

DOI:10.19853/j.zgjsps.1000-4602.2025.21.014

AAOA-MBR工艺的 N_2O 排放规律及生成机理

李岩¹, 刘颖诗², 于翔², 李浩², 董浩韬², 杜至力²,
罗凡², 陈世飞¹

(1. 广州市城市排水监测站, 广东 广州 510510; 2. 广州市市政工程设计研究总院有限公司, 广东 广州 510663)

摘要: 通过对某厌氧-缺氧-好氧-缺氧/MBR(AAOA-MBR)工艺污水处理厂进行全流程 N_2O 排放量检测和 N_2O 排放因子核算,考察该工艺沿程 N_2O 排放规律,结合宏基因组全基因组测序技术,进一步阐释该工艺的微生物菌群结构特征和氮代谢路径。结果表明,该污水处理厂的全流程 N_2O 排放总量为12.303 kg/d,其中,预处理阶段的 N_2O 排放量最高,达到2.709 kg/d,生化处理阶段中MBR池的 N_2O 排放量最高,达到1.940 kg/d。该厂全流程 N_2O 排放因子为0.001 534 kg N_2O -N/kg N_{in} ,小于IPCC推荐值(0.016 kg N_2O -N/kg N_{in})以及《城镇水务系统碳核算与减排路径技术指南》中AAO工艺案例的平均值(0.004 66 kg N_2O -N/kg N_{in}),但与我国部分根据实测法计算的AAO工艺案例结果接近。AAOA-MBR工艺中与氮代谢相关的丰度最高的菌属为 *Comamonas*,相对丰度达到1.90%~2.96%;在氮代谢过程中,除厌氧氨氧化路径之外的其他氮代谢路径均被检出。

关键词: N_2O ; 排放因子; AAOA-MBR工艺; 微生物菌群结构; 氮代谢路径

中图分类号: TU992 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-4602(2025)21-0096-08

Nitrous Oxide Emission Characteristics and Formation Mechanism in AAOA-MBR Process

LI Yan¹, LIU Ying-shi², YU Xiang², LI Hao², DONG Hao-tao², DU Zhi-li²,
LUO Fan², CHEN Shi-fei¹

(1. Guangzhou Urban Drainage Monitoring Station, Guangzhou 510510, China; 2. Guangzhou Municipal Engineering Design & Research Institute Co. Ltd., Guangzhou 510663, China)

Abstract: A comprehensive investigation was conducted on nitrous oxide (N_2O) emission throughout the entire process and the emission factor was calculated for a full-scale anaerobic-anoxic-aerobic-anoxic and membrane bioreactor (AAOA-MBR) wastewater treatment plant (WWTP). The emission characteristics of N_2O along the AAOA-MBR process were analyzed. Furthermore, the microbial community structure and key nitrogen metabolic pathways involved in the process were elucidated by integrating metagenomic whole-genome sequencing technology. The total N_2O emission from the entire wastewater treatment process amounted to 12.303 kg/d. The pretreatment stage exhibited the highest N_2O emission, reaching 2.709 kg/d. Within the biochemical treatment stage, the MBR demonstrated the greatest N_2O emission of 1.940 kg/d. The N_2O emission factor for the entire process at this WWTP was

基金项目: 广州市水务局水务科技项目(2023-007-FS)

通信作者: 陈世飞 E-mail: 47698615@qq.com

0.001 534 kgN₂O-N/kgN_{inf}, which was lower than both the IPCC recommended value (0.016 kgN₂O-N/kgN_{inf}) and the average value reported for AAO process cases in *Guidelines for Carbon Accounting and Emission Reduction in the Urban Water Sector* (0.004 66 kgN₂O-N/kgN_{inf}), while being consistent with the results from certain AAO process cases in China derived using the measurement-based method. In the AAOA-MBR process, *Comamonas* was the predominant genus associated with nitrogen metabolism, exhibiting a relative abundance of 1.90%-2.96%. During nitrogen metabolism, all metabolic pathways were detected except for the Anammox pathway.

Key words: nitrous oxide (N₂O); emission factor; AAOA-MBR process; microbial community structure; nitrogen metabolic pathway

氧化亚氮(N₂O)是对臭氧层具有严重威胁的气体之一,同时也是一种强温室气体。研究表明,全球 N₂O 排放量中人为源占比 43%,其中污水处理过程中排放的 N₂O 占比 7%^[1],针对污水处理过程中 N₂O 排放规律和生成机理的研究对全球温室气体排放的控制意义重大。

N₂O 的排放量与进水水质、运行工艺、地区环境条件等均有较大相关性。目前普遍采用排放因子法对污水处理系统中 N₂O 的排放量进行核算,该方法为间接估算法,适用于国家、省份、城市等较为宏观的核算层面,但不能反映特定地区污水处理厂的实际运行情况。2019 年,联合国政府间气候变化专门委员会(IPCC)通过了《IPCC 2006 年国家温室气体清单指南 2019 修订版》,给出污水处理系统的 N₂O 排放因子为 0. 016 kgN₂O-N/kgN_{inf};2022 年,中国城镇供水排水协会组织编写的《城镇水务系统碳核算与减排路径技术指南》将该因子修正为 0. 009 kgN₂O-N/kgN_{inf}。N₂O 排放因子的取值个体差异性明显,且对最终核算结果影响较大,因此,针对特定工艺的污水处理厂,通过实测法对排放因子的取值进行计算和验证显得尤为重要。

