

不同工况下一体式生物滤柱反应器的氮去除特征

郭羽, 王怡, 黄瑞雪

(西安建筑科技大学 环境与市政工程学院, 陕西 西安 710055)

摘要: 以一体式生物滤柱反应器为研究对象,在氮负荷为 $0.60 \text{ kg}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$ 、碳氮比为 0.17 、曝气量为 $(50 \pm 10) \text{ mL}/\text{min}$ 和温度为 $(30 \pm 2) \text{ }^\circ\text{C}$ 条件下,通过调整进水氨氮浓度和水力停留时间研究进水氨氮浓度变化对氮去除的影响及反应器中微生物功能的区划。连续 183 d 的运行结果表明,当进水氨氮浓度分别为 600 、 400 和 $800 \text{ mg}/\text{L}$ 时,总氮平均去除负荷分别为 0.487 、 0.465 和 $0.498 \text{ kg}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$ 。3 个工况下的进水氨氮都约有一半在反应器底部的好氧段被转化为亚硝态氮,在顶部的厌氧段氨氮与亚硝态氮均呈线性减少,且其线性减少速率随进水氨氮浓度增加而变大。与此同时,随着进水氨氮浓度的提高,好氧区微生物的氨氮利用速率(AUR)和亚硝酸盐利用速率(NUR)以及厌氧区微生物的比厌氧氨氧化活性均得到提高,且在相同进水氨氮浓度下,好氧段活性污泥的 AUR 和 NUR 均大于生物膜的对值。

关键词: 一体式生物滤柱反应器; 运行工况; 氨氮浓度; HRT; 微生物活性

中图分类号: TU992.3 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-4602(2018)01-0026-05

Characteristics of Nitrogen Removal in an Integrated Biofilter Reactor under Different Operating Conditions

GUO Yu, WANG Yi, HUANG Rui-xue

(School of Environmental and Municipal Engineering, Xi'an University of Architecture and Technology, Xi'an 710055, China)

Abstract: An integrated biofilter reactor was studied under the condition of the influent nitrogen load being $0.60 \text{ kg}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$, the ratio of carbon and nitrogen being 0.17 , the aeration rate being $(50 \pm 10) \text{ mL}/\text{min}$ and the temperature being $(30 \pm 2) \text{ }^\circ\text{C}$. The effect of $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ concentration on the removal of nitrogen and microorganism distribution in the biofilter were investigated by adjusting influent nitrogen concentration and hydraulic retention time. The results of 183 days continuous operation showed that the average removal load of TN was 0.487 , 0.465 and $0.498 \text{ kg}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$ when the influent $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ concentration was 600 , 400 and $800 \text{ mg}/\text{L}$ respectively. Furthermore, one half of the influent $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ was approximately converted to $\text{NO}_2^- - \text{N}$ in the aerobic region of the bottom while both $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ and $\text{NO}_2^- - \text{N}$ were linearly decreased in the anaerobic region of the top and the decrease rate increased with the increase of influent $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ concentration under the above operating conditions. Meanwhile, the ammonium uptake rate (AUR) and nitrite uptake rate (NUR) of the microorganism in the aerobic region and the specific ANAMMOX activity (SAA) in the anaerobic region were improved with the increas-

基金项目: 西安市科技计划社会发展示范项目(SF1430)

通信作者: 王怡 E-mail:wangyi1003@sina.com

ing of influent $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ concentration. In addition, the AUR and NUR of the activated sludge were higher than those of the biofilm in the aerobic region under the same influent $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ concentration.

