



文章栏目: Anammox⁺生物脱氮工艺与应用

DOI 10.12030/j.cjee.202301035 中图分类号 X703 文献标识码 A

金樾, 喻大燕, 李海翔, 等. Anammox-MBR 耦合工艺在生活污水中的脱氮性能及其机理[J]. 环境工程学报, 2023, 17(4): 1102-1110. [JIN Yue, YU Dayan, LI Haixiang, et al. Nitrogen removal performance and mechanism of anammox-MBR coupling process in sewage treatment[J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2023, 17(4): 1102-1110.]

Anammox-MBR 耦合工艺在生活污水中的脱氮性能及其机理

金樾¹, 喻大燕¹, 李海翔¹, 张文杰^{1,✉}

1. 桂林理工大学, 广西环境污染控制理论与技术重点实验室, 桂林 541004; 桂林理工大学, 广西岩溶地区水污染控制与用水安全保障协同创新中心, 桂林 541004

摘要 厌氧氨氧化工艺在处理生活污水过程中存在处理效率不稳定的问题, 阻碍了其在生活污水处理中的工程应用。采用包括缺氧反应器、好氧反应器、膜组件 3 个部分的 anammox-MBR (AX-MBR) 耦合工艺来处理生活污水, 以期解决该问题。实验开始时, 先投加污水处理厂好氧活性污泥进行启动, 后降低反应系统的溶解氧, 最后再投加厌氧氨氧化菌 (AnAOB)。结果表明, 投加 AnAOB 可有效提高 AX-MBR 的 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除率, $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 平均去除率由 68% 升至 87%。实验过程中未对反应器进行温度控制, 故在反应温度低于 20 °C 时发现, AnAOB 活性随着温度降低急剧下降。在低温环境运行时, 可采用降低进水负荷的方式来保证处理效果。采用 ^{15}N 稳定同位素示踪法对 AnAOB 脱氮贡献率进行分析表明, AX-MBR 氮元素的去除主要由 AnAOB 主导的途径完成, 其脱氮贡献率可达 65%。而 16S 高通量测序结果表明, 缺氧反应器中的 AnAOB 主要为 *Candidatus Kuenenia*, 且缺氧反应器和好氧反应器的反硝化细菌丰度远大于氨氧化细菌丰度。这表明 AX-MBR 中 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 主要来源于部分反硝化, 这在群落水平上证明了短程反硝化-厌氧氨氧化的存在。本研究结果可为厌氧氨氧化的工艺发展提供参考。

关键词 厌氧氨氧化 (anammox); 生活污水; MBR; 微生物多样性; 脱氮机理

厌氧氨氧化 (anaerobic ammonium oxidation, anammox) 是指厌氧或缺氧条件下, 厌氧氨氧化菌 (anammox ammonium oxidation bacteria, AnAOB) 以亚硝态氮 ($\text{NO}_2^-\text{-N}$) 为电子受体, 将氨氮 ($\text{NH}_4^+\text{-N}$) 氧化为氮气 (N_2) 的生物过程^[1-2]。传统生物脱氮工艺常用来去除生活污水中的氮元素, 主要是通过好氧硝化和缺氧反硝化来实现。在好氧阶段, $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 需要充足氧气以实现硝化, 而缺氧阶段则需要足够有机碳源进行反硝化, 从而使得氮元素的去除过程能耗非常高^[3-4]。Anammox 技术相较于传统生物脱氮工艺具有无需外加有机碳源、氮去除负荷高、运行费用低、剩余污泥产量低、无二次污染等优点^[3,5], 将其应用于生活污水中污染物的去除是污水生物处理领域的研究热点。

目前, 个别生活污水处理厂实现了 AnAOB 的富集和 anammox 脱氮。如在新加坡樟宜回用水厂 anammox 工艺的自养脱氮贡献率为 37.5%^[6]; 中国西安第四污水处理厂 anammox 工艺的脱氮贡献率约为 15%^[7]。然而, 上述污水处理厂的主流工艺并不是 anammox, 因此, 目前尚无一个真正意义

收稿日期: 2023-01-10; 录用日期: 2023-02-17

基金项目: 广西自然科学基金资助项目 (2019GXNSFFA245017)

第一作者: 金樾 (1986.9—), 女, 博士研究生, 2011016@glut.edu.cn; ✉通信作者: 张文杰 (1981.5—), 男, 博士, 教授, 2010053@glut.edu.cn

上的 anammox 处理生活污水的工程实例。生活污水存在氨氮浓度较低、冬季水温低 (低于 15 °C, AnAOB 活性急剧降低) 等问题^[8], 使得 anammox 在工程上存在一定的局限性。低氨氮浓度情况下亚硝酸盐氧化菌 (nitrite oxidizing bacteria, NOB) 的生长速率比氨氧化菌 (ammonium oxidation bacteria, AOB) 高, 使得短程硝化过程很难稳定实现^[9]。另外, AnAOB 最佳生长温度为 30~37 °C, 当温度超过 45 °C 时 AnAOB 会出现不可逆失活, 而当温度低于 15 °C 时反应器内还会因积累大量 NO_2^- -N 导致反应器失稳^[10-11]。因此, 如何在低氨氮浓度下保证 NH_4^+ -N 稳定转化为 NO_2^- -N, 以及在低温条件下 (尤其是冬季) 如何维持 anammox 工艺稳定运行是亟需解决的问题。

