

污水生物脱氮过程中 N_2O 的释放途径和影响因素

庞毓旻, 刘国华, 齐 鲁, 范海涛, 王洪臣
(中国人民大学环境学院, 北京 100872)

摘 要: 为了更好地理解和掌握污水处理过程中 N_2O 的释放规律, 结合近年来已经发表的研究结果, 就传统的污水生物脱氮过程(全程硝化反硝化过程)和新型污水生物脱氮过程(同步硝化反硝化、短程硝化反硝化和厌氧氨氧化)中 N_2O 的释放途径以及影响因素进行了综述。通过综述发现, 硝化和反硝化过程均有可能导致 N_2O 的释放, 且硝化过程更易产生 N_2O ; 与传统的脱氮过程相比, 同步硝化反硝化等新型脱氮过程产生 N_2O 的概率更大; 影响 N_2O 释放的因素主要有 DO 浓度、 NO_2^- 浓度、进水氨氮负荷、SRT 和 COD/N 等运行工况和细菌种类及其活性。最后, 展望了该领域的研究方向。

关键词: N_2O ; 释放途径; 影响因素; 生物脱氮; 污水处理

中图分类号: X703.1

文献标志码: A

Ways and Effect Factors of N_2O Emission in Biological Nitrogen Removal Process from Wastewater

Pang Yumin, Liu Guohua, Qi Lu, Fan Haitao, Wang Hongchen
(School of Environment, Renmin University of China, Beijing 100872, China)

Abstract: In order to understand N_2O emission during wastewater treatment process, the mechanisms and effect factors of N_2O emission from wastewater by conventional biological nitrogen removal process (sequential nitrification and denitrification, SQND) and novel processes (simultaneous nitrification and denitrification, shortcut nitrification and denitrification, and anaerobic ammonium oxidation) were reviewed. The results indicated that N_2O produced in both nitrification and denitrification processes, and nitrification process produced it easier. Compared with conventional processes, the probability of N_2O production in novel processes, such as simultaneous nitrification and denitrification, was higher. The factors affecting N_2O emission mainly included the operating parameters, such as DO, NO_2^- concentration, NH_4^+-N concentration, SRT, COD/N, microorganisms and their activities in the system. Finally, the research trends of N_2O emission and control were prospected.

Keywords: N_2O ; Emission Ways; Effect Factors; Biological Nitrogen Removal; Wastewater Treatment

CLC number: X703.1

氧化亚氮(N_2O)作为全球3大主要的温室气体之一, 其增温潜势分别为 CO_2 的150~320倍^[1-3]、 CH_4 的4~30倍^[4-5]。大气中 N_2O 的体积分数每增加一倍, 将会使全球地表气温平均上升 $0.4\text{ }^\circ\text{C}$ ^[1]。 N_2O 的性质非常稳定, 生命周期长达120 a, 可与平流层的氧原子发生反应生成NO, 进而破坏臭氧层^[6]。大气中90%以上的 N_2O 来自于微生物的脱氮过程, 其中污水处理被认为是 N_2O 的一个重要

释放源。文献[7]估计, 污水处理过程中每年排放的 N_2O 总量约为 $(0.3\sim3)\times10^{12}\text{ kg}$, 占全球 N_2O 排放总量的2.5%~25%。近年来, 随着水体富营养化问题日益加剧, 各国相继制定了更为严格的氮排放标准, 污水处理厂必须实现脱氮工序, 这大大增加了温室气体 N_2O 的释放潜能, 可能将环境污染问题由水环境转向大气环境。因此, 污水生物脱氮过程 N_2O 释放途径及其影响因素的研究对于

收稿日期: 2013-09-25

基金项目: 国家科技重大专项-水体污染控制与治理项目《污水处理曝气系统低碳运行关键设备开发与产业化》(2011ZX07316-001); 国家高技术研究发展计划(863计划)项目《污水处理全过程监控的智能传感器系统研制》(2012AA062308)基金资助

作者简介: 庞毓旻(1990-), 女, 硕士研究生。研究方向: 水污染控制。

污水生物脱氮过程中 N_2O 释放的把握和控制有着重要的理论意义, 也对大气环境的保护有着重要的现实意义。

1 传统的污水生物脱氮过程 N_2O 的释放

污水生物脱氮即污水中的含氮化合物通过微生物的作用转化为气态氮化物的过程。传统的污水生物脱氮过程包括在硝化菌作用下的硝化过程和反硝化菌作用下的反硝化过程, 见图1。

