

DOI:10.19853/j.zgjsps.1000-4602.2023.15.005

# 基于多元回归的四环素胁迫下生物滞留池碳排放核算

徐衍超<sup>1,2</sup>, 王亚军<sup>1,2</sup>, 王进喜<sup>3</sup>

(1. 兰州理工大学 土木工程学院, 甘肃 兰州 730050; 2. 兰州理工大学 西部土木工程防灾减灾教育部工程研究中心, 甘肃 兰州 730050; 3. 兰州文理学院 化工学院, 甘肃 兰州 730000)

**摘要:** 为探究四环素胁迫下哪种植物可以使生物滞留池(BRC)在保证最佳处理效果的前提下碳排放量最小,通过构建3个试验反应组、共计8个填充完全相同的生物滞留池处理不同浓度的四环素污水,经过为期147 d的试验,初步阐明了生物滞留池的温室气体产生机理,并构建了其碳足迹模型。在此基础上借助IPCC排放因子法对不同四环素浓度水平下生物滞留池的CH<sub>4</sub>和N<sub>2</sub>O排放量进行了估算,并利用Minitab以装置在不同浓度四环素胁迫运行时长下的碳排放量为因变量,四环素浓度、COD去除率和TN去除率为自变量进行多元回归分析,建立了回归模型,并通过补充试验验证了模型的可靠性。经分析,当四环素浓度较高时(1.2~1.8 mg/L)种植菖蒲的BRC处理效能最佳:COD去除率可达89%以上,TN去除率可达60%以上,碳排放量(以CO<sub>2eq</sub>计)最低约为0.123 9 kg;其次为藜草。四环素浓度较低时(0~0.6 mg/L)种植藜草的BRC处理效能最佳:COD去除率可达89%以上,TN去除率可达66%以上,碳排放量最低约为0.105 4 kg;其次为菖蒲。因此,在确保BRC出水水质的同时又使碳排放量最小,较高浓度四环素胁迫下选择种植菖蒲,较低浓度四环素胁迫时选择种植藜草。

**关键词:** 碳排放核算; 生物滞留池; 污水处理; 四环素; 多元回归

**中图分类号:** TU992 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-4602(2023)15-0034-11

## Carbon Emission Accounting of Bioretention Cell under Tetracycline Stress Based on Minitab Multiple Regression Analysis

XU Yan-chao<sup>1,2</sup>, WANG Ya-jun<sup>1,2</sup>, WANG Jin-xi<sup>3</sup>

(1. School of Civil Engineering, Lanzhou University of Technology, Lanzhou 730050, China;  
2. Western Engineering Research Center of Disaster Mitigation in Civil Engineering <Ministry of Education>, Lanzhou University of Technology, Lanzhou 730050, China; 3. School of Chemical Engineering, Lanzhou University of Arts and Science, Lanzhou 730000, China)

**Abstract:** In order to explore the plant which can minimize the carbon footprint of bioretention cell (BRC) under tetracycline stress, a total of 8 bioretention cell filled with the same packing were constructed to treat tetracycline wastewater for a period of 147 days. The mechanism of greenhouse gas production during the operation of bioretention cell was preliminarily expounded, and the carbon footprint model of bioretention cell was constructed. On this basis, the emissions of CH<sub>4</sub> and N<sub>2</sub>O in the process of

基金项目: 甘肃省科技计划项目(20JR10RA145); 国家自然科学基金资助项目(41967043、52160003)

通信作者: 王亚军 E-mail: wyj79626@163.com

wastewater treatment with different concentrations of tetracycline were estimated by means of IPCC emission factor method. Taking the carbon emission under different tetracycline concentration stress operation duration as the dependent variable and tetracycline concentration, COD removal rate and TN removal rate as the independent variable, multiple regression analysis was conducted using Minitab. Then the regression model was established. The reliability of the model was verified by supplementary experiments. According to the analysis, when the tetracycline concentration was at a high level (1.2–1.8 mg/L), the BRC treatment efficiency of planting *Acorus calamus* was the best: the COD removal rate could reach more than 89%, the TN removal rate could reach more than 60%, and the lowest carbon emission (in CO<sub>2</sub> equivalent) was about 0.123 9 kg, followed by *Phalaris arundinacea*. When the tetracycline concentration was at a low level (0–0.6 mg/L), the BRC treatment efficiency of planting *Phalaris arundinacea* was the best: COD removal rate could reach above 89%, TN removal rate could reach above 66%, and the lowest carbon emission was about 0.105 4 kg, followed by *Acorus calamus*. Therefore, in order to ensure the quality of BRC effluent and minimize carbon emissions, it is recommended to plant *Acorus calamus* under the stress of higher concentration of tetracycline, and *Phalaris arundinacea* under the stress of lower concentration of tetracycline.

**Key words:** carbon emission accounting; bioretention cell; sewage treatment; tetracycline; multiple regression

为了更好地应对当前的水污染问题,越来越多的新型水处理工艺被开发并应用,相应地,各种工艺在满足较处理好效果的同时其运行过程中所产生的温室气体(GHG)也不应该被忽视,据统计全球每年污水处理贡献的温室气体总量可达6%~7%<sup>[1]</sup>。生物滞留池(BRC)作为一种新型的分散式污水处理装置,具有占地面积小、处理效果好、运行费用低等特点,因此被广泛应用<sup>[2-4]</sup>。课题组前期研究表明,BRC可以有效去除污水中不同浓度水平的四环素(TC)<sup>[5-6]</sup>,同时除磷效果也较好,但并未考虑BRC运行过程中带来的环境效益问题。由于BRC排水较快不利于微生物进行反硝化,且填料难以吸附带负电的NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N,导致BRC的脱氮效果不理想<sup>[7]</sup>。虽然在BRC底部增加淹没层并投加碳源,可以创造良好的反硝化环境,增强反硝化效果<sup>[8]</sup>,但此举不可避免地会增加厌氧反应过程中CO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>和N<sub>2</sub>O等温室气体的排放量。

政府间气候变化委员会(IPCC)认为温室气体主要包含臭氧、水蒸气、氢氟氯碳化物类、全氟碳化物、六氟化硫、CO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>和N<sub>2</sub>O等8种<sup>[9]</sup>。目前,污水处理领域应用较广泛的碳排放核算方法有实测法、排放因子法、质量平衡法、碳足迹法和模型法<sup>[10]</sup>,对于BRC而言,在污水处理过程中微生物、填料和植

物三者是协同作用的,其反应机理十分复杂,因此不易借助质量守恒等方法对其内部进行精准的碳排放估算,同时由于BRC本身的结构,下层反应产生的温室气体不易被采集检测,实测法同样不适用。相比之下排放因子法更适用于对BRC的碳排放量进行核算,此法由IPCC提出,可用于单一工艺的估算,因此被各国所认可。在《2006年IPCC国家温室气体清单指南》中<sup>[11]</sup>,CO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>、N<sub>2</sub>O作为污水处理过程中产生的主要温室气体被考虑在内,然而污水处理工艺运行过程中产生的CO<sub>2</sub>最终可以被植物通过光合作用吸收<sup>[12]</sup>,因此不将其纳入到核算范围内,仅对CH<sub>4</sub>和N<sub>2</sub>O进行核算。

