



文章栏目: Anammox⁺生物脱氮工艺与应用

DOI 10.12030/j.cjee.202302097 中图分类号 X703 文献标识码 A

陈长东, 薛晓飞, 穆永杰, 等. 主流厌氧氨氧化耦合多种脱氮途径处理市政污水[J]. 环境工程学报, 2023, 17(4): 1084-1091. [CHEN Changdong, XUE Xiaofei, MU Yongjie, et al. Mainstream anammox coupled with multiple denitrification paths to treat municipal wastewater[J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2023, 17(4): 1084-1091.]

主流厌氧氨氧化耦合多种脱氮途径处理市政污水

陈长东¹, 薛晓飞², 穆永杰², 张建锋¹, 孙尚勇¹, 张丽丽^{2,✉}, 曹之淇²

1. 西安建筑科技大学环境与市政工程学院, 西安 710055; 2. 北控水务集团(中国)投资有限公司, 北京 100102

摘要 采用厌氧-好氧-缺氧推流反应器, 研究实现低碳氮比主流厌氧氨氧化(anammox)耦合多种脱氮途径的启动条件, 并对脱氮途径进行分析。首先进行短程硝化驯化启动, 接着在缺氧池投加填料以及接种厌氧氨氧化细菌(AnAOB), 进行主流anammox工艺脱氮。结果表明, 好氧池DO约为1.5 mg·L⁻¹时, NH₄⁺-N去除率为80%, 亚硝氮积累率为50%, 短程硝化驯化启动成功。AnAOB接种启动后, 在维持缺氧池DO为0.3~0.5 mg·L⁻¹, 缺氧池NH₄⁺-N去除量为好氧池的3倍时, 可实现进水C/N为2, 出水总无机氮(TIN)低于6 mg·L⁻¹, NH₄⁺-N去除率>95%, 这表明anammox驯化启动成功。分析缺氧池氮素变化情况表明缺氧池存在anammox及反硝化多种脱氮途径。高通量测序结果可确定 *Candidatus Kuenenia* 和 *Candidatus Brocadia* 等 AnAOB 菌属及 *Denitratisoma*(反硝化菌)在缺氧池中显著存在, 从微生物种群角度解析了anammox及反硝化等多种脱氮途径, 使出水TIN<6 mg·L⁻¹。该工艺可调控主流anammox耦合多种脱氮途径, 为低C/N市政污水深度脱氮提供可行的技术途径。

关键词 厌氧氨氧化; 市政污水; 短程硝化

传统生物脱氮技术具有曝气能耗高、碳源消耗量大、污泥产量高, 且易产生温室气体CO₂等不足^[1]。随着上世纪90年代厌氧氨氧化(anaerobic ammonium oxidation, anammox)作为新的短流程脱氮途径被证实, 基于anammox反应的新型生物脱氮技术迅速成为国内外研究热点^[2]。该反应即在缺氧/无氧条件下, 以氨为电子供体, 亚硝酸盐为电子受体, 产生氮气和少量硝酸盐的生物反应。相比于传统脱氮技术, anammox具有节省60%以上曝气量、节约100%碳源、极大降低污泥产量和减排温室气体等优势^[3]。

目前, anammox主要用于污泥消化液和高NH₄⁺-N工业水的处理, 在世界范围内已有较多应用案例, 其技术经济优势已得到证明^[4-5]。除了污泥消化液和工业废水等侧流处理外, 近5年来, 已有研究者开始将anammox应用于城市污水主流的研发^[6-7]。亚硝化(partial nitrification, PN)-anammox(PN-A)工艺可实现污水自养生物脱氮, 在城市污水主流中已有较多研究, 可分为单级工艺和两级工艺^[8]。但在城市污水低温和低基质条件下, 亚硝酸盐氧化菌(nitrite oxidizing bacteria, NOB)生长速率大于氨氧化菌(ammonia oxidizing bacteria, AOB), 污水中游离氨和游离的亚硝酸盐

收稿日期: 2023-02-19; 录用日期: 2023-03-15

基金项目: 北控水务集团自主科技立项课题(ZZLX-2018-05)

第一作者: 陈长东(1998—), 男, 硕士研究生, chenchangdong821@163.com; ✉通信作者: 张丽丽(1977—), 女, 博士, zhanglili03@bewg.net.cn

无法有效抑制 NOB 生长繁殖。因此, AOB 很难竞争过 NOB, 这会导致亚硝酸盐积累不足, 较难实现长期稳定的 anammox 反应, 故很难维持其在工程应用中的稳定性和高效性^[9-10]。2013 年彭永臻院士团队首次提出短程反硝化 (partial denitrification, PD)-anammox(PD-A) 工艺。该工艺通过部分反硝化实现相对稳定的亚硝酸盐积累。但短程反硝化反应仍需消耗碳源, 增加外碳源来实现 PD 将增加运行成本。为了将进水中的可生物降解碳源充分应用于 PD, 彭院士团队也采用“厌氧-好氧-缺氧”模式 (AOA) 实现内碳源短程反硝化-anammox, 其原理是聚糖菌 (glycogen accumulating organisms, GAOs) 和聚磷菌 (phosphorus accumulating organisms, PAOs) 在厌氧区能将 COD 贮存为内碳源, 进而在缺氧区发生 PD 而产生 $\text{NO}_2^- \text{-N}$ ^[11]。但内源反硝化反应速率较慢^[12], 会导致缺氧区的体积增大, 且 PD 相对于 PN 来说, 对曝气量及碳源需求更高。

