

DOI:10.19853/j.zgjsps.1000-4602.2023.03.003

# 碳源对短程反硝化-厌氧氨氧化工艺效能的影响

王超超<sup>1</sup>, 张晓农<sup>1</sup>, 李佳佳<sup>1</sup>, 蔡天宁<sup>1</sup>, 张星星<sup>1</sup>, 刘文如<sup>1,2,3</sup>,  
李祥<sup>1,2,3</sup>, 吴鹏<sup>1,2,3</sup>

(1. 苏州科技大学 环境科学与工程学院, 江苏 苏州 215009; 2. 城市生活污水资源化利用技术国家地方联合工程实验室, 江苏 苏州 215009; 3. 苏州科技大学 江苏水处理技术与材料协同创新中心, 江苏 苏州 215009)

**摘要:** 为探究大分子有机碳源对短程反硝化-厌氧氨氧化(PD/A)系统脱氮效能的影响,通过在厌氧氨氧化(Anammox)连续流反应器中投加葡萄糖和新型组合填料快速启动生物膜-活性污泥PD/A工艺,研究了不同碳源条件(单一碳源和混合碳源)和不同COD/NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N下该工艺的脱氮性能。结果表明,以葡萄糖为唯一碳源,控制COD/NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N为4.5,在第90天成功启动PD/A系统,TN去除率达到93.89%,出水TN为6.17 mg/L,此时Anammox过程对去除TN的贡献率高达95.83%,反硝化过程的贡献率仅为4.17%;而由于短程反硝化菌对淀粉和葡萄糖混合碳源的利用率下降,在混合碳源驱动下PD/A系统的TN去除率降至90.53%(COD/NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N=5),出水TN为9.19 mg/L,且反硝化过程对去除TN的贡献率升至8.48%。微生物高通量测序结果表明,在两种碳源条件下,变形菌门均为绝对优势菌门,其相对丰度均大于50%;*Candidatus\_Brocadia*和*Thauera*作为PD/A系统的优势菌属,在氮素协同去除方面发挥了重要作用,其在混合碳源条件下的相对丰度分别为2.97%和6.52%,略低于单一碳源条件下的3.41%和6.94%;厌氧水解酸化菌属的相对丰度较低是混合碳源利用率下降的主要原因。此外,提出了一种新型生物膜-活性污泥Anammox主流脱氮工程应用方案。

**关键词:** 厌氧氨氧化; 短程反硝化; 碳源; COD/NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N; 生物膜-活性污泥

**中图分类号:** TU992 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-4602(2023)03-0015-10

## Effect of Carbon Sources on Performance of Partial Denitrification and Anaerobic Ammonia Oxidation Process

WANG Chao-chao<sup>1</sup>, ZHANG Xiao-nong<sup>1</sup>, LI Jia-jia<sup>1</sup>, CAI Tian-ning<sup>1</sup>,  
ZHANG Xing-xing<sup>1</sup>, LIU Wen-ru<sup>1,2,3</sup>, LI Xiang<sup>1,2,3</sup>, WU Peng<sup>1,2,3</sup>

(1. School of Environmental Science and Engineering, Suzhou University of Science and Technology, Suzhou 215009, China; 2. National and Local Joint Engineering Laboratory of Resource Utilization Technology of Municipal Sewage, Suzhou 215009, China; 3. Jiangsu Collaborative Innovation Center of Technology and Material of Water Treatment, Suzhou University of Science and Technology, Suzhou 215009, China)

**Abstract:** To investigate the effect of macromolecular organic carbon sources on nitrogen removal efficiency of partial denitrification and anaerobic ammonia oxidation (PD/A) system, the biofilm-activated

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(51578353、51808367)

通信作者: 吴鹏 E-mail: wupengniu@126.com

sludge PD/A process was rapidly started by adding glucose and new combined packing media in the Anammox continuous flow reactor, and the effects of different carbon source conditions (single carbon source and mixed carbon sources) and different COD to  $\text{NO}_3^-$ -N ratios (COD/ $\text{NO}_3^-$ -N) on nitrogen removal performance of the process were explored. When glucose was the sole carbon source and COD/ $\text{NO}_3^-$ -N was 4.5, the PD/A system was successfully started on the 90th day. The removal rate of TN reached 93.89%, the TN in the effluent was 6.17 mg/L, the contribution rate of Anammox to TN removal was 95.83%, and that of denitrification to TN removal was only 4.17%. Due to the decreased utilization rate of starch and glucose mixed carbon sources by PD bacteria, the TN removal rate of PD/A system decreased to 90.53% (COD/ $\text{NO}_3^-$ -N of 5), the TN in the effluent was 9.19 mg/L, and the contribution rate of denitrification to TN removal increased to 8.48%. The microbial high-throughput sequencing results showed that *Proteobacteria* was always the absolutely dominant phylum under the two carbon source conditions, and the relative abundance was always greater than 50%. *Candidatus\_Brocadia* and *Thauera*, as the dominant genera in the PD/A system, played an important role in the collaborative removal of nitrogen. The relative abundance of *Candidatus\_Brocadia* and *Thauera* under mixed carbon sources was 2.97% and 6.52% respectively, which was slightly lower than those under single carbon source (3.41% and 6.94%). The low relative abundance of anaerobic hydrolytic acidification bacteria was the main reason for the decreased utilization of mixed carbon sources. Therefore, the paper proposed a novel biofilm-activated sludge Anammox mainstream nitrogen removal scheme for engineering application.