Key words: integrated biofilter reactor; operating condition; ammonia nitrogen concentration; HRT; microorganism activity

厌氧氨氧化作为含氮废水处理的一种新型生物技术,目前的研究主要有两相式和单相式工艺,前者是指亚硝化和厌氧氨氧化过程分别独立地在不同反应器中进行,后者是指亚硝化和厌氧氨氧化过程在同一反应器中进行。然而,这两种工艺都存在一定缺陷,如在两相工艺中亚硝化经常由于亚硝酸盐氧化菌(NO₂⁻)对氧竞争生成硝态氮(NO₃⁻ - N)而使反应器失去稳定性^[1],从而使两相组合的控制变得复杂;在单相工艺中,要在颗粒污泥或生物膜内部富集厌氧氨氧化菌而在外部富集好氧氨氧化菌(AOB),两种功能菌所需的好氧和厌氧环境经常不能够有效控制,因此,与两相式厌氧氨氧化反应器相比,单相厌氧氨氧化反应器的氮去除率较低。

基于以上问题,设计开发了一体式生物滤柱反应器,在同一反应器的不同区段创造适合于不同功能微生物生存的环境,探索在进水氮负荷、碳氮比、曝气量和温度不变条件下,进水氨氮($\text{NH}_4^+ - \text{N}$)浓度对反应器去除氮的影响,以获得不同工况下一体式生物滤柱反应器的氮去除特征。

1 材料与方 法

1.1 试验装置

一体式生物滤柱反应器如图1所示。

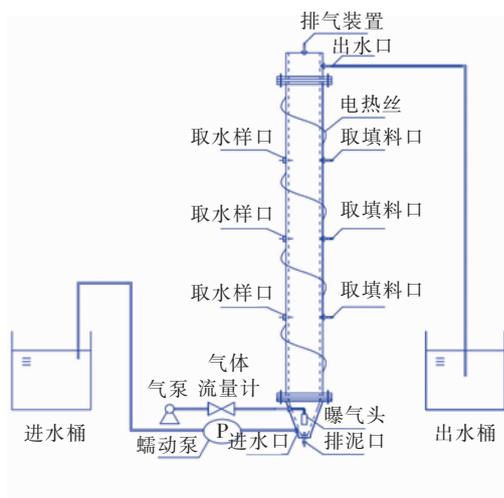


图1 试验装置

Fig. 1 Schematic diagram of biofilter reactor

该装置是一个活性污泥和生物膜混合系统,由

总有效容积为11 L、内径为18 cm的有机玻璃锥体(活性污泥)和柱体(生物膜)两部分构成,总高度为160 cm,其中锥体高度为20 cm,柱体高度为140 cm,在柱体侧面不同高度处分别设置3个水样采集口和3个填料取样口,水样及填料采集口高度分别为40、80和120 cm。锥体部位设有曝气头、排泥口以及进水口,柱体顶部设有出水口。柱体内部填充WD-F10-4有机悬浮填料,柱体外部设有电热丝加热系统,整个反应器置于避光环境。

1.2 试验用水

试验进水采用 CH_3COONa 、 NH_4Cl 、 KH_2PO_4 、 $\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{MgSO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 、 KHCO_3 配制,COD、 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 、 $\text{PO}_4^{3-} - \text{P}$ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、碱度分别为67~136、400~800、80~160、7、8、2 000~4 000 mg/L,并投加微量元素溶液I、II各1.25 mL/L。

1.3 试验运行

一体式生物滤柱反应器在本试验前已经成功启动,本试验在进水氮负荷为 $0.60 \text{ kg}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$ 、碳氮比为0.17、曝气量为 $(50 \pm 10) \text{ mL}/\text{min}$ 和温度为 $(30 \pm 2) \text{ }^\circ\text{C}$ 条件下运行,工况的变化通过调整进水 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 浓度和水力停留时间(HRT)来实现,具体如表1所示。

表1 试验的不同运行工况

Tab. 1 Different operating conditions in experiment

阶段	运行天数/d	进水 $\text{NH}_4^+ - \text{N}/(\text{mg} \cdot \text{L}^{-1})$	HRT/h
I	1~99	600	24
II	100~150	400	16
III	151~183	800	32

1.4 采样与分析

1.4.1 水样的采集与测定分析

进出水水样每3 d采集1次,沿程水样每7 d采集1次。其中,pH值:玻璃电极法; $\text{NH}_4^+ - \text{N}$:纳氏试剂分光光度法;亚硝态氮: $\text{N} - (1 - \text{萘基}) - \text{乙二胺}$ 分光光度法; $\text{NO}_3^- - \text{N}$:紫外分光光度法;碱度:酸碱指示剂滴定法;MLSS和MLVSS:重量法;COD:重铬酸钾法;溶解氧:碘量法;温度:水温计。