针对上述问题, 本研究结合传统硝化反硝化系统的稳定性优势, 将 anammox 与 MBR 工艺耦合, 组成一种兼顾低能耗、高负荷的新型生物脱氮工艺 (AX-MBR), 通过对生活污水进行连续处理分析温度对 AX-MBR 工艺的脱氮效果, 并探究 anammox 脱氮贡献率和微生物群落结构变化, 从而分析系统的脱氮机理, 以为工程的工程应用提供参考。

1 材料与方法

1.1 实验装置

本研究采用的 AX-MBR 装置如图 1 所示。整个反应器以有机玻璃为主, 分为缺氧反应器、好氧反应器、膜组件 3 个部分。其中, 膜组件放置于好氧反应器中。缺氧反应器的有效容积为 4 L, 长、宽、高为 9 cm×9 cm×74 cm; 好氧反应器有效容积为 6 L, 长、宽、高为 18 cm×10 cm×50 cm。生活污水先在缺氧反应器中经过微生物处理, 再经过好氧反应器中的微生物处理和膜组件过滤。缺氧反应器进水口设置有液位控制器并连接进水泵, 用于控制进水。挂膜有 AnAOB 的聚氨酯填料放置于缺氧反应器, 投加量为 2 L。2 个反应器间设有 1 台回流泵, 膜组件出水通过时间控制器控制。其中, 2#和 4#为出水调节阀, 1#和 3#为反冲洗调节阀, 用来调节出水和反冲洗时间, 二者时间比为 9:1。反应器采用黑布遮盖, 避免光线对细菌的影响^[12]。

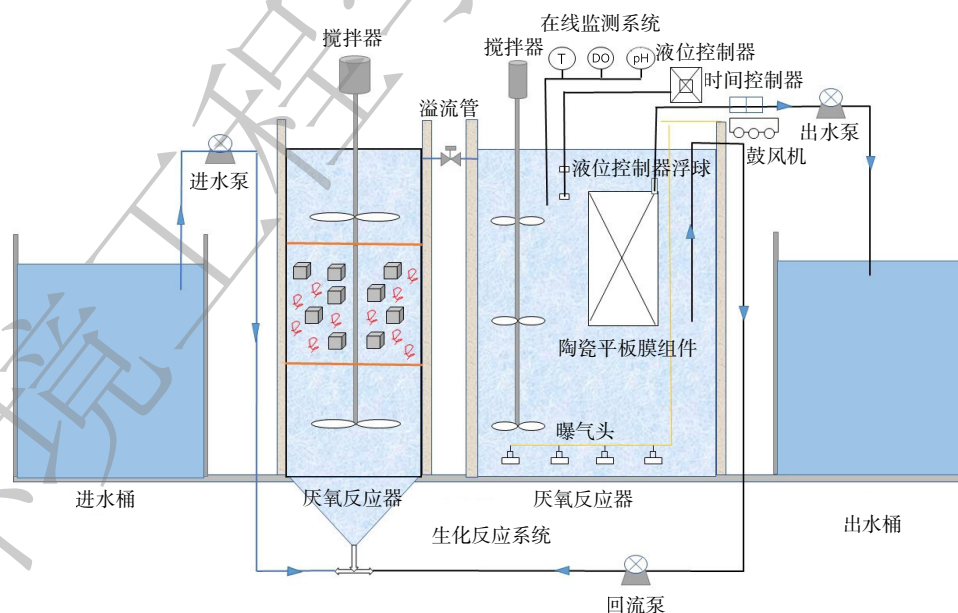


图 1 AX-MBR 工艺流程图

Fig. 1 Flow chart of AX-MBR system

1.2 接种污泥和实验用水

本研究接种污泥主要来自桂林市雁山污水处理厂, 并配以课题组自行培养且具有较好活性的

AnAOB, 通过方形的聚氨酯填料进行固着^[13-14]。实验用水为桂林理工大学的校园生活污水^[3]。此外, 进水先经过制氮机吹脱降低污水中的溶解氧(DO), 以便后续调节、控制反应系统中的DO指标。实验分成3个阶段(共248 d)。在I阶段取适量污水厂好氧池内污泥投加入反应器, 校园生活污水作为进水, 进水TN为70.16~123.25 mg·L⁻¹, NH₄⁺-N为42.5~85.6 mg·L⁻¹, COD为110.88~174.72 mg·L⁻¹。在系统启动并稳定运行后, 降低好氧反应器DO至0.5 mg·L⁻¹, 共运行14 d。在II阶段投加600 mL厌氧氨氧化污泥, 并继续保持DO低于0.5 mg·L⁻¹, 其余运行条件不变, 共计130 d。在III阶段, 从第146天开始共运行102 d, 主要考察温度对AX-MBR工艺的影响。3个阶段均未对反应器进行温度控制, 实验期间的水温为5~35 ℃。水力停留时间(HRT)控制在4 h, 回流比为1:2, DO小于0.5 mg·L⁻¹, pH为7.45~7.55。

1.3 分析方法

NH₄⁺-N: 纳氏试剂分光光度法; NO₂⁻-N: N-(1-萘基)-乙二胺光度分光光度法; TN: 碱性过硫酸钾消解紫外分光光度法; COD: 重铬酸钾微波快速密闭消解法; pH/温度: 北京天健在线监测DEC数字化pH计DPH10AC; DO: 美国哈希便携式溶解氧仪^[5, 15]。