**Key words:** anaerobic ammonia oxidation (Anammox); partial denitrification; carbon source; COD to  $\text{NO}_3^-$ -N ratio; biofilm-activated sludge

厌氧氨氧化(Anammox)工艺凭借其经济、高效与可持续性而被公认为时下最具有应用前景的新型废水生物脱氮技术<sup>[1]</sup>。然而实际污水中Anammox电子受体的匮乏极大阻碍了其工程应用进程。为此,研究人员提出了两种Anammox电子受体供给方案:短程硝化(PN)和短程反硝化(PD)<sup>[2-3]</sup>。相较于短程硝化-厌氧氨氧化(PN/A)工艺,短程反硝化-厌氧氨氧化(PD/A)工艺凭借其100%的TN理论去除率、稳定的电子受体供给等优点<sup>[3-4]</sup>,被认为最有可能实现主流Anammox工程应用的耦合工艺。

污水中的碳源通常包含易生物利用(乙酸钠等小分子)、缓慢生物利用(淀粉等大分子)和不可生物利用碳源等3类<sup>[5]</sup>。不同碳源驱动下PD过程中 $\text{NO}_2^-$ -N的积累情况存在明显差异,如乙酸钠等简单小分子有机物往往可实现80%以上的 $\text{NO}_2^-$ -N积累,而葡萄糖驱动下 $\text{NO}_2^-$ -N的积累能力明显下降,以聚己内酯(PCL)作为碳源时甚至无 $\text{NO}_2^-$ -N的积累现象<sup>[6-7]</sup>。Shi等<sup>[8]</sup>以淀粉作为进水碳源,仅接种厌氧污泥便可成功启动PD工艺,相应的 $\text{NO}_2^-$ -N积累率为81.3%。王维奇等<sup>[9]</sup>向Anammox反应器内添加葡

萄糖,快速启动PD/A工艺,TN去除率达88.3%,相应的 $\text{NO}_2^-$ -N积累率为63.5%。但以上研究仅是基于单一类型碳源,探究了大分子碳源对活性污泥系统的影响,而关于混合大分子碳源驱动下PD/A工艺的脱氮效能,目前尚未见到相关报道。另外,生物膜-活性污泥作为一种新型复合污泥模型,被认为有助于实现Anammox的工程应用<sup>[10]</sup>。

故而,笔者基于添加新型组合填料的连续流完全混合式反应器(CSTR)构建了生物膜-活性污泥PD/A体系,并以淀粉、葡萄糖构成混合碳源<sup>[11]</sup>,探究混合碳源驱动下PD/A工艺的脱氮除碳性能,同时分析PD/A-CSTR反应器内氮素转化与去除途径,最后基于试验结果,提出了一种新型组合填料生物膜-活性污泥Anammox工程应用方案。

## 1 材料与方法

### 1.1 试验装置及运行工况

试验装置如图1所示,采用CSTR反应器,长为30 cm、宽为12 cm、高为30 cm,有效容积为5.75 L,沉淀区为1.25 L,HRT为6 h。反应器置于 $(29 \pm 1)^\circ\text{C}$ 恒温水浴缸中并用黑色塑料布包裹。新型组