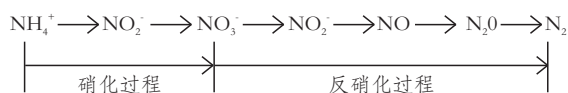


图1 传统的污水生物脱氮过程

1.1 硝化过程 N_2O 的释放

传统观点认为硝化过程是由专性自养型微生物完成的, 经历两个阶段, 见图2。

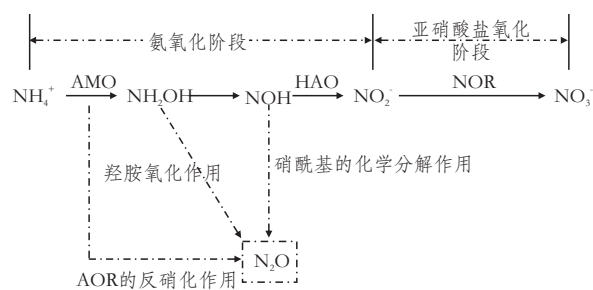


图2 硝化过程及 N_2O 的释放途径

氨氧化阶段, 即氨氧化菌 (Ammonia Oxidation Bacteria, AOB) 将氨氮氧化为亚硝酸盐, 此阶段中起催化作用的酶包括氨单加氧酶 (Ammonia Monooxygenase, AOM) 和羟胺 (NH_2OH) 氧化还原酶 (Hydroxylamine oxidase, HAO); 亚硝酸盐氧化阶段, 即亚硝酸盐氧化菌 (Nitrite Oxidation Bacteria, NOB) 将亚硝酸盐氧化为硝酸盐, 此阶段的催化酶是亚硝酸盐氧化还原酶 (Nitrite Oxide reductase, NOR)。

在硝化过程中, N_2O 是作为副产物而释放的。研究认为, 硝化过程是污水生物脱氮过程中 N_2O 的主要产生源^[8-11]。硝化过程中 N_2O 可能的释放途径有(图2):

1.1.1 AOB反硝化作用 大量研究表明, 硝化过程 N_2O 的释放主要是由AOB反硝化作用引起的^[9,12-14]。

Poth et al^[15]在1985年首次证实了硝化菌能够利用 NO_2^- 作为电子受体生成 N_2O , 即存在硝化菌的反硝化作用。Xie et al^[12]通过试验和模型研究了AOB大量富集的活性污泥系统其可溶性微生物产物 (Soluble Microbial Products, SMPs) 和 N_2O 的产生, 结果表明在限氧条件下, AOB的反硝化作用会促进 N_2O 的释放。Kim et al^[9]用 NH_4^+ 对活性污泥进行好氧培养, 发现当硝化底物 NH_4^+ 被完全消耗时, N_2O 释放量降为零, 而在往系统中投加AOB的硝化产物 NO_2^- 的过程中, N_2O 释放量则大大增加。此外, 他们还通过RT-PCR技术进一步证实了硝化过程中 N_2O 主要通过AOB反硝化作用产生。

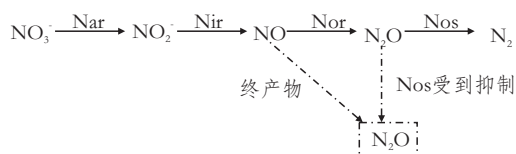
1.1.2 羟胺氧化作用 Wunderlin et al^[16]通过小试系统处理市政污水研究了 N_2O 的产生机制, 发现羟胺氧化作用也是 N_2O 释放的一个重要途径。在高氨氮和低 NO_2^- 浓度条件下, N_2O 主要通过羟胺氧化作用产生。Kim et al^[9]也研究发现当 NH_2OH 被彻底消耗时, N_2O 停止释放。

1.1.3 硝酰基 (NOH) 的化学分解作用 Law et al^[17]通过富集培养AOB考查了氨氧化速率 (Ammonia Oxidation Rate, AOR) 和 N_2O 产生速率之间的关系, 并用4种代谢模型对试验数据进行分析, 结果表明, NH_2OH 氧化为 NO_2^- 过程的中间产物硝酰基 (NOH) 的化学分解是氨氧化阶段 N_2O 的主要产生源。