BRC的运行方式和垂直潜流人工湿地基本一致,二者均是依靠植物、土壤和微生物的协同作用对污水进行净化<sup>[13]</sup>。对于温室气体排放机理而言,二者的互通性在于,植物根系的分泌物和部分有机物残体可以在厌氧菌、产氢产乙酸菌和产甲烷菌的作用下产生CH<sub>4</sub>,此过程也可发生在BRC的过滤层、淹没层和垂直潜流人工湿地植物下方的多孔介质<sup>[14]</sup>。N<sub>2</sub>O一般由羟胺不完全氧化和异养微生物反硝化过程生成,在垂直潜流人工湿地中,此过程发生在硝化菌和亚硝化菌富集的偏上方的好氧区域和下方氧含量较低的厌氧区域,排放量较CH<sub>4</sub>要

小<sup>[15-16]</sup>。在BRC中 $N_2O$ 的排放主要发生在过滤层、过渡层和淹没层,反应机理同潜流人工湿地一致。《2006年IPCC国家温室气体清单指南》于2013年将人工湿地温室气体排放核算方法作为补充部分正式添加,并根据湿地类型给出了不同的排放因子。因此,虽然清单在统计排放因子的过程中并未将BRC工艺包含在内,但仍可以通过估算人工湿地碳排放的方法来估算BRC的碳排放量。

为了填补目前生物滞留池碳排放核算研究空白,探究不同浓度水平四环素胁迫下不同植物BRC碳排放量和污染物去除效果的关系,完善BRC环境效益方面的相关研究,通过构建3个试验反应组,对不同浓度水平四环素胁迫下种植不同植物BRC的除污效果和碳排放量进行了检测和估算,并借助Minitab19建立碳排放量、四环素浓度、COD去除率和TN去除率的多元回归模型,依据模型对最优处理效果进行了预测,在此基础上进一步分析了不同

浓度水平四环素胁迫下哪种植物可以使BRC的综合处理效果最好。

## 1 材料与方法

### 1.1 试验装置及运行方式

采用3个试验组进行研究,BRC装置均是由透明的UPVC材料构成的圆柱体,共设置8个(见图1),单个装置直径为300 mm、高为900 mm,其内部填料填装遵循澳大利亚FAWB使用指南。所选用植物为菖蒲、藜草和芦苇,这三种植物根系发达,除污效果好,抗旱耐涝,适应环境能力强,除此之外,三者均为本土植物,观赏性较高且可以维持生态群落的稳定,可以给系统带来最佳的运行能力。植株的高度控制在300~500 mm,种植密度参考人工湿地<sup>[17]</sup>,控制在78株/ $m^2$ 。污水处理厂出水中的TC浓度在35 ng/L~24 mg/L波动<sup>[18-20]</sup>,故选取0.6 mg/L作为低浓度水平,1.2、1.8 mg/L作为高浓度水平,0.1 mg/L作为预测浓度水平。

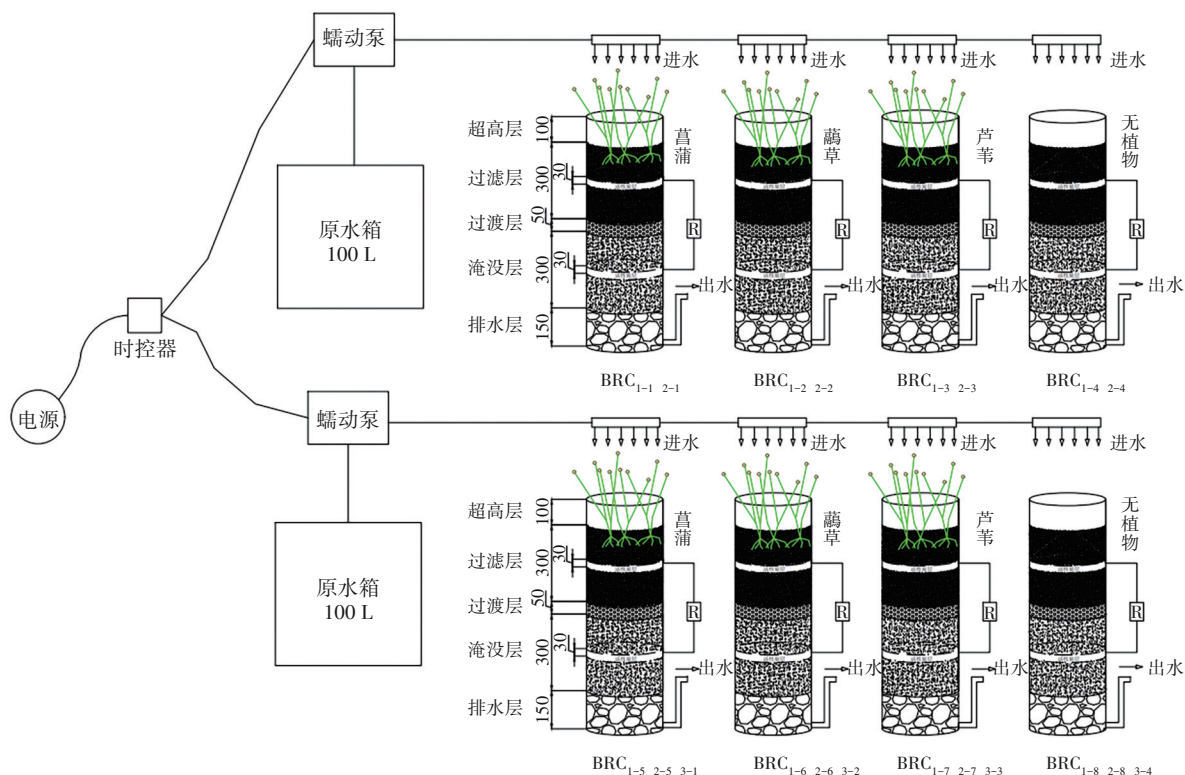


图1 BRC装置示意

Fig.1 Schematic diagram of BRC equipment

试验反应组一的8个BRC同时运行,种植植物分别为菖蒲、藜草、芦苇、空白、菖蒲、藜草、芦苇、空白,装置对应编号依次为BRC<sub>1-1</sub>、BRC<sub>1-2</sub>、BRC<sub>1-3</sub>、BRC<sub>1-4</sub>、BRC<sub>1-5</sub>、BRC<sub>1-6</sub>、BRC<sub>1-7</sub>、BRC<sub>1-8</sub>,其中BRC<sub>1-1</sub>~

BRC<sub>1-4</sub>的进水TC浓度为0 mg/L,BRC<sub>1-5</sub>~BRC<sub>1-8</sub>的进水TC浓度为0.6 mg/L。试验反应组一结束后调整进水四环素浓度,用相同的装置开始进行试验反应组二的试验。试验反应组二的8个BRC同时运行,



种植植物与试验反应组一完全相同,对应编号依次为  $BRC_{2-1}$ 、 $BRC_{2-2}$ 、 $BRC_{2-3}$ 、 $BRC_{2-4}$ 、 $BRC_{2-5}$ 、 $BRC_{2-6}$ 、 $BRC_{2-7}$ 、 $BRC_{2-8}$ ,其中  $BRC_{2-1} \sim BRC_{2-4}$  的进水 TC 浓度为 1.2 mg/L,  $BRC_{2-5} \sim BRC_{2-8}$  的进水 TC 浓度为 1.8 mg/L。试验反应组二结束后调整进水四环素浓度,用 4 个装置开始进行试验反应组三的试验(补充试验),对应编号依次为  $BRC_{3-1}$ 、 $BRC_{3-2}$ 、 $BRC_{3-3}$ 、 $BRC_{3-4}$ ,进水 TC 浓度为 0.1 mg/L。装置内部的填料结构、粒径和各层高度见表 1。