合填料由束式填料穿过鲍尔环内外孔径环绕构成(见图2),鲍尔环(Ø25 mm)保证填料流动性,束式填料起挂膜作用,填料比控制在25%左右。

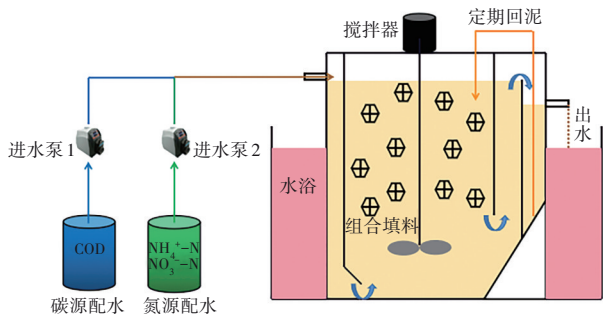


图1 试验装置  
Fig.1 Experimental setup

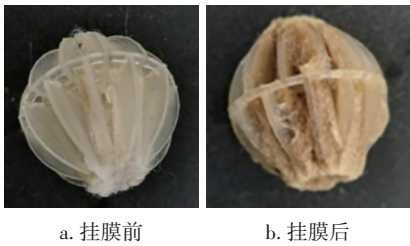


图2 挂膜前后的组合填料  
Fig.2 Combined packing before and after biofilm formation

本研究共分为2个阶段,阶段Ⅰ为生物膜-活性污泥PD/A工艺的启动(仅以葡萄糖为碳源),阶段Ⅱ为PD/A工艺脱氮性能探究(以淀粉和葡萄糖为混合碳源),具体工况见表1。

表1 CSTR反应器的运行工况

Tab.1 Operating conditions of CSTR reactor

阶段	工况	运行时间/d	$\text{NH}_4^+-\text{N}/(\text{mg}\cdot\text{L}^{-1})$	$\text{NO}_x^--\text{N}/(\text{mg}\cdot\text{L}^{-1})^a$	$\text{COD}/(\text{mg}\cdot\text{L}^{-1})$	碳源	$\text{COD}/\text{NO}_3^--\text{N}$
I	1	1~14	50	50	100	葡萄糖	2
	2	14~28	50	50	150		3
	3	28~42	50	50	200		4
	4	42~52	50	50	250		5
	5	52~68	50	65	Anammox 活性恢复		
	6	68~90	50	50	225	葡萄糖	4.5
II	7	90~114	50	50	225	葡萄糖、淀粉	4.5
	8	114~138	50	50	250		5
	9	138~160	50	50	275		5.5
注：“a”工况5为 $\text{NO}_2^--\text{N}$ ,其他工况均为 $\text{NO}_3^--\text{N}$ 。							

1.2 接种污泥与进水水质

将取自实验室的Anammox颗粒污泥打碎,用作本试验的接种污泥,MLSS为2.91 g/L。试验进水采用人工配水,具体水质如下:COD为100~280 mg/L、 $\text{NH}_4^+-\text{N}$ 为48~52 mg/L、 $\text{NO}_2^--\text{N}$ 为0~0.1 mg/L、 $\text{NO}_3^--\text{N}$ 为49~52 mg/L、 $\text{PO}_4^{3-}-\text{P}$ 为7.5~8.5 mg/L、pH为6.7~8.1。根据已有研究<sup>[11-12]</sup>,混合碳源由淀粉和葡萄糖组成,其中淀粉配比浓度约为35%~40%。

1.3 批次试验

为明确PD/A-CSTR反应器内氮素转化与去除情况,分别于工况6和8的稳定期进行异位批次试验<sup>[1]</sup>。试验前将200 mL污泥转移至血清瓶(有效容积为800 mL),淘洗多遍以去除残留的反应基质,并采用氮气洗脱瓶内的液相和气相空气,维持血清瓶中的厌氧条件,随后加入反应基质(碳源除外)并置于29℃恒温摇床内预热,最后加入粉末状碳源开始试验,分别于0、15、30、60、120、180、240、360 min,使

用针筒注射器从血清瓶取样口取样,每次取两份样品,用以测定 $\text{NO}_2^--\text{N}$ 、 $\text{NO}_3^--\text{N}$ 、 $\text{NH}_4^+-\text{N}$ 、COD浓度,以两份样品平均值作为有效数据。初始基质浓度,工况6:COD、 $\text{NH}_4^+-\text{N}$ 、 $\text{NO}_3^--\text{N}$ 分别为110.29、24.59、25.37 mg/L,碳源为葡萄糖;工况8:COD、 $\text{NH}_4^+-\text{N}$ 、 $\text{NO}_3^--\text{N}$ 分别为120.73、23.76、25.19 mg/L,碳源为葡萄糖和淀粉。

1.4 分析项目与方法

定期采集进出水水样进行检测分析。 $\text{NO}_2^--\text{N}$ :N-(1-萘基)-乙二胺分光光度法; $\text{NO}_3^--\text{N}$ :紫外分光光度法; $\text{NH}_4^+-\text{N}$ :纳氏试剂分光光度法;COD:COD快速消解仪;MLSS与MLVSS:重量法;温度与pH:便携式pH计。

PD/A-CSTR反应器内Anammox过程对TN去除的贡献率( $R_A$ )计算方法<sup>[13]</sup>如下: $R_A=(\text{NH}_4^+-\text{N}_{\text{inf}}-\text{NH}_4^+-\text{N}_{\text{eff}})\times(1+1.32-0.26)/(\text{TN}_{\text{inf}}-\text{TN}_{\text{eff}})$ ,其中 $\text{NH}_4^+-\text{N}_{\text{inf}}$ 、 $\text{NH}_4^+-\text{N}_{\text{eff}}$ 、 $\text{TN}_{\text{inf}}$ 和 $\text{TN}_{\text{eff}}$ 分别为PD/A-CSTR反应器进