也有其它研究发现, 在硝化过程中, N_2O 还能通过异养菌的硝化作用和好氧反硝化菌的作用而释放^[18-19]。

1.2 反硝化过程 N_2O 的释放

反硝化过程即在缺氧条件下, 异养型兼性厌氧微生物以有机碳源为电子供体, 将硝酸盐氮或亚硝酸盐氮还原为氮氧化物或氮气的过程。碳源缺乏时, 反硝化菌可以利用自身的有机质进行内源反硝化。反硝化过程按照4个阶段进行, 见图3。参与的催化酶有4种, 分别为硝酸盐还原酶 (Nar)、亚硝酸盐还原酶 (Nir)、一氧化氮还原酶 (Nor) 及氧化亚氮还原酶 (Nos)。

图3 反硝化作用及 N_2O 的释放途径

N_2O 是反硝化过程的中间产物。污水生物脱氮过程中反硝化过程被认为是 N_2O 的主要释放源之一^[20-21],其可能的释放途径有(图3):

(1) Nos活性受到抑制, N_2O 进一步被还原为 N_2 的过程受阻,造成 N_2O 的大量释放^[22-23]。Alinsafiet al^[23]通过小试试验考查了反硝化过程 N_2O 的释放规律,结果发现 NO_2^- 冲击负荷会导致 N_2O 的释放,这是由于 NO_2^- 的积累会对Nos产生抑制作用。王莎莎等^[24]在对低氧条件下反硝化过程 N_2O 的释放量进行研究时发现 NO_2^- 和DO对Nos的抑制作用会引起 N_2O 的大量释放。巩有奎等^[25]也发现DO对Nos活性具有明显的抑制作用,降低缺氧反应器中DO的浓度是控制反硝化过程 N_2O 释放的关键。

(2) 碳源限制时,不同还原酶之间存在电子竞争作用,Nos相较于其他的还原酶对电子的亲合力较弱,也会导致 N_2O 的释放。Pan et al^[26]研究发现,在低pH条件下(6.0~6.5),反硝化过程出现大量 N_2O 积累,这是由于反硝化4个阶段存在电子竞争作用所导致的。

(3) 目前已发现存在多种反硝化终产物为 N_2O 的反硝化菌,在特定的条件下,这些微生物可能会成为优势菌,从而引起 N_2O 的大量释放。Naoki等^[27]在好氧条件下成功分离出了两种新型的产低浓度 N_2O 的好氧反硝化菌,*P. stutzeri* TR2和*Pseudomonas* sp. strain K50。

2 污水生物脱氮新工艺过程 N_2O 的释放

近年来,在传统工艺基础上又陆续出现了一些新的污水生物脱氮过程,主要有同步硝化反硝化、短程硝化反硝化和厌氧氨氧化。这些新工艺过程在脱氮效率上较传统的具有一定的优势,但也有研究发现其在运行过程中 N_2O 的释放量远远高于传统的生物脱氮过程。

2.1 同步硝化反硝化

同步硝化反硝化(simultaneous nitrification and denitrification, SND)是在好氧条件下硝化和反硝化同时在一个反应器中进行的过程。

Jia et al^[28]在SBR工艺中实现了SND,考查了内源PHB和OUR对 N_2O 释放的影响。结果发现,与全程硝化反硝化(sequential nitrification and denitrification, SQND)相比,SND过程的脱氮效率显著提高,而 N_2O 的释放量也远远高于SQND过程。SND过程 N_2O 的释放量为26.85 mg $\text{N}_2\text{O-N}$,是SQND过程 N_2O 释放量的近5倍。在SND过程中, N_2O 转化率约为7.05%。然而,吕锡武等^[29]通过试验却得到了相反的结论,即SND工艺 N_2O 逸出量明显低于SQND。此外,王淑莹等^[30]在研究生物膜同步硝化反硝化过程 N_2O 释放量时发现,同步硝化反硝化系统的 N_2O 释放量远低于短程硝化反硝化系统,且其 N_2O 的产生主要是由异养硝化和好氧反硝化作用造成的。