1.4 ¹⁵N 稳定同位素示踪法

取AX-MBR系统稳定运行后的污泥并进行预培养以消耗样本中残留的O₂和NO_x⁻。样品分为3个组, 分别为E-0、E-A和E-D。E-0加¹⁵NH₄⁺检验预培养过程是否耗尽O₂和NO_x⁻, 并排除由纯化学反应生成N₂的可能性; E-A组添加¹⁴NO₃⁻和¹⁵NH₄⁺检测污泥中anammox反应; E-D组添加¹⁵NO₃⁻与样品本底的¹⁴NH₄⁺发生anammox和反硝化反应, 用于定量分析anammox的反应速率和脱氮贡献率。同位素示踪法具体步骤和计算方法参考文献^[16]。

1.5 ¹⁶S 高通量测序

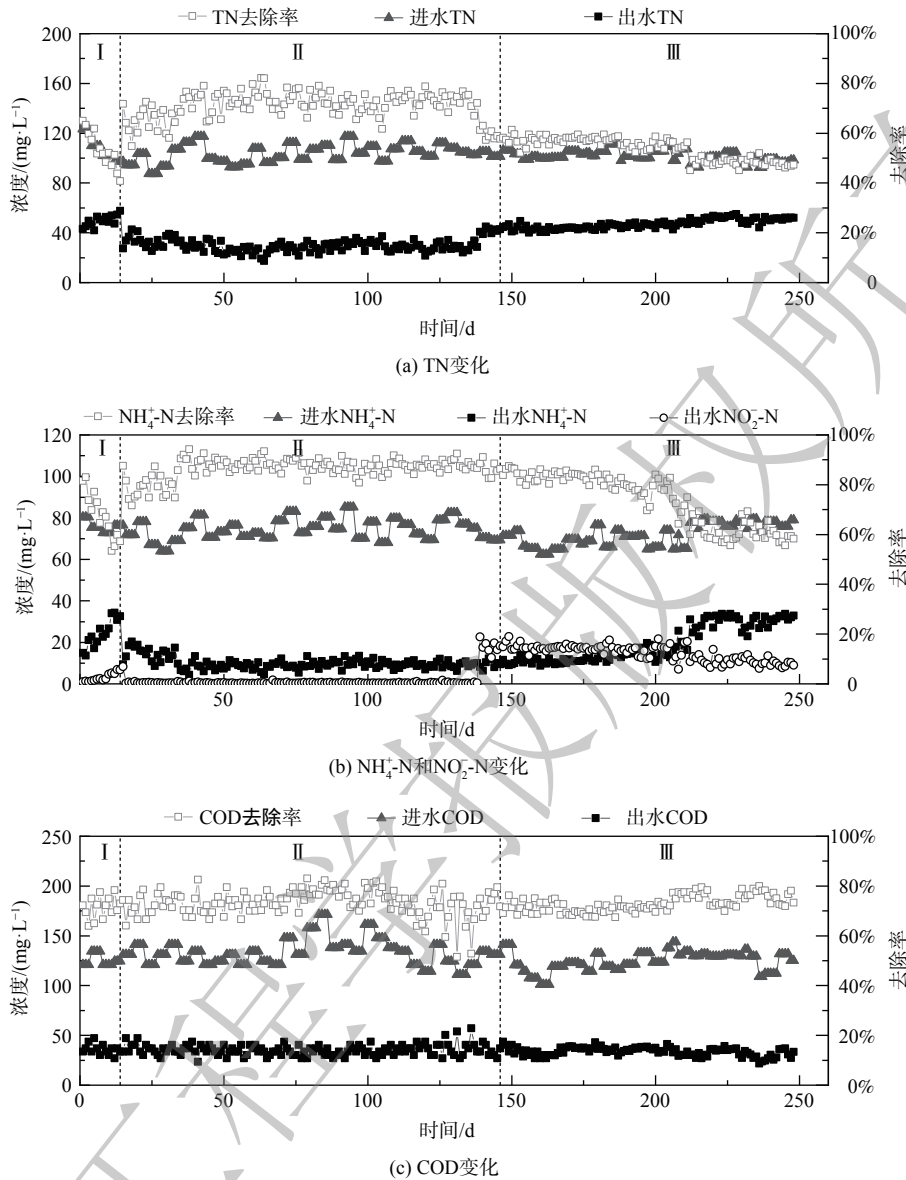
对实验不同阶段的污泥进行取样, 委托生工生物工程(上海)有限公司进行高通量测序分析, 以探究微生物多样性和优势菌种的变化, 具体测序步骤参考文献^[5]。进行3次采样共6个样品, 分别取缺氧反应器和好氧反应器的污泥。第一次取样为AX-MBR工艺成功启动并稳定运行(50 d), 分别为Y1、H1; 第二次取自III阶段(230 d), 主要研究低温环境下群落结构的变化, 记为Y2、H2; 最后一次取样则是所有实验结束后(248 d), 分别是H3、Y3。

2 结果与讨论

2.1 有机物和脱氮性能分析

在AX-MBR工艺运行过程中各氮素质量浓度变化如图2所示。在I阶段通过减少曝气量控制反应器的DO, 从0.89 mg·L⁻¹逐渐降至0.5 mg·L⁻¹以下。该阶段出水NH₄⁺-N质量浓度增加, 最高为34 mg·L⁻¹, 出水NO₂⁻-N质量浓度并随之增加。该阶段的AOB对氧的半饱和系数大于NOB, NOB在低DO下竞争氧能力较弱, 系统可能由短程硝化的原因产生NO₂⁻-N的积累。第II阶段投加了AnAOB污泥后, NH₄⁺-N去除率迅速增加, 最后去除率稳定为约89%。这说明anammox作用具有高效脱氮的能力。第III阶段结果表明, 随着运行天数的增加, 温度降低会导致微生物活性降低, NH₄⁺-N和TN去除率逐渐降低, NH₄⁺-N去除率从最开始的84%将至58%, TN去除率也从67%将至47.28%。这说明温度对AX-MBR的脱氮效率具有较大影响。

