



文章栏目：固体废物处理与资源化

DOI 10.12030/j.cjee.202007010

中图分类号 X705

文献标识码 A

程丰, 何青山, 宋明淦, 等. 氨三乙酸对好氧堆肥过程中氮素保存效果的影响[J]. 环境工程学报, 2021, 15(2): 699-708.

CHENG Feng, HE Qingshan, SONG Minggan, et al. Effect of nitrilotriacetic acid on nitrogen conservation during aerobic composting[J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2021, 15(2): 699-708.

## 氨三乙酸对好氧堆肥过程中氮素保存效果的影响

程丰<sup>1,2,3,4</sup>, 何青山<sup>1,2,3,4</sup>, 宋明淦<sup>5</sup>, 李秀芬<sup>1,2,3,4,\*</sup>, 程宇晖<sup>5</sup>, 任月萍<sup>1,2,3,4</sup>

1. 江南大学环境与土木工程学院, 无锡 214122

2. 江苏省厌氧生物技术重点实验室, 无锡 214122

3. 江苏省水处理技术与材料协同创新中心, 苏州 215009

4. 江苏省生物质能与减碳技术工程实验室, 无锡 214122

5. 无锡宏普生物环保科技有限公司, 无锡 214125

第一作者: 程丰(1995—), 男, 硕士研究生。研究方向: 固废资源化工程。E-mail: [chengfeng5316@163.com](mailto:chengfeng5316@163.com)

\*通信作者: 李秀芬(1968—), 女, 博士, 教授。研究方向: 环境生物技术。E-mail: [xfli@jiangnan.edu.cn](mailto:xfli@jiangnan.edu.cn)

**摘要** 以食品厂污水处理剩余污泥和玉米秸秆为堆肥原料, 研究了氨三乙酸(NTA)在好氧堆肥过程中的保氮效果。结果表明, 添加 NTA 可以提高好氧堆肥过程中氮素的保存和有机物的降解效率, 当 NTA 的添加量为 2.5% 时, 3 d 内堆体即可到达高温期, 高温期持续时间为 9 d。与空白对照相比, 堆肥结束时,  $\text{NH}_3$  累积挥发量减少了 15.20%, 铵态氮、硝态氮和凯氏氮含量分别提高了 242%、10.54% 和 10.62%; 同时, 二氧化碳累积排放量增加了 13.47%, 总有机碳含量降低了 1.4%。堆肥结束时, 堆肥产物的碳氮比和种子发芽指数分别为 8.84 和 95.46%, 达到了腐熟要求。堆肥过程中, NTA 水解产生  $\text{H}^+$ , 可与氨化反应生成的  $\text{NH}_3$  结合, 这有利于堆体中氮素的保存, 提高堆肥产品的肥效。本研究结果可为好氧堆肥保氮工艺优化提供参考。

**关键词** 农业废弃物资源化; 氨三乙酸; 好氧堆肥化; 氮素损失

好氧堆肥化是利用好氧微生物代谢使有机废弃物降解稳定, 不再易腐发臭, 成为相容于植物生长的土壤调理剂的过程。在这一过程中, 固体废物中有机氮的转化降解及存在形态是影响堆肥过程卫生环境及产品品质的重要因素。在好氧堆肥过程中, 有机氮首先通过微生物的氨化作用转化为氨氮即铵态氮( $\text{NH}_4^+\text{-N}$ ), 再通过硝化作用转化为硝态氮( $\text{NO}_3^-\text{-N}$ )<sup>[1]</sup>。除存在于土壤中的少量可溶性含氮有机物如尿素、氨基酸等外, 作物从土壤中吸收的氮素主要是 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ , 被吸收到体内的 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 可与光合作用产生的有机酸结合形成氨基酸, 进而形成其他含氮有机物, 而 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 在作物体内先还原为 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ , 然后再被吸收利用。因此, 堆肥过程中 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 的含量主要反映了堆肥的腐熟度。然而, 已有研究表明, 高温期催化硝化反应的微生物活性较低<sup>[2]</sup>, 导致 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 无法及时转化为 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ , 堆体中 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 含量及 pH 随堆肥时间的延长不断上升, 最终导致累积的 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 以氨气( $\text{NH}_3$ )的形式挥发;  $\text{NH}_3$ 的大量挥发不仅造成堆肥产品品质降低, 而且影响好氧堆肥的卫生环境, 带来大气污染。如何有效控制好氧堆肥过程中的氮素损失、减少二次污染是好氧堆肥技术的研究热点。

收稿日期: 2020-07-01; 录用日期: 2020-10-24

基金项目: 国家重点研发计划(2016YFC0400707); 江苏省“六大人才高峰”项目(2011-JNHB-004)

添加外源添加剂是减少好氧堆肥过程中氮素损失的有效手段之一。常用的添加剂包括酸性添加剂<sup>[3]</sup>、吸附剂<sup>[4]</sup>、化学添加剂<sup>[5]</sup>以及生物添加剂<sup>[6]</sup>等。其中,酸性添加剂主要通过降低堆肥前期堆体 pH 以控制氨挥发及氮素损失。氨三乙酸(NTA)是一种含氮三元中强酸<sup>[7]</sup>,为无色晶体,能溶于水,水解电离出的 H<sup>+</sup>可与 NH<sub>3</sub> 结合形成 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>,减少氨气挥发及氮素损失,且具有良好的生物可降解性<sup>[8]</sup>,大量使用不会造成生态污染,无生态风险。另外,NTA 还具有以下优点:一是在保氮的同时,还可以补充堆体的碳源和氮源;二是较于吸附剂和生物添加剂对 NH<sub>3</sub> 有更好的控制效果;三是添加量小,价格更经济。基于此,本研究将 NTA 作为外源添加剂,研究其减少好氧堆肥过程中氮素损失的实际效果;同时,通过研究 NTA 添加对堆体理化性质、有机质含量及堆体腐熟度的影响,进一步分析其对好氧堆肥进程及效果的影响,以期为好氧堆肥保氮工艺优化提供有益参考。