PN-A 和 PD-A 耦合工艺可将 NOB 和厌氧氨氧化菌 (anaerobic ammonium oxidation bacteria, AnAOB) 产生的部分 $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 还原成 $\text{NO}_2^- \text{-N}$ 继续进行 anammox 反应, 降低对 NOB 控制的要求, 同时也能充分利用亚硝化节约能耗的特点, 可为主流程脱氮提供一种高效、低耗的解决方案。目前, 基于 PN-A 和 PD-A 耦合工艺的多途径脱氮研究报道较少, 本研究以实际市政污水为处理对象, 在厌氧-好氧-缺氧推流式反应器的缺氧区植入高性能纤维束填料, 以在主流程实现 PN-A 和 PD-A 等多途径高效脱氮, 依据市政污水进水水质变化, 通过优化外回流比、曝气量等运行参数进行污染物负荷的合理分配, 从而实现主流程 anammox 耦合多途径稳定高效脱氮, 以期为 anammox 的工艺优化及工程应用提供参考。

1 材料与方法

1.1 实验装置

反应器主体由有机玻璃制成, 有效体积为 50 L, 各区域的体积比为 1:4:6。厌氧池设置搅拌混合, 好氧池通过空气泵可连续曝气, 缺氧池则在反应器短程硝化驯化启动后增加束状纤维填料 (填充比为 25%), 以截留 AnAOB, 通过控制曝停比来维持填料表面的生物膜厚度及活性污泥混合。反应装置如图 1 所示。

反应器共运行 164 d, 分为 3 个阶段。阶段 I (第 1~59 天) 短程硝化驯化阶段; 阶段 II (第 60~90 天) AnAOB 驯化阶段; 阶段 III (第 91~164 天) 稳定运行阶段。阶段 I 采用提高好氧池曝气量 ($0.3 \sim 0.7 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$), 控制好氧池 $\text{DO} < 1.5 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 并调节外回流比进行 AOB 驯化; 阶段 II 通过降低好氧池曝气量 ($0.7 \sim 0.4 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$), 提高缺氧池曝停比 (30 s/50 s~30 s/30 s) 的方式使得 $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 污染物更多由 anammox 途径去除, 进行 AnAOB 活性驯化; 阶段 III 则为稳定运行阶段, 观察反应器应对进水水质波动的稳定性。运行条件如表 1 所示。

1.2 实验废水和接种污泥

进水取自北京市通州区某污水处理厂的进水 (生活污水)。运行期间进水水质指标为: $\text{COD} 62 \sim 250 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 、 $\text{NH}_4^+ \text{-N} 22 \sim 54 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 、 $\text{NO}_2^- \text{-N} 0 \sim 0.8 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 、 $\text{NO}_3^- \text{-N} 0.6 \sim 1.8 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 、 $\text{pH} 7.4 \sim 7.8$ 。

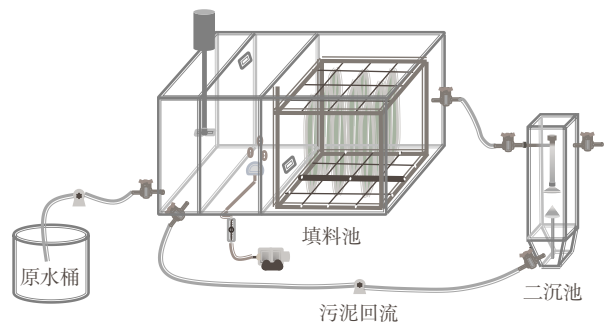


图 1 反应器装置图

Fig. 1 Schematic diagram of reactor

表 1 不同运行阶段实验参数

Table 1 Operating parameters during different experimental periods

阶段	时间/d	好氧池曝气量/($\text{mL} \cdot \text{min}^{-1}$)	缺氧池曝停比	外回流比
I	1~30	0.3	—	100%
	31~59	0.7	—	150%
II	60~90	0.7~0.4	30 s/(50~30) s	100%
III	91~164	0.4~0.3	30 s/30 s	100%

实验运行期间共接种2次污泥。第一次为反应器刚启动时,接种水厂好氧池活性污泥,接种后污泥质量浓度为 $3\ 260\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$;第二次是第59天时,在缺氧区增设束状纤维填料的同时接种AnAOB颗粒污泥,接种量为3 L,原种泥污泥质量浓度为 $5\ 862\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。