在AX-MBR运行过程中, 进水COD约为111~171.36 mg·L⁻¹, 出水COD约为21.77~50.4 mg·L⁻¹, 降低了58%~80%, 可达到城镇污水处理厂污染物排放标准(GB18918-2002)的一级标准。从I阶段到III阶段, 出水COD没有明显变化, 在整个运行过程中保持稳定的处理效果。一方面, 反应系统的微生物中存在着消耗有机物质的异养菌; 另一方面, 膜组件的有效过滤阻断作用也可保证出水COD的稳定性。

图2 TN、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 及COD变化Fig. 2 Changes in the performance of TN, $\text{NH}_4^+\text{-N}$, $\text{NO}_2^-\text{-N}$ and COD

2.2 温度变化对系统脱氮性能的影响

为考察温度变化对 AX-MBR 工艺脱氮性能的影响, 将 III 阶段温度从低到高排列, 以间隔 $5\text{ }^\circ\text{C}$ 为一组, 探究温度在 $5\sim 35\text{ }^\circ\text{C}$ 时的脱氮情况及厌氧氨氧化和反硝化的脱氮贡献量, 结果如图 3 所示。 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的平均去除率随温度的增加逐渐由 59% 增至 87% , TN 去除率也从 49% 升至 73% 。当温度大于 $20\text{ }^\circ\text{C}$ 时, $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除率维持在较高水平, 平均去除率达 85% 以上; 当温度小于 $20\text{ }^\circ\text{C}$ 时, $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 TN 去除率都有所下降, 此时温度降低开始影响微生物基础代谢的能力。这说明反硝化和厌氧氨氧化等脱氮反应速率受温度影响而降低。由于外回流会促进 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 硝化产物 $\text{NO}_x^-\text{-N}$ 在缺氧阶段被去除, 而且反应器硝化液回流比为 $1:2$, 理论上反硝化的最大脱氮贡献率为 33.3% , 因此可根据最大的反硝化脱氮贡献率和已知的总脱氮量推导出 anammox 的脱氮贡献量。当温度为 $25\sim 30\text{ }^\circ\text{C}$ 时, 工艺总脱氮量为 $76.74\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, anammox 和反硝化作用的脱氮贡献量为 $51.42\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $25.32\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。当温度为 $20\sim 25\text{ }^\circ\text{C}$ 时, 工艺总脱氮量下降了 $17.12\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, anammox 和反硝化的脱氮

量为 $39.95 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $19.67 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 当温度为 $15\sim 20\text{ }^{\circ}\text{C}$ 时, 工艺总脱氮量再次降低 $3.14 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。因此, 随着温度的降低, 微生物活性下降, 脱氮量也逐渐降低, 但整体上 anammox 的脱氮贡献率大于反硝化贡献率, anammox 和反硝化作用二者同时保证 AX-MBR 工艺的高效脱氮性能。当温度在 $20\sim 30\text{ }^{\circ}\text{C}$ 范围内时, 温度每下降 $1\text{ }^{\circ}\text{C}$, anammox 活性会降低约 2.23% , 而温度在 $15\sim 20\text{ }^{\circ}\text{C}$ 时每降低 $1\text{ }^{\circ}\text{C}$, anammox 活性下降 1.05% 。由于 AnAOB 和反硝化细菌的生存温度范围较广, 但细菌的活性受温度影响较大, 低温时活性降低, AnAOB 和反硝化效率降低。AX-MBR 工艺在低温环境运作

时, 可采用降低进水氮负荷的方法来保证处理效果, 其他相关研究也表明可采用提高生物量和降低氮负荷等方式降低低温对 AnAOB 或其他菌活性的抑制作用^[17-18]。