出水  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  和 TN 浓度。反硝化过程对 TN 去除的贡献率( $R_D$ )计算方法: $R_D=1-R_A$ 。

微生物高通量测序:将接种污泥与工况6和8稳定期所取污泥样品(分别记作S0、S1、S2)放于 $-20\text{ }^\circ\text{C}$ 冰箱冷藏,送至上海美吉生物公司进行微生物高通量测序分析。

## 2 结果与讨论

### 2.1 PD/A 工艺的启动及优化运行

PD/A 工艺启动及优化运行过程中各指标的变化如图3所示。在工况1(1~14 d),投加100 mg/L葡萄糖后,第1天反应器内的  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  和  $\text{NO}_3^-\text{-N}$  被同步去除,分别减少33.92和30.36 mg/L,出水 COD 浓度仅为22.53 mg/L,推测反应器内可能发生了PD/A反应;第9天反应器运行稳定,但 TN 去除率仅为67.79%,出水  $\text{NO}_3^-\text{-N}$  浓度达到16.59 mg/L,相应的出水 COD 浓度为25.01 mg/L,表明进水 COD 不足,限制了反应器对氮素的进一步去除。此外,得益于新型生物填料的投加,CSTR 反应器内的污泥得以有效截留,而且新型生物填料附着污泥厚度(生物膜内基质传质阻力)得以控制。

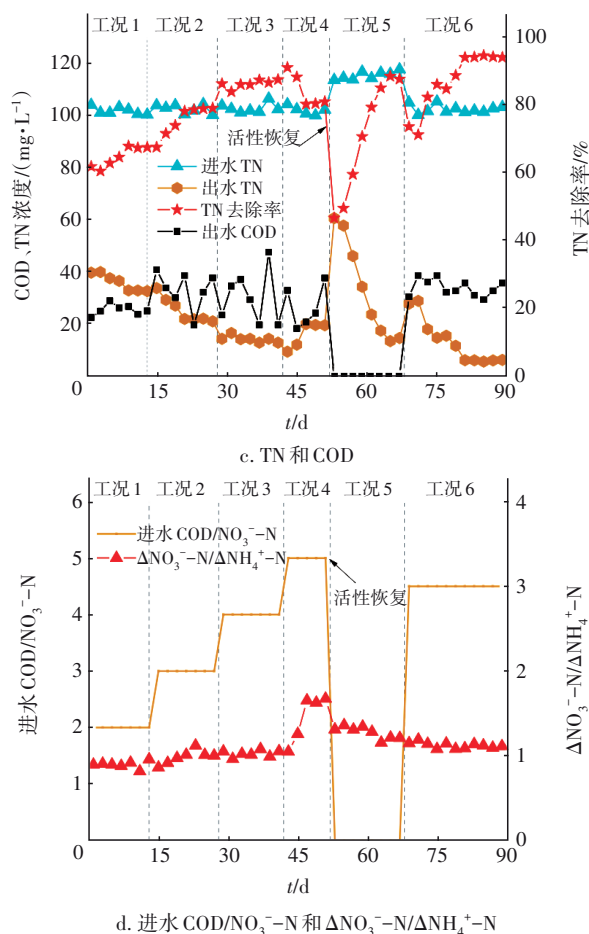
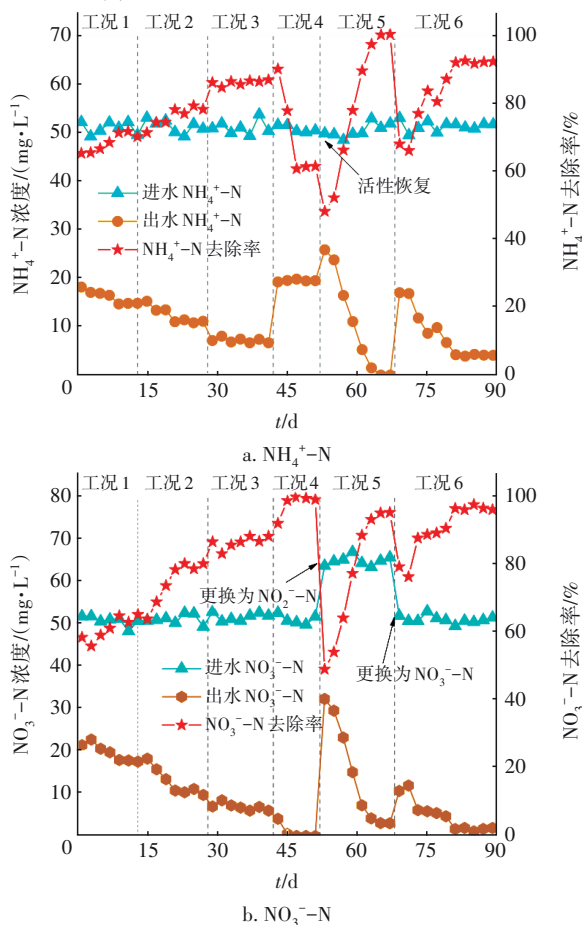