## 1 材料与方法

### 1.1 实验材料

实验用脱水剩余污泥由某食品厂提供;玉米秸秆收集于江苏连云港;氨三乙酸购自山东德州,3种原料的理化性质如表1所示。

### 1.2 实验装置

堆肥反应器为自制反应器,其主体为聚丙烯箱体(700 mm×330 mm×330 mm),总容积约为 75 L,箱体外部包裹 3 cm 保温棉,曝气泵与箱体底部相连,并通过置于底端的曝气环实现均匀曝气,设置通风/关闭时间比为 5 min 比 25 min,曝气量为 0.2 L·(L·min)<sup>-1</sup>,顶部通过软管依次连接盛有硼酸溶液和 NaOH 溶液的锥形瓶。具体示意图如图 1 所示。

### 1.3 实验方法

将剩余污泥与玉米秸秆按湿重比 6:4 混合,使得混合物的含水率为 55%~60%,碳氮比为 20~25;然后,等分 3 份,每份重约 15 kg。其中,2 份分别添加 2.5% 和 5.0%(占物料干重)的 NTA,记为 T1 和 T2,第 3 份不添加任何物质,记为 CK,混合均匀后,开始堆肥。

在堆肥第 0、3、7、14、21、28、35、42、49、56 天取样,同时进行人工翻堆。分别测定样品的 pH、含水率(MC)、铵态氮(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N)、硝态氮(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N)、有机氮(organic nitrogen)、总凯氏氮(TKN)、总有机碳(TOC)、C/N、电导率(EC)和种子发芽指数(GI)。

### 1.4 分析测试项目与方法

堆肥期间,每天上午 08:00 和晚上 20:00 对堆体进行多点测温,平均值记为当天堆体温度;含水率采用烘箱干燥法测定<sup>[9]</sup>;使用 2 mol·L<sup>-1</sup> 的 KCl 溶液,按 1:10(m:v) 的比例从新鲜固体样品中提取浸提液 I<sup>[10]</sup>;使用去离子水,按 1:10(m:v) 的比例从新鲜固体样品中提取浸提液 II<sup>[11]</sup>。提取浸提液时,将配制好的混合物在摇床上以 150 r·min<sup>-1</sup> 的转速振荡 1 h,然后在 4 000 r·min<sup>-1</sup> 的条件下离心 10 min,最后过滤取上清液。浸提液 I 用于 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 和 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 的测定, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 和 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 分别用 Berthelot 法和紫外分光光度法<sup>[12]</sup>测定;浸提液 II 用于 pH、EC 和 GI 的测定。pH 使用 DELTA-320

表 1 堆肥原料的理化性质

Table 1 Physicochemical properties of raw materials

供试原料	含水率/%	TOC/(mg·g <sup>-1</sup> )	TKN/(mg·g <sup>-1</sup> )	C/N
污泥	85.24	575.62	79.40	7.24
玉米秸秆	8.56	435.24	8.92	48.78
氨三乙酸	0.04	376.36	73.24	5.13

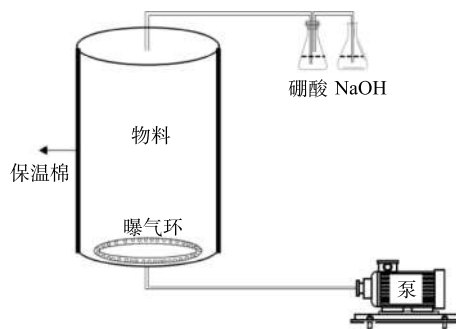


图 1 堆肥反应器示意图

Fig. 1 Schematic diagrams of composting reactor

pH 计<sup>[13]</sup>测定; EC 使用电导率仪测定; 取 5 mL 浸提液 II, 将小白菜种子播种到铺有滤纸的培养皿中, 每个培养皿放 10 粒小白菜种子。将播种完成的培养皿放入 30 °C 恒温培养箱中培养 72 h, 测定种子的发芽率和根长。各组重复实验 3 次, 同时用蒸馏水作为对照, 计算 GI 值<sup>[14]</sup>; TKN 通过凯式定氮法<sup>[15]</sup>测定; TOC 通过重铬酸钾容量法<sup>[16]</sup>测定; 每天测定 CO<sub>2</sub> 和 NH<sub>3</sub> 的含量, 分别采用 100 mL 的 35%NaOH 溶液和 100 mL 的 20% 硼酸溶液吸收, 并用 1.0 或 0.1 mol·L<sup>-1</sup>HCl 溶液进行返滴定<sup>[17]</sup>。

## 2 结果与分析

### 2.1 堆体理化性质的变化

1) 堆体温度的变化。堆体温度是反应好氧堆肥过程中有机物降解和微生物活性的重要指标之一。在好氧堆肥过程中, 有机物被微生物快速降解并释放能量, 致使堆体温度在堆肥初期快速升高<sup>[18]</sup>。由图 2(a) 可知, CK 和 T1 堆体于 3 d 内到达高温期 (>55 °C), T2 堆体于第 4 天到达高温期, 高温持续时间分别为 8、9 和 3 d, 25 d 后堆体温度逐渐下降。此外, 3 个堆体的最高温度分别达 67、64 和 57 °C。可见, 当 NTA 添加量为 2.5% 时, 堆体的高温持续时间最长, 有利于堆体腐熟及无害化。

2) 堆体 pH 的变化。在好氧堆肥过程中, 高 pH 是引起 NH<sub>3</sub> 大量挥发的主要原因<sup>[19]</sup>。如图 2(b) 可知, NTA 添加对堆体初始 pH 的影响较大。NTA 是中强酸性有机酸, 随着 NTA 添加量的增加, CK、T1 和 T2 堆体的初始 pH 不断降低, 分别为 7.07、5.42 和 3.87。随着堆肥过程的进行, 堆体中的有机酸包括 NTA 逐步被降解, 有机氮也逐渐被微生物氨化为 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N, 堆体 pH 不断升高<sup>[20]</sup>; 堆肥至 21 d 时, CK 和 T1 堆体的 pH 分别升高至 8.14 和 8.15, 此后略有降低。这可能与 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 的硝化产生 H<sup>+</sup> 有关<sup>[21-22]</sup>, 也说明随着堆体温度下降, 微生物的硝化活性开始恢复。