表 1 装置内部填料参数

Tab.1 Internal packing parameters of the plant

项目	填料种类	粒径/mm	高度/mm
超高层	—	—	100
过滤层	细砂	0.1~0.25	300
过渡层	中砂	0.25~2	50
淹没层	中砂/粗砂,部分铁屑	1~2	300
排水层	砾石	2~6	150
电极层	活性炭	1~3	30

3 个试验反应组装置在传统结构的基础上增加了带有部分铁屑的淹没层和由活性炭组成的电极层,淹没层的作用是延长排水时间,创造良好的厌氧环境,增强反硝化作用;两电极层用导线连接,其作用在于利用电压刺激淹没层和过滤层的微生物活性,增强微生物的降解效果,挂膜稳定后 BRC 电压稳定在  $(48.2 \pm 44.0)$  mV。在填装前首先需对填料进行处理,将过滤层和淹没层的填料分别倒入装有接种污泥的收纳箱中,每隔 8 h 按比例添加人工配制的营养液,培养约 20 d 后填料表面附着黑色污泥,证明微生物已较好地吸附在填料表面。填料装填完成后种植植物,开始进水调试,每 3 d 检测一次进出水 COD、TN、氨氮、TP,约 14 d 左右出水各项指标稳定,挂膜成功。装置进水负荷控制在  $1.0 \text{ m}^3/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ ,池体上部布置丰型管,利用蠕动泵间歇均匀进水,每 8 h 进一次水,每次进水 3 h,流量为 49.1 mL/min。

试验反应组一、二、三装置均运行 49 d,共计运行 147 d,装置运行期间每 3 d 对 COD、TN、氨氮、TP 进行一次检测,每 7 d 对原水中四环素浓度进行一次检测。其中,COD 采用快速消解分光光度法测定,TN 采用碱性过硫酸钾消解紫外分光光度法测定,氨氮采用纳氏试剂分光光度法测定,TP 采用钼酸铵分光光度法测定,四环素采用高效液相色谱-

紫外(UPLC-UV)法测定。

## 1.2 试验用水

试验采用自配水,3 个试验组的原水除 TC 浓度不同外其他药品(皆为分析纯)均相同,每 100 L 水包括:22.493 0 g  $\text{C}_6\text{H}_{12}\text{O}_6$ 、22.240 2 g  $\text{NH}_4\text{Cl}$ 、8.730 0 g  $\text{NaHCO}_3$ 、4.815 1 g  $\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 、0.391 3 g  $\text{CoCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 、0.196 7 g  $\text{NiCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 、0.005 8 g  $\text{MnCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 、0.005 8 g  $\text{CuSO}_4$ 、0.005 8 g  $\text{ZnCl}_2$ 、0.042 7 g  $\text{CaCl}_2$ 、2.177 7 g  $\text{K}_2\text{HPO}_4$ 、0.121 3 g 腐殖酸。其中,试验组一原水中 TC 浓度处于较低水平,为 0 和 0.6 mg/L;试验组二原水中 TC 浓度处于较高水平,为 1.2 和 1.8 mg/L;试验组三为补充试验,原水中的 TC 浓度为 0.1 mg/L。BRC 淹没层接种污泥取自兰州市某城市生活污水处理厂。

## 1.3 数据分析方法

### 1.3.1 碳排放核算依据及方法

采用《2006 年 IPCC 国家温室气体清单指南》<sup>[11]</sup>提供的排放因子法,按照对垂直潜流人工湿地的估算方法对 BRC 的碳排放量进行估算。

### 1.3.2 多元回归分析方法

利用 Minitab19 建立拟合回归模型,对碳排放量、进水四环素浓度、COD 平均去除率和 TN 平均去除率进行多元回归分析,以判断四环素浓度和污染物去除效果对碳排放量影响的程度,进而探究不同植物生物滞留池的碳排放量与四环素胁迫下污染物去除效果的关系。建立回归模型所用数据取自试验组一和二,试验组三的数据用于验证回归模型的可靠性。

## 2 生物滞留池 GHG 产生机理

### 2.1 $\text{N}_2\text{O}$ 产生机理

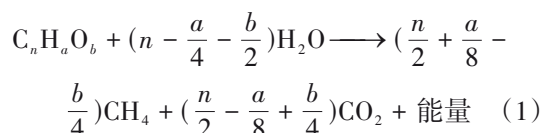
迄今为止, $\text{N}_2\text{O}$  的产生机理仍然不是十分明晰,目前公认的 3 种  $\text{N}_2\text{O}$  排放途径分别为硝化反应、AOB 硝化反硝化和异养微生物反硝化。对于 BRC 而言, $\text{N}_2\text{O}$  的排放主要发生在过滤层、过渡层和淹没层,模拟污水经过超高层后首先进入到过滤层,由于过滤层填料的粒径较小,孔隙率较大且与空气直接接触,因此处于非饱和的有氧状态<sup>[21]</sup>,有利于硝化反应的进行。污水在过滤层下渗的过程中,氨氮在氨单加氧酶的作用下分解为  $\text{NH}_2\text{OH}$ <sup>[22]</sup>,其在不完全氧化情况下会生成  $\text{N}_2\text{O}$ <sup>[23]</sup>,最终转化为  $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 。此外,硝化过程中会产生  $\text{NO}_2^- - \text{N}$ ,AOB 在过滤层中

会进行硝化反硝化,在一氧化氮还原酶的作用下将 $\text{NO}_2^-$ -N转化为 $\text{N}_2\text{O}$ <sup>[24]</sup>。过滤层的 $\text{NO}_3^-$ -N继续下渗到达过渡层,而过渡层处于缺氧状态,在过渡层下渗过程中异养微生物进行反硝化作用, $\text{NO}_3^-$ -N在一系列还原酶的作用下被还原为 $\text{N}_2$ ,该过程中也会产生中间产物 $\text{N}_2\text{O}$ 。有研究表明BRC对TN的去除率较低,淹没层的厌氧环境可以很好地强化反硝化作用,提升TN的去除率<sup>[25]</sup>,但不可避免地也会促进 $\text{N}_2\text{O}$ 的排放。

## 2.2 $\text{CH}_4$ 产生机理

为了促进反硝化的进行,提升对TN的去除率,在BRC的过渡层下设置淹没层,淹没层主要为厌氧环境,污水在流经了超高层、过滤层和过渡层后进入到淹没层,此时,大部分的有机物和氮、磷在植物根系吸收、填料吸附以及微生物降解的作用下已经被去除,但仍存在未被反硝化作用去除的硝态氮和未被降解的复杂有机物。当污水渗透到淹没层后专性厌氧菌和兼性厌氧菌的协同作用,将组成复杂的有机物分解为无机物,最终生成 $\text{CH}_4$ 和 $\text{CO}_2$ ,在此过程中,兼性厌氧菌可以将上层残留的部分溶解氧消耗掉,从而为专性厌氧菌降解有机物营造良好的厌氧环境<sup>[26]</sup>。