华南地区某污水处理厂采用 AAOA(厌氧-缺氧-好氧-缺氧)与 MBR 有机结合的新型工艺,笔者结合工艺中污水的氮元素沿程转化规律,研究 N₂O 的沿程排放量,计算各阶段的 N₂O 排放因子,继而分析该工艺的氮代谢机理,以期 AAOA-MBR 工艺污水处理厂的 N₂O 减排提供数据支持和技术参考。

1 材料与方法

1.1 污水处理厂概况

华南地区某污水处理厂按“主要构筑物埋地式”的形式进行建设,预处理工艺采用细格栅+曝气

沉砂池+膜格栅,生化处理工艺采用 AAOA+MBR,之后采用紫外线消毒。剩余污泥采用污泥浓缩+深度机械脱水+热干化处理后外运处置。污水处理厂已建规模为 16×10⁴ m³/d,目前实际处理水量约为 11×10⁴ m³/d,进、出水水质见表 1。

表 1 污水厂进、出水水质

Tab.1 Quality of influent and effluent in WWTP

mg·L⁻¹

项目	COD	BOD ₅	TN	NH ₄ ⁺ -N
设计进水	280	140	35	30
设计出水	40	10	15	2.0
实际进水	244.02	134.12	29.48	26.85
实际出水	10.39	1.13	6.51	1.48

注: 实际进、出水浓度为日均值。

1.2 采样方法

污水厂各工艺单元加盖对臭气进行全收集和全处理,2023 年 11 月每周固定时间分别进行 2 次现场采样(气、水、泥样),共计采样 10 次。在污水厂各处理单元上方集气支管和气体除臭装置前集气总管进行气体采样,水样和活性污泥样品从各池体位于末端的取样口直接采集。粗格栅区域设有独立的集气支管,在集气支管进行采样;细格栅、沉砂池和膜格栅共用一套除臭装置,集气支管无取样口,在除臭装置进气总管进行采样;生化池的厌氧段、缺氧段、好氧段和后缺氧段有独立的集气支管,在不同单元的支管进行采样;MBR 区域设置了单独的除臭装置,在除臭装置进气总管进行采样;污泥浓缩和干化共用一套除臭装置,在除臭装置进气总管进行采样。水样取样点分别位于粗格栅、细格栅、沉砂池、膜格栅以及生化池厌氧段、缺氧段、好氧段、后缺氧段和 MBR 池。活性污泥取样点分别位于

厌氧区、缺氧Ⅰ区、好氧区和缺氧Ⅱ区。

1.3 检测项目与方法

常规水质指标均采用国家标准方法测定。活性污泥样品送至生工生物工程(上海)股份有限公司进行微生物检测,基于Illumina™二代测序平台进行宏基因组分析。

在气体采样点用卷尺测量集气支管和总管的尺寸,根据《通风与空调工程施工质量验收规范》(GB 50243—2016)测量风量的要求,在风管断面均匀布点,使用便携风速仪测量管道断面的风速。采用配有电子捕获检测器(ECD)的气相色谱仪(日本岛津GC-2010),使用GDX-502填充柱,进样口温度为50℃,流速为15 mL/min,使用峰面积和外标法定量测定收集气体的N₂O浓度。

1.4 N₂O排放量和排放因子计算方法

N₂O的排放量按照式(1)和式(2)计算。

$$L = 3600 \times F \times V \quad (1)$$

$$CE_{N_2O} = 24 \times L \times C_{N_2O} \times 10^{-3} \quad (2)$$

式中: F 为风管测定断面面积,m²; V 为风管测定断面平均风速,m/s; L 为风管风量,m³/h; C_{N_2O} 为N₂O浓度,mg/L; CE_{N_2O} 为N₂O排放量,kg/d。

IPCC给出N₂O排放因子的单位为kgN₂O-N/kgN_{inf},为保持一致,N₂O排放因子按照式(3)计算。

$$EF_{N_2O} = \frac{CE_{N_2O}}{Q_{inf} \times TN_{inf}} \times \frac{28}{44} \times 10^3 \quad (3)$$

式中: Q_{inf} 为污水厂进水量,m³/d; TN_{inf} 为污水厂进水TN浓度,mg/L; 28/44为转换系数; EF_{N_2O} 为N₂O排放因子,kgN₂O-N/kgN_{inf}。

2 结果与分析

2.1 AAO-MBR工艺沿程N₂O排放规律

对该污水厂全流程的气体排放量和水质污染物浓度进行监测,N₂O排放量及各处理阶段的污染物浓度变化情况如图1所示。该厂的N₂O排放总量为12.303 kg/d。各处理单元的N₂O排放量大小顺序为:细格栅+沉砂池+膜格栅>膜池>污泥浓缩+干化>后缺氧池>好氧池>粗格栅+提升泵房>厌氧池>缺氧池。预处理阶段沿程TN、NH₄⁺-N、NO₃⁻-N、NO₂⁻-N浓度变化较小,说明新产生的N₂O很少,气态N₂O的排放主要来源于进水中溶解态N₂O的逸散,比如经过格栅时的跌水增加出水截流面积所引起的气体逸散作用以及沉砂池中的曝气吹脱作用。

