mg/L 降至 4.23 mg/L，同时 PHB 含量由 39.52 mg/g降至4.34 mg/g，表明缺氧阶段发生了内源反硝化. 其中 NO_2^-－N 和 N_2O 均呈先升高后降低的趋势，且 N_2O 的最大释放速率基本发生在 NO_2^-－N 质量浓度最高时，这是由于产生的高质量浓度游离亚硝酸(FNA)对 N_2O 还原酶(Nos)产生抑制作用所致[9,11,14]. 单周期内 N_2O 释放量仅占 TN 去除的 2.04%，而 Scherson 等[2]研究发现，脉冲式投加 NO_2^-－N 进行内源反硝化时富集了 N_2O，其转化率高达 60%～65%. 二者差别较大主要是电子受体不同所致，本实验以 NO_3^-－N 作为电子受体，大部分被转化为 NO_2^-－N，即尚未进行到 N_2O 累积的阶段. 因此，利用内源物质 PHB 进行反硝化仅是 N_2O 富集的条件之一. 此外，还可能与反硝化的电子受体及投加方式有关，尚需进一步研究.

2.3　PHB 合成前外碳源投量对亚硝酸型反硝化过程 N_2O 释放特性的影响

图 3 为 PHB 合成前，外碳源投量对亚硝酸型反硝化及 N_2O 释放的影响. 未投加外碳源时(图3(a))，因缺乏电子供体无法发生反硝化作用，NO_2^-－N 几乎不发生变化，单位 SS N_2O 产量仅为0.16 mg/g.

当碳氮比为 0.75∶1(图 3(b))，即外碳源不足时，NO_2^-－N 还原主要发生在前 30 min 内. N_2O 的释放在 0～10 min 内呈先升高后降低的趋势，最大释放速率达到 38.96 μg/(min·g)，前 10 min 内 N_2O 释放量占总释放量的 67.05%. 而 PHB 质量浓度在

整个反应过程中几乎没有发生变化,说明外碳源不足时,主要被用于反硝化而非合成 PHB.