2.3 厌氧氨氧化和反硝化脱氮贡献率对比

本研究通过 ^{15}N 同位素示踪法探究 anammox 和反硝化脱氮贡献率, 验证上述 AX-MBR 稳定运行过程中各反应的脱氮贡献率。污泥取自稳定运行阶段的缺氧反应器。将污泥先进行离心, 超纯水也经氨气吹脱 20 min 至厌氧状态, 最后以 $1:5$ 的泥水比例混匀, 并分为 E-0、E-A 和 E-D 3 组。E-0 组无 $^{29}\text{N}_2$ 、 $^{30}\text{N}_2$ 生成, 这表明样品经预处理后 NO_x 消耗殆尽, E-A 组 $^{29}\text{N}_2$ 产量随时间变化明显积累且 $^{30}\text{N}_2$ 无积累, 因此该组只存在 anammox 反应。E-D 组均有 $^{29}\text{N}_2$ 和 $^{30}\text{N}_2$ 积累, 这说明该组同时发生 anammox 和反硝化反应。由于 $^{14}\text{NO}_3^-$ 的存在使得 E-D 组的反硝化反应产物包含有 $^{28}\text{N}_2$ 、 $^{29}\text{N}_2$ 和 $^{30}\text{N}_2$, 而 anammox 的产物只有 $^{28}\text{N}_2$ 和 $^{29}\text{N}_2$, 进而通过 $^{30}\text{N}_2$ 的量可以反推出反硝化所产生的 N_2 总量, 最后得出 anammox 的脱氮贡献率和潜在速率。由图 4 可知, AX-MBR 工艺的 anammox 潜在速率为 $0.04\sim 0.29 \mu\text{mol}\cdot(\text{L}\cdot\text{h})^{-1}$, 反硝化速率为 $0.02\sim 0.17 \mu\text{mol}\cdot(\text{L}\cdot\text{h})^{-1}$, 厌氧氨氧化潜在速率较反硝化的速率高。不同反应时间可对应系统的 HRT, 当反应时间为 2 h 时, anammox 脱氮贡献率为 69.83% , 并且为最大脱氮贡献率, 但微生物反应不充分出水氮素质量浓度较高, 不予采用。当反应 4 h 时, 与实际运行 HRT 一致, 此时 anammox 脱氮贡献率为 60.11% 。由于微生物作用的系统脱氮贡献率受 HRT 的影响, 故反应进行 6 h 时的 anammox 脱氮贡献率增加为 64.93% 。较长的 HRT 会导致微生物颗粒污泥发生裂解, 故当 HRT 大于 6 h 之后, 会出现 anammox 脱氮贡献率下降的趋势。本研究为实验室规模小型反应器, 其微生物组成与丰度受人为控制, anammox 的脱氮贡献率始终大于反硝化反应, 但这也进一步说明 AX-MBR 工艺中以 anammox 脱氮为主。

2.4 微生物群落结构的变化

本研究采用 16S rDNA 高通量测序分析

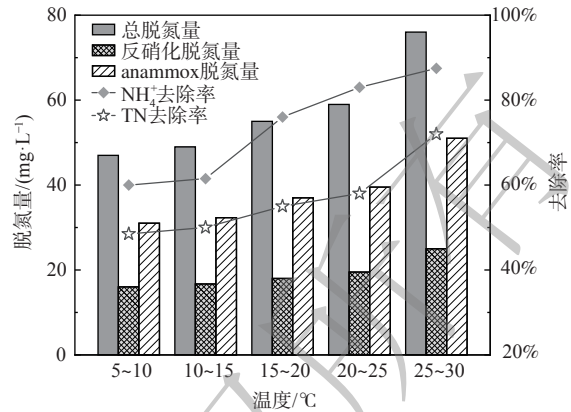


图3 厌氧氨氧化和反硝化的脱氮情况及贡献随温度的变化

Fig. 3 Variation of nitrogen average removal rate with temperature

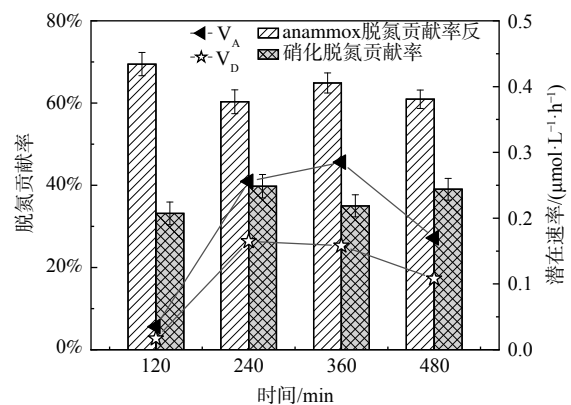


图4 厌氧氨氧化、反硝化脱氮贡献率以及潜在速率随反应时间的变化

Fig. 4 Variation of the contribution rate and potential rate of anammox and denitrification with reaction time

AX-MBR 工艺中微生物群落结构及多样性的变化,从微生物的角度阐释其脱氮的机理。表1通过不同多样性指数来评估微生物多样性特征,耦合系统中各样品的 OUT 数目变化情况见图5。结合图5和表1可知,系统的微生物为适应环境在不断的变化,群落多样性和丰度都在变化,但整体上工艺脱氮效果稳定,具有一定的耐冲击负荷的能力。其中, Y2、H2 的特异 OTU 数目较 Y1、H1 有变化,主要因为低温环境中微生物优胜劣汰,但也唤醒了反应器内更多的低温菌。从3次样品的多样性指数来看,样品群落结构复杂、物种数目多、丰度较高。从 Shannon 指数、ACE 指数和 Chao1 指数分析发现 Y2、H2 的指数值较 Y1、H1 高。这说明温度变化可能唤醒了工艺中的低温菌,原有优势菌种对温度耐受能力强,故群落多样性和丰度增加。综上所述,系统的微生物为适应环境在不断的变化,群落多样性和丰度都在变化,但整体上污水脱氮处理效果稳定,具有一定的耐冲击负荷的能力。

实时监测数据显示缺氧和好氧反应器的 DO 较低。因此,硝化作用及部分硝化驱动的 anammox 过程造成的氨氮损失是有限的。因此,短程反硝化可能是与 anammox 结合的主要途径,且导致缺氧和好氧反应器的氨氮损失可能是反硝化和 anammox 作用。AX-MBR 中各样品的分类和系统发育信息可视化、门水平的物种丰度堆叠条形图、属水平的物种丰度柱状图见图6。*Proteobacteria*、*Patescibacteria* 和 *Bacteroidetes* 门是絮状污泥中含量最多的3个门。这些门已被报道为负责氮和碳循环的典型门,并且已在以前的 PD/A 系统中广泛检测到^[19]。在缺氧和好氧反应器污泥样品中,观察到 *Proteobacteria* 和 *Bacteroidetes*、*Acidobacteria* 为优势属。*Bacteroidetes* 占比约40%,但 H3、Y3 中 *Bacteroidetes* 有所下降。