2.2 短程硝化反硝化

短程硝化是指抑制NOR,使硝化过程只进行到亚硝酸盐阶段,然后直接进行反硝化。

NO_2^- 是导致 N_2O 产生的重要因素,这可能会大大削弱短程硝化反硝化脱氮所具有的优势。Yang et al^[31]研究表明,短程硝化反硝化过程的 N_2O 释放量是全程硝化反硝化的1.5倍。且进一步研究发现氨氧化作用是 N_2O 的主要产生源。由于对 NO_2^- 和 NH_4^+ 的有效控制,分段进水的SBR系统短程硝化反硝化过程 N_2O 释放量降低了约50%。因此,采用分段进水方式被认为是减少生活污水短程硝化反硝化脱氮过程 N_2O 释放量的有效方法。刘秀红等^[32]通过开展长期试验和间歇试验也得到了类似发现:生活污水短程硝化反硝化过程中有 N_2O 产生,并且主要产生于短程硝化过程中,进水氨氮浓度及DO浓度均会影响 N_2O 的产生量。

2.3 厌氧氨氧化

厌氧氨氧化是在厌氧条件下,厌氧氨氧化菌直接以 NH_4^+-N 作为电子供体,以 NO_2^- 或 NO_3^- 作

为电子受体, 将 NH_4^+-N 转化为 N_2 的过程。

Okabe et al^[33]研究了实验室规模的短程硝化-厌氧氨氧化反应器中 N_2O 的释放。结果发现, 短程硝化和厌氧氨氧化过程中 N_2O 的平均释放量分别占进水氮负荷的 $(4.0 \pm 1.5)\%$ 和 $(0.1 \pm 0.07)\%$, 占氮去除量的 $(9.6 \pm 3.2)\%$ 和 $(0.14 \pm 0.09)\%$ 。可见, 短程硝化反应器中释放的 N_2O 更多。此外, 为了确定引起厌氧氨氧化过程 N_2O 释放的关键过程还作了深入研究。用微电极原位监测了 N_2O 的产生速率, 发现其产生速率与微生物群落的空间结构有关。微电极的监测结果表明, N_2O 产生的活性区域位于厌氧氨氧化颗粒的内部, 而 NH_4^+-N 消耗的活性区域则存在于 N_2O 产生区域的上部, 厌氧氨氧化菌存在于整个颗粒中, 而AOB仅存在于颗粒的表面。而在投加了对大部分异养反硝化菌和AOB起抑制作用的青霉素G时, N_2O 的释放完全受到抑制, 表明位于颗粒内部的异养反硝化菌的反硝化作用是厌氧氨氧化反应器最可能的 N_2O 产生源。

3 污水生物脱氮过程 N_2O 产生的影响因素

3.1 硝化过程 N_2O 释放的影响因素

在硝化过程中, 影响 N_2O 释放的因素有DO浓度、 NO_2^- 浓度、进水氨氮负荷、SRT等。

3.1.1 DO浓度 DO浓度是控制硝化过程 N_2O 释放的重要参数^[34]。Tallec et al^[35-36]的研究结果表明, 在硝化过程中, N_2O 的释放量与DO浓度呈现显著的相关性。当DO浓度较低时 ($0.5 \sim 1$ mg/L), N_2O 的转化率更高, 占被氧化氨氮的1% (平均为0.4%)。此外, N_2O 释放速率在DO浓度为1mg/L时达到最大, 为 $7.1 \mu g N-N_2O/g SS^{-1}h^{-1}$ 。在较低的DO条件 ($0.1 \sim 2$ mg/L) 下, 硝化菌反硝化作用对 N_2O 释放的贡献量占58%~83%。

3.1.2 NO_2^- 浓度 硝化过程中, NO_2^- 浓度的增加会导致 N_2O 释放量的增加^[37-38]。Zhang et al^[39]在两个小试SBR反应器中分别用生活污水和人工配水研究了生物脱氮过程 N_2O 的产生量, 结果表明在硝化阶段, NO_2^- -N和 NH_4^+-N 的共存会促进 N_2O 的产生, 产

生量为1.97 mg/L。此外, Schiskowski et al^[40]研究发现, 限氧条件下 HNO_2 , 而不是 NO_2^- , 是AOB的 NO_2^- 还原酶的电子受体。

3.1.3 进水氨氮负荷 Lotito et al^[34]对氧化池中 N_2O 的释放进行了连续监测, 结果表明 N_2O 的释放量随进水氨氮负荷的增加而增加。在早晨进水氨氮负荷最大的几个小时内, N_2O 释放量出现钟型的峰值。