1.3 分析方法与批次实验

常规检测指标(COD、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 、MLSS)均采用国标法。 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 的质量浓度总和用总无机氮(total inorganic nitrogen, TIN)表示。DO和pH采用Multi 3 630 IDS WTW(德国)测定。每个实验阶段均留存污泥样品,置于 $-20\ ^\circ\text{C}$ 环境中冷冻贮存,统一进行高通量测序。AnAOB代谢活性实验方法参考文献[13]进行测定。

2 结果与讨论

2.1 脱氮性能及短程硝化表现

在反应器运行过程中, $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、COD、TIN及好氧池亚硝氮积累率(nitrite accumulation ratio, NAR)的变化情况如图2所示。在短程硝化驯化阶段(第1~59天),反应器进水COD和 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 质量浓度分别由 $120\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 上升至 $250\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $30\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 上升至 $45\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。为应对进水负荷增大带来的冲击并强化AOB的活性,提高反应器外回流比和好氧池曝气量,好氧池DO由 $0.2\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 提升至 $1.5\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。反应器COD降低了70%~80%, $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除率由30%增至80%,好氧池NAR为 $(60\pm 10)\%$,这说明NOB活性成功被抑制,这与好氧池低DO控制与反应器缺氧/好氧分区有关。

首先通过控制低DO($0.2\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$)条件,使得NOB活性受到抑制,NAR较高为65%。然而,同

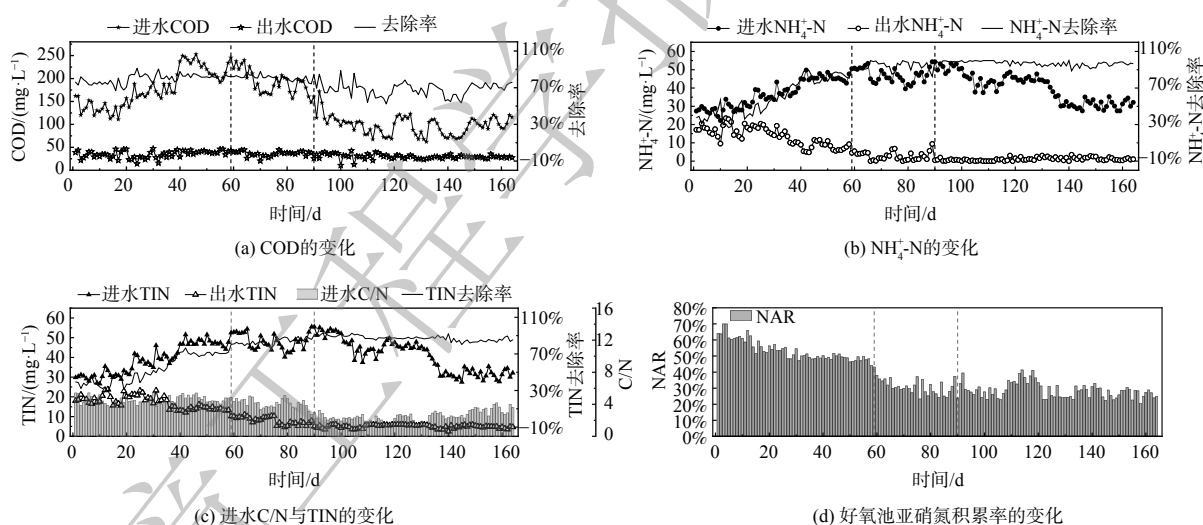


图2 反应器长期运行的指标表现

Fig. 2 Performance of the reactor for long-term operation

时 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除量仅为 $(3\pm 1)\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$,AOB活性亦受到抑制,在进水负荷不断提高的条件下,短程硝化反应会成为anammox反应的限速步骤^[14],需要提高AOB活性。在AOB、NOB活性均受抑制及进水负荷不断升高的条件下,提高污泥回流比有助于增强活性污泥抗冲击负荷能力。同时,基于低DO条件下AOB相较于NOB表现出更佳的氧亲和能力^[15],逐步提高好氧池曝气量并维持低DO条件,可有利于AOB优先利用溶解氧,而比NOB增长优势更明显。随着曝气量逐步提高至 $0.7\ \text{mL}\cdot\text{min}^{-1}$,污泥回流比升高至150%,好氧池DO上升至 $1.5\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$, $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除量上升至 $(12\pm 1)\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$,AOB活性亦升高。同时,NAR能稳定维持在50%,NOB活性仍受到抑制。本研究将好氧池DO控制为 $1.5\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$,这明显高于短程硝化控制DO阈值($0.5\sim 1\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$),但仍能维持较高NAR。