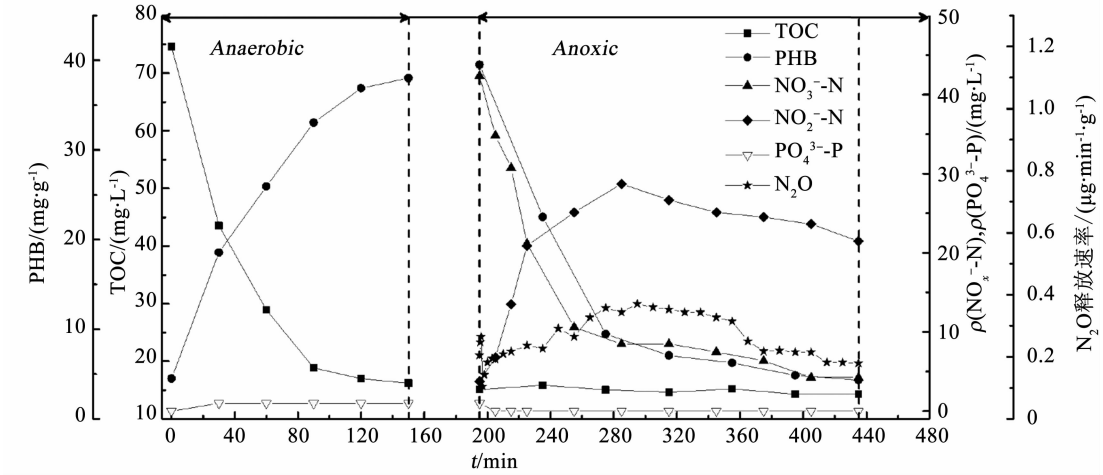


图2　SBR 单周期内中各污染物的质量浓度变化

Fig. 2　Concentration profiles of the pollutants during one cycle of the SBR

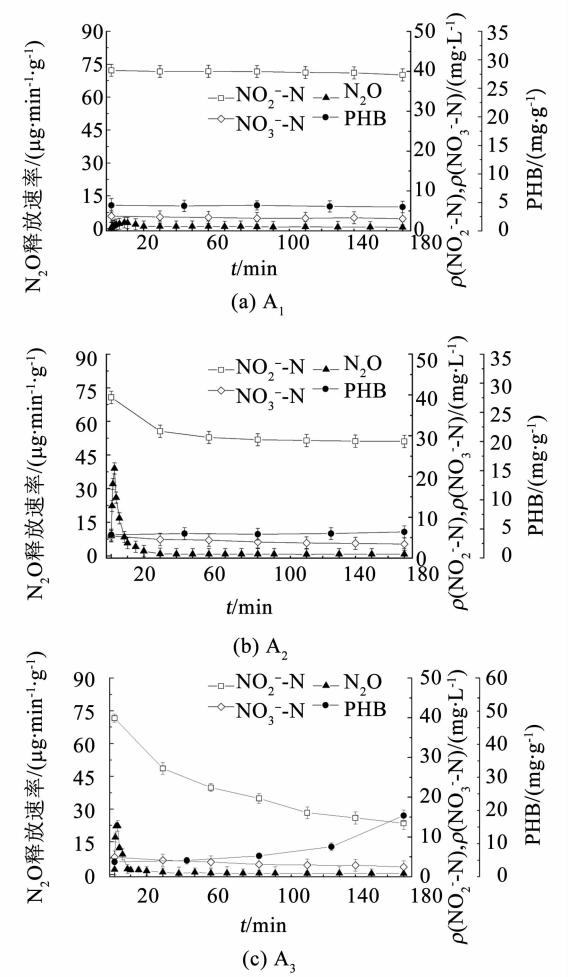


图3　PHB 合成前各指标在不同外碳源投量下的变化

Fig. 3　Time-course profiles of the pollutants before PHB was stored under different external carbon source dosage

当碳氮比为 2.50∶1 时(图 3(c)),NO_2^- – N 与 N_2O的变化趋势与图 3(b)的变化趋势类似,N_2O 最大释放速率为 22.25 μg/(min·g),56.03% 的 N_2O 释放量发生在前 10 min. 而 PHB 的趋势发生了变化,其含量在 30 min 后逐渐增加,到 180 min 时较初始值提高了 3.1 倍. 表明外碳源充足时,除进行反硝化外,还同时合成了 PHB,这也是反硝化速率逐渐降低的原因. 与图 3(b)相比,N_2O 释放量减少,即低碳氮比会增加 N_2O 释放,这与普通污泥进行反硝化所得结论一致[15].

2.4　PHB 合成后外碳源投量对亚硝酸型反硝化过程 N_2O 释放特性的影响

图 4 为 PHB 合成后,外碳源投量对亚硝酸型反硝化及 N_2O 释放的影响. 未投加外碳源时(图 4(a)),DGAOs 进行内源反硝化,单位 SS 反硝化速率和单位 VSS PHB 降解速率分别为 3.62 mg/(h·g)和 8.99 mg/(h·g). N_2O 释放与 PHB 合成前的变化趋势相似,但最大释放速率远高于外源反硝化时,达到 71.29 μg/(min·g),且 N_2O 释放时间延长至前 60 min,占总释放量的 72.50%.

B_2相较于 B_1,单位 SS NO_2^- – N 还原速率增大,达 4.78 mg/(h·g),原因是提供的总碳源有所增加;但 PHB 的降解速率降低,仅为 5.36 mg/(h·g). 表明当内外碳源共存且外碳源不足时,外碳源被优先进行反硝化. 此外,还利用部分内碳源进行反硝化. N_2O 主要在前 15 min 内产生,N_2O 释放呈先升高后降低的趋势,最大释放速率为 19.11 μg/(min·g).

B_3在外碳源充足时(碳氮比为 2.50∶1),反硝化速率为 15.50 mg/(h·g),分别是 B_1、B_2的 4.28 倍和 3.24 倍,脱氮效率分别是 B_1、B_2 的 2.84 倍和 1.42倍,即投加足量的外碳源可以大幅提升反硝化速率和脱氮效率. 相反,整个过程中 N_2O 释放速率低于 2.25 μg/(min·g),N_2O 释放量仅为 0.23 mg/g,与 B_1、B_2 相比,PHB 含量不降反升,在 30 ~ 180 min内 PHB 合成速率为 4.08 mg/(h·g),PHB

含量提高了 24.06%，与 Qin 等[16]的研究结果相似. 表明外碳源充足时，即使体内有较高含量的 PHB，DGAOs 在利用外碳源进行反硝化的同时仍会继续合成 PHB.