3.1.4 SRT 不同的微生物SRT不同。污水生物处理系统中活性污泥的SRT决定了微生物菌落结构。有研究发现, 氧化池较短的SRT ($10 \sim 12$ d) 会促进 N_2O 的释放^[34]。Noda et al^[41]考查了SRT对缺氧-好氧活性污泥系统 N_2O 释放量的影响, 结果表明, SRT较低 (7 d) 时, 好氧反应器的硝化效率会降低, 而 N_2O 释放速率则大大增加。SRT增加 (10 d, 20 d) 时, 整个运行过程中 N_2O 的转化率可以控制在0.2%以下。

3.1.5 运行条件的变化 研究表明, 当系统的运行条件突然发生变化时, 如 NH_4^+-N 冲击负荷、DO浓度下降、碳源冲击负荷等会造成 N_2O 释放量的增加^[13,20,34,42]。Butler et al^[43]在一个中试规模的处理厂做了8组试验, 包括DO消耗、进水 NH_4^+-N 增加、ATU冲击和 NaN_3 冲击。结果发现, 系统在受到冲击负荷前稳定运行期间, NH_4^+-N 去除率达到97.8%, N_2O 释放量的变化幅度较小 (< 0.5 cm^3/m^3)。而当系统受到毒性冲击负荷时, N_2O 释放量从 16.5 cm^3/m^3 增加至 186.3 cm^3/m^3 。

此外, 温度^[44]、硝化菌的OUR^[28]、曝气速率^[10]等也会影响硝化过程中 N_2O 的释放。

3.2 影响反硝化过程 N_2O 释放的因素

影响反硝化过程 N_2O 释放的因素有COD/N、碳源的类型、 NO_2^- 浓度等。

3.2.1 COD/N COD/N决定反硝化过程进行的程度, COD/N越高, 反硝化越彻底。Kishida et al^[45]利用SBR系统考查了COD/N对 N_2O 释放的影响, 结果发现, 反硝化阶段 N_2O 的释放量与进水COD/N显著相关, $BOD/TN=2.6$ 条件下 N_2O 的释放量比 $BOD/TN=4.5$ 高270倍。Itokawa et al^[46]的

研究也发现, COD/N低于3.5时, 进水中含有20%~30%的氮被转化为 N_2O 释放。

3.2.2 碳源的类型 Li et al^[21]在SBR系统中分别用葡萄糖、蔗糖、乙酸钠作为碳源研究了其对反硝化过程 N_2O 的释放及反硝化效率的影响。结果表明, 有机碳源的类型对 N_2O 产生量和反硝化效率有显著影响。在最佳COD/N条件下, 用葡萄糖、蔗糖、乙酸钠作为碳源, 系统的 NO_3^- 去除率分别为98.8%、99%和99%, TN去除率分别为90%、77%和93.6%, COD去除率分别为88.38%、90.32%和97.29%, 此外, 其最大 N_2O 释放量分别为95、78.5和7 $\mu L/L$ 。因此, 从控制 N_2O 释放同时提高反硝化效率的角度考虑, 最佳碳源为乙酸钠。

3.2.3 NO_2^- 浓度 较高的 NO_2^- 浓度会降低反硝化速率进而引起 N_2O 的积累。研究发现^[24], 当 NO_2^- 存在并积累时, 多种还原酶之间会发生电子竞争作用, 而Nos对电子亲和力相对较弱, 导致 N_2O 的还原受阻。然而, Zhou等^[47]在研究不同pH条件下 NO_2^- 对反硝化除磷(EBPR)系统中 N_2O 还原的抑制作用时发现, N_2O 还原受抑制程度与自由亚硝酸(FNA)的关系比与亚硝酸盐浓度的关系更紧密, 表明FNA而非 NO_2^- 是 N_2O 还原的真正抑制剂。FNA浓度为0.0007~0.001 mg/L时(相当于pH=7时 NO_2^- 浓度为3~4 mg/L), 抑制程度为50%。而当FNA浓度大于0.004 mg/L时, 抑制程度则达到100%。此外, 试验结果还表明, N_2O 还原受到抑制并不是由于Nos和Nir对电子的竞争作用所引起的。抑制作用是可逆的, 恢复速率与受抑制的时间无关, 而是与受抑制期间接触的FNA浓度有关, FNA浓度越大, 恢复越慢。