这可能是由于本研究采取厌氧-好氧-缺氧推流式反应器，在后端设置缺氧区能提供瞬时缺氧环境，从而有助于抑制 NOB 酶活性而对 AOB 影响不大。同时，在缺氧环境进入好氧环境后，AOB 能优于 NOB 优势增长^[16-17]。这与文献 [18-19] 报道的较高缺氧时间/好氧时间 ($T_{\text{缺氧}}/T_{\text{好氧}}$) 可促进亚硝酸盐累积一致。因此，本研究中反应器缺氧区与好氧分区体积比为 7:4 及低 DO 条件有助于 NOB 的抑制。在驯化阶段末期，出水 COD 和 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 质量浓度分别为 $(38\pm 2)\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $8\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ，且 AOB 有较好的活性，能满足后端 AnAOB 启动条件。

第 II 阶段 (第 60~90 天)，在缺氧区投加填料并接种 AnAOB 种泥，通过降低好氧池曝气量，提高缺氧池曝停比进行 anammox 启动驯化。该阶段反应器进水 C/N 与上一阶段相同，驯化期间 COD 稳定降低了 80%， $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除率则上升至 90%，同时 TIN 去除率上升至 70%~80%，出水 TIN 为 $(11\pm 2)\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ，低于上一阶段出水 TIN $(17\pm 3)\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。这可能是反应器接种了 AnAOB 之后，发生了部分 anammox 反应，使得在与上一阶段相同 C/N 条件下， $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 及 TIN 去除率均上升。然而，驯化期间 NAR 下降至 20%~40%，这可能是由于通过降低好氧池曝气量，提高缺氧池曝停比，维持缺氧池 DO 为 $0.3\sim 0.5\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ，可为缺氧池提供了合适 anammox 驯化启动条件。在缺氧池中， $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 可被 AOB 及 AnAOB 去除，从而提高了 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除率，使得缺氧池出水剩余 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 质量浓度小于 $5\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。低剩余 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 质量浓度会减弱 AOB 与 NOB 对 O_2 的竞争，以及 AnAOB 与 NOB 对 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 的竞争，从而有助于 NOB 活性的表达^[20]。文献 [21-22] 表明在剩余 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 质量浓度小于 $5\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时，出现了 NOB 的增长，使得推流式反应器中 NAR 下降。

第 III 阶段 (第 91~164 天)，为减少好氧池 NAR 下降带来的不利影响，该阶段通过降低好氧池曝气量，来增加缺氧池中进水 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 质量浓度。结果表明：该阶段好氧池 NAR 维持在 20%~40%，进水 C/N 由 4.5:1 降至 2:1， $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除率 >95%，TIN 去除率维持在 80%~85%，出水 TIN 小于 $6\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。在传统硝化反硝化脱氮工艺中，该 C/N 条件下较难实现出水 TN 达标 (一般 C/N 大于 5 时，反硝化作用发挥比较明显)^[23]。这表明该反应体系的 AnAOB 在总氮脱除中发挥了重要作用，使得出水 TIN 较低。这也说明本反应器在应对低 C/N 废水及 NAR 下降的情况下，对 TIN 仍有较稳定地去除，可实现出水 TIN 小于 $6\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。

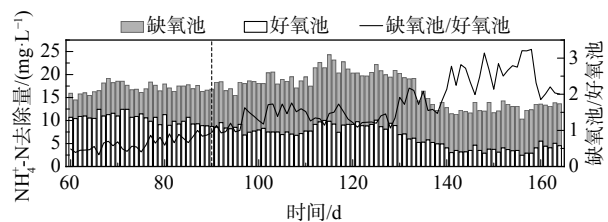
2.2 TIN 去除分析

2.2.1 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的负荷分配

反应器于第 59 天接种了 AnAOB 种泥。由于填料具有良好的吸附作用使得 AnAOB 在缺氧区富集和停留。为降低 NAR 下降带来的不利影响，增加 AnAOB 富集区的进水基质，通过降低好氧池的曝气量、提高缺氧池曝停比的方式进行好氧池/缺氧池 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除负荷分配，结果使得缺氧池 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除量与好氧池 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除绝对量比值由 0.5 提高至 3，结果如图 3 所示。图 2(c) 表明，驯化期间 (第 60~90 天) 至稳定运行期间 (第 91~164 天) 工艺进水 C/N 不断下降，但出水 TIN 却由 $(11\pm 2)\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 降至小于 $6\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ，并能维持稳定运行。这可能是由于缺氧池束状纤维填料富集并停留 AnAOB，通过增加缺氧池 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 负荷，让更多进水 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 经由 anammox 途径去除，从而获得在较低 C/N 的进水基质条件下的高效脱氮。

2.2.2 好氧池、缺氧池中 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 的生成量

在该反应体系中， $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 主要由好氧池及缺氧池去除。好氧池与缺氧池 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除量、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 生成量及 COD 降低量如图 4 所示。



注：“缺氧池/好氧池”表示两池中去除量之比。

图 3 好氧池、缺氧池 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 负荷分配与去除量比值
Fig. 3 Ratio of $\text{NH}_4^+\text{-N}$ load distribution to removal in aerobic and anoxic tanks