与 CK 和 T1 堆体相比, T2 堆体中 NTA 的含量最高, 随着 NTA 的降解, pH 持续升高, 第 42 天时 pH 达 7.47。而后, pH 开始下降, 说明 NTA 等有机酸已消耗殆尽, 堆体中 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 的硝化作用开始恢复。堆肥结束后, 各堆体的 pH 相近, 均稳定在 7.04~7.39, 符合我国有机肥料行业标准 (NY 525-2012) 中的 pH 要求。从堆体 pH 看, 添加 2.5% 的 NTA 即可取得满意效果。

3) 堆体电导率的变化。堆肥电导率 (EC) 的大小能够反映物料的含盐量和评估堆肥产品对植物生长的抑制作用或生物毒性<sup>[23]</sup>。堆肥过程中各堆体的 EC 变化如图 2(c) 所示, 随着 NTA 添加量增加, 各堆体的初始 EC 分别为 2.36、2.63、3.06 mS·cm<sup>-1</sup>, 所有处理的 EC 在 56 d 内呈现出波动上升的趋势。其可能的原因是, 在堆肥过程中随着有机物不断降解, 盐分不断释放; 同时, 堆肥质量的损失, 导致盐分浓缩, 从而使堆肥的 EC 升高。堆肥结束后, 各堆体的 EC 分别为 3.05、3.35、3.71 mS·cm<sup>-1</sup>。通常认为, 堆肥的 EC 小于 4.00 mS·cm<sup>-1</sup> 时, 对植物生长无毒害作用<sup>[24]</sup>。以上结果表明, 添加 NTA 能提高堆肥产品的 EC 且所有处理最终堆肥的 EC 均在标准范围内。

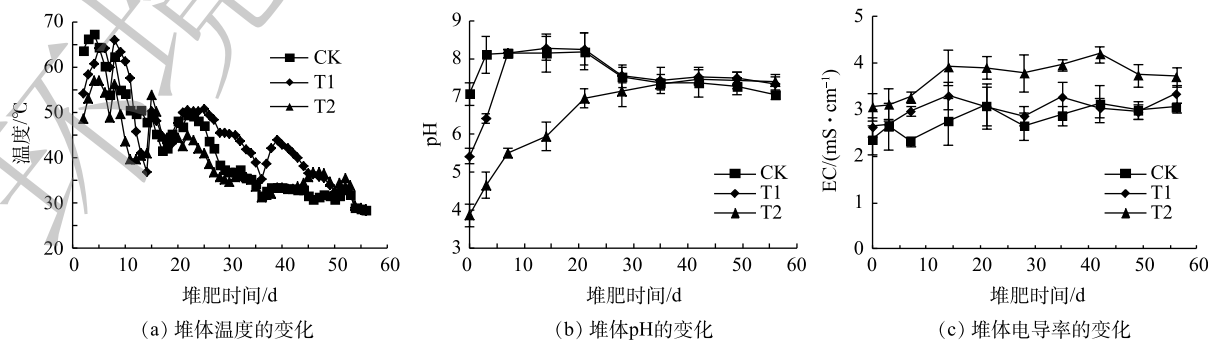


图 2 堆体理化性质的变化

Fig. 2 Changes in physicochemical properties of piles

## 2.2 堆肥过程中氮的形态及含量变化

在堆肥过程中,氮素形态之间的相互转化是一个复杂的过程,这与不同堆肥阶段的微生物构成有关。虽然氮有很多种形态,但在堆肥过程中主要以 $\text{NH}_3\text{-N}$ 、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 和有机氮的形式存在。本研究首先测定了堆体中 $\text{NH}_3\text{-N}$ 即 $\text{NH}_3$ 产生量,并获得了不同NTA添加量时的 $\text{NH}_3$ 挥发量;同时,为深入了解堆肥过程中氮形态及含量的变化,还分析了NTA添加对好氧堆肥过程的影响,发现了 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 、TKN和有机氮含量的变化情况。

1) 堆体 $\text{NH}_3$ 挥发量的变化。 $\text{NH}_3$ 挥发是造成好氧堆肥过程中氮素损失的主要原因,它不仅会降低堆肥产品的品质,同时会产生臭味,污染大气环境<sup>[25]</sup>。堆肥过程中各堆体 $\text{NH}_3$ 日挥发量的变化如图3(a)所示,在堆肥初期,随着有机物的降解,堆体温度和pH迅速升高(图2(a)和图2(b)),CK和T1堆体的 $\text{NH}_3$ 日挥发量分别在第4天和第9天达到最大,为843.20和453.73  $\text{mg}\cdot\text{d}^{-1}$ ,该结果与温度的变化一致。NTA可显著降低 $\text{NH}_3$ 的挥发量,减小氮素损失。此后,随着各堆体温度和微生物氨化作用逐渐减弱,硝化作用逐步增强, $\text{NH}_3$ 挥发量虽有波动,但呈持续降低的变化趋势。而T2堆体的 $\text{NH}_3$ 挥发量始终低于73  $\text{mg}\cdot\text{d}^{-1}$ ,这与该堆体pH始终较低有关。这与PAN等<sup>[26]</sup>在好氧堆肥过程中利用硫粉作为添加剂的研究结果一致。

堆肥过程中各堆体 $\text{NH}_3$ 累计挥发量的变化如图3(b)所示,与 $\text{NH}_3$ 日挥发量相似,其累积挥发量在堆肥初期迅速增加,随着堆肥过程的进行,CK和T1堆体的 $\text{NH}_3$ 累积挥发量呈线性增加,堆至第25天时达到平稳,分别为6.62和5.12 g。这一变化趋势与JIANG等<sup>[27]</sup>在猪粪好氧堆肥过程的研究结果一致。25 d后,2个堆体的 $\text{NH}_3$ 累积挥发量变化不大,至堆肥结束后,分别为6.71和5.69 g。相对而言,NTA添加量为5.0%时, $\text{NH}_3$ 累积挥发量最小,在第25天和堆肥结束时,分别为0.10和0.49 g。

