



文章栏目: 水污染防治

DOI 10.12030/j.cjee.201901114

中图分类号 X52

文献标识码 A

彭荷衢, 刁兴兴, 张伟军, 等. 两级自养反硝化实现垃圾渗滤液的深度脱氮[J]. 环境工程学报, 2019, 13(9): 2113-2120.

PENG Hequ, DIAO Xingxing, ZHANG Weijun, et al. Deep denitrification of landfill leachate by two-stage autotrophic denitrification process[J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2019, 13(9): 2113-2120.

## 两级自养反硝化实现垃圾渗滤液的深度脱氮

彭荷衢<sup>1,2</sup>, 刁兴兴<sup>3</sup>, 张伟军<sup>3</sup>, 彭立宇<sup>1,2</sup>, 赵晴<sup>4</sup>, 孟了<sup>5</sup>, 张鑫<sup>6</sup>, 吕慧<sup>1,2,\*</sup>

1. 中山大学环境科学与工程学院, 广州 510275
2. 中山大学深圳研究院, 深圳 518057
3. 深圳市利赛实业发展有限公司, 深圳 518029
4. 广州大学土木工程学院, 广州 510006
5. 深圳市下坪固体废弃物填埋场, 深圳 518047
6. 黑龙江工程学院土木与建筑工程学院, 哈尔滨 150050

第一作者: 彭荷衢(1995—), 男, 硕士研究生。研究方向: 高氨废水处理。E-mail: penghq6@mail2.sysu.edu.cn

\*通信作者: 吕慧(1982—), 男, 博士, 教授。研究方向: 污水处理及资源化等。E-mail: lvhui3@mail.sysu.edu.cn

**摘要** 针对目前生物工艺难以解决垃圾渗滤液深度脱氮的问题, 探究了短程硝化反硝化-厌氧氨氧化-硫自养反硝化(两级自养)工艺处理高氨氮、低 C/N 比垃圾渗滤液的脱氮效果。结果表明, 当进水垃圾渗滤液中氨氮平均浓度为  $2\ 560\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , COD 值为  $4\ 000\sim 5\ 000\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$  时, 经过短程硝化反硝化-厌氧氨氧化处理后, 总氮去除负荷可达  $1.19\ \text{kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$ 、总氮去除率可达 93.1%(出水  $\text{TN}=176.3\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ )、COD 去除率可达 52.2%。但是, 厌氧氨氧化反应器出水中  $\text{NO}_x^- \text{-N}$  浓度为  $154.5\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , 仍未达到我国生活垃圾填埋场垃圾渗滤液处理排放标准 ( $\text{TN}\leq 40\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ )。在厌氧氨氧化反应器之后串联硫自养反硝化, 整体工艺最终出水  $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 、 $\text{NO}_2^- \text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^- \text{-N}$  平均浓度分别为 1.9、0.6、 $9.7\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ,  $\text{TN}\leq 15\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , 进水总氮去除率为 99.5%。在短程硝化反硝化-厌氧氨氧化-硫自养反硝化两级自养深度脱氮反应系统中实现了垃圾渗滤液深度脱氮。

**关键词** 自养脱氮; 垃圾渗滤液; 厌氧氨氧化; 硫自养反硝化

近年来, 集中收集-卫生填埋已成为我国城市生活垃圾的主要处理处置方式<sup>[1]</sup>。然而, 垃圾填埋会产生大量高氨氮、低 C/N 的垃圾渗滤液, 由于其高浓度的氨氮和复杂的有机物组成将对水体环境和人体健康带来严重影响和危害, 因此, 对于这类废水的处理已成为研究焦点和难点<sup>[2]</sup>。

目前, 短程硝化反硝化耦合厌氧氨氧化(anaerobic ammonia oxidation, ANAMMOX)工艺已成功应用于多种低碳氮比(C/N)的高氨氮废水处理, 如垃圾渗滤液、养殖废水及味精加工废水脱氮<sup>[3-6]</sup>。与常规硝化-反硝化工艺相比, 短程硝化反硝化-ANAMMOX 工艺可节省 60% 的需氧量, 且 ANAMMOX 工艺无须外加碳源, 是一种高效低耗、运行成本低廉的废水生物脱氮技术<sup>[7-8]</sup>。但是, 理论上, ANAMMOX 细菌将  $1\ \text{mol}\ \text{NH}_4^+ \text{-N}$  和  $1.32\ \text{mol}\ \text{NO}_2^- \text{-N}$  转化为  $\text{N}_2$  的同时, 会生成  $0.26\ \text{mol}$  硝态氮, 约占反应总氮的 10%(如式(1)所示), 造成出水中硝态氮浓度较高, 总氮超标<sup>[9]</sup>。因此, 使用短程硝化反硝化-ANAMMOX 工艺处理垃圾渗滤液, 无法达到我国 2008 年新修订并实施的《生活垃

收稿日期: 2019-01-16; 录用日期: 2019-03-20

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(51508115); 广州市珠江科技新星项目(201610010165); 广东省特支计划科技创新青年拔尖人才(2016TQ03Z336); 哈尔滨市科技创新人才研究专项资金项目(2017RAQXJ020)