图4(a)表明,好氧池COD去除量维持在 $(15\pm 5)\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,可生化性有机物在好氧池中进一步去除,可减弱缺氧池中有机物对AnAOB的影响。在驯化期间不断降低好氧池曝气量,使得好氧池 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除量由 $(12\pm 1)\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 降至 $(5\pm 1)\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。同时, $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 生成量由 $(5\pm 2)\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 降至 $(2\pm 1)\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,通过降低好氧池的 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除量减弱了NAR下降带来体系中 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 质量浓度升高的影响,使更多的 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 进入缺氧池。实验期间通过调节曝停比将体系中DO维持在 $0.3\sim 0.5\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,缺氧池的 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除量由驯化期间 $(6\pm 2)\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 上升至稳定运行期 $(13\pm 1)\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,而缺氧池 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 生成量始终低于 $0.5\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,低于anammox反应生成 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 的理论生成量 $0.6\sim 1.5\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ [24]。这说明体系中可能存在一定反硝化反应[25],但是该反应区 $\Delta\text{COD}<5\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,远低于传统反硝化脱氮所需碳源理论值[23]。因此,在缺氧池中可能存在anammox和反硝化2种脱氮途径。因此,通过优化 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 负荷分配,可提高缺氧池 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除量,让更多的 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 经由anammox途径去除,可在更低C/N条件下,减少 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 生成量,从而形成低TIN出水。

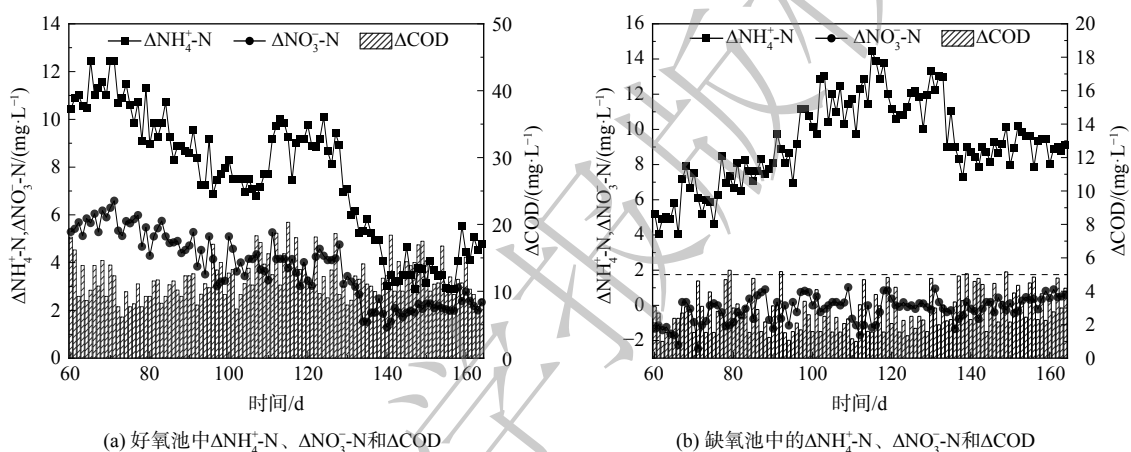


图4 好氧池、缺氧池COD, $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除量与 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 生成量变化

Fig. 4 Variation of removal of COD and $\text{NH}_4^+\text{-N}$ and generation of $\text{NO}_3^-\text{-N}$ in aerobic tank and anoxic tank

2.3 缺氧池污泥厌氧氨氧化代谢活性和微生物种群分析

为分析缺氧池污泥中anammox代谢活性,在稳定运行期取缺氧池污泥进行批次实验,同时取2份等量缺氧池污泥做空白实验。空白实验即分别观察 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 与 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 随时间的变化情况,方法与anammox代谢活性实验相同[13]。 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 随时间变化情况如图5所示。

图5(a)表明 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 与 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 质量浓度在240 min时分别下降了 $3.2\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $4.9\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,这可能是由于污泥自身吸附作用导致的。而图5(b)表明 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 与 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 质量浓度均随时间以更快速率下降,在240 min时分别下降 $14\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $28\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,其中 $\Delta\text{NO}_2^-\text{-N}/\Delta\text{NH}_4^+\text{-N}=2$,高于anammox反应的理论值1.32。这说明体系中anammox具有较高的代谢活性,且同时存在反硝化反应,较直接地证明主流程中anammox在氮去除中发挥的重要作用。

除上述对缺氧池中anammox代谢活性分析外,本实验也对缺氧池中微生物群落结构进行解析。图6为驯化阶段(第78天)和稳定运行阶段(第132天)基于属水平的高通量测序结果。

高通量测序结果表明,被检测到的AnAOB菌属主要为*Candidatus Kuenenia*和*Candidatus Brocadia*,这与文献[26]所报道的市政污水主流程工艺中所发现的AnAOB菌属相一致。在驯化阶段及稳定运行阶段中AnAOB菌属的相对丰度分别为1.6%和1.8%,稳定运行阶段该菌属的相对丰度有所上升,这主要得益于增大缺氧池进水 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 负荷的调控手段,使AnAOB可利用的基质增加,从而提高该菌属的相对丰度。这说明在稳定运行阶段,该系统在低C/N条件下仍能实现稳定