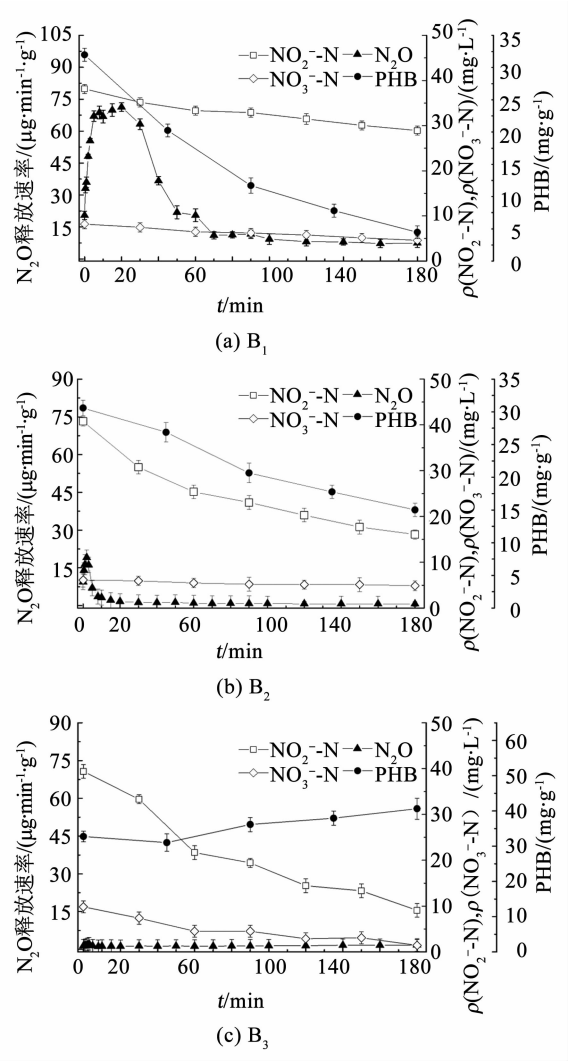


图 4　PHB 合成后各指标在不同外碳源投量下的变化

Fig. 4　Time-course profiles of the pollutants after PHB was stored under different external carbon source dosage

综上，当外碳源存在时，DGAOs 会优先利用外碳源进行反硝化，至于是否进一步合成 PHB，还与外碳源的投量有关. 当外碳源不足以提供反硝化所需的电子时，PHB 合成的现象不明显；反之，当外碳源充足时，才会被进一步合成 PHB.

此外，N_2O 的释放主要发生在反硝化的初始阶段，是因为初始阶段较高质量浓度 NO_2^- 会抑制 N_2O 还原酶(Nos)的活性导致 N_2O 积累[11]；随着反应的进行，NO_2^- 质量浓度不断降低，抑制作用逐渐削弱，使 N_2O 的产生与消耗不断趋于平衡，即降低了 N_2O 的释放量.

2.5　胞内聚合物 PHB 合成前后外碳源投量对 N_2O 释放影响结果对比

理论上 1 mg NO_2^- – N 完全反硝化转化为 N_2 需要 1.72 mg 的 COD，其中 1 mg 的 PHB 相当于 1.67 mg 的 COD[17]. 由表 2 可知，B_1 中 NO_2^- – N 去除量为 9.22 mg，根据理论计算需要 9.50 mg PHB，但 B_1 中 PHB 的实际消耗量(14.63 mg)大于理论计算量，原因是部分 PHB 用以补充糖原维持正常生长代谢.

当外碳源存在时，根据 PHB 与 COD 的理论计量关系，计算得到总碳源的大小关系为：$A_2 < B_2 < A_3 < B_3$，而 N_2O 释放量的关系为：$A_2 > B_2 > A_3 > B_3$，说明亚硝酸型反硝化过程中 N_2O 的释放量随着总碳源的增加呈现减小的趋势. 主要是因为电子供体不足导致各反硝化酶之间的竞争，使 Nos 处于劣势，即 N_2O 的生成速率大于消耗速率，造成 N_2O 的积累. 但是，N_2O 释放量变化幅度较小((0.23 ± 0.1) ~ (0.30 ± 0.5) mg/g)，与 Zhou 等[18]的研究结果类似.

当 PHB 作为唯一碳源进行反硝化时(B_1)，N_2O 的转化率高达 15.90%，N_2O 释放量是其余条件下的 14 ~ 26 倍，表明单独利用胞内聚合物 PHB 进行亚硝酸型反硝化会大幅增加 N_2O 释放. 因为以 PHB 为电子供体进行反硝化时，与其他碳源相比，Nos 更难竞争得到电子，导致 N_2O 释放量增加[18-19]；且 PHB 为难降解有机物[19]，相对较慢的反硝化速率导致溶液中剩余较高的 NO_2^- – N 质量浓度，且维持更长的时间，这也是内源反硝化初期 N_2O 释放时间延长的主要原因.