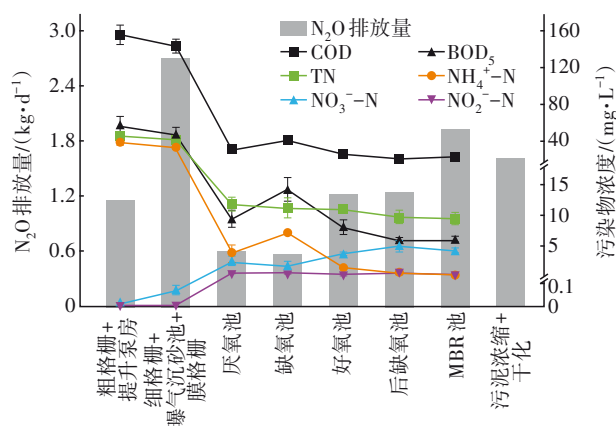


图1 各处理阶段的N₂O排放量和污染物浓度

Fig.1 N₂O emission and pollutants concentration at each treatment stage

COD在细格栅+曝气沉砂池+膜格栅阶段至厌氧池阶段大幅度下降,从143.56 mg/L降至32 mg/L,主要是由于曝气作用的振动使得砂砾中的有机物释放并沉淀以及内回流的稀释作用。污水进入厌氧池后,在外回流稀释、污染物吸附和微生物降解的共同作用下,COD、BOD₅、TN和NH₄⁺-N浓度迅速降低,在厌氧池和缺氧池进行的反硝化作用下NO₂⁻-N浓度有小幅上升。在厌氧池和缺氧池段检测出N₂O的排放,这是因为好氧池和缺氧池之间存在的内回流带来的少量DO使得反硝化作用进行得不彻底,导致产生反硝化中间产物N₂O。相关研究指出^[2],在缺氧环境中存在DO、低pH和低C/N等因素会抑制Nos活性,导致N₂O在反硝化过程中产生暂时性积累;此外,异养反硝化菌例如脱氮副球菌(*P. denitrificans*)将硝酸盐还原为氨氮的过程中也会产生N₂O^[3]。由于不曝气区域仅存在机械搅拌作用,大部分N₂O产生后仍为溶解态并未排放。在好氧池内,NH₄⁺-N浓度的下降和NO₃⁻-N浓度的上升较明显,NO₂⁻-N浓度变化不大,N₂O的排放量急剧增加,一方面,在上一阶段(缺氧反硝化)中生成的N₂O被好氧池曝气吹脱排放;另一方面,N₂O作为硝化过程的中间产物产生并排放,尤其在DO不足的情况下,氨氧化菌(AOB)进行短程硝化,存在由羟胺脱氢酶(*hao*)催化将羟胺(NH₂OH)直接氧化成N₂O的过程^[4]。相关研究指出^[5],硝化过程中AOB的反硝化作用是污水处理系统中N₂O的主要来源,尤其在低DO条件下AOB将NO₂⁻-N还原为N₂O。有研究者在某AAO工艺污水厂好氧段测得N₂O的排放量

占生化阶段的 40% 以上^[6],可见好氧曝气作用和硝化作用是生物脱氮过程中 N_2O 的主要排放源。污水进入后缺氧池, N_2O 排放量依然较高,池内 $NO_3^- - N$ 和 $NO_2^- - N$ 浓度也有小幅上升,这可能是因为好氧池末端的 DO 被带入后缺氧池中,后缺氧池中 DO 的存在抑制了 N_2O 还原酶的生物活性,导致在缺氧环境中反硝化过程不彻底,产生大量的 N_2O 。污水进入到膜池中, N_2O 排放量达到生化阶段的峰值,主要原因是,在膜池的大曝气量吹脱作用下,溶解态 N_2O 及在上一阶段反硝化过程中积累的 N_2O 大量释放。在污泥浓缩+干化阶段,反硝化反应仍在持续发生,此外,污泥絮体内部发生同步硝化反硝化(SND)反应,也是 N_2O 不容忽视的产生源^[7]。相关研究指出^[8],缺氧池和好氧池是活性污泥法生物脱氮过程中 N_2O 产生的主要点位,而硝化过程 DO 浓度低与反硝化过程中存在 DO 的干扰则是影响 AAO 生物池 N_2O 产生的主要因素。本研究中 AAOA-MBR 工艺生化处理阶段的 N_2O 排放量为 5.58 kg/d,其中好氧阶段、缺氧阶段和厌氧阶段的 N_2O 排放占比分别为 56.7%、32.5% 和 10.8%。

2.2 AAOA-MBR 工艺的 N_2O 排放因子

根据 1.2 节的检测方法对该污水厂各处理阶段的 N_2O 排放量进行实测,并依据式(3)计算 N_2O 排放因子,粗格栅+提升泵房、细格栅+曝气沉砂池+膜格栅、厌氧池、缺氧池、好氧池、后缺氧池、MBR 池、污泥浓缩+干化的 N_2O 排放因子分别为 0.000 144、0.000 338、0.000 075、0.000 071、0.000 156、0.000 156、0.000 242、0.000 201 kg $N_2O - N / kg N_{inf}$,全流程 N_2O 排放因子为 0.001 534 kg $N_2O - N / kg N_{inf}$ 。相比 IPCC 推荐值 0.016 kg $N_2O - N / kg N_{inf}$,本次实测的污水厂 N_2O 排放因子还不到其的 10%,这是因为 IPCC 采用的统一排放因子并未区分不同工艺类型之间的差异性,其调研案例包含了具有较高 N_2O 排放量的 SBR 工艺,导致其 N_2O 排放因子推荐值较高。《城镇水务系统碳核算与减排路径技术指南》中 AAO 工艺案例的 N_2O 排放因子平均值为 0.004 66 kg $N_2O - N / kg N_{inf}$,本次实测的污水厂 N_2O 排放因子约为其的 30%。Ren 等^[9]对我国北方某 AAO 工艺污水厂生化阶段的 N_2O 排放通量进行实测分析,该污水厂的进水 TN > 55 mg/L、COD > 140 mg/L,出水 TN < 15 mg/L、COD < 50 mg/L, N_2O 排放因子为 0.000 773 kg $N_2O - N / kg N_{inf}$,好氧阶段的 N_2O 排放量最高,占生物脱氮过程的 50%