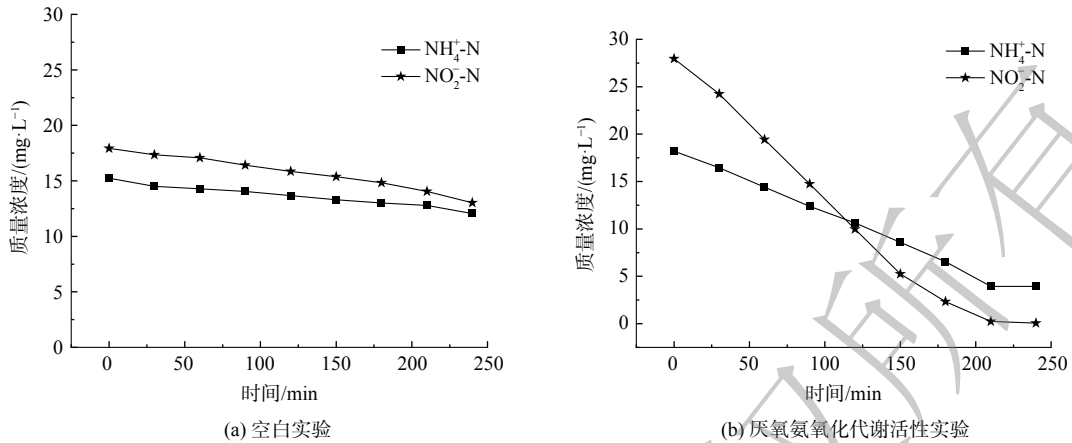


图 5 稳定运行期缺氧池污泥的厌氧氨氧化代谢活性
Fig. 5 The metabolic activity of anammox of anoxic sludge in stable period

低 TIN 出水的主要原因是大部分 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 经由 anammox 反应去除。

然而，体系中主要的反硝化菌属 *Denitratisoma* 的相对丰度由驯化期间的 15% 下降至稳定运行期间 7.7%。这可能是由于缺氧池中 COD 变化量小于 $5 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ (如图 4(b))，无法满足反硝化的需求，使得 *Denitratisoma* 相对丰度降低。根据 *Candidatus Kuenenia* 和 *Candidatus Brocadia* 相对丰度升高，*Denitratisoma* 相对丰度降低。这说明 AnAOB 相对于反硝化菌能优势竞争 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ [27]。而低 COD 去除量易使反硝化菌还原 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 至 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 阶段，减弱 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 进一步还原 [25]。这说明在缺氧池有短程反硝化反应发生 [28-29]，通过短程反硝化反应产生 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ ，被 AnAOB 优势竞争，最终使得 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 生成量低于 PN-A 反应的理论值。

另外，*Nitrosomonas* 是被检测到的 AOB 菌属，*Nitrospira* 是被检测到的 NOB 菌属。在这 2 个阶段中，*Nitrosomonas* 相对丰度分别为 0.67% 和 0.61%，*Nitrospira* 的相对丰度则分别为 0.1% 与 0.14%，*Nitrosomonas* 相对丰度有所降低，*Nitrospira* 的相对丰度有所升高，这易导致 NAR 下降。但总体而言，*Nitrospira* 的相对丰度始终低于 *Nitrosomonas* 相对丰度，NOB 活性仍然受到抑制。这说明体系中可能发生短程硝化作用从而产生 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 。反应体系中缺氧池 DO 较低 ($0.3\sim 0.5 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$)，使 AOB 能优势竞争 DO 而抑制 NOB，为厌氧氨氧化反应提供 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 。

上述结果说明，在缺氧池的 DO 为 $0.3\sim 0.5 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 条件下，*Nitrosomonas*、*Denitratisoma*、*Candidatus Kuenenia* 和 *Candidatus Brocadia* 等优势菌属得以共存，缺氧池存在 anammox 以及反硝化等多种脱氮途径，使得 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 生成量较低。

3 结论

1) 反应器中缺氧区和好氧区的体积比为 7:4，好氧池 DO 约 $1.5 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ，能实现短程硝化 (NAR 为 50%)，同时通过调控缺氧池 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 负荷和低溶解氧条件，DO 为 $0.3\sim 0.5 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ，可使该工艺在低 C/N 进水条件下，实现 TIN 去除率为 80%~85%。

2) 在稳定运行阶段，缺氧池 $\Delta\text{NH}_4^+\text{-N}$ 为 $(13\pm 1) \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ， ΔCOD $< 5 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ， $\Delta\text{NO}_3^-\text{-N}$ $< 0.5 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。