淹没层的厌氧过程主要分为水解发酵、产酸脱氢和产甲烷三个阶段。首先,兼性厌氧菌和专性厌氧菌在胞外酶的作用下将大分子复杂有机物分解为氨基酸、葡萄糖等易降解的小分子有机物,之后,在兼性厌氧菌和专性厌氧菌的共同作用下被降解为乙酸等脂肪酸,同时产生碳酸根、铵盐等产物。最后一阶段的反应较慢,仅专性厌氧菌(甲烷菌)参与反应,将上一阶段产生的有机酸等产物还原为 $\text{CH}_4$ ,整个过程的能量消耗远小于好氧过程,消耗的能量大部分用于维持细胞自身活动,少部分用于合成新细胞,因此,厌氧过程的污泥产量较少<sup>[26]</sup>。在整个 $\text{CH}_4$ 生成的过程中淹没层中的铁屑释放出的亚铁离子也可以进一步促进厌氧消化的进行<sup>[27]</sup>。依据污水中的有机物是否含氮,淹没层中 $\text{CH}_4$ 产生的总厌氧消化通式可表示如下<sup>[26]</sup>:



## 2.3 生物滞留池碳足迹模型构建

对于BRC而言,过滤层为非饱和和好氧状态,过渡层为缺氧状态,淹没层为厌氧状态,因此在过滤层会发生硝化反应,过渡层发生异养硝化反硝化和厌氧反应,淹没层则是发生厌氧反应。基于上述碳足迹产生机理,构建出如图2所示的BRC碳足迹模型。

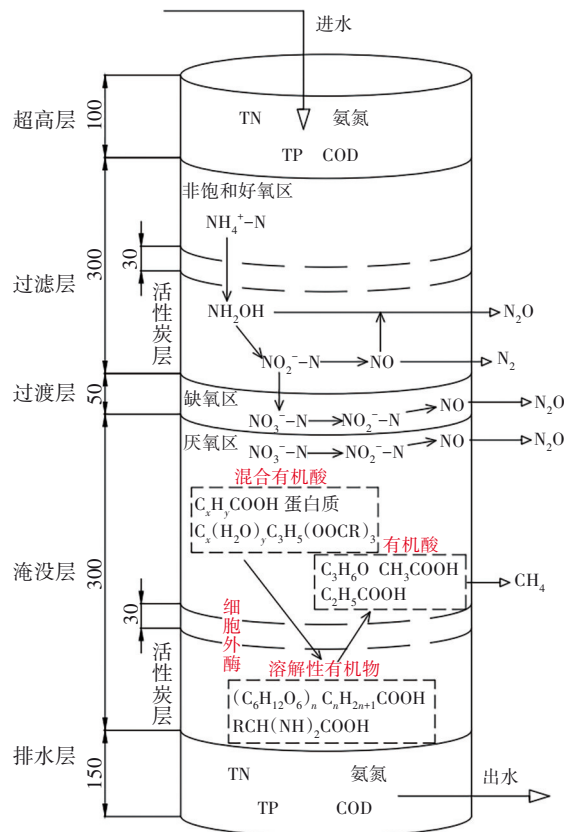


图2 BRC碳足迹模型

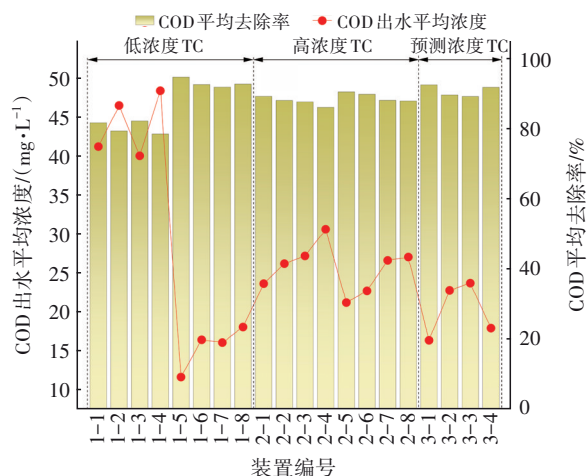
Fig.2 BRC carbon footprint model

## 3 生物滞留池除污降碳效果分析

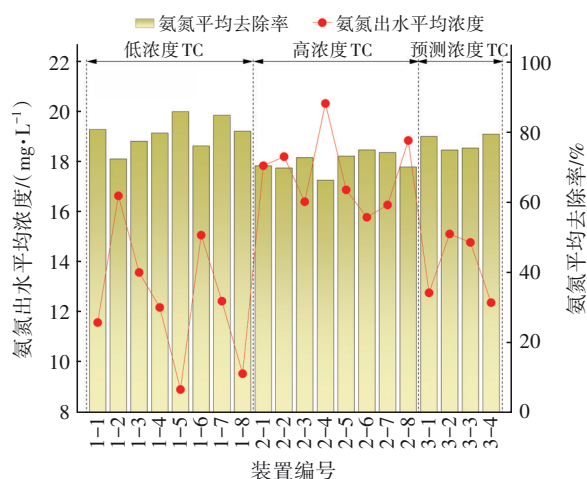
### 3.1 污染物去除效果

试验组进水COD、氨氮、TN、TP分别在227、60.40、61.82、4.43 mg/L左右,不同试验组BRC对以上各指标的去除效果如图3所示。与无植物BRC相比,种植植物后,在不同浓度的四环素胁迫下,COD的去除率有一定程度的变化,在四环素浓度为0.6 mg/L条件下,COD去除率较高,且种植菖蒲的BRC去除率最高,约为94.87%。而TN的去除率在四环素的胁迫下始终较低,但芦苇的TN去除率较高,约为73.26%,高浓度四环素下菖蒲的效果较好,约为65.95%。氨氮的去除率在高浓度四环素

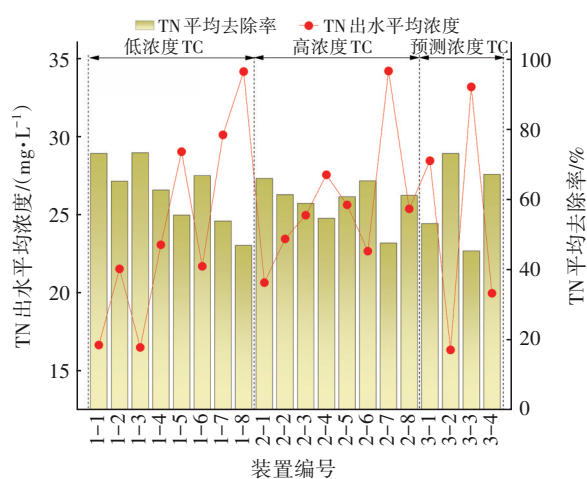
胁迫下降低,但在四环素浓度为 0.6 mg/L 时较高,最高约为 85.79%,种植的植物为菖蒲。TP 去除率在投加了四环素后有了明显提升,各装置的去除率基本维持在 98% 左右。