3.2.4 DO浓度 研究表明, N_2O 还原酶对DO较敏感, 缺氧阶段DO的存在可能会促进反硝化过程 N_2O 的产生^[24]。Tallec et al^[22]考查了完全缺氧和限氧条件下反硝化过程 N_2O 的释放量。结果表明, 在完全缺氧条件下, 与硝酸盐还原酶相关的反硝化作用是 N_2O 的主要产生源。而在限氧条件下, DO浓度为0.3 mg/L时, N_2O 释放量最高(平

均为 $(49.7 \pm 3.8) \mu g N_2O-N/gSS/h$)。DO低于0.3 mg/L时, 异养反硝化作用时 N_2O 的主要产生源。而当DO为0.4~1.1 mg/L时, N_2O 的释放主要由两个途径来完成: 异养反硝化作用(占40%); 自养硝化菌反硝化作用(占60%)。

此外, pH^[26]、缺氧/好氧(PF)^[8,48]、进水方式^[11]、盐度^[49-50]等均会对污水生物脱氮过程中 N_2O 的释放造成影响。

4 结论与展望

在传统的污水生物脱氮过程中, 硝化和反硝化阶段均会导致 N_2O 的产生, 硝化过程似乎更易产生 N_2O 。新型污水生物脱氮工艺过程尽管提高了脱氮效率, 但是 N_2O 的产生几率也大大增加了。总之, 在污水生物脱氮过程中, N_2O 产生的表观原因是DO、SRT和COD/N等运行参数的非最优化, 而实际原因则源于系统中的氨氧化细菌、亚硝酸盐氧化菌以及还原终产物为 N_2O 的特殊细菌等微生物的作用。

因此, 在污水生物脱氮过程中, 微生物种群结构及其关键酶活性的解析与调控对于 N_2O 产生机理的理解和产生量的控制是非常重要的。将来, 无论对于实验室的小试规模研究还是污水处理实际工艺状态, 针对污水性质选择合理的处理工艺、优化工艺运行参数以及合理调控微生物种群结构和关键酶活性等手段均是污水生物脱氮过程中 N_2O 减量化的策略。

参考文献

- [1]刘秀红, 杨庆, 吴昌永, 等.不同污水生物脱氮工艺中 N_2O 释放量及影响因素[J].环境科学学报, 2006, 26(12): 1940-1947.
- [2]刘秀红, 彭轶, 马涛, 等. DO浓度对生活污水硝化过程中 N_2O 产生量的影响[J].环境科学, 2008, 29(3): 660-664.
- [3]尚会来, 彭永臻, 王淑莹, 等.不同电子受体反硝化过程中C/N对 N_2O 产量的影响[J].环境科学, 2009, 30(7): 2007-2012.
- [4]IPCC. Climate Change: The Science of Climate Change[M]. Cambridge: Cambridge University Press, 1995: 21-24.
- [5]耿军军, 王亚宜, 张兆祥, 等.污水生物脱氮新工艺中强温室气体 N_2O 的产生及微观机理[J].环境科学学报, 2010, 30(9): 1729-1737.
- [6]尚会来, 彭永臻, 王淑莹, 等.污水生物脱氮过程中 N_2O 的产生和减量化控制[J].中国给水排水, 2008, 24(16): 104-108.
- [7]Khalil M. A. K., Rasmussen R. A. The global sources of nitrous oxide[J].Journal of Geophysical Research, 1992, 97(13): 14651-14660.
- [8]Hu Z., Zhang J., Xie H., et al.Effect of anoxic/aerobic phase fraction on N_2O emission in a sequencing batch reactor under low temperature[J].Bioresource Technology, 2011, 102: 5486-5491.