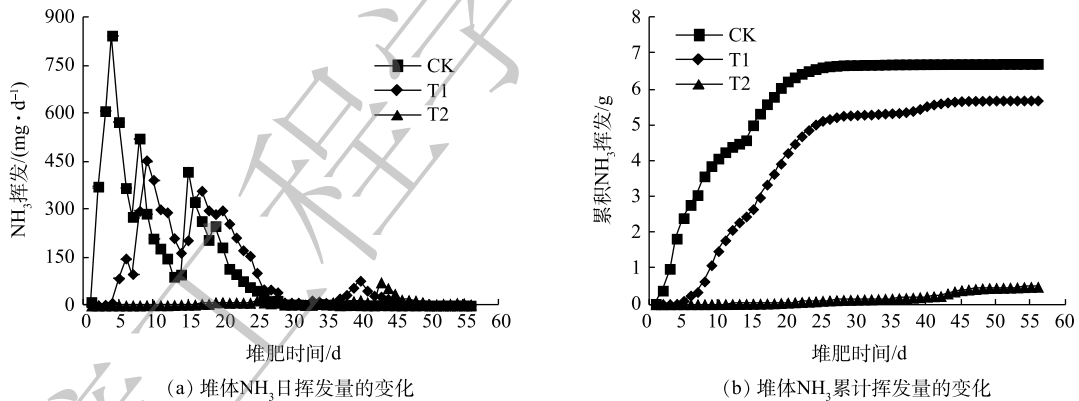
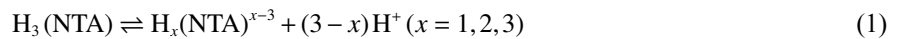


图3 堆体 $\text{NH}_3$ 挥发量的变化

Fig. 3 Changes in  $\text{NH}_3$  emission of piles

2) 堆体 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 含量的变化。如图4(a)所示,与 $\text{NH}_3$ 挥发量的变化相似,堆肥初期,微生物氨化作用较强,堆体中可溶 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的含量迅速增加;同时,添加NTA可显著提高堆体 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 含量,堆肥至第21天时,CK、T1和T2堆体的 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 含量分别为6.37、11.35和12.59  $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 。NTA作为一种酸性添加剂,其水解出的 $\text{H}^+$ 可与 $\text{NH}_3$ 结合,使 $\text{NH}_4^+\rightleftharpoons\text{NH}_3$ 平衡朝向质子化形态<sup>[28]</sup>,进而将 $\text{NH}_3$ 以 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的形式固定在堆体中,从而减少 $\text{NH}_3$ 挥发,且其添加量越高,固定的 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 越多,氮素损失越小。其与 $\text{NH}_3$ 可能的反应见式(1)~式(3)。







21 d 后, 随着堆体温度和 pH 的降低及硝化活性的恢复, 堆体的  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  含量略有降低或趋于稳定<sup>[29]</sup>。堆肥结束时, 各堆体的  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  含量分别为 2.14、7.31 和 11.65  $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 。与 CK 堆体相比, T1 和 T2 堆体的  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  含量分别提高了 2.5 倍和 4.5 倍, NTA 对  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  固定及保氮效果明显。

在堆肥初期, 由于堆体温度和 pH 逐渐升高, 硝化细菌的生长受到抑制, 各堆体  $\text{NO}_3^-\text{-N}$  含量逐渐降低<sup>[30]</sup>。如图 4(b) 所示, 堆肥至第 7 天, 各堆体的  $\text{NO}_3^-\text{-N}$  含量分别降到最低, 分别为 0.08、0.11 和 0.01  $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 。7 d 后, 硝化作用逐渐增强,  $\text{NO}_3^-\text{-N}$  含量逐渐上升。堆肥结束后, 各堆体的  $\text{NO}_3^-\text{-N}$  含量分别为 0.79、0.87 和 0.71  $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ , NTA 添加对堆体的  $\text{NO}_3^-\text{-N}$  含量影响不明显。经测定, 堆体中  $\text{NO}_2^-\text{-N}$  的含量较低, 因此未给出。

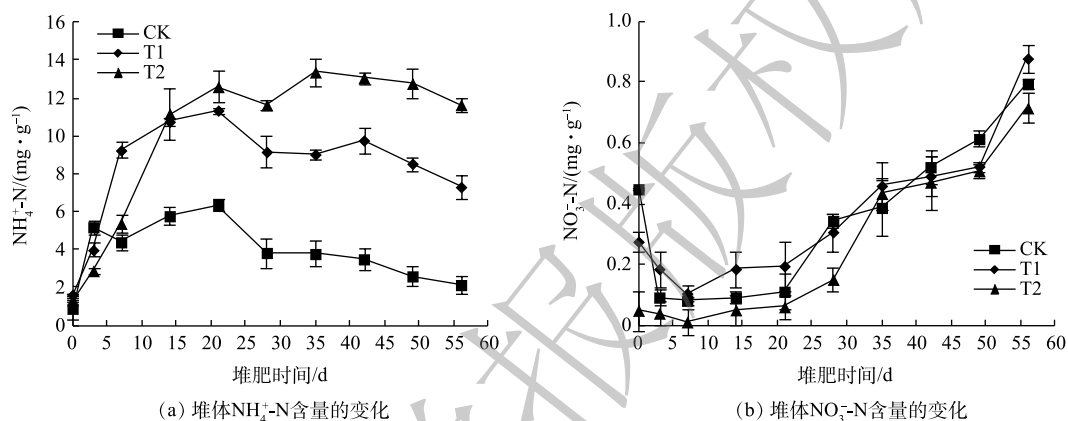


图 4 堆体  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  和  $\text{NO}_3^-\text{-N}$  含量的变化

Fig. 4 Changes in  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  and  $\text{NO}_3^-\text{-N}$  content of piles

3) 堆体 TKN 和有机氮含量的变化。堆体 TKN 和有机氮含量的变化见图 5。随着堆肥过程的进行, 各堆体的 TKN 含量均呈先降低后增加的变化趋势 (图 5(a))。在堆肥初期, 堆体中的有机氮逐步降解, TKN 含量因此降低。堆至第 7 天时, 随着有机物的不断降解, 堆肥物料的质量不断降低, 使得所有处理的 TKN 发生“浓缩效应”, 从而致使各处理的 TKN 含量逐渐上升<sup>[31]</sup>。由于 T1 处理有机物降解效果优于 CK 和 T2 处理, 堆肥结束后, 各堆体的 TKN 含量分别为 43.93、48.60 和 33.54  $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ ; 堆肥结束时, 各堆体 TKN 含量与各自初始含量相比, 分别提高了 61.87%、71.05% 和 7.43%。添加适量 NTA 能促进 TKN 合成及含量增加, 且其效果明显优于苹果渣堆肥<sup>[32]</sup>。