以上,本次实测的 AAOA-MBR 工艺污水厂的 N_2O 排放因子大于该 AAO 工艺污水厂的,主要是因为 AAOA-MBR 工艺污水厂的进水 TN 浓度较低,后缺氧池产生了大量 N_2O ,此外预处理阶段和污泥浓缩干化阶段也排放了大量 N_2O 。Yan 等^[10]对北京某 AAO 工艺污水厂的生化阶段进行了为期 9 个月的 N_2O 实测分析,该污水厂的进水 TN 浓度为 56~90 mg/L,得出 N_2O 排放因子为 0.000 55 kg $N_2O - N / kg N_{inf}$, N_2O 最大排放量出现在好氧阶段,低于本研究实测的 AAOA-MBR 工艺污水厂的全流程 N_2O 排放因子,但是该 AAO 工艺污水厂的进水 TN 浓度较高,而且其仅对生化阶段排放的 N_2O 进行收集,未包含预处理和污泥浓缩阶段。由此可见,工艺类型、进水水质、运行条件等因素均会对 N_2O 的生成和排放产生影响,本研究实测的 AAOA-MBR 工艺污水厂的全流程 N_2O 排放因子小于 IPCC 推荐值以及《城镇水务系统碳核算与减排路径技术指南》中关于 AAO 工艺案例的平均值,但是与我国部分实测的 AAO 工艺案例结果接近。

2.3 微生物菌群结构特征和氮代谢路径

2.3.1 微生物菌群结构特征

对 AAOA-MBR 工艺各生化处理阶段的活性污泥样品进行了宏基因组全基因测序和分析。AAOA-MBR 工艺在门水平上共鉴定出 128 种,属水平上鉴定出 3 965 种。在门水平上,相对丰度排名前 10 的主要优势菌门为变形菌门(*Proteobacteria*)、拟杆菌门(*Bacteroidota*)、候选门级辐射类群(*Patescibacteria*)、绿弯菌门(*Chloroflexota*)、厚壁菌门(*Firmicutes*)、浮霉菌门(*Planctomycetota*)、酸杆菌门(*Acidobacteriota*)、黏球菌门(*Myxococcota*)、放线菌门(*Actinobacteriota*)、硝化螺旋菌门(*Nitrospirota*),其在各样品中的相对丰度范围分别为 44.59%~46.86%、13.90%~14.49%、6.59%~7.09%、5.50%~6.58%、3.35%~4.86%、3.27%~3.76%、2.67%~3.32%、2.40%~2.84%、1.45%~2.05%、1.29%~1.87%(见图 2)。*Proteobacteria* 在所有样品中相对丰度均为最高,该菌门包含硝化细菌及大部分脱氮细菌,是污水处理过程中最为重要和常见的细菌类群,大部分 *Proteobacteria* 菌门微生物能够完成大分子有机物和含氮物质的氧化过程,其中菌属 *Thauera*、*Paracoccus*、*Bacillus* 和 *Thiobacillus* 已经被研究证明具有反硝化功能^[11]。