表 2　胞内聚合物 PHB 合成前后外碳源投量对 N_2O 释放结果汇总

Tab. 2　Characteristics of N_2O emission influenced by external carbon source dosage before and after PHB was stored

项目	PHB 合成前			PHB 合成后		
	碳氮比为 0	碳氮比 0.75:1	碳氮比 2.50:1	碳氮比为 0	碳氮比 0.75:1	碳氮比 2.50:1
进水 NO_2^- – N/(mg·L⁻¹)	40.20 ± 1.0	39.40 ± 0.5	39.90 ± 1.0	38.13 ± 1.5	40.77 ± 0.6	39.40 ± 0.5
出水 NO_2^- – N/(mg·L⁻¹)	39.06 ± 0.6	28.62 ± 1.0	13.42 ± 0.5	28.91 ± 1.0	16.10 ± 0.5	9.07 ± 0.5
N_2O 释放量/(mg·g⁻¹)	0.16 ± 0.1	0.30 ± 0.5	0.24 ± 0.1	4.08 ± 0.9	0.26 ± 0.6	0.23 ± 0.1
N_2O – N 转化率/%	4.47 ±0.5	1.61 ±1.0	0.42 ±0.5	15.90 ±1.1	1.15 ±0.8	0.24 ±0.8
N_2O 最大释放速率/(μg·min⁻¹·g⁻¹)	2.84 ± 1.1	38.96 ± 1.5	22.25 ± 2.0	71.29 ± 2.5	19.11 ± 2.0	2.25 ± 2.3
NO_2^- – N 还原速率/(mg·h⁻¹·g⁻¹)	0.19 ± 0.5	2.71 ± 1.1	7.90 ± 0.9	3.62 ± 0.4	4.78 ± 0.9	15.50 ± 0.7
TN 去除率/%	4.24 ± 1.0	28.49 ± 1.0	64.56 ± 1.0	27.66 ± 1.0	55.24 ± 1.0	78.67 ± 1.5
ΔPHB/(mg·g⁻¹)	−0.36	+0.54	+13.96	−27.5	−15.59	+7.88

当内外碳源共存且外碳源不足时,反硝化过程中也消耗部分PHB,但此时N_2O的释放量(B_2)反而小于单独利用外碳源时的释放量(A_2),主要原因还是与总碳源的投量有关.因为N_2O主要在反应初期释放,二者在反应初期均利用外碳源进行反硝化,总碳源少(A_2)时Nos竞争电子处于更为劣势的状态,导致其释放量高于总碳源多(B_2)时.

3 结 语

利用批试实验研究了内源反硝化污泥在PHB合成前与合成后,外碳源投加量(碳氮比为0,0.75和2.5)对亚硝酸型反硝化过程N_2O释放特性的影响,结果表明,外碳源存在时,N_2O释放量随总碳源的增加呈略微减少的趋势,转化率在0.24%~1.61%;当仅利用PHB进行内源反硝化时,N_2O的转化率高达15.90%,释放量是其余条件下的14~26倍,表明单独利用PHB进行亚硝酸型反硝化会大幅增加N_2O释放.

参考文献

[1] KAMPSCHREUR M J, TEMMINK H, KLEEREBEZEM R, et al. Nitrous oxide emission during wastewater treatment [J]. Water Research, 2009, 43 (17): 4093-4103. DOI:10.1016/j.watres.2009.03.001.

[2] SCHERSON Y D, WELLS F G, WOO S G, et al. Nitrogen removal with energy recovery through N_2O decomposition[J]. Energy and Environmental Science, 2013, 6(1): 241-248. DOI:10.1039/c2ee22487a.

[3] SCHERSON Y D, WOO S G, CRIDDLE C S. Production of nitrous oxide from anaerobic digester centrate and its use as a co-oxidant of biogas to enhance energy recovery[J]. Environmental Science and Technology, 2014, 48(10): 5612-5619. DOI: org/10.1021/es501009j.