垃圾填埋场污染控制标准》<sup>[10]</sup>中规定的垃圾渗滤液处理厂出水排放标准 ( $\text{NH}_4^+\text{-N} \leq 25 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $\text{TN} \leq 40 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ )。



垃圾填埋场填埋气中含有大量硫化氢气体，垃圾渗滤液中硫化物含量也会随着垃圾填埋时间的增加而增加<sup>[11]</sup>。以深圳某垃圾填埋场为例，填埋场产气量为  $35\,000 \text{ m}^3\cdot\text{h}^{-1}$ ，其中，硫化氢气体浓度为  $150\sim 300 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。近年来，以硫化物 ( $\text{H}_2\text{S}/\text{HS}^-/\text{S}^{2-}$ ) 作为电子供体的硫自养反硝化 (sulfur-driven autotrophic denitrification, SAD) 脱氮技术受到广泛关注，SAD 生物脱氮过程无需外加碳源，可以有效去除水中  $\text{NO}_x\text{-N}$  污染物，同时硫化物被转化为氧化态硫酸盐，且对下游水厂或水环境不会造成不良影响<sup>[12-13]</sup>。SAD 技术已逐步开始应用于低负荷的水体环境修复<sup>[14]</sup>、生活污水深度处理<sup>[15]</sup>、水产养殖废水处理<sup>[16]</sup> 和海水冲厕水处理<sup>[17]</sup> 等。目前，对硫自养反硝化的研究比较深入，已具备一定的理论基础<sup>[18-20]</sup>。因此，利用 SAD 技术应用于垃圾渗滤液处理，既能解决异养反硝化脱氮中有机碳源 (电子供体) 不足的问题，又能实现对垃圾填埋气中硫化氢气体无害化处理并回收电子，避免空气污染的同时又节省了填埋气脱硫成本。本研究在实现短程硝化反硝化-ANAMMOX 工艺处理垃圾渗滤液稳定运行的基础上，进一步耦合 SAD 反应器，构建了两级自养脱氮深度处理工艺，并探究了其工艺效能。

## 1 材料与方法

### 1.1 实验装置

本研究实验装置和反应器照片见图 1，反应器均由有机玻璃制成。短程硝化反硝化反应器 (SBR) 内径 18 cm、有效高度 33 cm、有效容积 3 L。ANAMMOX 反应器为向上流厌氧污泥床反应器 (UASB)，内径 6 cm、有效高度 40 cm、有效容积 1 L。SAD 反应器为向上流厌氧污泥床反应器 (UASB)，内径 6 cm、有效高度 80 cm、有效容积 2 L。