图3 PD/A 工艺启动及优化运行特性

Fig.3 Start-up and optimized operation characteristics of PD/A process

在工况2(14~28 d)与工况3(28~42 d),将进水 COD 浓度依次调整为150、200 mg/L,短暂适应后,反应器分别于第21、33天实现稳定运行,相应的 TN 去除率分别提升至78.06%、85.88%,此时反应器对  $\text{NO}_3^-\text{-N}$  和  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  的去除量之比( $\Delta\text{NO}_3^-\text{-N}/\Delta\text{NH}_4^+\text{-N}$ )进一步接近PD/A工艺的理论值1.06<sup>[14]</sup>。

在工况4(42~52 d),继续提高进水 COD 浓度至250 mg/L( $\text{COD}/\text{NO}_3^-\text{-N}=5$ ),相应的出水  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  浓度升至19.37 mg/L,出水中几乎不含  $\text{NO}_x^-\text{-N}$ ,污泥由浅黄色变成黑色,与 Du 等<sup>[15]</sup>的研究结果相似,这主要是由于较高的  $\text{COD}/\text{NO}_3^-\text{-N}$  导致反硝化菌在与 Anammox 菌竞争底物和生存空间上占据优势,此时 Anammox 菌被严重抑制<sup>[16]</sup>。 $\Delta\text{NO}_x^-\text{-N}/\Delta\text{NH}_4^+\text{-N}$  作为衡量PD/A体系内反硝化过程对  $\text{NO}_3^-\text{-N}$  利用率( $\text{NO}_x^-\text{-N}\rightarrow\text{N}_2$ )的一项指标,其值越大,反硝化过程对去除 TN 的贡献率越高<sup>[17]</sup>。此时反应器的  $\Delta\text{NO}_3^-\text{-N}/\Delta\text{NH}_4^+\text{-N}$  增至1.61,反硝化过程对去除 TN 的贡献



率明显上升,再次说明 Anammox 过程被抑制。

在工况 5(52~68 d),恢复 PD/A 体系的活性,将污泥淘洗至浅黄色,而后更换进水基质( $\text{NH}_4^+-\text{N}=50 \text{ mg/L}$ ,  $\text{NO}_2^--\text{N}=65 \text{ mg/L}$ ),运行一段时间后,反应器对氮素的去除效果逐步增强,于第 67 天达到 100% 的  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  去除率和 95.32% 的  $\text{NO}_2^--\text{N}$  去除率,  $\Delta\text{NO}_2^--\text{N}/\Delta\text{NH}_4^+-\text{N}=1.21$ ,接近 Anammox 反应中的基质消耗比。在工况 6(68~90 d),恢复原进水基质并将 COD/ $\text{NO}_3^--\text{N}$  降为 4.5,同时加入少量未经淘洗的污泥,运行一段时间后,PD/A 体系于第 81 天达到 93.89% 的 TN 去除率并实现稳定运行,出水 TN 浓度为 6.17 mg/L,此时 Anammox 过程对 TN 去除的贡献率高达 95.83%,反硝化过程的贡献率仅为 4.17%。