1.4.2 微生物的采样、测定和观察

不同工况下,分别在锥体及柱体 40 cm 处采集活性污泥和生物膜样本,测定其氨氮利用速率(AUR)、亚硝酸盐利用速率(NUR)并观察其微观形态;与此同时,在柱体 120 cm 处采集生物膜样本,测定比厌氧氨氧化活性(SAA)并观察其形态。

活性污泥和生物膜的 AUR 和 NUR 测定所取样本经去离子水冲洗 3 次后加入广口瓶中,在 (30 ± 2) °C 下依据有关文献测定^[2];生物膜 SAA 测定依据 Niu 的方法^[3]进行。微生物微观形貌采用尼康 50i 图像收集系统采集,宏观观察采用尼康数码相机。

2 结果与讨论

2.1 反应器的水质历时变化

进水 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 为 600、400 和 800 mg/L 时,其出水平均浓度分别为 62.88、54.04 和 75.60 mg/L,去除率分别为 89.52%、86.49%、90.55%。在 3 个工况下进水中几乎不存在 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 和 $\text{NO}_3^- - \text{N}$,出水 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 平均浓度分别为 14.79、6.98 和 21.97 mg/L,出水 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 平均浓度分别为 34.98、28.96 和 37.99 mg/L, $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 和 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 浓度之和与进水 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 浓度的比值分别为 0.083、0.090 和 0.075。图 2 为进出水 TN 浓度及去除率的历时变化。

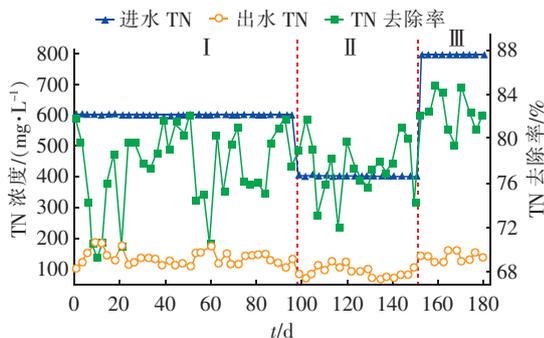


图 2 不同运行工况下进出水总氮的历时变化

Fig.2 Change of TN concentration under different operating conditions

进水 TN 分别为 600、400 和 800 mg/L 时,出水 TN 平均浓度分别为 112.65、89.98 和 135.56 mg/L,去除率分别为 81.23%、77.51%、83.06%。因此,在相同氮负荷下,一体式生物滤柱反应器对氨氮及 TN 的去除率随着进水浓度的增加而略有增加,出水 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 、 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 占进水 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 的份额随着进水 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 浓度的增加而略有降低。

王会芳等人^[4]采用陶粒作为 CANON 反应器的填料,在进水氮负荷不变而水力停留时间缩短(即降低进水氮浓度)的条件下 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 、TN 去除率下降,与本研究结果一致。Zhang 等^[5]在 UASB 厌氧氨氧化反应器运行中发现,在进水氮负荷不变、TN 浓度升为原来 2 倍的条件下,TN 去除率由 85% 下降为 72%。本试验结果表明,以好氧-厌氧运行的一体式生物滤柱对进水 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 浓度提升具有良好的适应性,其效能优于单纯的厌氧反应器。