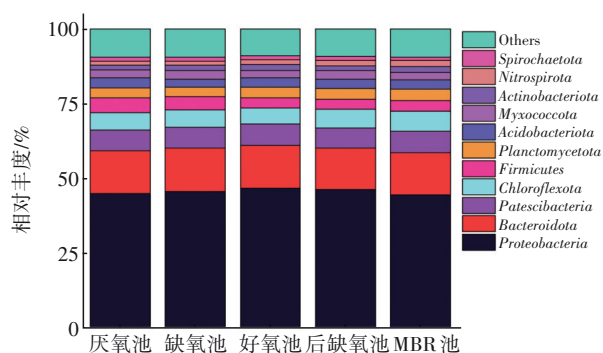


图2 门水平上微生物的相对丰度

Fig.2 Relative abundance of microorganisms at phylum level

Bacteroidota 和 *Chloroflexota* 在所有样品中相对丰度均较高,根据污水处理厂活性污泥菌群结构特征的相关研究报道,这两个菌门也是大多数城市污水厂的优势菌门,其中, *Bacteroidota* 涉及氮元素代谢的全部路径,并且是硝化路径和同化硝酸盐还原路径的主要参与菌门; *Chloroflexota* 是细菌的一个深层分支,可以通过光合作用产能,该菌门中的厌氧绳菌属 (*Anaerolinea*)、*Candidatus Promineofilum* 菌属、*Candidatus Sarcinithrix* 菌属、*Candidatus Villigracilis* 菌属、滑柱菌属 (*Herpetosiphon*)、*Kouleothrix* 菌属均具备亚硝酸盐还原能力^[12]。 *Patescibacteria* 菌门在所有样品中相对丰度均排名第三,该门类是新近提出的候选门级辐射类群(CPR)细菌,研究发现其在自然环境中通常与反硝化菌共存于地下水中,在水处理工程系统中则广泛存在于不添加碳源的低温 Anammox 系统中,研究推测, *Patescibacteria* 菌门可在污水处理工艺的脱氮过程中提高电子供体的利用效率,进而对工艺脱氮性能产生积极作用。 *Nitrospirota* 菌门目前是由单一的硝化螺旋菌纲 (*Nitrospiria*)、硝化螺旋菌目 (*Nitrospirales*) 和硝化螺旋菌科 (*Nitrospiraceae*) 组成,其代谢类型多样,包括硝化细菌、异化的硫酸盐还原菌和趋磁性细菌在内的大多数菌属为好氧的化能无机营养菌,该菌门下的硝化螺旋菌属 (*Nitrospira*) 具备亚硝酸盐氧化功能,部分具备氨氧化功能,在污水处理工艺中起重要的脱氮作用^[13]。

在属水平上,相对丰度排名前10的主要优势菌属包括埃希氏杆菌属 (*Escherichia*)、丛毛单胞菌属 (*Comamonas*)、*Ferruginibacter*、*Nitrospira*、克罗诺杆菌属 (*Cronobacter*)、军团菌属 (*Legionella*)、固氮弓菌

属 (*Azonexus*)、葡萄球菌属 (*Staphylococcus*)、伯克氏菌属 (*Burkholderia*) 和沙门氏菌属 (*Salmonella*), 其在各样品中的相对丰度范围分别为 4.17%~5.02%、1.90%~2.96%、1.36%~1.86%、1.26%~1.77%、1.31%~1.52%、0.03%~1.83%、1.02%~1.33%、0.61%~1.27%、0.08%~1.90% 和 1.19%~2.02% (见图3)。*Escherichia* 在所有样品中相对丰度均为最高,该菌属是污水处理厂中粪大肠杆菌群落 (FCB) 的最重要构成菌属,属于水处理系统中丰度最高的 *Proteobacteria* 菌门。AAOA-MBR 工艺中与氮代谢相关的主要菌属为 *Comamonas*、*Ferruginibacter*、*Nitrospira* 和 *Azonexus*。*Comamonas* 是污水处理系统中的重要功能菌属,能够降解多种复杂的芳香族类化合物,并在异养条件下将 NH_4^+-N 转化为 NO_3^--N , 在缺氧条件下, *Comamonas* 则能够利用有机酸等碳源将 NO_3^--N 反硝化为 N_2 ^[14]。*Ferruginibacter* 是一种反硝化聚磷菌(DPAO),具有降解纤维素等天然大分子有机物和胞外聚合物(EPS)的能力,MBR 系统中极高的 EPS 浓度可能是 *Ferruginibacter* 得以富集的环境条件之一^[15]。*Nitrospira* 是污水处理系统中的典型亚硝酸盐氧化菌(NO₂),通常认为其在生物脱氮中的作用是完成 NO_2^--N 的氧化过程,近年来, van Kessel 等^[16]发现了 *Candidatus Nitrospira inopinata*、*Candidatus Nitrospira nitrosa* 和 *Candidatus Nitrospira nitrificans* 这3种 *Nitrospira* 菌属细菌,并证实了它们能够独自将 NH_4^+-N 氧化成 NO_3^--N , 具有这一能力的微生物被称为全程氨氧化微生物(Comammox)。

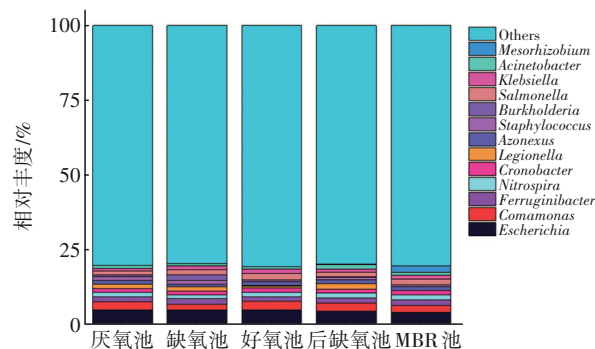


图3 属水平上微生物的相对丰度

Fig.3 Relative abundance of microorganisms at genus level

2.3.2 氮代谢路径

自然界的氮循环过程包括四个还原路径和两个氧化路径。氮还原路径包括:固氮路径、同化硝

酸盐还原路径、异化硝酸盐还原路径和反硝化路径;氮氧化路径包括:完全硝化路径和厌氧氨氧化路径。在对AAOA-MBR工艺各阶段活性污泥样品的宏基因组全基因组测序分析中,自然界氮循环过程中除厌氧氨氧化路径之外的氮代谢路径均被检出。

图4展示了AAOA-MBR工艺各个氮代谢路径中涉及的全部功能酶的累积KO丰度。其中,固氮路径、完全硝化路径、同化硝酸盐还原路径、异化硝酸盐还原路径和反硝化路径的累积KO丰度平均值分别为0.06、0.56、0.53、0.75和1.07。由此可知,AAOA-MBR工艺中的 NH_4^+-N 等还原态含氮化合物全部通过完全硝化路径最终被氧化为 $NO_3^- -N$; $NO_3^- -N$ 等氧化态含氮化合物主要通过反硝化路径最终被还原为 N_2 ,其次通过异化硝酸盐还原路径和同化硝酸盐还原路径最终被还原为 NH_4^+-N ,少量 N_2 通过固氮路径最终被还原为 NH_4^+-N 。