第 90 天取出填料观察其上的微生物生长状况,束式填料上已形成致密的生物膜[见图 2(b)],可认为生物膜-活性污泥 PD/A 高效耦合脱氮体系成功建立。

## 2.2 混合碳源驱动下 PD/A 工艺的效能

混合碳源条件下 PD/A 工艺脱氮特性见图 4。

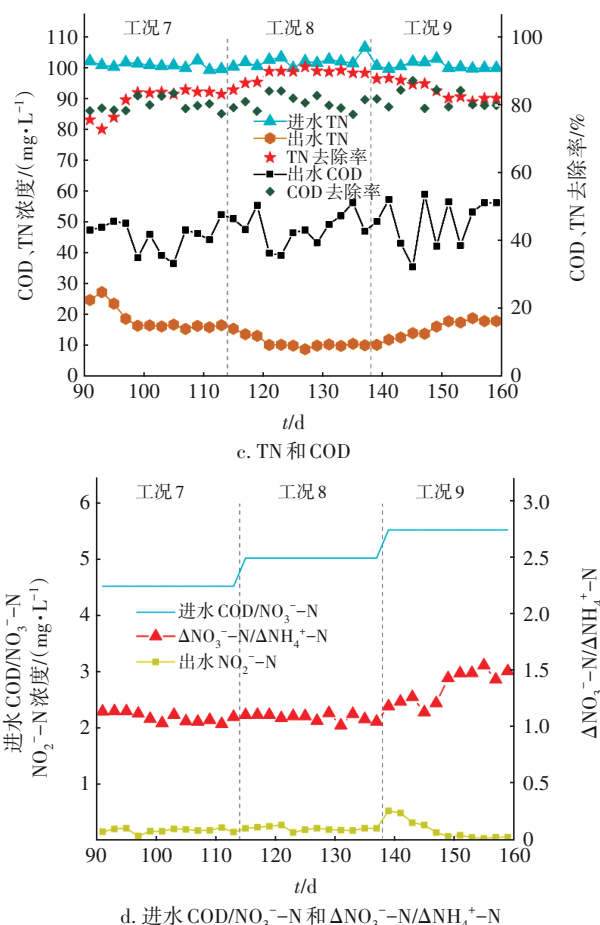
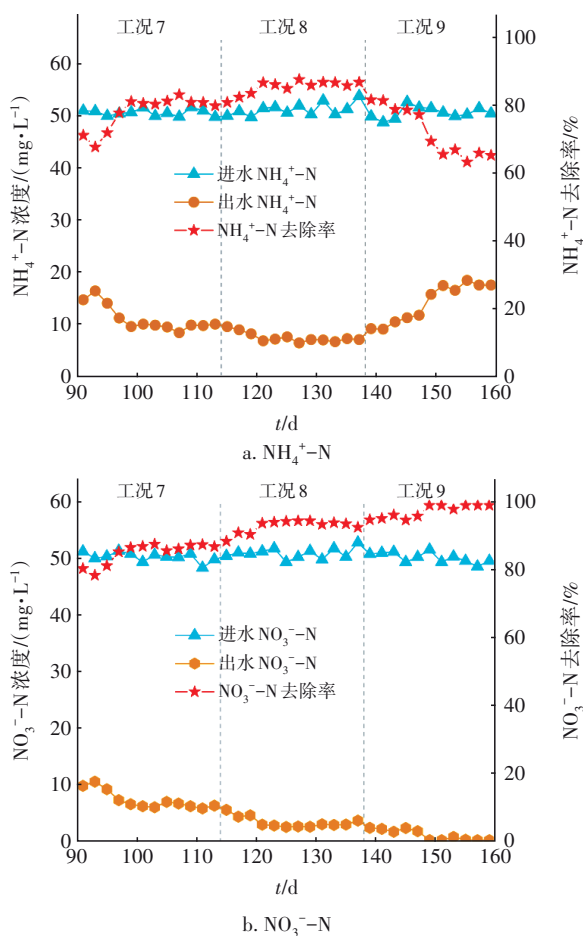


图 4 混合碳源下 PD/A 工艺脱氮特性

Fig.4 Nitrogen removal characteristics of PD/A process with mixed carbon sources

在工况 7(90~114 d),进水 COD 浓度控制在 225 mg/L。工况初期,由于短程反硝化菌无法直接利用淀粉等大分子物质,导致 Anammox 电子受体供给受到限制<sup>[18]</sup>,反应器出水 TN 浓度升至 24.71 mg/L,此时出水 COD 浓度增至 47.51 mg/L,随着反应的进行,混合碳源中的淀粉逐步降解为葡萄糖等物质,短程反硝化菌对混合碳源的利用率得以提升,出水 COD 为 36.73 mg/L,PD/A 体系对氮素的去除效果逐步增强并于第 97 天稳定运行,此时 TN 去除率为 83.79%,相应的  $\Delta\text{NO}_3^--\text{N}/\Delta\text{NH}_4^+-\text{N}=1.14$ ,较之前有明显提升,说明混合碳源强化了 PD/A 体系内的反硝化过程,这与王维奇等<sup>[9]</sup>的研究结果相似,但区别于其所使用的 PCL 固体碳源(驱动完全反硝化过程),本研究使用的淀粉溶液对于 PD 过程具有一定的促进作用。这可能与碳源相态有关,固相 PCL 碳源驱动下反硝化过程中间产物( $\text{NO}_2^--\text{N}$ )的流动性受到了限制,无法快速转移给 Anammox 菌利用。在工况

8(114~138 d),进水 COD/ $\text{NO}_3^-$ -N 调整为 5,PD/A 体系很快便实现稳定运行,TN 去除率进一步提升至 90.53%,出水 TN 浓度为 9.19 mg/L,此时 Anammox 过程对去除 TN 的贡献率为 91.52%,反硝化过程对去除 TN 的贡献率升至 8.48%。