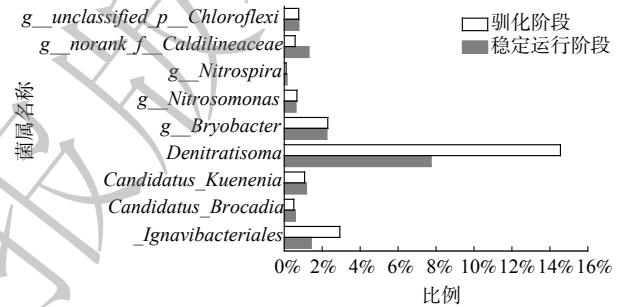


图 6 缺氧池污泥驯化阶段与稳定运行阶段属水平上的微生物群落结构
Fig. 6 Microbial community analysis at genus level in the acclimation and stable periods

这表明缺氧池存在 anammox 及反硝化反应, 且 anammox 在主流工艺中发挥了重要作用。

3) 在缺氧段检测到 AnAOB 菌属 *Candidatus Kuenenia* 和 *Candidatus Brocadia* 作为优势种群存在, 从微观角度可以证明主流 anammox 反应的宏观效能。同时, 检测到的反硝化菌属 *Denitratisoma* 等进一步表明该工艺中可能存在 anammox、短程硝化和反硝化等多种脱氮途径, 有利于在低碳氮比条件下实现 TIN 的深度脱除。

参考文献

- [1] CHEN Y J, GUO G Z, LI Y Y. A review on upgrading of the anammox-based nitrogen removal processes: Performance, stability, and control strategies[J]. *Bioresource Technology*, 2022, 364: 127992.
- [2] ZHANG L, JIANG L, ZHANG J T, et al. Enhancing nitrogen removal through directly integrating anammox into mainstream wastewater treatment: Advantageous, issues and future study[J]. *Bioresource Technology*, 2022, 362: 127827.
- [3] CHEN H, WANG H, CHEN R, et al. Unveiling performance stability and its recovery mechanisms of one-stage partial nitrification-anammox process with airlift enhanced micro-granules[J]. *Bioresource Technology*, 2021, 330: 124961.
- [4] ZHAO Q, PENG Y, LI J, et al. Sustainable upgrading of biological municipal wastewater treatment based on anammox: From microbial understanding to engineering application[J]. *Science of The Total Environment*, 2022, 813: 152468.
- [5] 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.
- [6] LV Y, PAN J, HUO T, et al. Enhance the treatment of low strength wastewater at low temperature with the coexistence system of AnAOB and heterotrophic bacteria: performance and bacterial community[J]. *Science of the Total Environment*, 2020, 714: 136799.
- [7] BUNSE P, ORSCHLER L, AGRAWAL S, et al. Membrane aerated biofilm reactors for mainstream partial nitrification/anammox: Experiences using real municipal wastewater[J]. *Water Research X*, 2020, 9: 100066.
- [8] 徐峥勇. 基于亚硝化、厌氧氨氧化与反硝化的脱氮耦合工艺及其控制策略研究[D]. 长沙: 湖南大学, 2011.
- [9] TRINH H P, LEE S H, JEONG G, et al. Recent developments of the mainstream anammox processes: challenges and opportunities[J]. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 2021, 9(4): 105583.
- [10] GHOLAMI-SHIRI J, AZARI M, DEGHANI S, et al. A technical review on the adaptability of mainstream partial nitrification and anammox: Substrate management and aeration control in cold weather[J]. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 2021, 9(6): 106468.
- [11] GAO X J, ZHANG L, PENG Y Z, et al. The successful integration of anammox to enhance the operational stability and nitrogen removal efficiency during municipal wastewater treatment[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2023, 451: 138878.
- [12] GAO X J, ZHANG T, WANG B, et al. Advanced nitrogen removal of low C/N ratio sewage in an anaerobic/aerobic/anoxic process through enhanced post-endogenous denitrification[J]. *Chemosphere*, 2020, 252: 126624.
- [13] 刘小钗. A²O短程硝化耦合厌氧氨氧化强化脱氮技术研究[D]. 西安: 西安建筑科技大学, 2020.
- [14] 姚丽婷, 梁瑜海, 陈漫霞, 等. 高溶解氧条件下不同曝气量对短程硝化性能及微生物特征的影响[J]. *环境科学学报*, 2021, 41(8): 3258-3267.
- [15] 郭凯成, 刘文如, 宋家俊, 等. 短程硝化的影响因素及其耦合工艺的研究进展[J]. *工业水处理*, 2022, 42(4): 46-56.
- [16] 刘文龙. 城市污水主流厌氧氨氧化连续流工艺的脱氮除磷效能研究[D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2019.
- [17] ZHANG T, WANG B, LI X Y, et al. Achieving partial nitrification in a continuous post-denitrification reactor treating low C/N sewage[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2018, 335: 330-337.
- [18] FENG Y, PENG Y Z, WANG B, et al. A continuous plug-flow anaerobic/aerobic/anoxic/aerobic (AOAO) process treating low COD/TIN domestic sewage: Realization of partial nitrification and extremely advanced nitrogen removal[J]. *Science of the Total Environment*, 2021, 771: 145387.
- [19] GE S J, PENG Y Z, QIU S, et al. Complete nitrogen removal from municipal wastewater via partial nitrification by appropriately alternating anoxic/aerobic conditions in a continuous plug-flow step feed process[J]. *Water Research*, 2014, 55: 95-105.
- [20] YANG Y D, ZHANG L, CHENG J, et al. Achieve efficient nitrogen removal from real sewage in a plug-flow integrated fixed-film activated sludge (IFAS) reactor via partial nitrification/anammox pathway[J]. *Bioresource technology*, 2017, 239: 294-301.
- [21] YANG Y D, JIANG Y M, LONG Y N, et al. Insights into the mechanism of the deterioration of mainstream partial nitrification/anammox under low residual ammonium[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2023, 126: 29-39.
- [22] MIAO Y Y, ZHANG L, YANG Y D, et al. Start-up of single-stage partial nitrification-anammox process treating low-strength swage and its restoration from nitrate accumulation[J]. *Bioresource Technology*, 2016, 218: 771-779.