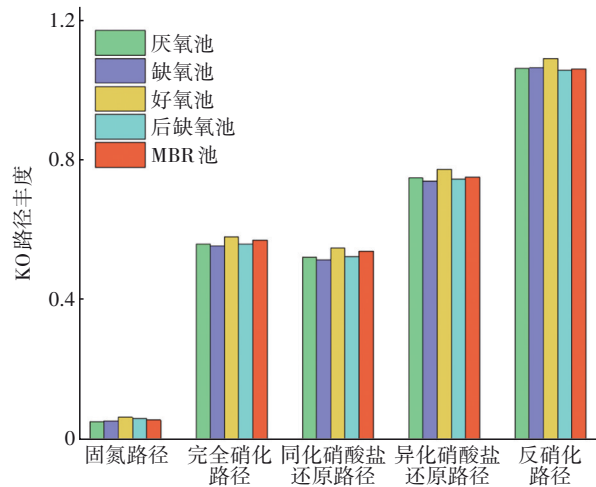


图4 氮代谢路径累积KO丰度

Fig.4 Cumulative KO abundances in nitrogen metabolic pathways

图5展示了AAOA-MBR工艺各个氮代谢路径中含氮物质的具体转化过程,以及其间涉及的催化酶种类及丰度(柱状图的横轴,A、A、O、A、M依次为厌氧池、缺氧池、好氧池、后缺氧池、MBR池)。在图5(a)所示的完全硝化路径中, NH_4^+-N 由氨氮加氧酶亚基A(*amoA*)催化转化为 NH_2OH ,再由*hao*催化转化为 $NO_2^- -N$,最后主要由亚硝酸盐氧化还原酶 α 亚基(*narGZ*, *nxrA*)催化转化为 $NO_3^- -N$ 。在图5(b)所示的同化硝酸盐还原路径中, $NO_3^- -N$ 主要由亚硝酸盐氧化还原酶 α 亚基(*narGZ*, *nxrA*)催化转化为 $NO_2^- -N$,然后由铁氧化还原蛋白亚硝酸盐还原酶