在工况 9(138~160 d),进水 COD 浓度增至 275 mg/L( $\text{COD}/\text{NO}_3^-$ -N=5.5),出水  $\text{NO}_2^-$ -N 浓度由 0.21 mg/L 升至 0.52 mg/L, $\Delta\text{NO}_3^-$ -N/ $\Delta\text{NH}_4^+$ -N 升至 1.22,说明增加 COD 浓度可以进一步提升反硝化菌对  $\text{NO}_3^-$ -N 的利用率<sup>[17]</sup>。第 139~147 天,PD/A 体系对氮素的去除效果虽有下降,但仍能实现相对稳定运行, $\text{NH}_4^+$ -N 去除率仍可达到 80% 左右。自第 149 天起,出水中几乎不含  $\text{NO}_x^-$ -N,且  $\text{NH}_4^+$ -N 浓度始终保持在 15.74 mg/L 以上,相应的  $\Delta\text{NO}_3^-$ -N/ $\Delta\text{NH}_4^+$ -N=1.43,Anammox 菌再次被抑制,这与 PD/A 体系中较高的碳氮比有关<sup>[16]</sup>。区别于阶段 I(工况 4,单一葡萄糖碳源)中的 Anammox 菌迅速被抑制,此阶段 Anammox 菌的抑制现象可由以下两点解释<sup>[7,19]</sup>:①相较于淀粉等缓慢可生物利用有机物,葡萄糖等小分子有机物驱动下反硝化过程更为剧烈;②填料上较为成熟的生物膜使 Anammox 菌对不利生境具有较强的抵抗力。由图 3(c)和图 4(c)可知,相较于单一碳源,混合碳源驱动下 PD/A 系统的 COD 去除率明显更低,这主要是由于系统对混合碳源的利用途径更为复杂。

综合来说,混合碳源驱动下 PD/A 体系依旧能够实现氮素的高效去除(TN 去除率>90%),但此时其所需的碳源量更多( $\text{COD}/\text{NO}_3^-$ -N=5),且完全反硝化效果更为明显。

## 2.3 氮素转化与去除途径分析

### 2.3.1 阶段 I

在工况 6 稳定期进行异位批次试验,结果见图 5。在 0~30 min,主要为  $\text{NO}_2^-$ -N 积累阶段, $\text{NO}_2^-$ -N 浓度最高达到 7.62 mg/L。在 30~180 min,主要为 Anammox 氮代谢阶段,在这一阶段大量  $\text{NH}_4^+$ -N 和  $\text{NO}_3^-$ -N 被同步去除,厌氧环境下此阶段必然发生了 Anammox 反应<sup>[17]</sup>;在 180~360 min,氮素去除速率已降至 30~180 min 的 8.34%,PD/A 体系对氮素的转化和去除基本进入停滞阶段,这主要是由于系统中可生物利用碳源被消耗殆尽,而残留有机物(25.79 mg/L)多为细胞代谢产物,无法被异养反硝化菌直

接利用<sup>[20]</sup>。此外,反应器在工况 1~3 运行期间, $\Delta\text{NO}_3^-$ -N/ $\Delta\text{NH}_4^+$ -N 略小于 PD/A 工艺理论值 1.06<sup>[14]</sup>,推测反应器内除了 PD/A 脱氮体系外,可能存在极微弱的硝化作用等  $\text{NH}_4^+$ -N 转化途径<sup>[12]</sup>。而陈凯琦等<sup>[21]</sup>研究认为 PD/A 体系长期运行时,氨氧化菌(AOB)活性将逐渐消失直至被完全淘洗,Anammox 过程是反应器内唯一的  $\text{NH}_4^+$ -N 去除途径。造成分歧的原因可能是反应器运行条件不同,区别于陈凯琦等<sup>[21]</sup>的研究,本试验装置采用机械搅拌且填料处于流动状态,反应器内 DO 维持在 0.27 mg/L 左右,AOB 活性并没有完全消失。