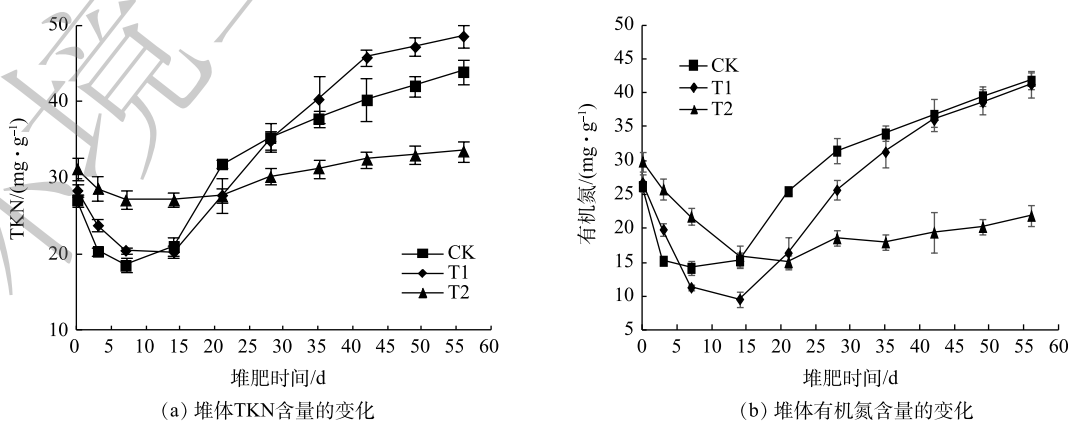


图 5 堆体 TKN 和有机氮含量的变化

Fig. 5 Changes in TKN and organic nitrogen content of piles

在堆肥过程中,有机氮含量的变化趋势(图5(b))与TKN含量的变化趋势(图5(a))有很高的相似性。随着堆肥过程的进行,各堆体有机氮含量呈现出下降后上升的趋势。前期有机氮含量下降,主要是因为堆体中的有机氮被微生物分解转化为无机氮<sup>[33]</sup>。后期有机氮含量上升,一方面是因为在氨同化微生物作用下 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 转化为有机氮;另一方面是因为“浓缩效应”。堆肥结束后,各堆体的有机氮含量分别为41.80、41.29、21.89  $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ ;堆肥结束时,各堆体有机氮含量与各自初始含量相比,CK和T1处理分别提高了59.18%和54.11%,而T2降低了26.75%。

### 2.3 堆肥过程中 TOC 及 $\text{CO}_2$ 含量变化

在堆肥过程中,碳素对微生物的新陈代谢起着关键性的作用。根据对微生物活动的平均计算结果可知,微生物合成1份氮,要利用4份碳作为能量和构成组织碳架<sup>[34]</sup>。堆体中碳素的形态包括无机碳和有机碳。无机碳在堆体内含量极少,在微生物的作用下有机碳被转化成 $\text{CO}_2$ 、 $\text{HCO}_3^-$ 和 $\text{CO}_3^{2-}$ ,最终 $\text{HCO}_3^-$ 和 $\text{CO}_3^{2-}$ 转化成 $\text{CO}_2$ 而释放。在本研究中,分别探究了堆体中 $\text{CO}_2$ 和TOC含量的变化情况。

1) 堆体 TOC 含量的变化。在堆肥过程中,各堆体的 TOC 含量均呈逐渐降低的变化趋势(图6(a))。在微生物的降解作用下,各堆体的 TOC 含量逐渐降低,堆肥至28 d时,各堆体的 TOC 含量分别为480.87、484.89、522.12  $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ ,该变化趋势与刘媛媛等<sup>[35]</sup>在外源添加磷石膏对堆肥碳组分及腐殖物质品质的影响研究中所描述一致。28 d后,T1堆体的 TOC 降解率超过CK;同时,T1堆体的 $\text{CO}_2$ 累积排放量大于CK(图6(c))。堆肥结束后,各堆体的 TOC 含量分别为435.75、429.72、487.40  $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ ,分别比起始时下降了18.89%、20.62%、10.05%。

2)  $\text{CO}_2$  挥发量的变化。 $\text{CO}_2$ 日排放量能够反映堆肥过程中各堆体有机物的分解情况及其微生物的活性<sup>[36]</sup>,各堆体的 $\text{CO}_2$ 日排放量如图6(b)所示,堆肥初期随着有机物快速降解,各堆体的温度迅速上升(图2(a)),各堆体的 $\text{CO}_2$ 日排放量也随之快速升高,并在第2天和第5天达到最大值;10 d之后,微生物活性降低,堆体温度也开始下降, $\text{CO}_2$ 日排放量也随之逐渐下降到较低水平。各堆体的 $\text{CO}_2$ 日排放量差异体现在第1~9天,而在腐熟期基本无差异。第1~9天,各堆体的 $\text{CO}_2$ 平均日排放量分别为11.23、11.38、9.35  $\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$ 。

堆肥过程中,各堆体的 $\text{CO}_2$ 累积排放量如图6(c)所示,堆肥结束时,各堆体 $\text{CO}_2$ 累积排放量分别为215.62、244.66、193.31 g, T1堆体的 $\text{CO}_2$ 累积排放量相对于CK和T2提高了13.47%和26.56%。结果表明,添加2.5%的NTA并不抑制微生物对有机物的降解,反而有促进作用。

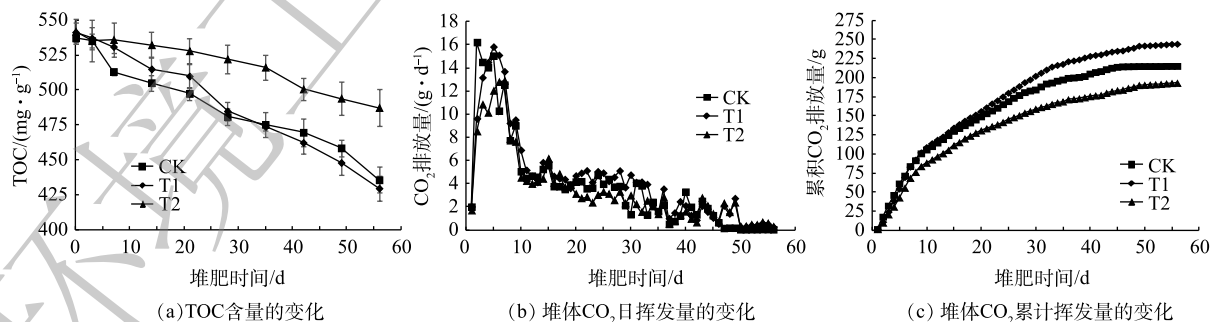


图6 堆体 TOC 含量和  $\text{CO}_2$  累计挥发量的变化

Fig. 6 Changes in TOC content of piles and  $\text{CO}_2$  cumulative emission of piles