图6(c)中 AnAOB 主要为 *Candidatus Kuenenia*, 相对丰度为1.7%。*Armatimonadetes-gp5* 属于装甲菌门,与 AnAOB 菌属存在关联性^[20]。由于 AnAOB 具有生长速率缓慢、低温抑制菌活性等原因,具有 anammox 的 *Candidatus Kuenenia* 菌属对环境温度敏感,其 H1、Y1 中 *Candidatus Kuenenia* 相对丰度较 H1、Y1 和 H3、Y3 样品相比最低,说明低温可能会促进 NO₂-N 积累,这与 GAO 等^[21]的研究一致,即 PD/A 工艺在低温条件下能实现较好的脱氮效果。在属水平中,厌氧和缺氧反应器的反硝化细菌 (*Aridibacter*、*Pseudomonas*、*Paracoccus*、*Planctomicrobium*、*Bacillus* 和 *Thauera*) 丰度远大于 AOB 丰度,其中 AOB (*Nitrosomonas*) 丰度均小于 NOB (*Nitrospira*) 丰度,故污水中亚硝酸盐主要来源于部分反硝化,这在群落水平上证明了 PD/A 的存在。

表1 样本的多样性指数统计表

Table 1 Statistical Table of Sample Diversity Index

| 样本 | Shannon指数 | ACE指数 | Chao1指数 | 盖度 | Simpson指数 |
|----|-----------|---------|---------|------|-----------|
| H1 | 5.36 | 2930.14 | 2860.94 | 0.99 | 0.04 |
| Y1 | 5.39 | 2699.78 | 2644.48 | 0.98 | 0.03 |
| H2 | 6.00 | 3109.33 | 3102.02 | 0.99 | 6.3e-03 |
| Y2 | 6.00 | 3026.31 | 2928.73 | 0.99 | 6.4e-03 |
| H3 | 5.28 | 2678.70 | 2597.72 | 0.99 | 0.02 |
| Y3 | 5.32 | 2899.24 | 2815.25 | 0.99 | 0.02 |

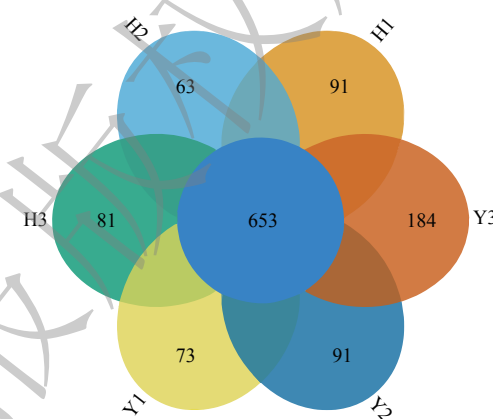
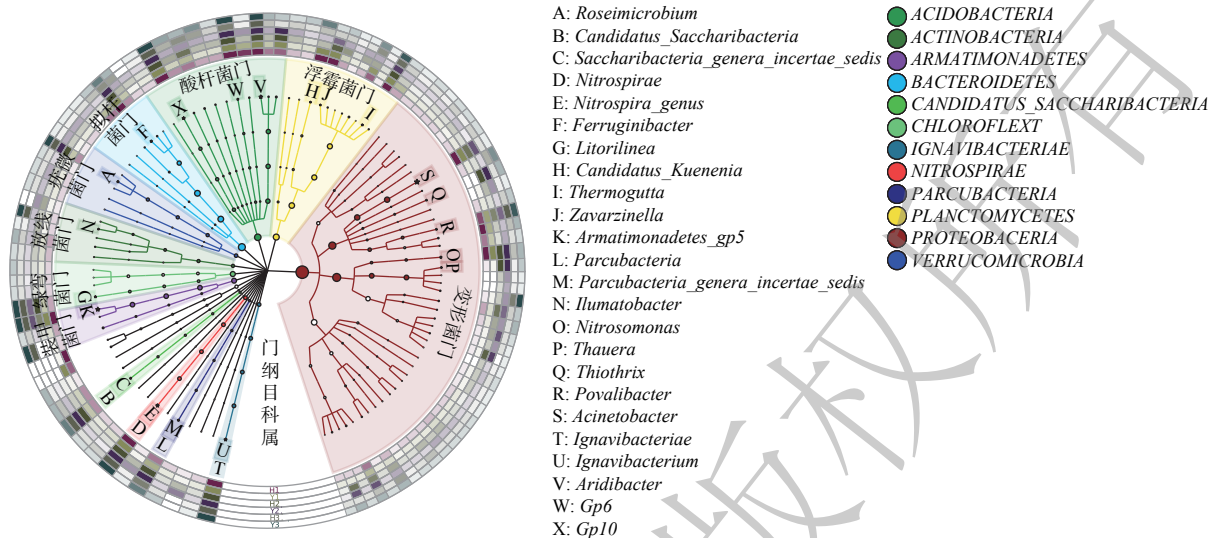
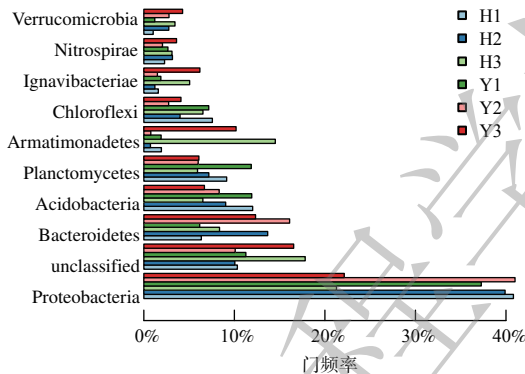