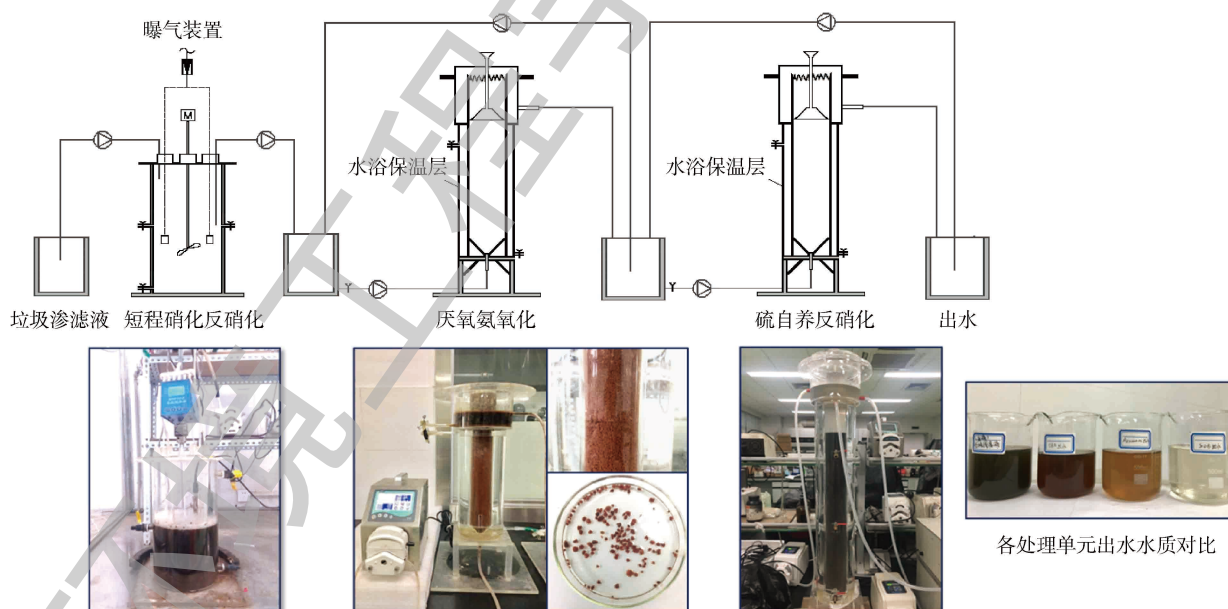


图 1 实验装置示意图及反应器照片

Fig. 1 Schematic diagram and pictures of experimental equipment

### 1.2 进水水质

本研究所用垃圾渗滤液取自深圳市某垃圾填埋场，水质见表 1。在 SAD 反应器启动阶段，进

水为人工模拟废水，主要试剂为九水合硫化钠 ( $\text{Na}_2\text{S}\cdot 9\text{H}_2\text{O}$ )、硝酸钾 ( $\text{KNO}_3$ )、磷酸二氢钾 ( $\text{KH}_2\text{PO}_4$ )、碳酸氢钠 ( $\text{NaHCO}_3$ )、氯化镁 ( $\text{MgCl}_2$ )，均为分析纯。在 SAD 反应器运行阶段，进水为 ANAMMOX 反应器处理垃圾渗滤液的出水。

表 1 垃圾渗滤液水质  
Table 1 Characteristic of landfill leachate

pH	COD/( $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ )	$\text{NH}_4^+\text{-N}/(\text{mg}\cdot\text{L}^{-1})$	$\text{NO}_2^-\text{-N}/(\text{mg}\cdot\text{L}^{-1})$	$\text{NO}_3^-\text{-N}/(\text{mg}\cdot\text{L}^{-1})$	碱度/( $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ )
8.3~8.8	4 000~5 000	2 300~2 700	<5	<50	10 000~13 000

### 1.3 反应器运行

短程硝化反硝化反应器接种污泥取自深圳市某垃圾渗滤液处理厂 AO 工艺曝气池；ANAMMOX 反应器污泥为本实验室培养驯化好的污泥；SAD 反应器接种污泥取自广州市某生活污水处理厂二次沉淀池。SAD 反应器启动阶段，逐步提高反应器进水中硝态氮的负荷，启动过程中运行条件见表 2。SAD 反应器成功启动后串联至短程硝化反硝化-厌氧氨氧化工艺 (见图 1)，实现对垃圾渗滤液的深度脱氮。3 个反应均在室温下运行，短程硝化反硝化反应器以进水-搅拌-沉淀-出水-静置的方式运行，处理垃圾渗滤液的负荷为  $2\text{ L}\cdot\text{d}^{-1}$ ；ANAMMOX 与 SAD 反应器均以连续流进水方式运行 (外回流比均为 3)，水力停留时间 (hydraulic retention time, HRT) 分别为 3 h 和 6 h，垃圾渗滤液 (调节后) 处理负荷均为  $8\text{ L}\cdot\text{d}^{-1}$ 。

表 2 SAD 反应器启动过程中运行条件  
Table 2 Operation conditions during start-up of SAD reactor

阶段	运行时间/d	HRT/h	进水流量/( $\text{L}\cdot\text{d}^{-1}$ )	氮负荷/( $\text{kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$ )	硫负荷/( $\text{kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$ )
I	0~30	24	2	0.07	0.14
II	31~70	12	4	0.14~0.18	0.28~0.36
III	71~115	5	9.6	0.43~0.56	0.86~1.12

### 1.4 分析项目与方法

各项指标测定方法均按照已有的方法<sup>[21]</sup>。采集进出水水样经  $0.45\ \mu\text{m}$  滤膜过滤后，分别采用纳氏试剂法、N-(1-萘基)乙二胺分光光度法和紫外分光光度法测定样品中的  $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2^-\text{-N}$  和  $\text{NO}_3^-\text{-N}$ ；水中  $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{SO}_3^{2-}$ 、 $\text{S}_2\text{O}_3^{2-}$  离子浓度采用离子色谱仪 (IC-AS23 阴离子检测器，DIONEX ICS-900) 检测；溶解性硫化物  $\text{H}_2\text{S}/\text{HS}^-/\text{S}^{2-}$  采用亚甲基兰分光光度法检测；COD 采用哈希 DRB200 快速消解仪测定；碱度采用五点滴定法；实验过程中，定期取反应器中均匀混合的污泥，测定 MLSS、MLVSS；pH、温度采用便携式 pH 计 (FG2-FK, METTLER TOLEDO) 进行测定。

## 2 结果与讨论

### 2.1 短程硝化反硝化-ANAMMOX 工艺构建及其对垃圾渗滤液处理效果

本研究中使用了已经稳定运行的短程硝化反硝化-ANAMMOX 反应器，并对其进行了参数优化<sup>[22]</sup>；短程硝化反硝化反应器中参与硝化反应的菌属 *Nitrosomonas* (AOB) 得到富集，*Nitrospira* (NOB) 的丰度下降至  $<0.01\%$ ，保证了反应器中高效的亚硝化率<sup>[22-23]</sup>。如图 2(a) 所示，通过控制曝气时间 (22.7 h) 和 DO 浓度 ( $\leq 0.5\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ) 实现垃圾渗滤液短程硝化，同时消耗垃圾渗滤液中可生物降解的有机碳，为后续厌氧氨氧化脱氮提供了保障。在进水垃圾渗滤液 TN 为  $2\ 560\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$  时，50%~60% 的  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  被转化为  $\text{NO}_2^-\text{-N}$ ，短程硝化反硝化反应器出水  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  为  $1\ 013.6\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ， $\text{NO}_2^-\text{-N}$  为  $1\ 206.3\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ，