- [9] Kim S., 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: 3958-3963.
- [10] Hu Z., Zhang J., Li S. Y., et al. Effect of aeration rate on the emission of N_2O in anoxic-aerobic sequencing batch reactors (A/O SBRs)[J]. *Journal of Bioscience and Bioengineering*, 2010, 109(5): 487-491.
- [11] Park K. Y., Lee J. W., Inamori Y., et al. Effects of fill modes on N_2O emission from the SBR treating domestic wastewater[J]. *Water Science and Technology*, 2001, 43(3): 147-150.
- [12] Xie W. M., Ni B. J., Li W. W., et al. Formation and quantification of soluble microbial products and N_2O production by ammonia-oxidizing bacteria(AOB)-enriched activated sludge[J]. *Chemical Engineering Science*, 2012, 71: 67-74.
- [13] Kampschreur M. J., Tan N. G., Kleerebeem R., et al. Effect of dynamic process conditions on nitrogen oxides emission from a nitrifying culture[J]. *Environ.Sci.Technol*, 2008, 42: 429-435.
- [14] Colliver B. B., Stephenson T. Production of nitrogen oxide and dinitrogen oxide by autotrophic nitrifiers[J]. *Biotechnology Advances*, 2000, 18: 219-232.
- [15] Poth M., Focht D. D. ^{15}N Kinetic Analysis of N_2O Production by *Nitrosomonas europaea*: an Examination of Nitrifier Denitrification[J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 1985, 49(5): 1134-1141.
- [16] Wunderlin P., Mohn J., Joss A., et al. Mechanisms of N_2O production in biological wastewater treatment under nitrifying and denitrifying conditions[J]. *Water Research*, 2012, 46: 1027-1037.
- [17] Law Y. Y., Ni B. J., Lant P., et al. N_2O production rate of an enriched ammonia-oxidising bacteria culture exponentially correlates to its ammonia oxidation rate[J]. *Water Research*, 2012, 46: 3409-3419.
- [18] 巩有奎, 王 赛, 彭永臻, 等. 生活污水不同生物脱氮过程中 N_2O 产量及控制[J]. *化工学报*, 2010, 61(5): 1286-1292.
- [19] Frette L., Gejlshjerg B., Westermann P. Aerobic denitrifiers isolated from an alternating activated sludge system[J]. *FEMS Microbiology Ecology*, 1997, 24(4): 363-370.
- [20] Wang Y. Y., Geng J. J., Guo G., et al. N_2O production in anaerobic/anoxic denitrifying phosphorus removal process: The effects of carbon sources shock[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2011, 172: 999-1007.
- [21] Li Q. H., Li P., Zhu P. P., et al. Effects of exogenous organic carbon substrates on nitrous oxide emissions during the denitrification process of sequencing batch reactors[J]. *Environmental Engineering Science*, 2008, 25(8): 1221-1228.
- [22] Tallec G., Garnier J., Billen G., et al. Nitrous oxide emissions from nitrifying activated sludge of urban wastewater treatment plants, under anoxia and low oxygenation[J]. *Bioresource Technology*, 2008, 99: 2200-2209.
- [23] Alinsafi A., Adouani N., Beline F., et al. Nitrite effect on nitrous oxide emission from denitrifying activated sludge[J]. *Process Biochemistry*, 2008, 43(6): 683-689.
- [24] 王莎莎, 彭永臻, 巩有奎, 等. 不同电子受体低氧条件下生物反硝化过程中氧化亚氮产量[J]. *水处理技术*, 2011, 37(8): 58-60.
- [25] 巩有奎, 王淑莹, 彭永臻, 等. 低氧条件下生物反硝化过程中 N_2O 的产量[J]. *化工学报*, 2011, 62(6): 1688-1692.
- [26] Pan Y. T., Ye L., Ni B. J., et al. Effect of pH on N_2O reduction and accumulation during denitrification by methanol utilizing denitrifiers[J]. *Water Research*, 2012, 46: 4832-4840.
- [27] Takaya N., Catalan-Sakairi M. A. B., Sakaguchi Y. Aerobic denitrifying bacteria that produce low levels of nitrous oxide[J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2003, 69(6): 3152-3157.
- [28] Jia W. L., Zhang J., Xie H. J., et al. Effect of PHB and oxygen uptake rate on nitrous oxide emission during simultaneous nitrification denitrification process[J]. *Bioresource Technology*, 2012, 113: 232-238.
- [29] 吕锡武, 稻森悠平, 水落元之. 同步硝化反硝化脱氮及处理过程中 N_2O 的控制研究[J]. *东南大学学报*, 2001, 31(1): 95-99.
- [30] 王淑莹, 张静蓉, 尚会来, 等. 生物膜同步硝化反硝化脱氮过程中 N_2O 的产生量及机理分析[J]. *北京工业大学学报*, 2011, 37(9): 1400-1406.