### 2.4 堆体腐熟度的变化

1) 堆体 C/N 的变化。在堆肥过程中,各堆体 C/N 的变化如图7(a)所示。可见,各堆体的 C/N 变化趋势一致,由于初期 $\text{NH}_3$ 大量挥发(图3(a)),致使 C/N 在堆肥前期呈现上升趋势;在堆肥后

期, 由于 TOC 含量逐渐下降 (图 6(a)) 和 TKN 含量逐渐上升 (图 5(a)), 致使 C/N 随着堆肥的进行逐渐下降。这一现象与姜继韶等<sup>[37]</sup> 在猪粪好氧堆肥过程中利用过磷酸钙和苹果渣作为添加剂的研究一致。当 C/N 下降到 15~20 以下时, 可认为已达到腐熟, 小于 10 被认为腐熟情况较好<sup>[38]</sup>。堆肥结束时, 各处理 C/N 分别为 9.92、8.84、14.53。结果表明, 添加 2.5% 的 NTA 能促进堆肥腐熟。

2) 堆体 GI 的变化。GI 是测定堆肥植物毒性的直接而有效的方法, 当  $GI \geq 80\%$  时, 可认为堆肥完全腐熟, 已消除对植物的毒性<sup>[39]</sup>。在堆肥过程中, 各堆体的 GI 变化如图 7(b) 所示, 随着 NTA 添加量增加, 致使各堆体初始 GI 分别为 65.81%、46.45%、24.82%。随着堆肥过程进行, 堆肥植物毒性逐渐降低, GI 逐渐升高, 各堆体的 GI 分别在第 3、14、14 天达到 80%。 $NH_4^+-N$  含量过高会抑制植物生长<sup>[40]</sup>。堆肥第 21 天, 各堆体  $NH_4^+-N$  含量达到最大值且保持较高水平 (图 4(a)), 因此, GI 在第 21 天后, 开始下降并保持稳定, 堆肥结束时, 各堆体 GI 分别为 121.76%、95.46%、71.30%。

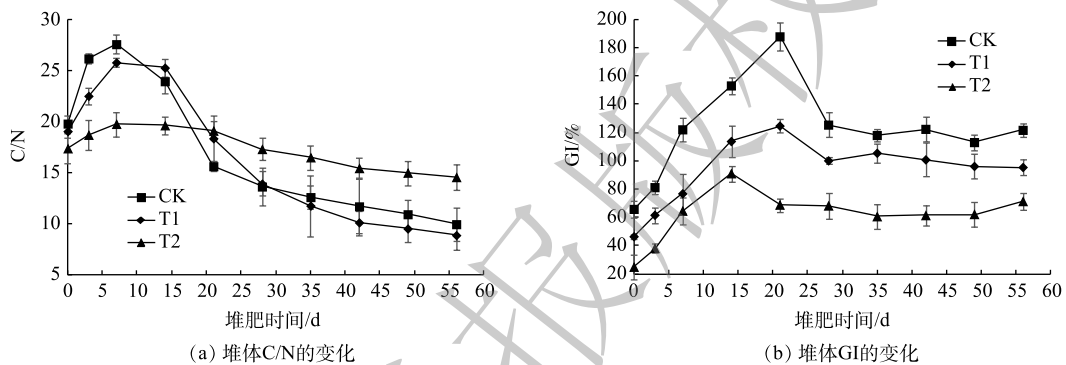


图 7 堆体 C/N 比和 GI 的变化  
 Fig. 7. Changes in C/N ratio and GI of piles

### 2.5 堆肥过程中堆体的理化性质与氨排放之间的冗余分析

以  $NH_3$  挥发、 $NH_4^+-N$  和  $NO_3^- -N$  为响应变量, 堆体的基本理化性质温度 ( $T$ )、pH、TOC、TKN、 $CO_2$  等作为环境解释变量, 通过冗余分析阐释了  $NH_3$  挥发等与堆体理化性质之间的关系, 结果如图 8 所示。选取的环境变量对 CK、T1、T2 氨排放变化的解释度分别为 98.9%、95.7% 和 92.2%, 表明选取的环境变量可以有效解释氨排放的变化。在 CK 中, 温度是氨排放变化的最主要解释变量, 解释了 83.8%, 其次是 TKN, 解释了 9.2%。pH 和 TOC 是 T1 处理氨排放变化的主要解释变量, 分别解释了 68.8% 和 20.0%。在 T2 处理同 T1 处理一致, pH 和 TOC 是氨排放变化的主要解释变量, 分别解释了 83.5% 和 3.5%。

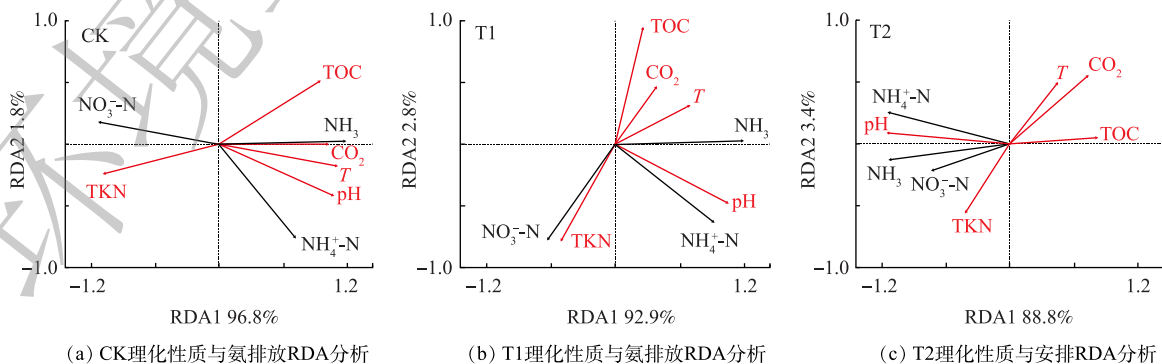


图 8 堆肥过程中理化性质与氨排放之间的冗余分析 (RDA)