图5 系统中各样品的 OTU 韦恩图

Fig. 5 OTU Venn diagram of each sample in the system

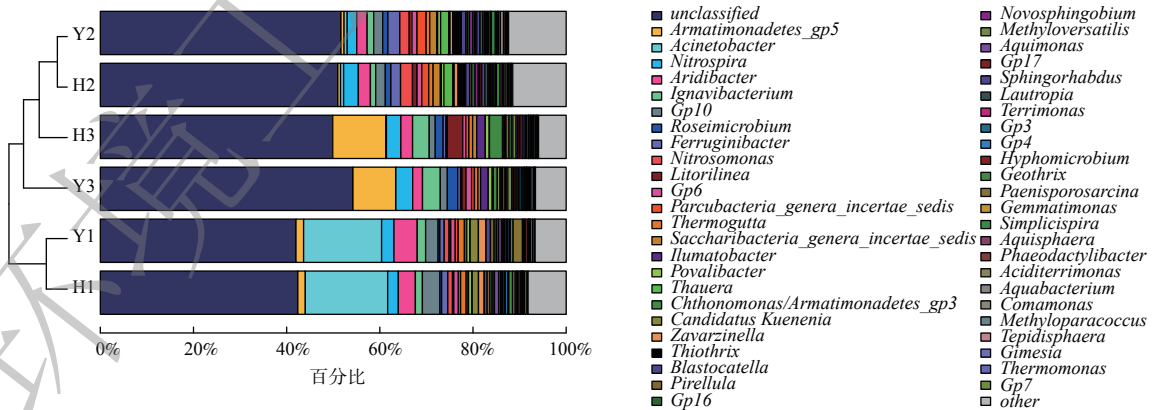


(a) 基于Bray-Curtis的样本聚类树图



(b) 门的丰度

注：(a) 居中的是丰度前100个物种进化分类树，并将丰度前20个物种(以星号标出)所对应的门按不同的颜色标出，圈和星号的大小代表丰度大小。外围环为热力图，每一环为一个样本(组)，每个样本对应一种颜色。颜色深浅随物种丰度变化。
(b)表示门水平的物种丰度堆叠条形图的分布情况。



(c) 物种图示

图6 微生物群落结构变化分析

Fig. 6 Analysis of changes in microbial community structure

3 结论

1) AX-MBR 工艺可成功实现 anammox 工艺应用于处理低氨氮生活污水, 工艺运行稳定, NH_4^+ -N 去除率可稳定在 89% 左右, COD 去除率稳定在 75% 左右, 出水可达到城镇污水处理厂污染物排放标准 (GB18918-2002) 的一级标准。

2) 随着季节温度变化, 微生物活性下降导致氮元素去除效率逐渐降低, 但 anammox 的脱氮贡献率始终大于反硝化贡献率, 这说明 anammox 脱氮占据主体地位。AX-MBR 工艺中 anammox 和反硝化作用二者同时保证了工艺的高效脱氮性能, 这表明 AX-MBR 工艺可为 anammox 工艺的工程应用提供参考。

3) 反应器中微生物群落结构复杂, 反硝化细菌丰度大于 AOB 丰度, 且好氧反应器回流至缺氧反应器时给反硝化菌提供 NO_3^- , 故污水中 NO_2^- 主要来源于部分反硝化。这在群落水平上证明了 PD/A 的存在。