$\text{NH}_4^+\text{-N}$  与  $\text{NO}_2^-\text{-N}$  的平均浓度比例为 1:1.21, 说明短程硝化反硝化反应器中 AOB 为优势菌属 [22-23]。短程硝化反硝化反应器出水  $\text{NO}_3^-\text{-N}$  基本维持稳定, 平均浓度为  $247.8 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , 反硝化脱氮  $92.2 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。短程硝化反硝化反应器出水符合厌氧氨氧化反应对  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  与  $\text{NO}_2^-\text{-N}$  比例的要求 [24]。本研究通过人工配水培养驯化的 ANAMMOX 颗粒污泥呈橙红色, 平均粒径为  $762 \mu\text{m}$ (如图 1 所示)。由图 2(b) 可知, 厌氧氨氧化反应器进水中  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  与  $\text{NO}_2^-\text{-N}$  平均浓度分别为  $259.2 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  和  $275.1 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , 进水总氮为  $500\sim 600 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ; 通过厌氧氨氧化反应,  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  与  $\text{NO}_2^-\text{-N}$  的去除率为 91.6% 和 94.9%, ANAMMOX 反应器出水  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  和  $\text{NO}_2^-\text{-N}$  平均浓度分别  $21.9 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  和  $14.0 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。短程硝化反硝化-ANAMMOX 系统 TN 的平均去除率为 93.1%, 出水  $\text{TN}=176.3 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。但是, 由于厌氧氨氧化反应本身会将约 10% 的进水 TN 生成  $\text{NO}_3^-\text{-N}$ , 使得 ANAMMOX 出水  $\text{TN}>170 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。其中,  $\text{NO}_x^-\text{-N}=154.5 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , 造成短程硝化反硝化-ANAMMOX 工艺处理垃圾渗滤液出水未能达到国家规定的排放标准 (GB 16889-2008)( $\text{TN}\leq 40 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ )。因此, 本研究采用硫化物作为电子供体, 通过 SAD 脱氮技术, 对短程硝化反硝化-ANAMMOX 工艺出水进行深度脱氮。

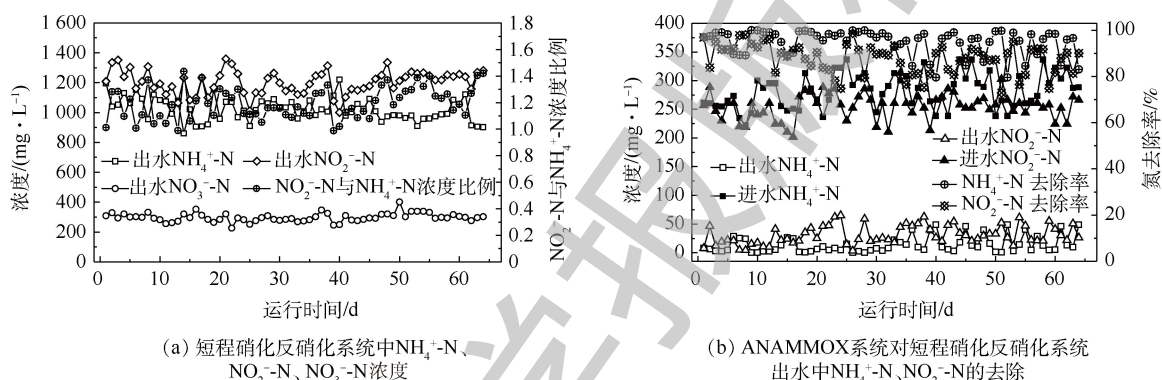


图 2 短程硝化反硝化-ANAMMOX 反应器脱氮效果

Fig. 2 Performance of the partial nitrification-denitrification-ANAMMOX reactor on nitrogen removal

## 2.2 硫自养反硝化反应器启动与脱氮效果

本研究采用人工配水启动 SAD 反应器, 通过逐步提高 SAD 反应器进水中  $\text{NO}_3^-\text{-N}$  的负荷, 使反应器内微生物能适应高负荷的含氮废水。为了探究 SAD 反应器的脱氮能力, 启动期间, 将进水 pH 控制在 7.6~7.8 之间, 实验启动过程根据 HRT 的不同分为为 3 个阶段 (表 2)。阶段 I(0~30 d) 是污泥筛选的重要阶段, 如图 3 所示, 通过提高进水硫化物浓度, 氮去除率达 99%。该阶段使反应器中异养菌减少, 硫自养菌进一步富集。在阶段 II(31~70 d) 中, 将 HRT 缩短至 12 h, 当 SAD 反应器