Fig. 8 Redundancy analysis (RDA) of physicochemical properties and ammonia emissions during the composting

### 3 结论

1) 随着堆肥过程的进行, CK 和 T1 堆体于 3 d 内到达高温期, T2 堆体于第 4 天到达高温期, 高温期时间分别持续 8、9 和 3 d。堆肥结束时, 各处理 pH 均在 7.04~7.39。相较于未添加和添加 5.0% 的 NTA, 添加 2.5% 的 NTA 有利于堆体理化性质的改善。

2) 堆肥结束时, 与 CK 相比, T1 堆体的  $\text{NH}_3$  累积减少了 15.20%,  $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$  和 TKN 含量分别提高了 242%、10.54% 和 10.62%,  $\text{CO}_2$  累积增加了 13.47%, TOC 含量降低了 1.4%。适量的 NTA 添加有利于氮素保存和有机物降解, 但过量 NTA(5.0%) 的添加不利于有机物降解。

3) 堆肥结束时, CK、T1 和 T2 堆体的 C/N 分别为 9.92、8.84 和 14.53; GI 分别为 121.76%、95.46% 和 71.30%。添加 2.5% 的 NTA 有利于促进堆体腐熟。

### 参考文献

- [1] CHEN M L, HUANG Y M, LIU H J, et al. Impact of different nitrogen source on the compost quality and greenhouse gas emissions during composting of garden waste[J]. *Process Safety and Environmental Protection*, 2019, 124: 326-335.
- [2] 张凤. 以浮石为调理剂的脱水污泥好氧堆肥效果研究[D]. 西安: 西安建筑科技大学, 2018.
- [3] 姜继韶, 尧倩. 酸性物质对猪粪秸秆堆肥过程中氮素转化的影响[J]. *环境科学*, 2017, 38(3): 1272-1278.
- [4] AWASTHI M K, WANG M J, CHEN H Y, et al. Heterogeneity of biochar amendment to improve the carbon and nitrogen sequestration through reduce the greenhouse gases emissions during sewage sludge composting[J]. *Bioresource Technology*, 2017, 224: 428-438.
- [5] 张红玉, 李国学, 袁京, 等. 固氮添加剂降低厨余垃圾堆肥中 $\text{NH}_3$ 和 $\text{H}_2\text{S}$ 排放[J]. *农业工程学报*, 2013, 29(23): 173-178.
- [6] KURODA K, TANAKA A, FURUHASHI K, et al. Application of *Bacillus* sp. TAT105 to reduce ammonia emissions during pilot-scale composting of swine manure[J]. *Bioscience Biotechnology and Biochemistry*, 2017, 81: 2400-2406.
- [7] 胡庆昊, 李秀芬, 陈坚, 等. 氨三乙酸促进厌氧消化产甲烷的动力学研究[J]. *中国环境科学*, 2010, 30(6): 747-751.
- [8] WANG K, LIU Y H, SONG Z G, et al. Effects of biodegradable chelator combination on potentially toxic metals leaching efficiency in agricultural soils[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2019, 182: 109399.
- [9] 蔡璐, 陈同斌, 刘洪涛, 等. 污泥堆肥含水率监测方法的选择与探讨[J]. *环境科学学报*, 2012, 32(6): 1281-1288.
- [10] 薛兆骏, 周国亚, 俞尚峰, 等. 超高温自发热好氧堆肥工艺处理剩余污泥[J]. *中国环境科学*, 2017, 37(9): 3399-3406.
- [11] 颜瑾, 李燕, 熊仁, 等. 农村不同类型有机固体废弃物混合堆肥配比优化[J]. *环境工程学报*, 2018, 12(7): 2106-2113.
- [12] 鲍士旦, 江荣风, 杨超光, 等. 土壤农化分析[M]. 3版. 北京: 中国农业出版社, 2000: 49-61.
- [13] 高云航, 勾长龙, 王雨琼, 等. 低温复合菌剂对牛粪堆肥发酵影响的研究[J]. *环境科学学报*, 2014, 34(12): 3166-3170.
- [14] 胡红伟, 李吕木, 钱坤, 等. 发酵菌剂接种量对堆肥理化性质和有关酶活的影响[J]. *农业环境科学学报*, 2013, 32(6): 1261-1270.
- [15] 李天枢. 畜粪堆肥高效复合微生物菌剂的研制与应用[D]. 杨凌: 西北农林科技大学, 2013.
- [16] 黄翠. 堆肥嗜热纤维分解菌的筛选鉴定及其强化堆肥研究[D]. 长沙: 湖南大学, 2010.
- [17] JIANG J S, KANG K, CHEN D, et al. Impacts of delayed addition of N-rich and acidic substrates on nitrogen loss and compost quality during pig manure composting[J]. *Waste Management*, 2018, 72: 161-167.
- [18] LI R H, WANG J J, ZHANG Z Q, et al. Nutrient transformations during composting of pig manure with bentonite[J]. *Bioresource Technology*, 2012, 121: 362-368.