2.2 水质的沿程变化

图 3 为不同运行工况下反应器沿程水质的变化。进水 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 浓度为 600、400 和 800 mg/L 时,分别约有 47.5%、44% 和 40.5% 的 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 在 0~40 cm 段转化为 $\text{NO}_2^- - \text{N}$,约有 4.16%、9.87% 和 12% 的 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 在 40~80 cm 段转化为 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 。 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 生成量在 0~80 cm 段随着进水 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 浓度的增大而减小,在 80~160 cm 段则随着进水 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 浓度的增加而增大。以上结果表明,进水中约一半的氨氮在 0~40 cm 段被转化为 $\text{NO}_2^- - \text{N}$,该区段的主要功能是进行亚硝化过程。另一方面,3 个工况下在 80~160 cm 段 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 与 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 线性减少,其线性变化的斜率随着进水 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 浓度的增加而变大,600、400 和 800 mg/L 时 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 浓度的下降速率分别为 2.85、1.97 和 3.56 mg/cm, $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 浓度的下降速率分别为 3.69、2.60 和 4.97 mg/cm, $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 与 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 的平均消耗质量比分别为 1 : 1.31、1 : 1.29 和 1 : 1.39,前两者与 Strous 等提出的厌氧氨氧化过程中 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 与 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 的平均消耗质量比理论值(1 : 1.32)较为接近。与此同时,在 80~160 cm 段 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 平均减少量与 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 平均生成量的比例分别为 1 : 0.11、1 : 0.09 和 1 : 0.12,大于 Strous 等提出的厌氧氨氧化过程中 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 减少与 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 生成的理论质量比(1 : 0.26)。

由图 3(d)可知,在进水碳氮比为 0.17 条件下,3 个工况下进水 COD 均有 70%~72% 在 0~40 cm 段被去除,而在 40~120 cm 段 COD 浓度基本保持稳定,120~160 cm 段约有 20%~23% 的 COD 减少。这一结果表明,易降解的 COD 主要在好氧段被去除。结合 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 的积累可知,好氧氨氧化与好氧碳氧化的共存,在实现 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 积累的同时达到