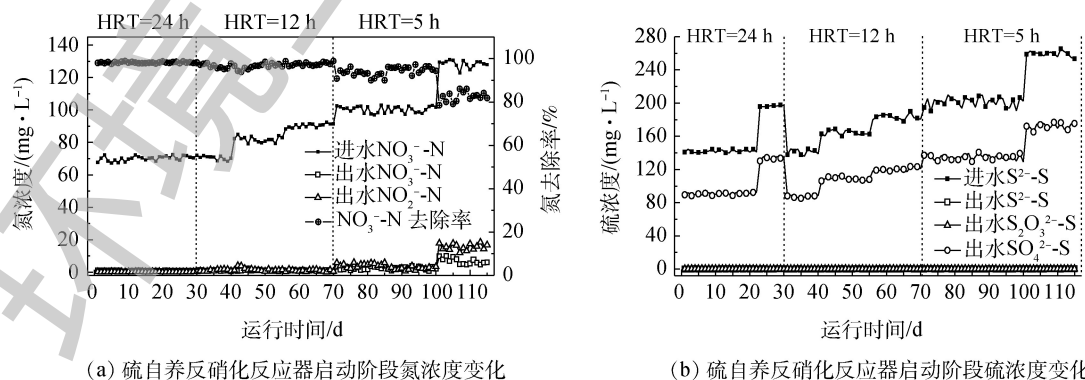


图 3 硫自养反硝化反应器启动及运行

Fig. 3 Start-up and operation of SAD reactor

氮去除率稳定在 90% 以上时, 将进水  $\text{NO}_3^-$ -N 浓度由  $70 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  逐步提升至  $90 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , 避免了高浓度  $\text{NO}_3^-$ -N 对反应器的冲击, 反应器进水氮负荷由  $0.14 \text{ kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$  提升至  $0.18 \text{ kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$ 。在第 71 天, 将进水  $\text{NO}_3^-$ -N 浓度提升到  $100 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , 并且 HRT 由 12 h 缩短至 5 h, 氮负荷提升至  $0.43 \text{ kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$ , 出水中  $\text{NO}_3^-$ -N 和  $\text{NO}_2^-$ -N 平均浓度分别保持在  $1.5 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  和  $4.2 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , TN 去除率保持在 94% 左右。在 100~115 d 内, 进水  $\text{NO}_3^-$ -N 浓度由  $100 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  提升至  $130 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , 反硝化率略有降低。研究中发现, SAD 反应器经过 115 d 的启动和运行, 当 HRT 为 5 h、进水  $\text{NO}_3^-$ -N 浓度为  $100 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、S/N 质量比率为 2 时, 氮去除率为 94%; 同时, SAD 反应器中出水中的硫代硫酸盐和硫化物浓度均在  $0.1 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  以下, 出水硫酸盐浓度会随着不同阶段进水硫化物浓度的改变而变化, 其中约 64.2% 的硫化物转化为硫酸盐(部分生成硫单质), 硫化物去除率为 100%。

### 2.3 短程硝化反硝化-ANAMMOX-SAD 耦合工艺实现垃圾渗滤液深度脱氮

将短程硝化反硝化-ANAMMOX 与 SAD 反应器进行耦合, 形成短程硝化反硝化-ANAMMOX-SAD 两级自养深度脱氮反应系统(图 1), 其脱氮效果如图 4 所示。SAD 反应器通过调节池调节