- [19] 常瑞雪, 甘晶晶, 陈清, 等. 碳源调理剂对黄瓜秧堆肥进程和碳氮养分损失的影响[J]. 农业工程学报, 2016, 32(S2): 254-259.
- [20] 侯超, 李永彬, 徐鹏翔, 等. 筒仓式堆肥反应器不同通风量对堆肥效果的影响[J]. 环境工程学报, 2017, 11(8): 4737-4744.
- [21] 周莉娜, 蔡函臻, 李荣华, 等. 膨润土调质对污泥堆肥的脱毒及重金属钝化和雌酮消除作用[J]. 环境科学, 2017, 38(7): 3061-3069.
- [22] 周江明, 王利通, 徐庆华, 等. 适宜猪粪与菌渣配比提高堆肥效率[J]. 农业工程学报, 2015, 31(7): 201-207.
- [23] 吴飞龙, 叶美锋, 吴晓梅, 等. 添加菌糠对猪粪渣堆肥过程及氨排放的影响[J]. 农业环境科学学报, 2017, 36(3): 598-604.
- [24] GARCIA C, HERNANDEZ T, COSTA F, et al. The influence of composting and maturation processes on the heavy-metal extractability from some organic wastes[J]. *Biological Wastes*, 1990, 31(4): 291-301.
- [25] 杨文卿, 陈潇川, 郭梓波, 等. 聚丙烯酸钠作为调理剂对好氧堆肥的保氮影响[J]. 环境工程学报, 2014, 8(10): 4439-4444.
- [26] PAN J T, CAI H Z, ZHANG Z Q, et al. Comparative evaluation of the use of acidic additives on sewage sludge composting quality improvement, nitrogen conservation, and greenhouse gas reduction[J]. *Bioresource Technology*, 2018, 270: 467-475.
- [27] JIANG J S, HUANG Y M, LIU X L, et al. The effects of apple pomace, bentonite and calcium superphosphate on swine manure aerobic composting[J]. *Waste Management*, 2014, 34(9): 1595-1602.
- [28] 周少奇, 李端. 污泥堆肥过程中氮素损失机理及保氮技术[J]. 土壤, 2003, 35(6): 481-484.
- [29] LU Y J, WU X W, GUO J F, et al. Characteristics of municipal solid waste and sewage sludge co-composting[J]. *Waste Management*, 2009, 29(3): 1152-1157.
- [30] 李森, 罗雪梅, 涂卫国, 等. 保氮剂对水葫芦堆肥进程及氮素损失的影响[J]. 应用生态学报, 2017, 28(4): 1197-1203.
- [31] WANG Q, LI R H, CAI H Z, et al. Improving pig manure composting efficiency employing Ca-bentonite[J]. *Ecological Engineering*, 2016, 87: 157-161.
- [32] MAO H, ZHANG H Y, FU Q, et al. Effects of four additives in pig manure composting on greenhouse gas emission reduction and bacterial community change[J]. *Bioresource Technology*, 2019, 292: 121896.
- [33] MENG L Q, LI W G, ZHANG S M, et al. Effects of sucrose amendment on ammonia assimilation during sewage sludge composting[J]. *Bioresource Technology*, 2016, 210: 160-166.
- [34] 贺琪, 李国学, 张亚宁, 等. 高温堆肥过程中的氮素损失及其变化规律[J]. 农业环境科学学报, 2005, 34(1): 169-173.
- [35] 刘媛媛, 徐智, 陈卓君, 等. 外源添加磷石膏对堆肥碳组分及腐殖质品质的影响[J]. 农业环境科学学报, 2018, 37(11): 2483-2490.
- [36] AWASTHI M K, WANG Q, REN X N, et al. Role of biochar amendment in mitigation of nitrogen loss and greenhouse gas emission during sewage sludge composting[J]. *Bioresource Technology*, 2016, 219: 270-280.
- [37] 姜继韶, 党森, 王攀, 等. 过磷酸钙和腐烂苹果联合添加对猪粪堆肥过程中碳素转化和腐熟的影响[J]. 环境科学学报, 2018, 38(11): 4422-4430.
- [38] 陈雪娇, 王宇蕴, 徐智, 等. 不同磷石膏添加比例对稻壳与油枯堆肥过程的影响及基质化利用的评价[J]. 农业环境科学学报, 2018, 37(5): 1001-1008.
- [39] LI Y Y, HAN Y Y, ZHANG Y R, et al. Factors affecting gaseous emissions, maturity, and energy efficiency in composting of livestock manure digestate[J]. *Science of the Total Environment*, 2020, 731: 139-157.
- [40] 尚双华. 设施土壤氮素积累条件下番茄枯萎病发生的微生态机制研究[D]. 沈阳: 沈阳农业大学, 2016.
- (本文编辑: 金曙光, 郑晓梅)

## Effect of nitrilotriacetic acid on nitrogen conservation during aerobic composting

CHENG Feng<sup>1,2,3,4</sup>, HE Qingshan<sup>1,2,3,4</sup>, SONG Minggan<sup>5</sup>, LI Xiufen<sup>1,2,3,4,\*</sup>, CHENG Yuhui<sup>5</sup>, REN Yueping<sup>1,2,3,4</sup>

1. School of Environmental and Civil Engineering, Jiangnan University, Wuxi 214122, China

2. Jiangsu Key Laboratory of Anaerobic Biotechnology, Wuxi 214122, China

3. Jiangsu Collaborative Innovation Center of Water Treatment Technology and Material, Suzhou 215009, China

4. Jiangsu Engineering Laboratory for Biomass Energy and Carbon Reduction Technology, Wuxi 214122, China

5. Wuxi HOPE Bio-Environmental Protection Technology Co. Ltd., Wuxi 214125, China

\*Corresponding author, E-mail: xfli@jiangnan.edu.cn

**Abstract** The waste activated sludge from wastewater treatment of food industry and corn stalks were used as raw composting materials, and the nitrogen retention efficiency of nitrilotriacetic acid (NTA) during aerobic composting was studied. The results showed that the addition of NTA improved the efficiency of nitrogen retention and organic matter degradation during aerobic composting. When the dosage of NTA added was 2.5%, a high temperature period was reached within 3 days, and lasted 9 days. Compared with the control, the cumulative  $\text{NH}_3$  volatilization decreased by 15.20%, and the contents of ammonium, nitrate, and Kjeldahl nitrogen increased by 242%, 10.54% and 10.62%, respectively, at the end of composting. At the same time, the cumulative carbon dioxide emissions increased by 13.47%, and the total organic carbon content was reduced by 1.4%. The C/N ratio and seed germination index for the compost product were 8.84 and 95.46%, respectively, which met the requirements of maturity, at the end of composting. During the composting, NTA was hydrolyzed to produce  $\text{H}^+$ , which was combined with  $\text{NH}_3$  produced by the ammoniation reaction. It was conducive to the preservation of nitrogen in the heap and improved the fertilizer efficiency of the compost products. The research result provided a useful reference for the optimization of the nitrogen retention during aerobic composting.

**Keywords** resource utilization of agricultural waste; nitrilotriacetic acid; aerobic composting; nitrogen loss