参考文献

- [1] LIU X N, JIN Y, ZHANG W J, Effect of nitrite concentration on the growth and microbial diversity of anaerobic ammonia oxidation (anammox) sludge[J]. *Desalination and Water Treatment*, 2020, 179: 54-62.
- [2] MA B, WANG S Y, CAO S B, et al. Biological nitrogen removal from sewage via anammox: Recent advances[J]. *Bioresource Technology*, 2016, 200: 981-990.
- [3] WEI Y, JIN Y, ZHANG W. Domestic sewage treatment using a one-stage anammox process[J]. *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 2020, 17: 796-805.
- [4] ZHANG M, WANG S, JI B, LIU Y. Towards mainstream deammonification of municipal wastewater: Partial nitrification-anammox versus partial denitrification-anammox[J]. *Science of the Total Environment*, 692 (2019) 393-401.
- [5] YU D, ZHANG W. Integration of ANAMMOX into the MBR process for main stream sewage treatment[J]. *Journal of Water Supply: Research and Technology-Aqua*, 2021, 71: 193-210.
- [6] 沈明玉, 吴莉娜, 李志, 等. 厌氧氨氧化在废水处理中的研究及应用进展[J]. *中国给水排水*, 2019, 35: 16-21.
- [7] 王胤, 吴嘉利, 陈一, 等. 主流厌氧氨氧化工艺的研究与应用进展[J]. *净水技术*, 2021, 40: 16-27.
- [8] HENDRICKX T L G, WANG Y, KAMPMAN C, et al. Autotrophic nitrogen removal from low strength waste water at low temperature[J]. *Water Research*, 2012, 46: 2187-2193.
- [9] LEE D S, CHE O J, PARK J M. Biological nitrogen removal with enhanced phosphate uptake in a sequencing batch reactor using single sludge system[J]. *Water Research*, 2001, 35(16): 3968-3976.
- [10] GUO Q, XING B S, LI P, et al. Anaerobic ammonium oxidation (anammox) under realistic seasonal temperature variations: Characteristics of biogranules and process performance[J]. *Bioresource Technology*, 2015, 192: 765-773.
- [11] LAURENI M, WEISSBRODT D G, SZIVÁK I, et al. Activity and growth of anammox biomass on aerobically pre-treated municipal wastewater[J]. *Water Research*, 2015, 80: 325-336.
- [12] JETTEN M S M, CIRPUS I, KARTAL B, et al. 1994-2004: 10 years of research on the anaerobic oxidation of ammonium[J]. *Biochemical Society Transactions*, 2005, 33: 119-123.
- [13] ZHANG W J, ZHANG Y Y, LI L, et al. Fast start-up of expanded granular sludge bed (EGSB) reactor using stored Anammox sludge[J]. *Water Science and Technology*, 2014, 69: 1469-1474.
- [14] ZHANG W J, ZHANG Y Y, LI L, et al. Fast start-up of expanded granular sludge bed (EGSB) reactor using stored Anammox sludge[J]. *Water Science and Technology*, 2014, 69: 1469-1474.
- [15] WANG H, HAN J, ZHANG W. Effects of NH_4^+ -N and NO_2^- -N on carbon fixation in an anaerobic ammonium oxidation reactor[J]. *Journal of Environmental Management*, 2019, 241: 450-457.
- [16] SUN R L, ZHANG W J. Addition of anaerobic ammonium oxidation bacteria to lower running cost during the membrane bioreactor process treating sewage[J]. *Water Science and Technology*, 2022, 85: 166-173.
- [17] WANG Y Y, XIE H C, WANG D L, et al. Insight into the response of anammox granule rheological intensity and size evolution to decreasing temperature and influent substrate concentration[J]. *Water Research*, 2019, 162: 258-268.
- [18] LI M C, SONG Y, SHEN W, et al. The performance of an anaerobic ammonium oxidation upflow anaerobic sludge blanket reactor during natural periodic temperature variations[J]. *Bioresource Technology*, 2019, 293: 122039.
- [19] DU R, PENG Y, JI J, et al. Partial denitrification providing nitrite: Opportunities of extending application for anammox[J]. *Environment International*, 2019, 131: 105001.
- [20] ZHAO Y P, LIU S F, JIANG B, et al. Genome-centered metagenomics analysis reveals the symbiotic organisms possessing ability to cross-feed with anammox bacteria in anammox consortia[J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, 52: 11285-11296.
- [21] GAO R, PENG Y, LI J, et al. Improving performance and efficiency of partial anammox by coupling partial nitrification and partial denitrification (PN/A-PD/A) to treat municipal sewage in a step-feed reactor[J]. *Bioresource Technology*, 2021, 341: 125804.

(责任编辑: 靳炜)

Nitrogen removal performance and mechanism of anammox-MBR coupling process in sewage treatment

JIN Yue¹, YU Dayan¹, LI Haixiang¹, ZHANG Wenjie^{1,*}

1. Guangxi Key Laboratory of Environmental Pollution Control Theory and Technology, Guilin University of Technology, Guilin, 541004, China; Guangxi Collaborative Innovation Center of Water Pollution Control and Water Safety Guarantee in Karst Region of Guangxi, Guilin University of Technology, Guilin, 541004, China

*Corresponding author, E-mail: 2010053@glut.edu.cn

Abstract Anaerobic ammonia oxidation (anammox) process has the problem of unstable treatment efficiency in treating domestic sewage, which seriously hinders its engineering application of sewage treatment. In view of the above problems, this paper proposed to use anammox-MBR (AX-MBR) coupling process to treat sewage, which included anoxic reactor, aerobic reactor and membrane module. During the startup of the experiment, the activated sludge of the sewage treatment plant was added, then the dissolved oxygen of the system was reduced, and the anaerobic ammonia oxidizing bacteria (AnAOB) was added. The results showed that the addition of AnAOB could effectively improve the $\text{NH}_4^+\text{-N}$ removal rate of AX-MBR, and the average $\text{NH}_4^+\text{-N}$ removal rate increased significantly from 68% to 87%. During the experiment, the temperature of the reactor was not controlled. The results indicated that the activity of AnAOB decreased sharply with decreasing temperature when the temperature was lower than 20 °C. During the operation in low temperature environment, the way of reducing the influent load could be adopted to ensure the treatment rate. The research data of ^{15}N stable isotope tracer method on the nitrogen removal contribution rate of anammox showed that the nitrogen removal of AX-MBR was mainly completed by the way dominated by anammox, and its nitrogen removal contribution rate could reach 65%. The 16S high throughput sequencing results showed that the AnAOB in the anoxic reactor was mainly *Candidatus Kuenenia*, and the abundance of denitrifying bacteria in the anoxic reactor and aerobic reactor was greater than that of ammonia-oxidizing bacteria, which indicated that the $\text{NO}_2^-\text{-N}$ in AX-MBR mainly formed from partial denitrification, which proved the existence of partial denitrification/anammox process. The results of this study can provide reference for the development of anammox process.

Keywords anaerobic ammonia oxidation; domestic sewage; MBR; microbial diversity; removal mechanism