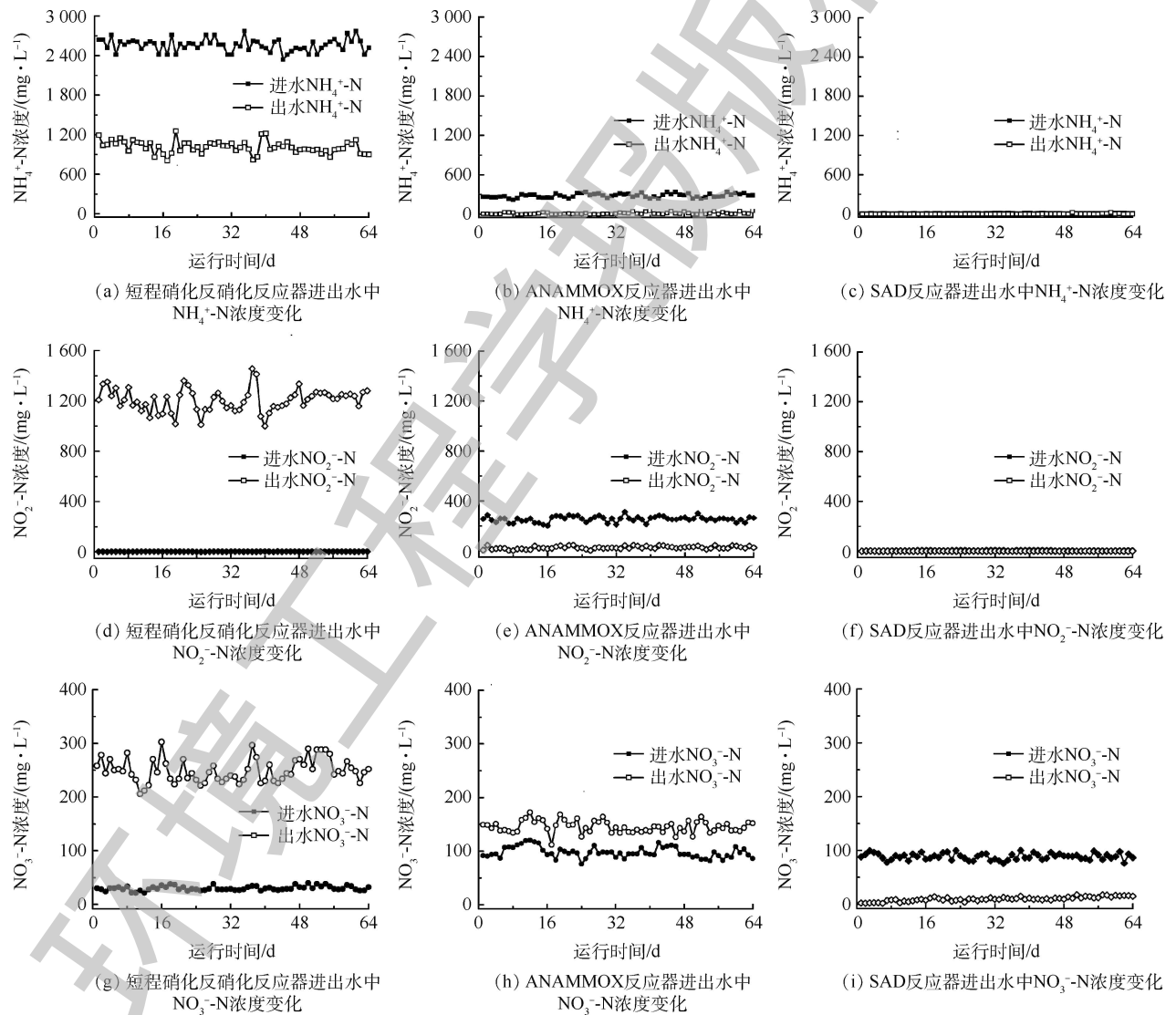


图 4 短程硝化反硝化-ANAMMOX-SAD 工艺进出水中  $\text{NH}_4^+$ -N、 $\text{NO}_2^-$ -N、 $\text{NO}_3^-$ -N 浓度的变化

Fig. 4 Change of  $\text{NH}_4^+$ -N,  $\text{NO}_2^-$ -N,  $\text{NO}_3^-$ -N concentrations in influent and effluent along the partial nitrification-denitrification-ANAMMOX-SAD process

ANAMMOX 出水 pH 为 7.6~7.8, 利用 ANAMMOX 反应器出水提供的  $\text{NO}_3^-$ -N 与  $\text{NO}_2^-$ -N 作为电子受体、投加的硫化物作为电子供体进行硫自养反硝化反应。根据启动期间 SAD 反应器的氮去除负荷, 设置 HRT 为 6 h, 设置 S/N 质量比率为 2。由图 4(a)、图 4(d)、图 4(g) 可知, 通过控制短程硝化反硝化反应器的曝气时间和 DO 浓度, 使进水中 50%~60% 的  $\text{NH}_4^+$ -N 被转化为  $\text{NO}_2^-$ -N,  $\text{NH}_4^+$ -N 与  $\text{NO}_2^-$ -N 的浓度比例为 (1:1)~(1:1.4)。由图 4(c)、图 4(f)、图 4(i) 可知, 在进水  $\text{NH}_4^+$ -N、 $\text{NO}_2^-$ -N、 $\text{NO}_3^-$ -N 平均浓度分别为 4.2、3.6、88.5  $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$  时, SAD 反应器出水  $\text{NO}_3^-$ -N 平均浓度为 9.7  $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ,  $\text{NO}_3^-$ -N 平均去除率为 89.3%, 出水  $\text{NO}_2^-$ -N 平均浓度为 0.6  $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。短程硝化反硝化-ANAMMOX 耦合 SAD 反应器在连续 64 d 处理垃圾渗滤液的过程中, SAD 反应器稳定运行, 出水水质稳定。由图 4(b)、图 4(e)、图 4(h) 可知, ANAMMOX 反应器运行过程中, 进水  $\text{NO}_3^-$ -N 平均浓度为 97.8  $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , 出水  $\text{NO}_3^-$ -N 增加为 140.5  $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。ANAMMOX 进出水  $\text{NH}_4^+$ -N、 $\text{NO}_2^-$ -N 浓度会有些许波动, 主要是由于短程硝化反硝化反应器溶解氧浓度波动导致, 溶解氧会促进亚硝化细菌 (NOB) 的生长, 导致厌氧氨氧化反应底物的不足 ( $\text{NO}_2^-$ -N 不足), 从而影响脱氮效率<sup>[25]</sup>。

本研究采用了短程硝化反硝化-厌氧氨氧化 (ANAMMOX)-硫自养反硝化 (SAD) 工艺, 通过两级自养反硝化实现了垃圾渗滤液深度脱氮。将启动成功的 SAD 反应器与短程硝化反硝化-ANAMMOX 反应器串联, 通过基于硫化物的自养反硝化去除了 ANAMMOX 产生的  $\text{NO}_x^-$ -N, 提高了整体工艺的总氮去除率, 出水水质达到《生活垃圾填埋场污染控制标准》氮排放标准 ( $\text{TN}\leq 40\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ )。在目前处理垃圾渗滤液脱氮的同类研究中, 普遍难以实现垃圾渗滤液的深度脱氮<sup>[26-27]</sup>, 而本研究在无需投加高成本碳源的情况下, 实现了垃圾渗滤液的高效、深度脱氮处理。