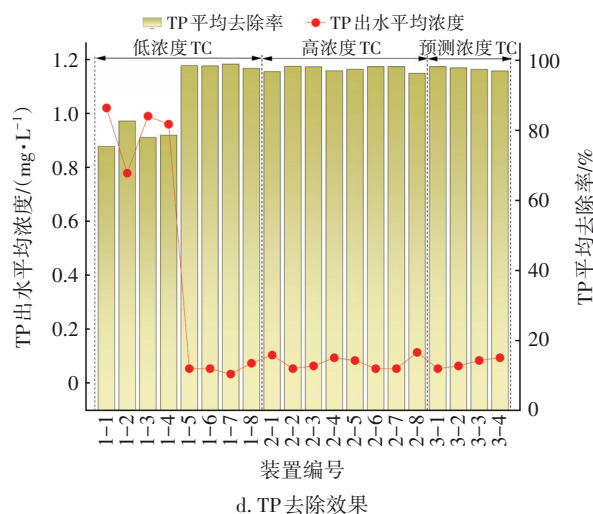
a. COD 去除效果



b. 氨氮去除效果



c. TN 去除效果



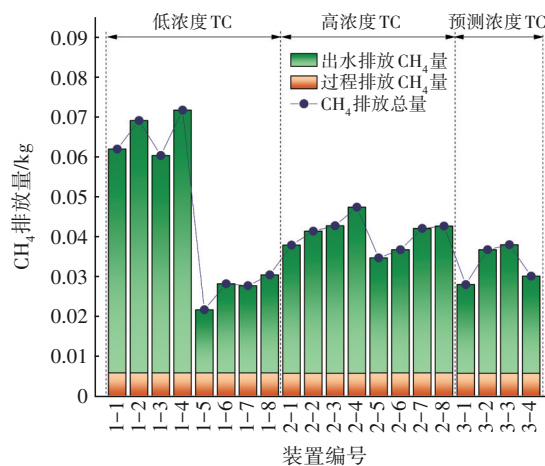
d. TP 去除效果

图 3 各试验组对污染物的去除效果

Fig.3 Pollutants removal effect of each group

### 3.2 CH<sub>4</sub>排放量估算

依据 IPCC 提供的人工湿地碳排放核算方法及排放系数,对 3 个试验组在运行过程中的 CH<sub>4</sub>排放量进行核算。此外,当处理后的出水流入到水库、湖泊或河口等水生环境时,由于其中有机物的影响也会产生一定量的 CH<sub>4</sub><sup>[28]</sup>。CH<sub>4</sub>的全球变暖潜能值为 25。装置处理后的尾水在流入到不同的环境后,其中残留的有机碳会使得环境的碳过度沉积,进而排放一定量的 CH<sub>4</sub>,试验中 BRC 的尾水排入到下水道,对于此部分尾水 IPCC 给出的排放因子为 0.125 kg/kg<sup>[29]</sup>。经计算,得到各试验组在运行过程中的 CH<sub>4</sub>排放量(以 CO<sub>2eq</sub> 计)见图 4。

图 4 各试验组的 CH<sub>4</sub>排放量Fig.4 CH<sub>4</sub> emissions of each test reaction group

由图 4 可以明显看出,种植植物可以减少 CH<sub>4</sub>的排放,无四环素时种植芦苇 BRC 的 CH<sub>4</sub>排放量最



少,较低浓度的四环素胁迫下 $\text{CH}_4$ 排放量总体较低,这说明低浓度TC可以对BRC的 $\text{CH}_4$ 排放起抑制作用,同时发现,无论四环素的浓度高还是低, $\text{CH}_4$ 排放量从大到小对应的BRC种植植物的排序总是芦苇>藜草>菖蒲,分析原因可能是芦苇的植物根系所形成的残体要多于藜草和菖蒲,可以给发酵型细菌提供更多的可分解有机质,促进 $\text{CH}_4$ 的排放。此外,芦苇根系分泌的氨基酸、有机酸等物质较多,也会影响 $\text{CH}_4$ 的排放量。种植菖蒲BRC的 $\text{CH}_4$ 排放量最低,可能是因为菖蒲与芦苇的外部形态和内部结构不同,导致根系发达程度和内部通气组织结构也不同。无植物BRC的 $\text{CH}_4$ 排放量较高,根本原因是土壤中的厌氧菌会通过一系列厌氧反应释放 $\text{CH}_4$ ,而种植了植物的BRC中,由于水生植物的各部位都具有较发达的通气组织,可以通过单分子扩散、气体组织中对流等过程,增加BRC内部氧含量,促进了甲烷氧化菌消耗 $\text{CH}_4$ 的过程。

### 3.3 $\text{N}_2\text{O}$ 排放量估算

$\text{N}_2\text{O}$ 的全球变暖潜能值为310。依据IPCC提供的人工湿地核算方法及相应排放系数(过程排放系数、出水排放系数分别为0.000 23、0.019  $\text{kg/kg}$ ),对运行过程及出水排放的 $\text{N}_2\text{O}$ 排放量进行估算,除BRC运行过程中好氧、厌氧、缺氧环境中多种反应机理产生的 $\text{N}_2\text{O}$ 外,装置处理后的尾水排入到下水道,由于微生物的硝化或反硝化作用部分 $\text{N}_2\text{O}$ 被释放<sup>[30]</sup>。在整个试验过程中, $\text{N}_2\text{O}$ 的过程排放量取决于各试验反应组进水总氮量,而出水排放量则取决于尾水中的总氮含量,各试验反应组的 $\text{N}_2\text{O}$ 总排放量见图5。

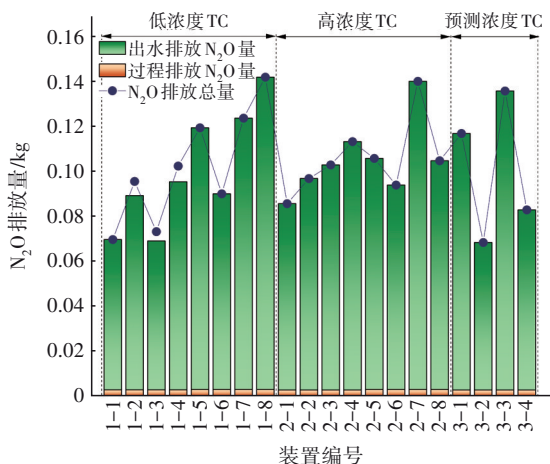


图5 各试验反应组 $\text{N}_2\text{O}$ 排放量

Fig.5  $\text{N}_2\text{O}$  emissions of each test reaction group

由图5可以看出无四环素存在时,种植植物后 $\text{N}_2\text{O}$ 的排放量明显减少,投加四环素后,无论四环素浓度低还是高,种植藜草BRC的 $\text{N}_2\text{O}$ 排放量始终较低,在高浓度TC下,种植芦苇BRC的 $\text{N}_2\text{O}$ 排放量始终相对较高,和TC浓度为0.6  $\text{mg/L}$ 相比,无TC和高浓度TC的条件是利于降低种植菖蒲BRC的 $\text{N}_2\text{O}$ 排放的。BRC中 $\text{N}_2\text{O}$ 的排放主要来源于过滤层和过渡层中的微生物硝化、反硝化以及硝化反硝化作用,植物在光合作用下,将太阳能转变为化学能,同时将氧气由叶输送到根,再从根系释放,进入到过滤层和过渡层从而影响环境的氧含量<sup>[31]</sup>,对于种植芦苇的BRC而言,可能是由于其光合作用不够强,以及其本身的结构特性导致整个过滤层和过渡层中的氧含量始终相对较低,总体上有利于微生物进行产生 $\text{N}_2\text{O}$ 的反应;TC浓度为1.2  $\text{mg/L}$ 时,菖蒲的 $\text{N}_2\text{O}$ 排放量最小,可能是由于此条件下可供AOB、NOB和反硝化菌利用的根系分泌物较多<sup>[32]</sup>,且光合作用相对较弱。

### 3.4 生物滞留池碳排放总量核算及分析

BRC碳排放总量见图6,如果不考虑污染物去除效果,对于种植不同植物的BRC碳排放量而言,在无四环素胁迫时菖蒲和芦苇的碳排放总量均较低,四环素浓度较低时藜草的碳排放总量相对较低,四环素浓度较高时芦苇的碳排放量较高,总体来看,种植了植物的BRC碳排放量一定小于无植物BRC,这与四环素的浓度高低无关。