(*nirA*)催化转化为 NH_4^+-N 。

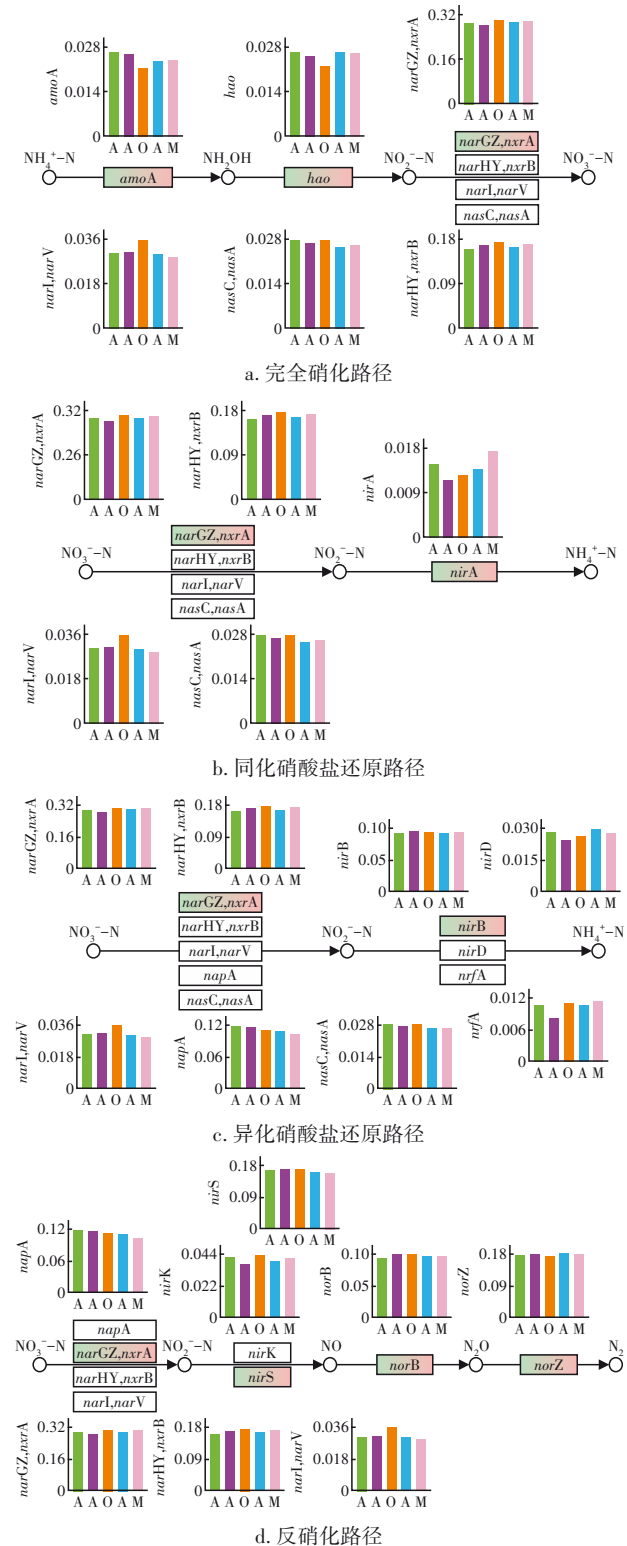


图5 AAOA-MBR工艺的氮代谢路径

Fig.5 Nitrogen metabolic pathways of AAOA-MBR process

在图5(c)所示的异化硝酸盐还原路径中,第一

步反应的主要催化酶与同化硝酸盐还原路径相同,第二步反应中 NO_2^- -N主要由亚硝酸盐还原酶(NADH)大亚基(*nirB*)催化转化为 NH_4^+ -N。在图5(d)所示的反硝化路径中, NO_3^- -N亦由亚硝酸盐氧化还原酶 α 亚基(*narGZ*, *nxrA*)催化转化为 NO_2^- -N,再主要由亚硝酸盐还原酶(*nirS*)催化转化为NO,再由一氧化氮还原酶B亚基(*norB*)催化转化为 N_2O ,最终由 N_2O 还原酶(*nosZ*)催化转化为 N_2 。

在AAOA-MBR工艺涉及的氮代谢过程中,完全硝化路径中的 NH_2OH 氧化过程和反硝化路径中的氮还原过程涉及温室气体 N_2O 的生成,而固氮路径、厌氧氨氧化路径、同化硝酸盐还原路径、异化硝酸盐还原路径则不涉及 N_2O 的生成。Caranto等^[4]研究结果显示,存在于硝化细菌中的一种血红素酶Cytochrome P460可以在厌氧条件下将 NH_2OH 转化为 N_2O ,因此在AAOA-MBR工艺中, NH_2OH 在好氧段、后缺氧段及膜池中均有可能转化生成 N_2O 。研究表明,在传统活性污泥工艺、缺氧/好氧工艺的氧化池、部分硝化-厌氧氨氧化工艺以及膜曝气生物膜反应器中, NH_2OH 氧化是主要的 N_2O 产生来源^[17]。AAOA-MBR工艺中*hao*酶的KO路径(K10535)丰度为0.022~0.026,与前步反应*amoA*酶的KO路径(K10944)丰度(0.022~0.026)相当,约为下一步反应*narGZ*、*nxrA*、*narHY*、*nxB*等亚硝酸盐氧化还原酶的KO路径(K00370、K00371、K00372、K00374)总丰度(0.503~0.536)的4.84%,较高的*hao*丰度以及后续更高的一系列亚硝酸盐氧化还原酶丰度均有利于减少 NH_2OH 氧化过程的中间产物生成量,进而有利于减少 N_2O 生成量。

反硝化途径中,自养反硝化细菌是造成 N_2O 生成的因素之一,污水处理工艺中AOB在低溶解氧条件下可将 NO_2^- -N转化为 N_2O ,其间 NO_2^- -N取代 O_2 作为电子受体被还原。在AOB反硝化过程中, NO_2^- -N在亚硝酸盐还原酶(NIR)催化下生成NO,然后在NO还原酶(NOR)作用下生成 N_2O 。异养反硝化细菌是一种兼性异养微生物,可利用 O_2 、 NO_2^- -N或者 NO_3^- -N作为电子受体,降解碳源并产生能量供微生物生长。在异养反硝化细菌将NO转化为 N_2O 的过程中,两个与NOR结合的NO形成中间体连二次硝酸(ONNO),ONNO分解产生 N_2O ^[18],其间, N_2O 的积累由反硝化过程的不完全进行导致。在AAOA-MBR工艺的反硝化路径中,将NO催化转化

为 N_2O 的*norB*酶KO路径(K04561)丰度为0.092~0.097,而下一步反应将 N_2O 最终催化转化为 N_2 的*nosZ*酶KO路径(K00376)丰度则高出近一倍,范围为0.168~0.177。据报道,当反硝化系统中*nosZ*酶丰度较低时,将导致反硝化过程中 N_2O 的积累并最终使得其逸散至大气环境中^[19]。在AAOA-MBR工艺中,*nosZ*酶的KO路径丰度显著高于*norB*酶,这有利于在缺氧区将生成的 N_2O 迅速还原为 N_2 ,进而减少该工艺的实际 N_2O 排放量。

3 结论

① AAOA-MBR工艺污水厂全流程的 N_2O 排放总量为12.303 kg/d,其中预处理阶段的 N_2O 排放量为2.709 kg/d,主要来源于进水中溶解态 N_2O 在曝气和跌水过程中的逸散;生化处理阶段的 N_2O 排放量为5.58 kg/d,其中好氧阶段、缺氧阶段和厌氧阶段的 N_2O 排放占比分别为56.7%、32.5%和10.8%。

② 由实测法计算的AAOA-MBR工艺污水厂全流程 N_2O 排放因子为0.001 534 kg N_2O -N/kg N_{inf} ,该结果小于IPCC推荐值和《城镇水务系统碳核算与减排路径技术指南》中AAO工艺案例的平均值,与我国部分实测法计算的AAO工艺案例结果接近。