[4] GONG Y K, PENG Y Z, YANG Q, et al. Formation of nitrous oxide in a gradient of oxgenation and nitrogen loading rate during denitrification of nitrite and nitrate [J]. Journal of Hazardous Materials, 2012, 227/228(5): 453-460. DOI: org/10.1016/j.jhazmat.2012.05.002.

[5] PAN Y, YE L, NI B J, et al. Effect of pH on N_2O reduction and accumulation during denitrification by methanol utilizing denitrifiers [J]. Water Res, 2012, 46(15): 4832-4840. DOI: org/10.1016/j.watres.2012.06.003.

[6] LI P, WANG S, PENG Y, et al. The synergistic effects of dissolved oxygen and pH on N_2O production in biological domestic wastewater treatment under nitrifying conditions[J]. Environ Technol, 2015, 36(13): 1623-1631.

[7] LI H, CHEN X, CHEN Y. Effect of the addition of organic carbon sources on nitrous oxide emission in anaerobic-aerobic (low dissolved oxygen) sequencing batch reactors[J]. Front Environ Sci En, 2010, 4(4): 490-499.

[8] SCHALK-OTTE S, SEVIOUR R J, KUENEN J G, et al. Nitrous oxide (N_2O) production by Alcaligenes faecalis during feast and famine regimes[J]. Water Research, 2000, 34(7): 2080-2088.

[9] ITOKAWA H, HANAKI K, MATSUO T. Nitrous oxide production in high-loading biological nitrogen removal process under low COD/N ratio condition[J]. Water Research, 2001, 35(3): 657-664.

[10] PAN M, WEN X, WU G, et al. Characteristics of nitrous oxide (N_2O) emission from intermittently aerated sequencing batch reactors (IASBRs) treating slaughterhouse wastewater at low temperature[J]. Biochemical Engineering Journal, 2014, 86(10): 62-68.

[11] WANG Y, ZHOU S, YE L, et al. Nitrite survival and nitrous oxide production of denitrifying phosphorus removal sludge in long-term nitrite/nitrate sequencing batch reactors [J]. Water Research, 2014, 67C: 33-45. DOI:org/10.1016/j.watres.2014.08.052.

[12] 国家环境保护总局.水和废水监测分析方法[M].北京:中国环境科学出版社, 2002:258-284.
State Environmental Protection Administration. Water and wastewater monitoring and analysis method[M]. Beijing: China Environmental Science Press, 2002:258-284.

[13] ZENG R J, YUAN Z, KELLER J. Enrichment of denitrifying glycogen-accumulating organisms in anaerobic/anoxic activated sludge system[J]. Biotechnology and Bioengineering, 2003, 81(4): 397-404. DOI: 10.1002/bit.10484.

[14] LI C, ZHANG J, LIANG S, et al. Nitrous oxide generation in denitrifying phosphorus removal process: Main causes and control measures[J]. Environmental Science and Pollution Research, 2013, 20(8): 5353-5360. DOI: 10.1007/s11356-013-1530-3.

[15] 李鹏章,王淑莹,彭永臻,等. COD/N与PH值对短程硝化反硝化过程中N_2O产生的影响[J].中国环境科学,2014,34(8):2003-2009.
LI Pengzhang, WANG Shuying, PENG Yongzhen, et al. Effect of COD/N ratios and pH on production during nitrite denitrification process[J]. China Environmental Science, 2014,34(8):2003-2009.

[16] QIN L, LIU Y, TAY J H. Denitrification on poly-β-hydroxybutyrate in microbial granular sludge sequencing batch reactor[J]. Water Research, 2005, 39(8): 1503-1510. DOI:10.1016/j.watres.2005.01.025.

[17] BERNAT K, WOJNOWSKA-BARYLA I, DOBRZYSKA A. Denitrification with endogenous carbon source at low C/N and its effect on P(3HB) accumulation[J]. Bioresource Technology, 2008, 99:2410-2418.

[18] ZHOU Y, LIM M, HARJONO S, et al. Nitrous oxide emission by denitrifing phosphorus removal culture using polyhydroxyalkanoates as carbon source[J]. Journal of Environmental Sciences-China, 2012, 24(9): 1616-1623. DOI: 10.1016/S1001-0742(11)60996-0.

[19] WEI Y, WANG S, MA B, et al. The effect ofpoly-β-hydroxyalkanoates degradation rates on nitrous oxide production in a denitrifying phosphorus removal system [J]. Bioresource Technology, 2014, 170:175-182. DOI:org/10.1016/j.biortech.2014.06.012.

(编辑 刘 彤)