- [31] Yang Q., Liu X. H., Peng C. Y., et al. N_2O production during nitrogen removal via nitrite from domestic wastewater: main sources and control method[J]. *Environ.Sci.Technol*, 2009, 43: 9400-9406.
- [32] 刘秀红, 鞠 然, 刘立超, 等. 生活污水短程生物脱氮过程中 N_2O 的产生与控制方法[J]. *中国环境科学*, 2011, 31(Suppl.): 30-34.
- [33] Okabe S., Oshiki M., Takahashi Y., et al. N_2O emission from a partial nitrification-anammox process and identification of a key biological process of N_2O emission from anammox granules[J]. *Water Research*, 2011, 45: 6461-6470.
- [34] Lotito A. M., Wunderlin P., Joss A., et al. Nitrous oxide emissions from the oxidation tank of a pilot activated sludge plant[J]. *Water Research*, 2012, 46: 3563-3573.
- [35] Tallec G., Garnier J., Gossailles M. Nitrogen removal in a wastewater treatment plant through biofilters: nitrous oxide emissions during nitrification and denitrification[J]. *Bioprocess Biosyst Eng*, 2006, 29: 323-333.
- [36] Tallec G., Garnier J., Billen G., et al. Nitrous oxide emissions from secondary activated sludge in nitrifying conditions of urban wastewater treatment plants: effects of oxygenation level[J]. *Water Research*, 2006, 40: 2972-2980.
- [37] Foley J., Haas D., Yuan Z. G., et al. Nitrous oxide generation in full-scale biological nutrient removal wastewater treatment plants[J]. *Water Research*, 2010, 44: 831-844.
- [38] Burgess J., Colliver B. B., Stuetz R. M., et al. Dinitrogen oxide production by a mixed culture of nitrifying bacteria during ammonia shock loading and aeration failure[J]. *Journal of Industrial Microbiology and Biotechnology*, 2002, 29: 309-313.
- [39] Zhang Z. X., Wang Y., Geng J., et al. N_2O production during nitrogen removal in sequencing batch reactor wastewater treatment systems: Mechanic Automation and control engineering, Wuhan[C]. 2010: 1846-1849.
- [40] Schiskowski D. M., Mavinic D. S. The influence of nitrite and pH(nitrous oxide) on aerobic-phase, autotrophic N_2O generation in a wastewater treatment bioreactor[J]. *Environ.Eng.Sci*, 2006, 5: 273-283.
- [41] Noda N., Kaneko N., Mikami M., et al. Effects of SRT and DO on N_2O reductase activity in an anoxic-oxic activated sludge system[J]. *Water Science and Technology*, 2003, 48(11-12): 363-370.
- [42] Burgess J. E., Stuetz R. M., Morton S., et al. Dinitrogen oxide detection for process failure early warning systems[J]. *Water Science and Technology*, 2002, 45(4-5): 247-254.
- [43] Butler M. D., Wang Y. Y., Cartmell E., et al. Nitrous oxide emissions for early warning of biological nitrification failure in activated sludge[J]. *Water Research*, 2009, 43: 1265-1272.
- [44] Gejlshjerg B., Frette L., Westermann P. Dynamics of N_2O production from activated sludge[J]. *Water Research*, 1998, 32(7): 2113-2121.
- [45] Kishida N., Kim J. H., Kimochi Y., et al. Effect of C/N ratio on nitrous oxide emission from swine wastewater treatment process[J]. *Water Science and Technology*, 2004, 49(5-6): 359-371.
- [46] Itokawa H., Hanaki K., Matsuo T., et al. Nitrous oxide production in high-loading biological nitrogen removal process under low COD/N ratio condition[J]. *Water Research*, 2001, 35(3): 657-664.
- [47] Zhou Y., Maite P., Raymond J., et al. Free nitrous acid inhibition on nitrous oxide reduction by a denitrifying-enhanced biological phosphorus removal sludge[J]. *Environ.Sci.Technol*, 2008, 42: 8260-8265.
- [48] Beline F., Martinez J. Nitrogen transformations during biological aerobic treatment of pig slurry: effect of intermittent aeration on nitrous oxide emissions[J]. *Bioresource Technology*, 2002, 83: 225-228.
- [49] Tsuneda S., Mikami M., Kimochi Y., et al. Effect of salinity on nitrous oxide emission in the biological nitrogen removal process for industrial wastewater[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2005, B119: 93-98.
- [50] 尚会来, 彭永臻, 张静蓉, 等. 盐度对污水硝化过程中 N_2O 产量的影响[J]. *环境科学*, 2009, 30(4): 1079-1083.