了较好的除碳效果。

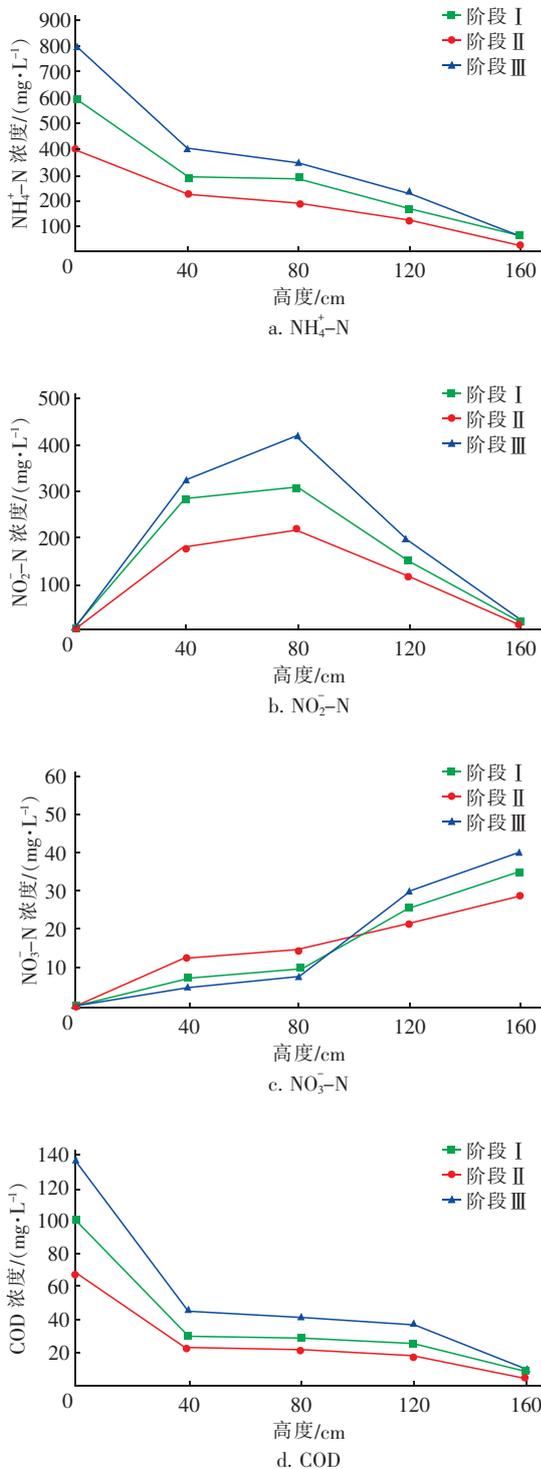


图3 反应器沿程水质变化

Fig. 3 Change of water quality along biofilter

2.3 不同工况下的微生物活性

图4为不同运行工况下40 cm高度处的AUR和NUR值。如前所述,0~40 cm段为好氧区,属于

活性污泥和生物膜的混合区段。当进水 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 浓度分别为 600、400 和 800 mg/L 时,该区段活性污泥的 AUR 分别为 (47.53 ± 1.13) 、 (30.02 ± 0.98) 和 (64.05 ± 1.2) $\text{mg}\text{NH}_4^+\text{-N}/(\text{gMLVSS}\cdot\text{h})$, 为生物膜 AUR 的 1.68、1.58 和 1.72 倍,且活性污泥和生物膜的 AUR 均与进水 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 浓度呈正相关 (R^2 值分别为 0.999 7 和 0.999 6)。相对于 AUR, 活性污泥和生物膜的 NUR 均较小,但活性污泥的 NUR 仍分别为生物膜的 2.34、3.20、2.33 倍。溶解氧测定结果表明,3 个工况下 40 cm 处的 DO 浓度分别为 (0.13 ± 0.02) 、 (0.21 ± 0.03) 和 (0.09 ± 0.02) mg/L , 说明 0~40 cm 段确实处于好氧状态,但是溶解氧浓度较低,表明该区段对溶解氧有较高的利用效率。Liu 等^[6]在一体式 CSTR 反应器中发现,好氧活性污泥的 AUR 远大于生物膜,且在低溶解氧条件下 NOB 的活性能够被有效抑制,与本试验结果相吻合。

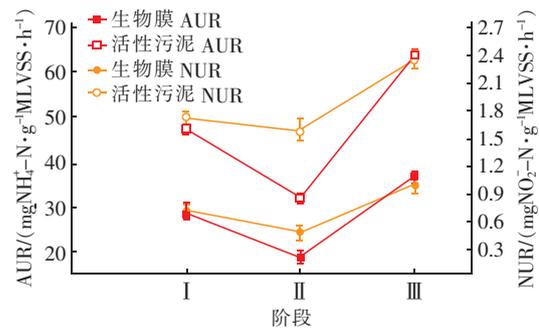


图4 40 cm处生物膜和活性污泥的AUR及NUR

Fig. 4 AUR and NUR of biofilm and activated sludge at height of 40 cm

3 个工况下 120 cm 处生物膜的 SAA 分别为 (280.05 ± 7.98) 、 (187.63 ± 6.91) 和 (373.31 ± 6.25) $\text{mg}\text{N}/(\text{gMLVSS}\cdot\text{d})$, SAA 与进水 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 浓度也呈线性正相关 ($R^2 = 0.999 5$), 以上生物膜的 SAA 测定值均处于 Miao 等人报道的 30~600 $\text{mg}\text{N}/(\text{gMLVSS}\cdot\text{d})$ 范围之内。

总之,在进水氮负荷不变条件下,提高进水 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 浓度,不仅可以提高好氧区微生物的 AUR 和 NUR,而且可以提高厌氧区微生物的 SAA。此外,在同一进水 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 浓度下,好氧段活性污泥的 AUR 和 NUR 均大于生物膜的对应值。

2.4 反应器好氧区和厌氧区微生物形态

图5为反应器运行至第180天时所观察到的好

氧区和厌氧区微生物形态。可见,40 cm 处的活性污泥为淡棕色絮状结构,生物膜为棕色疏松结构,均存在钟虫等原生动物。此时的水质监测结果表明,进水 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 为 800 mg/L 时,该点的 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 为 336.13 mg/L,42.02% 的 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 转化为 $\text{NO}_2^- - \text{N}$,说明该 0 ~ 40 cm 段确实为好氧亚硝化区。而 120 cm 处填料内部为红色、致密、凹凸不平的生物膜,为典型的厌氧氨氧化菌形态。此时的水质监测结果表明,在 80 ~ 160 cm 段 TN 去除率为 82.30%,说明厌氧氨氧化过程进行良好。因此,该反应器在 0 ~ 40 cm 和 80 ~ 160 cm 段分别维持了好氧亚硝化微生物和厌氧氨氧化微生物,两类微生物的协同作用实现了一体式反应器对 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 的去除。