### 3 结论

1) 短程硝化反硝化-ANAMMOX 工艺处理垃圾渗滤液脱氮效果较好, 总氮去除负荷可达  $1.19\text{ kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$ , 总氮去除率可达 93.1%。但工艺出水中  $\text{NO}_3^-$ -N 浓度为  $140.5\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  ( $\text{TN}=176.3\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ), 无法达到 (GB 16889-2008) 中规定的垃圾渗滤液处理厂出水排放标准。

2) SAD 反应器成功启动, 反应器进水氮负荷为  $0.43\text{ kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$ , 氮去除率为 94%, 硫化物去除率为 100%, 实现了反应器中硫自养反硝化菌的富集。

3) 短程硝化反硝化-ANAMMOX-SAD 工艺出水 TN 均值  $<12\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、TN 去除率达到 99.5%、总氮去除负荷达到  $0.85\text{ kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$ , 实现了处理垃圾渗滤液的深度脱氮。同时, 垃圾填埋场中的硫化氢气体以回收与再循环的方式为本工艺提供硫源, 这为硫化氢气体的去除提供了新思路。

### 参考文献

- [1] 袁文祥, 陈善平, 邵俊, 等. 我国垃圾填埋场现状、问题及发展对策[J]. 环境卫生工程, 2016, 24(5): 8-11.
- [2] 吴迪, 王凯, 刘宇, 等. 低C/N比老龄化垃圾渗滤液处理工程的提标改造[J]. 环境工程学报, 2013, 7(3): 843-847.
- [3] ZHANG F Z, PENG Y Z, WANG S Y, et al. Efficient step-feed partial nitrification, simultaneous ANAMMOX and denitrification (SPNAD) equipped with real-time control parameters treating raw mature landfill leachate[J]. Journal of Hazardous Materials, 2019, 364: 163-172.
- [4] ZHOU Q, LIN Y, LI X, et al. Effect of zinc ions on nutrient removal and growth of lemna aequinoctialis from anaerobically digested swine wastewater[J]. Bioresource Technology, 2018, 249: 457-463.
- [5] 王凡, 陆明羽, 殷记强, 等. 反硝化-短程硝化-厌氧氨氧化工艺处理晚期垃圾渗滤液的脱氮除碳性能[J]. 环境科学, 2018, 39(8): 3782-3788.

- [6] XIANG L, YAN Y, FAN W, et al. Highly efficient of nitrogen removal from mature landfill leachate using a combined DN-PN-Anammox process with a dual recycling system[J]. *Bioresource Technology*, 2018, 265: 357-364.
- [7] SRI S S, JOSEPH K. Nitrogen management in landfill leachate: Application of SHARON, ANAMMOX and combined SHARON-ANAMMOX process[J]. *Waste Management*, 2012, 32(12): 2385-2400.
- [8] LACKNER S, GILBERT E M, VLAEMINCK S E, et al. Full-scale partial nitrification/anammox experiences: An application survey[J]. *Water Research*, 2014, 55: 292-303.
- [9] SHALINI S, JOSEPH K. Start-up of the SHARON and ANAMMOX process in landfill bioreactors using aerobic and anaerobic ammonium oxidizing biomass[J]. *Bioresource Technology*, 2013, 149: 474-485.
- [10] 中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局, 中国国家标准化管理委员会. 生活垃圾填埋场污染控制标准: GB 16889-2008[S]. 北京: 中国环境科学出版社, 2008.
- [11] HU L, DU Y, LONG Y Y. Relationship between H<sub>2</sub>S emissions and the migration of sulfur-containing compounds in landfill sites[J]. *Ecological Engineering*, 2017, 106: 17-23.
- [12] SAHINKAYA E, YURTSEVER A, AKTAS O, et al. Sulfur-based autotrophic denitrification of drinking water using a membrane bioreactor[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2015, 268: 180-186.
- [13] 黄奕亮, 张立秋, 李淑更, 等. 短程硝化厌氧氨氧化联合处理实际垃圾渗滤液[J]. *工业水处理*, 2018, 38(3): 37-41.
- [14] LU H, WANG J, LI S, et al. Steady-state model-based evaluation of sulfate reduction, autotrophic denitrification and nitrification integrated (SANI) process[J]. *Water Research*, 2009, 43(14): 3613-3621.
- [15] 任争鸣, 刘雪洁, 苏晓磊, 等. 硫自养反硝化深度脱氮中试研究[J]. *中国给水排水*, 2016, 32(19): 31-35.
- [16] CHRISTIANSON L, LEPINE C, TSUKUDA S, et al. Nitrate removal effectiveness of fluidized sulfur-based autotrophic denitrification biofilters for recirculating aquaculture systems[J]. *Aquacultural Engineering*, 2015, 68(4): 10-18.
- [17] WANG J, LU H, CHEN G H, et al. A novel sulfate reduction, autotrophic denitrification, nitrification integrated (SANI) process for saline wastewater treatment[J]. *Water Research*, 2009, 43(9): 2363-2372.
- [18] YANG W, ZHAO Q, LU H, et al. Sulfide-driven autotrophic denitrification significantly reduces N<sub>2</sub>O emissions[J]. *Water Research*, 2016, 90: 176-184.
- [19] LU H, HUANG H, YANG W, et al. Elucidating the stimulatory and inhibitory effects of dissolved sulfide on sulfur-oxidizing bacteria (SOB) driven autotrophic denitrification[J]. *Water Research*, 2018, 133: 165-172.
- [20] YANG W, LU H, KHANAL S K, et al. Granulation of sulfur-oxidizing bacteria for autotrophic denitrification[J]. *Water Research*, 2016, 104: 507-519.
- [21] 国家环境保护总局. 水和废水监测分析方法[M]. 4版. 北京: 中国环境科学出版社, 2002.
- [22] 梁俊宇, 周鸿, 赵晴, 等. 垃圾渗滤液部分亚硝化的启动运行及菌群分析[J]. *水处理技术*, 2018, 44(3): 99-103.
- [23] 梁俊宇. 短程硝化反硝化-厌氧氨氧化联合工艺处理垃圾渗滤液[D]. 广州: 广州大学, 2018.
- [24] YAMAMOTO T, TAKAKI K, KOYAMA T, et al. Long-term stability of partial nitrification of swine wastewater digester liquor and its subsequent treatment by ANAMMOX[J]. *Bioresource Technology*, 2008, 99(14): 6419-6425.
- [25] WANG H L, KIM M, LI K, et al. Effective partial nitrification of ammonia in a fluidized bed bioreactor[J]. *Environmental Technology*, 2019, 40(1): 94-101.