③ AAOA-MBR工艺中与氮代谢相关的丰度最高的菌属为*Comamonas*,其相对丰度达到1.90%~2.96%。

④ AAOA-MBR工艺的 NH_2OH 氧化过程和NO还原过程涉及温室气体 N_2O 的生成。其中,完全硝化路径中较高的*hao*酶丰度(0.022~0.026)有利于减少 NH_2OH 氧化过程的 N_2O 生成,反硝化路径中*nosZ*酶的KO路径丰度(0.168~0.177)显著高于NO还原酶B亚基(*norB*, 0.168~0.177),有利于将生成的 N_2O 迅速还原为 N_2 ,进而减少实际 N_2O 排放量。

参考文献:

- [1] TIAN H, XU R, CANADELL J G, et al. A comprehensive quantification of global nitrous oxide sources and sinks [J]. Nature, 2020, 586 (7828): 248-256.
- [2] NI B J, YUAN Z G, CHANDRAN K, et al. Evaluating four mathematical models for nitrous oxide production by autotrophic ammonia-oxidizing bacteria[J]. Biotechnology and Bioengineering, 2013, 110(1): 153-163.
- [3] STROHM T O, GRIFIN B, ZUMFT W G, et al. Growth

- yields in bacterial denitrification and nitrate ammonification [J]. Applied and Environmental Microbiology, 2007, 73(5): 1420–1424.
- [4] CARANTO J D, VILBERT A C, LANCASTER K M. *Nitrosomonas europaea* cytochrome P460 is a direct link between nitrification and nitrous oxide emission [J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2016, 113(51): 14704–14709.
- [5] KIM S W, MIYAHARA M, FUSHINOBU S, *et al.* Nitrous oxide emission from nitrifying activated sludge dependent on denitrification by ammonia-oxidizing bacteria [J]. Bioresource Technology, 2010, 101(11): 3958–3963.
- [6] JINHE W, JIAN Z, HUIJUN X, *et al.* Methane emissions from a full-scale A/A/O wastewater treatment plant[J]. Bioresource Technology, 2011, 2: 5479–5485.
- [7] 郝晓地, 杨振理, 于文波, 等. 污水处理过程 N_2O 排放: 过程机制与控制策略[J]. 环境科学, 2023, 44(2): 1163–1173.
HAO Xiaodi, YANG Zhenli, YU Wenbo, *et al.* N_2O emission from the processes of wastewater treatment: mechanisms and control strategies [J]. Environmental Science, 2023, 44(2): 1163–1173 (in Chinese).
- [8] GALLE T, JOSETTE G, GILLES B, *et al.* Nitrous oxide emissions from secondary activated sludge in nitrifying conditions of urban wastewater treatment plants: effect of oxygenation level[J]. Water Research, 2006, 40(15): 2972–2980.
- [9] REN Y G, WANG J H, LI H F, *et al.* Nitrous oxide and methane emissions from different treatment processes in full-scale municipal wastewater treatment plants[J]. Environmental Technology, 2013, 34(21): 2917–2927.
- [10] YAN X, LI L, LIU J. Characteristics of greenhouse gas emission in three full-scale wastewater treatment processes [J]. Journal of Environmental Sciences, 2014, 26(2): 256–263.
- [11] YUE X, YU G, LIU Z, *et al.* Start-up of the completely autotrophic nitrogen removal over nitrite process with a submerged aerated biological filter and the effect of inorganic carbon on nitrogen removal and microbial activity[J]. Bioresource Technology, 2018, 254: 347–352.
- [12] NIERYCHLO M, ANDERSEN K S, XU Y, *et al.* MiDAS 3: an ecosystem-specific reference database, taxonomy and knowledge platform for activated sludge and anaerobic digesters reveals species-level microbiome composition of activated sludge [J]. Water Research, 2020, 182: 115955.
- [13] HOSOKAWA S, KURODA K, NARIHIRO T, *et al.* Cometabolism of the superphylum *Patescibacteria* with Anammox bacteria in a long-term freshwater Anammox column reactor [J]. Water, 2021, 13(2): 208.
- [14] ZHANG J, LIU G, WEI Q, *et al.* Regional discrepancy of microbial community structure in activated sludge system from Chinese WWTPs based on high-throughput 16S rDNA sequencing [J]. Science of the Total Environment, 2022, 818: 151751.
- [15] WIJAYA J, OH S. Machine learning reveals the complex ecological interplay of microbiome in a full-scale membrane bioreactor wastewater treatment plant [J]. Environmental Research, 2023, 222: 115366.
- [16] VAN KESSEL M A H J, SPETH D R, ALBERTSEN M, *et al.* Complete nitrification by a single microorganism [J]. Nature, 2015, 528(7583): 555–559.
- [17] LIU Y, ZHU T, REN S, *et al.* Contribution of nitrification and denitrification to nitrous oxide turnovers in membrane-aerated biofilm reactors (MABR): a model-based evaluation [J]. Science of the Total Environment, 2022, 806: 151321.
- [18] WATMOUGH N J, FIELD S J, HUGHES R J L, *et al.* The bacterial respiratory nitric oxide reductase [J]. Biochemical Society Transactions, 2009, 37(2): 392.
- [19] JONES C M, GRAF D R H, BRU D, *et al.* The unaccounted yet abundant nitrous oxide-reducing microbial community: a potential nitrous oxide sink [J]. ISME Journal, 2013, 7: 417–426.

作者简介:李岩(1993–),男,河南汝州人,本科,主要研究方向为排水监测、排水管理。

E-mail:749859003@qq.com

收稿日期:2024-10-05

修回日期:2024-11-29

(编辑:刘贵春)