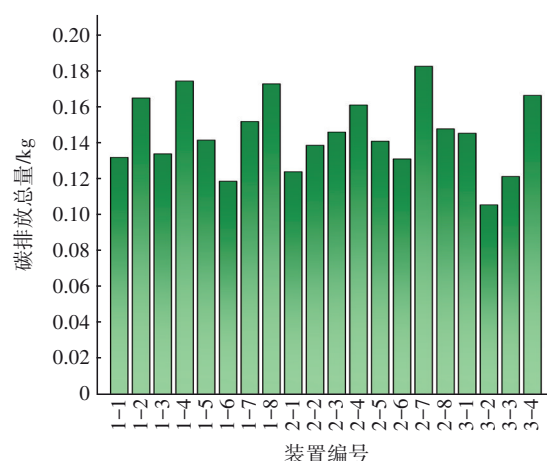


图6 各试验反应组碳排放总量

Fig.6 Total carbon emissions in test reaction group

## 4 Minitab19多元回归分析

### 4.1 回归模型的建立与分析

依据试验反应组一和试验反应组二中不同植

物BRC对污染物的去除效果及碳排放量核算结果,借助Minitab19进行多元回归分析,以探究四环素胁迫下不同植物BRC对污染物的去除效果和碳排放量之间的关系(A、B、C、D分别代表四环素浓度、COD去除率、TN去除率、碳排放量)。在时间维度为49 d的条件下,利用Minitab19得到二次回归方程模型如下:

$$D = 0.554 - 0.0358A + 0.15B - 0.882C + 0.01908A^2 - 0.441B^2 - 0.027C^2 - 0.0245AB + 0.0220AC + 0.691BC \quad (2)$$

由各一次项的回归系数可知,COD去除率对碳足迹的排放量影响为正效应,而四环素浓度和TN去除率对其为负效应。进一步对碳排放量进行方差分析,结果见表2。模型的显著性水平 $P$ 值 $<0.05$ , $C$ 、 $A^2$ 和 $BC$ 三项 $P$ 值 $<0.05$ ,对 $D$ 的影响显著,且复相关系数 $R^2=0.9982$ ,因此可以判断回归模型显著且误差较小,可用于碳排放量的预测。同时,依据 $F$ 值也可以判断出自变量对因变量影响程度的大小为 $C>A>B$ ,也就是说TN去除率对碳排放量影响最大,其次为四环素浓度和COD去除率。此外,四环素浓度的二次项、四环素浓度与TN去除率的交互项、COD去除率与TN去除率的交互项的偏回归系数也比较显著,说明这三者对碳排放量影响较强。

表2 碳排放量方差分析

Tab.2 Carbon footprint emission variance analysis

来源	自由度	Adj SS	Adj MS	F值	P值
回归	9	0.005331	0.000592	362.38	0.000
A	1	0.000001	0.000001	0.71	0.432
B	1	0.000000	0.000000	0.02	0.897
C	1	0.000018	0.000018	11.13	0.016
A <sup>2</sup>	1	0.000050	0.000050	30.52	0.001
B <sup>2</sup>	1	0.000001	0.000001	0.45	0.527
C <sup>2</sup>	1	0.000000	0.000000	0.04	0.843
AB	1	0.000000	0.000000	0.23	0.648
AC	1	0.000005	0.000005	3.27	0.121
BC	1	0.000014	0.000014	8.27	0.028
误差	6	0.000010	0.000002		
合计	15	0.005341			

依据式(2)绘制了四环素浓度、COD去除率、TN去除率和碳排放的等直线图和曲面图,对污染物去除效果和碳排放量之间的关系进行进一步分析,结

果见图7。当COD去除率在93%以上、四环素浓度为0.5~1.8 mg/L时,碳排放量小于0.13 kg;当TN去除率保持在68%以上、四环素浓度为0.2~1.8 mg/L时,碳排放量小于0.13 kg;当COD去除率 $>93\%$ 、TN去除率 $>71\%$ 时,碳排放量小于0.10 kg。综上所述,当四环素浓度为0.5~1.8 mg/L、COD去除率 $>93\%$ 、TN去除率 $>71\%$ 时,碳排放量将小于0.13 kg。

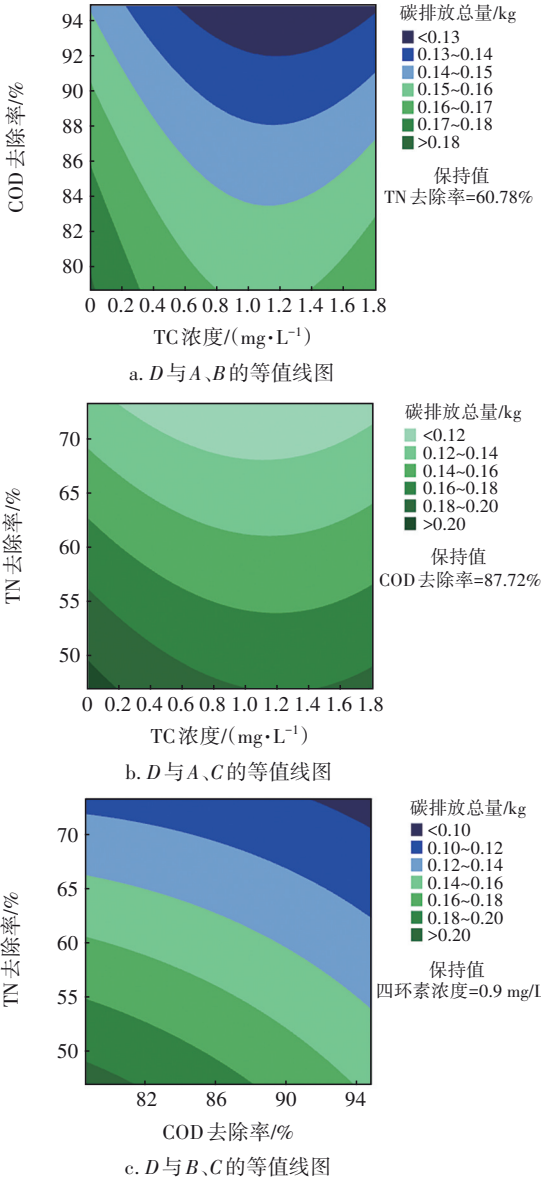


图7 碳排放量与四环素浓度、COD去除率和TN去除率的等值线图

Fig.7 Contour map of relationship between carbon emission, tetracycline concentration, COD removal rate and TN removal rate

4.2 最优碳排放量的预测与模型验证

借助已建立的多元回归模型对碳排放量最小



时的进水四环素浓度及减污效果进行预测,可得模型预测最优结果。当四环素浓度为1.127 3 mg/L,且COD去除率在94.87%左右、TN去除率在73.26%左右时,碳排放量可达最小值,为0.092 2 kg。

为了更好地验证模型预测的结果是否准确,将试验反应组三作为补充试验,用以对比。从图3和图6可以看到,当四环素浓度为0.1 mg/L时,种植菖蒲、藜草、芦苇和空白的BRC对COD的去除率分别为92.66%、89.78%、89.37%、91.96%,TN去除率分别为53.11%、73.04%、45.34%、67.08%,经计算,碳排放总量分别为0.146 2、0.109 3、0.125 4、0.168 0 kg,在此条件下,计算模型预测所得的碳排放总量分别为0.134 8、0.121 3、0.203 3、0.171 3 kg,实际检测结果和模型预测结果相差不大,证明了回归模型的可靠性。