- [26] MIAO L, WANG K, WANG S Y, et al. Advanced nitrogen removal from landfill leachate using real-time controlled three-stage sequence batch reactor (SBR) system[J]. *Bioresource Technology*, 2014, 159: 258-265.
- [27] PHAN T N, VAN TRUONG T T, HA N B, et al. High rate nitrogen removal by ANAMMOX internal circulation reactor (IC) for old landfill leachate treatment[J]. *Bioresource Technology*, 2017, 234: 281-288.

(本文编辑: 金曙光, 曲娜, 郑晓梅)

## Deep denitrification of landfill leachate by two-stage autotrophic denitrification process

PENG Hequ<sup>1,2</sup>, DIAO Xingxing<sup>3</sup>, ZHANG Weijun<sup>3</sup>, PENG Liyu<sup>1,2</sup>, ZHAO Qing<sup>4</sup>, MENG Liao<sup>5</sup>, ZHANG Xin<sup>6</sup>, LYU Hui<sup>1,2,\*</sup>

1. School of Environmental Science and Engineering, Sun Yat-Sen University, Guangzhou 510275, China

2. Shenzhen Research Institute of Sun Yat-Sen University, Shenzhen 518057, China

3. Shenzhen Lisai Development Co. Ltd., Shenzhen 518029, China

4. School of Civil Engineering, Guangzhou University, Guangzhou 510006, China

5. Shenzhen Xiaping Municipal Solid Waste Landfill Site, Shenzhen 518047, China

6. School of Civil and Architecture Engineering, Heilongjiang Institute of Technology, Harbin 150050, China

\*Corresponding author, E-mail: lvhui3@mail.sysu.edu.cn

**Abstract** In view of the difficulty of deep denitrification in the treatment of landfill leachate by biological process at present, a new process coupling partial nitrification-denitrification-anaerobic ammonia oxidation (ANAMMOX) and sulfur-driven autotrophic denitrification (SAD) was applied to treat the landfill leachate with high ammonia nitrogen and low C/N ratio. The results showed that at the ammonia concentrations of  $2\ 560\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$  and COD of  $4\ 000\sim 5\ 000\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$  in the influent landfill leachate, the total nitrogen removal load, nitrogen removal efficiency and COD removal efficiency were  $1.19\ \text{kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$ , 93.1% (the total nitrogen concentration in effluent was  $176.3\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ), and 52.2% after partial nitrification-denitrification-ANAMMOX treatment, respectively. However,  $\text{NO}_3^-$ -N concentration in the effluent of the ANAMMOX reactor was  $154.5\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , which could not meet the effluent quality standard of  $\text{TN}\leq 40\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$  in domestic solid waste landfill. When the SAD was coupled with partial nitrification-denitrification-ANAMMOX process in a series connection mode, the average concentrations of  $\text{NH}_4^+$ -N,  $\text{NO}_2^-$ -N,  $\text{NO}_3^-$ -N in the effluent of the whole process were 1.9, 0.6 and  $9.7\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , respectively, the total nitrogen concentration was below  $15\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , the nitrogen removal efficiency reached 99.5%. Deep denitrification of landfill leachate was achieved by two-stage autotrophic deep denitrification process of partial nitrification-denitrification-ANAMMOX-SAD.

**Keywords** autotrophic denitrification; landfill leachate; anaerobic ammonia oxidation; sulfur-driven autotrophic denitrification