- [23] 冯凯. 低C/N污水脱氮固态碳源的研究[D]. 太原: 山西大学, 2020.
- [24] 王鑫, 穆永杰, 薛晓飞, 等. 不同气源曝气对一段式厌氧氨氧化工艺启动与运行的影响[J]. *环境工程学报*, 2021, 15(8): 2778-2788.
- [25] 侯朝阳, 贾紫雯, 付静薇, 等. 部分硝化/厌氧氨氧化(PN/A)工艺对城市污水厌氧处理单元出水的强化脱氮效果[J]. *环境工程学报*, 2022, 16(3): 806-813.
- [26] ZHU G, WANG S, MA B, et al. Anammox granular sludge in low-ammonium sewage treatment: Not bigger size driving better performance[J]. *Water Research*, 2018, 142: 147-158.
- [27] ZHANG W K, YU D S, ZHANG J H, et al. Start-up of mainstream anammox process through inoculating nitrification sludge and anammox biofilm: Shift in nitrogen transformation and microorganisms[J]. *Bioresource Technology*, 2022, 347: 126728.
- [28] 张树军, 黄剑明, 马淑勃, 等. 连续流分段进水短程反硝化-厌氧氨氧化耦合工艺的反硝化脱氮特性[J]. *环境工程*, 2022, 40(11): 13-18.
- [29] 薛晶晶, 雷振, 王俊, 等. 一段式短程反硝化耦合厌氧氨氧化工艺处理厌氧膜生物反应器出水[J]. *环境工程学报*, 2022, 16(3): 788-797.

(责任编辑: 靳炜)

Mainstream anammox coupled with multiple denitrification paths to treat municipal wastewater

CHEN Changdong¹, XUE Xiaofei², MU Yongjie², ZHANG Jianfeng¹, SUN Shangyong¹, ZHANG Lili^{2*}, CAO Zhiqi²

1. School of Environmental and Municipal Engineering, Xi'an University of Architecture and Technology, Xi'an 710055, China;
2. Institute of Beijing Enterprises Water Group Limited, Beijing Enterprises Water Group Limited, Beijing 100102, China

*Corresponding author, E-mail: zhanglili03@bewg.net.cn

Abstract In this study, an anaerobic-aerobic-anoxic push-flow reactor was used to study the start-up conditions for realizing mainstream anaerobic ammonia oxidation (anammox) coupled with multiple denitrification pathways with low C/N and to analyze the denitrification pathways. The experiment started with a partial nitrification domestication, followed by filling of the anoxic tank and inoculation with anaerobic ammonia oxidizing bacteria (AnAOB) to achieve denitrification in mainstream anammox process. The results showed that the removal rate of $\text{NH}_4^+\text{-N}$ was 80% and the nitrite accumulation ratio was 50% when the DO was about $1.5 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ in the aerobic tank. The partial nitrification domestication was started successfully. After the inoculation of AnAOB, the influent C/N was 2, the effluent total inorganic nitrogen (TIN) was less than $6 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ and the $\text{NH}_4^+\text{-N}$ removal rate was more than 95% when the DO of the anoxic tank was maintained at $0.3\sim 0.5 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ and the $\text{NH}_4^+\text{-N}$ removal in the anoxic tank was three times that of the aerobic tank, which showed that anammox domestication was successfully started. Analysis of nitrogen variation in the anoxic tank indicated the presence of anammox and multiple denitrification pathway. High-throughput sequencing results determined that AnAOB bacteria such as *Candidatus Kuenenia* and *Candidatus Brocadia* and *Denitratisoma* (denitrifying bacteria) had significant presence in the anoxic tank, which resolved from the perspective of microbial populations that multiple denitrification pathways such as anammox and denitrification existed and made the effluent TIN less than $6 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$. This process could regulate the mainstream anammox coupled with multiple denitrification pathways, providing a feasible technical approach for deep denitrification of low C/N municipal wastewater.

Keywords anammox; municipal wastewater; partial nitrification