#### 4.3 四环素胁迫下的减污降碳效果分析

试验反应组一的结果表明,在四环素浓度为较低的0.6 mg/L时,和没有四环素相比,各BRC的COD去除率有较明显的提升,TN的去除率随四环素的浓度增加呈下降趋势,仅种植藜草的BRC有略微上升的趋势。试验反应组二的结果表明,随四环素浓度继续增大COD去除率反而呈下降趋势,种植菖蒲和芦苇的BRC的TN去除率呈下降趋势,而种植藜草和无植物的BRC呈上升趋势。借助等值线图可以分析出,当四环素浓度处于较高水平的1.2 mg/L时,COD去除率达到93%以上、TN去除率达到68%以上时碳排放量相对最小,此为高浓度四环素条件下最优试验结果,BRC<sub>2-1</sub>的COD去除率、TN去除率均最接近预测的最优值,其碳排放量为0.123 9 kg,为试验反应组二中最低,同时其TP和氨氮去除率分别为96.47%和70.45%,综合去除效果最好,此时种植植物为菖蒲,其次为BRC<sub>2-6</sub>,种植植物为藜草。在四环素浓度处于较低水平时,试验反应组一中的BRC<sub>1-6</sub>对COD的去除率为92.76%,TN去除率为66.73%,碳排放量为0.118 6 kg,且TP和氨氮的去除率均较高,分别为97.54%和74.93%,此时BRC种植的植物为藜草。在试验反应组三中各装置的碳排放量由大到小依次为BRC<sub>3-4</sub>、BRC<sub>3-1</sub>、BRC<sub>3-3</sub>、BRC<sub>3-2</sub>,结合去除效果来看,认为综合处理效果排序为BRC<sub>3-2</sub>>BRC<sub>3-1</sub>>BRC<sub>3-3</sub>=BRC<sub>3-4</sub>。另外,将试验反应组三的BRC<sub>3-1</sub>、BRC<sub>3-2</sub>、BRC<sub>3-3</sub>、BRC<sub>3-4</sub>与试验反应组一中的BRC<sub>1-5</sub>、BRC<sub>1-6</sub>、BRC<sub>1-7</sub>、BRC<sub>1-8</sub>处理效果进

行组内比较和组间比较可以发现COD去除率相差不大,BRC<sub>3-2</sub>的COD去除率略低,但TN去除率最高,约为73.04%,氨氮和TP的去除率分别为74.93%和97.54%,均较高,且BRC<sub>3-2</sub>的碳排放总量最低,约为0.105 4 kg,因此可以认为在低浓度四环素下,选择藜草作为BRC的种植植物可以使得污染物去除效果较好且碳排放量相对最小。

#### 5 结论

① 无论四环素浓度高或是低,在不考虑碳排放量的前提下,污水处理效果排序为菖蒲>藜草>芦苇>空白,种植菖蒲的BRC对COD的去除效果及脱氮除磷效果均较好。从总体上看,种植藜草的BRC去除效果略弱于种植菖蒲的BRC。

② 当四环素浓度较低时,藜草的碳排放量最小,四环素浓度较高时,菖蒲的碳排放量最小,无论四环素浓度处于何种水平,芦苇的碳排放量总是最大,但仍小于空白。

③ 在本试验条件下,碳排放量、四环素浓度、COD去除率、TN去除率之间的关系可通过回归模型 $D=0.554-0.0358A+0.15B-0.882C+0.01908A^2-0.441B^2-0.027C^2-0.0245AB+0.0220AC+0.691BC$ 来判断,通过试验反应组三的试验结果可以认为此模型是可靠的。

④ 当四环素浓度处于较低水平时(0~0.6 mg/L),种植藜草可以使得BRC的COD去除率在89%以上,TN去除率达到66%以上,且碳排放总量最低为0.105 4 kg,此时综合处理效果最佳。当四环素浓度处于较高水平时(1.2~1.8 mg/L),种植菖蒲可以使得BRC的COD去除率在89%以上,TN去除率达到60%以上,且碳排放总量最低为0.123 9 kg,此时综合处理效果最佳。

#### 参考文献:

- [1] 杨万成. 污水处理厂温室气体核算与减排潜力研究[D]. 邯郸:河北工程大学,2020.  
YANG Wancheng. Study on Greenhouse Gas Accounting and Emission Reduction Potential of Wastewater Treatment Plants [D]. Handan: Hebei University of Engineering, 2020 (in Chinese).
- [2] 仲冉,葛秋易,杨凤,等. 厂村融合型小流域污染控制关键技术及工程示范[J]. 中国给水排水,2021,37(22):104-108.