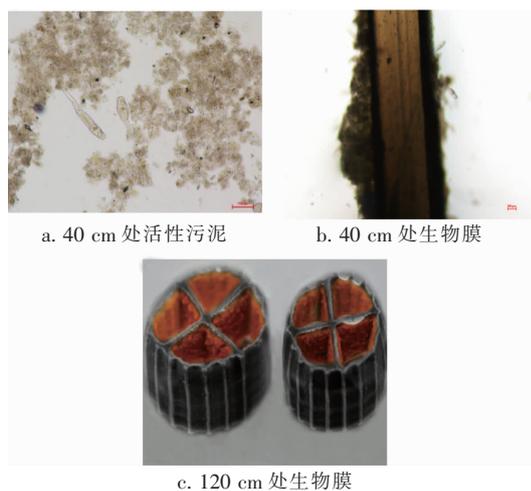


图5 180 d 时的微生物图片

Fig.5 Photos of microorganism on 180th day

3 结论

① 一体式生物滤柱反应器在进水氮负荷、碳氮比、曝气量和温度分别保持为 $0.60 \text{ kg}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$ 、 0.17 、 $(50 \pm 10) \text{ mL}/\text{min}$ 和 $(30 \pm 2) \text{ }^\circ\text{C}$ 不变条件下,当进水 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 分别为 600、400 和 800 mg/L 时,TN 平均去除负荷分别可达 0.487 、 0.465 和 $0.498 \text{ kg}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$,COD 去除率均在 92% ~ 94% 之间。

② 亚硝化作用主要发生在反应器的 0 ~ 40 cm 段,厌氧氨氧化主要发生在 80 ~ 160 cm 段,工况对其分区影响较小。3 个工况下的进水氨氮都约有一半在 0 ~ 40 cm 段被转化为 $\text{NO}_2^- - \text{N}$,且在 80 ~ 160 cm 段两者呈线性减少,其线性变化的斜率随着进水 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 浓度的增加而变大。

③ 在进水氮负荷不变条件下,提高进水氨氮

浓度,可以提高好氧区微生物的 AUR 和 NUR 以及厌氧区微生物的 SAA。此外,在同一进水氨氮浓度下,好氧段活性污泥的 AUR 和 NUR 均大于生物膜。

参考文献:

- [1] Joss A, Derlon N, Cyprien C, *et al.* Combined nitrification-anammox: advances in understanding process stability [J]. *Environ Sci Technol*, 2011, 45(22): 9734 - 9742.
- [2] Kristensen G H, Jorgensen P E, Henze M, *et al.* Characterization of functional microorganism groups and substrate in a activated-sludge and waste-water by AUR, NUR and OUR [J]. *Water Sci Technol*, 1992, 25(6): 43 - 57.
- [3] Niu Q G, He S, Zhang Y L, *et al.* Bio-kinetics evaluation and batch modeling of the anammox mixed culture in UASB and EGSB reactors: batch performance comparison and kinetic model assessment [J]. *RSC Adv*, 2016, 6(5): 3487 - 3500.
- [4] 王会芳, 付昆明, 左早荣, 等. 水力停留时间和溶解氧对陶粒 CANON 反应器的影响 [J]. *环境科学*, 2015, 36(11): 4161 - 4167.
- [5] Zhang Y L, He S L, Niu Q G, *et al.* Characterization of three types of inhibition and their recover processes in an anammox UASB reactor [J]. *Biochem Eng J*, 2016, 109: 212 - 221.
- [6] Liu Y, Niu Q G, Wang S P, *et al.* Upgrading of the symbiosis of *Nitrosomanas* and anammox bacteria in a novel single-stage partial nitrification-anammox system: Nitrogen removal potential and microbial characterization [J]. *Biore-sour Technol*, 2017, 244: 463 - 472.



作者简介:郭羽(1993 -), 女, 辽宁沈阳人, 硕士研究生, 研究方向为污水生物处理理论与技术。

E-mail: 653402643@qq.com

收稿日期: 2017 - 10 - 09