- ZHONG Ran, GE Qiuyi, YANG Feng, *et al.* Key technologies and project demonstration of industrial and agricultural integrating pollution control in a small watershed [J]. *China Water & Wastewater*, 2021, 37 (22): 104–108 (in Chinese).
- [3] LEE J Y, MOON H J, KIM T I, *et al.* Quantitative analysis on the urban flood mitigation effect by the extensive green roof system [J]. *Environmental Pollution*, 2013, 181: 257–261.
- [4] DAVIS A P, HUNT W F, TRAVER R G, *et al.* Bioretention technology: overview of current practice and future needs [J]. *Journal of Environmental Engineering*, 2009, 135 (3): 109–117.
- [5] 刘早红, 蔡官军, 徐晨. 生物滞留池对氮磷去除的研究[J]. *节能与环保*, 2020 (9): 68–69.
- LIU Zaohong, CAI Guanjin, XU Chen. Study on nitrogen and phosphorus removal by biological retention tank [J]. *Energy Conservation & Environmental Protection*, 2020 (9): 68–69 (in Chinese).
- [6] WANG Y, GENG C, CHEN T, *et al.* Adaptability of enhanced bioretention cell for nitrogen and phosphorus removal under two antibiotics stress [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2022, 230: 113114.
- [7] 许妍, 席慕华, 耿冲冲, 等. 无植物生物滞留池去除生活污水中典型抗生素及其效能强化[J]. *东南大学学报(自然科学版)*, 2020, 50 (4): 748–759.
- XU Yan, XI Muhua, GENG Chongchong, *et al.* Removals of typical antibiotics in sewage by unplanted bioretention cells: efficiency and its enhancement [J]. *Journal of Southeast University (Natural Science Edition)*, 2020, 50 (4): 748–759 (in Chinese).
- [8] 王亚军, 陈甜婧, 李金守. 无植物生物滞留池连续运行处理污水的渗流特性实验研究[J]. *环境工程*, 2022, 40(1): 27–31, 51.
- WANG Yajun, CHEN Tianjing, LI Jinshou. Permeability of unplanted bioretention cell under continuous operation [J]. *Environmental Engineering*, 2022, 40(1): 27–31, 51 (in Chinese).
- [9] 杨世琪. 城镇污水处理系统碳核算方法与模型研究[D]. 重庆: 重庆大学, 2013.
- YANG Shiqi. The Method and Model Research of GHG Accounting of Urban Sewage Treatment System [D]. Chongqing: Chongqing University, 2013 (in Chinese).
- [10] 石春力, 田永英, 黄海伟, 等. 我国城镇污水处理碳排放核算方法研究综述[J]. *建设科技*, 2021 (11): 39–43.
- SHI Chunli, TIAN Yongying, HUANG Haiwei, *et al.* Summary of researches on accounting methods of carbon emissions from urban sewage treatment [J]. *Construction Science and Technology*, 2021 (11): 39–43 (in Chinese).
- [11] BARTRAM D, SHORT M D, EBIE Y, *et al.* Wastewater Treatment and Discharge of 2006 IPCC Guidelines for National Greenhouse Gas Inventories [R]. Geneva: IPCC, 2019.
- [12] LAW Y, JACOBSEN G E, SMITH A M, *et al.* Fossil organic carbon in wastewater and its fate in treatment plants [J]. *Water Research*, 2013, 47 (14): 5270–5281.
- [13] 潘涛. 人工湿地减排温室气体估算研究[D]. 南京: 南京大学, 2011.
- PAN Tao. Study on Estimate of Greenhouse Gas Emission Reduction by Constructed Wetlands [D]. Nanjing: Nanjing University, 2011 (in Chinese).
- [14] VYMAZAL J, KRPFELOVÁ L. Wastewater Treatment in Constructed Wetlands with Horizontal Sub-surface Flow [M]. Berlin: Springer, 2008.
- [15] SOVIK A K, KLOVE B. Emission of  $N_2O$  and  $CH_4$  from a constructed wetland in southeastern Norway [J]. *Science of the Total Environment*, 2007, 380 (1/3): 28–37.
- [16] 王维奇, 曾从盛, 全川. 湿地甲烷氧化测定方法及主要控制因子研究综述[J]. *亚热带资源与环境学报*, 2007 (3): 55–62.
- WANG Weiqi, ZENG Congsheng, TONG Chuan. Review on the measurement and controlling factors of methane oxidation in wetlands [J]. *Journal of Subtropical Resources and Environment*, 2007 (3): 55–62 (in Chinese).
- [17] 张国珍, 亢瑜, 尚兴宝. 生化尾水胁迫下湿地植物生理特性变化[J]. *水生态学杂志*, 2020, 41 (3): 123–128.
- ZHANG Guozhen, KANG Yu, SHANG Xingbao. Changes of physiological characteristics of wetland plants under biochemical tail water stress [J]. *Journal of Hydroecology*, 2020, 41 (3): 123–128 (in Chinese).
- [18] 高俊红, 王兆炜, 张涵瑜, 等. 兰州市污水处理厂中典型抗生素的污染特征研究[J]. *环境科学学报*, 2016, 36 (10): 3765–3773.
- GAO Junhong, WANG Zhaowei, ZHANG Hanyu, *et al.* Occurrence and the fate of typical antibiotics in sewage treatment plants in Lanzhou [J]. *Acta Scientiae*

- Circumstantiae, 2016, 36 (10) : 3765-3773 (in Chinese).
- [19] TRAN N H, CHEN H, REINHARD M, *et al.* Occurrence and removal of multiple classes of antibiotics and antimicrobial agents in biological wastewater treatment processes [J]. *Water Research*, 2016, 104: 461-472.
- [20] XIN Z, ZHAO H, DU J, *et al.* Occurrence, removal, and risk assessment of antibiotics in 12 wastewater treatment plants from Dalian, China [J]. *Environmental Science & Pollution Research International*, 2017, 24 (11): 1-10.
- [21] 许萍, 何俊超, 张建强, 等. 生物滞留强化脱氮除磷技术研究进展 [J]. *环境工程*, 2015, 33 (11): 21-25, 30.
- XU Ping, HE Junchao, ZHANG Jianqiang, *et al.* Overview of bioretention for improving removal of nitrogen and phosphorus technologies [J]. *Environmental Engineering*, 2015, 33 (11): 21-25, 30 (in Chinese).
- [22] 郭静波, 叶兆勇, 付欣, 等. 废水生物脱氮工艺中  $N_2O$  排放数学模型研究进展 [J]. *化学通报*, 2017, 80 (3): 266-272, 287.
- GUO Jingbo, YE Zhaoyong, FU Xin, *et al.* Recent advances in mathematical modeling of nitrous oxide emissions from biological nitrogen removal processes [J]. *Chemistry*, 2017, 80 (3): 266-272, 287 (in Chinese).
- [23] MANNINA G, EKAMA G, CANIANI D, *et al.* Greenhouse gases from wastewater treatment—a review of modelling tools [J]. *Science of the Total Environment*, 2016, 551: 254-270.
- [24] 巩有奎, 李剑慧, 李美玲, 等. 不同碳源驯化聚糖菌反硝化及  $N_2O$  释放特性 [J]. *中国给水排水*, 2021, 37 (5): 17-25.
- GONG Youkui, LI Jianhui, LI Meiling, *et al.* Characteristics of denitrification and  $N_2O$  emission of acclimated glycogen accumulating organisms under different carbon sources [J]. *China Water & Wastewater*, 2021, 37 (5): 17-25 (in Chinese).
- [25] 李迪, 陈垚, 吕波. 生物滞留系统对溶解性污染物的去除特性及优化途径 [J]. *环境工程*, 2020, 38 (10): 120-127.
- LI Di, CHEN Yao, LÜ Bo. Characteristics and optimization approach for removal of dissolved pollutants in bioretention systems [J]. *Environmental Engineering*, 2020, 38 (10): 120-127 (in Chinese).
- [26] 张自杰. 排水工程 [M]. 北京: 中国建筑工业出版社, 2015.
- ZHANG Zijie. *Water Drainage Engineering* [M]. Beijing: China Architecture & Building Press, 2015 (in Chinese).
- [27] ZHANG Y, JING Y, QUAN X, *et al.* A built-in zero valent iron anaerobic reactor to enhance treatment of azo dye wastewater [J]. *Water Science and Technology*, 2011, 63 (4): 741-746.
- [28] SHORT M D, DAIKELER A, WALLIS K, *et al.* Dissolved methane in the influent of three Australian wastewater treatment plants fed by gravity sewers [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, 599: 85-93.
- [29] IPCC. 2013 Supplement to the 2006 IPCC Guidelines for National Greenhouse Gas Inventories: Wetlands [R]. Geneva: IPCC, 2013.
- [30] SHORT M D, DAIKELER A, PETERS G M, *et al.* Municipal gravity sewers: an unrecognised source of nitrous oxide [J]. *Science of the Total Environment*, 2014, 468: 211-218.
- [31] 龚小杰, 袁兴中, 刘婷婷, 等. 水生植物对淡水生态系统温室气体排放的影响研究进展 [J]. *地球与环境*, 2020, 48 (4): 496-509.
- GONG Xiaojie, YUAN Xingzhong, LIU Tingting, *et al.* Review on effects of aquatic plants on the greenhouse gas emission from freshwater ecosystems [J]. *Earth and Environment*, 2020, 48 (4): 496-509 (in Chinese).
- [32] GU X Z, CHEN K N, FAN C X, *et al.* Preliminary evidence of effects of *Phragmites australis* growth on  $N_2O$  emissions by laboratory microcosms [J]. *Ecological Engineering*, 2015, 83: 33-38.

作者简介: 徐衍超(1998-), 男, 吉林省吉林市人, 硕士研究生, 主要研究方向为污水处理技术。

E-mail: 863054461@qq.com

收稿日期: 2022-09-08

修回日期: 2022-10-24

(编辑: 李德强)