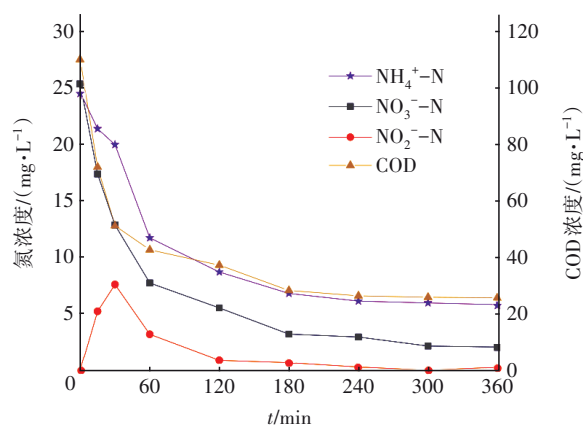


图5 阶段 I 氮素转化与去除特性

Fig.5 Characteristics of nitrogen transformation and removal in stage I

### 2.3.2 阶段 II

在工况 8 稳定期进行异位批次试验,结果如图 6 所示。

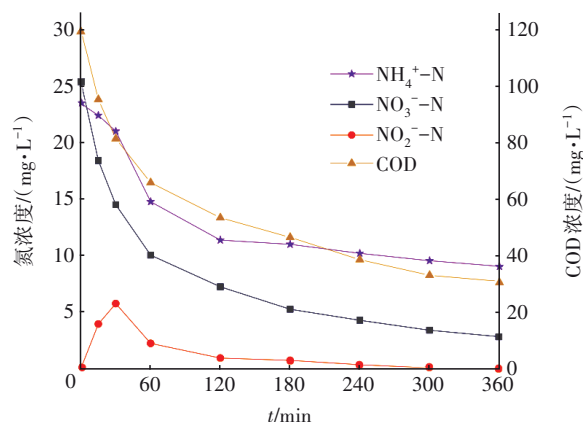


图6 阶段 II 氮素转化与去除特性

Fig.6 Characteristics of nitrogen transformation and removal in stage II

在 0~180 min,氮素转化与去除情况和阶段 I 类似,  $\text{NO}_2^-$ -N 浓度最高达到 6.63 mg/L; 在 180~360 min, PD/A 体系对氮素的去除速率达到 30~180 min 期间的 31.79%,  $\Delta\text{NO}_x^-$ -N/ $\Delta\text{NH}_4^+$ -N=1.52, 即在 180~360 min 期间反硝化过程对氮素的去除作用不可忽略,说明在 180~360 min 期间水中依旧有剩余的可生物利用碳源 (38.47 mg/L), 由于混合碳源强化 PD/A 体系的反硝化过程 (2.2 节已提及), 分析认为剩余碳源主要为淀粉, 且此时短程反硝化菌对于混合碳源 (尤其淀粉) 的利用率不足。因此, 提升 PD/A 体系对污水中淀粉等缓慢可生物利用碳源的利用率, 对降低系统反硝化脱氮贡献和提高系统脱氮效能极其重要。

## 2.4 不同阶段 PD/A 系统的微生物群落结构

### 2.4.1 门水平上微生物群落结构

PD/A 系统中门水平上的微生物群落结构如图 7 所示。

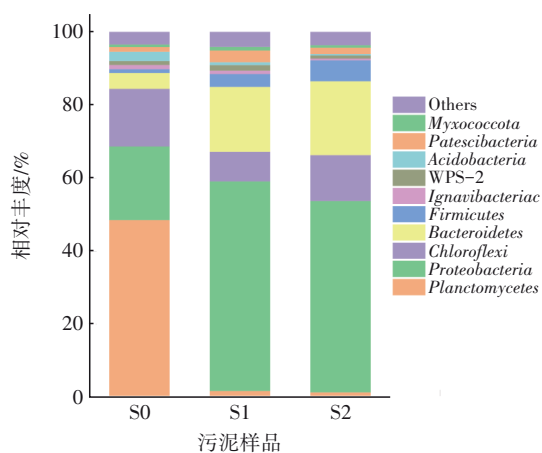


图 7 不同阶段 PD/A-CSTR 反应器中门水平上的微生物群落结构

Fig.7 Microbial community at phylum level in PD/A-CSTR reactor during different stages

变形菌门 (Proteobacteria) 包含氮循环功能相关的亚硝酸盐氧化菌、氨氧化菌和反硝化菌等, 在调节微生物群落结构方面发挥重要作用<sup>[22]</sup>。本研究结果显示, 变形菌门在 PD/A-CSTR 反应器不同阶段的占比都较高 (20.11%~57.19%), 尤其在 S1 和 S2 中, 其相对丰度均超过 50%, 这与已有研究结果<sup>[23]</sup>类似, 说明高相对丰度的变形菌门在 PD/A-CSTR 反应器氮素转化与去除过程中发挥重要作用。投加混合碳源之后, 与反硝化过程密切相关的拟杆菌门 (Bacteroidetes) 和厚壁菌门 (Firmicutes)<sup>[24-25]</sup>, 相对丰

度分别由 S1 阶段 (单一碳源) 的 17.73% 和 3.49% 增长到 S2 阶段 (混合碳源) 的 20.17% 和 5.73%, 从微生物门水平角度解释了混合碳源强化 PD/A 体系内反硝化过程这一现象。

### 2.4.2 属水平上微生物群落结构

PD/A 系统中属水平上的微生物群落结构如图 8 所示。

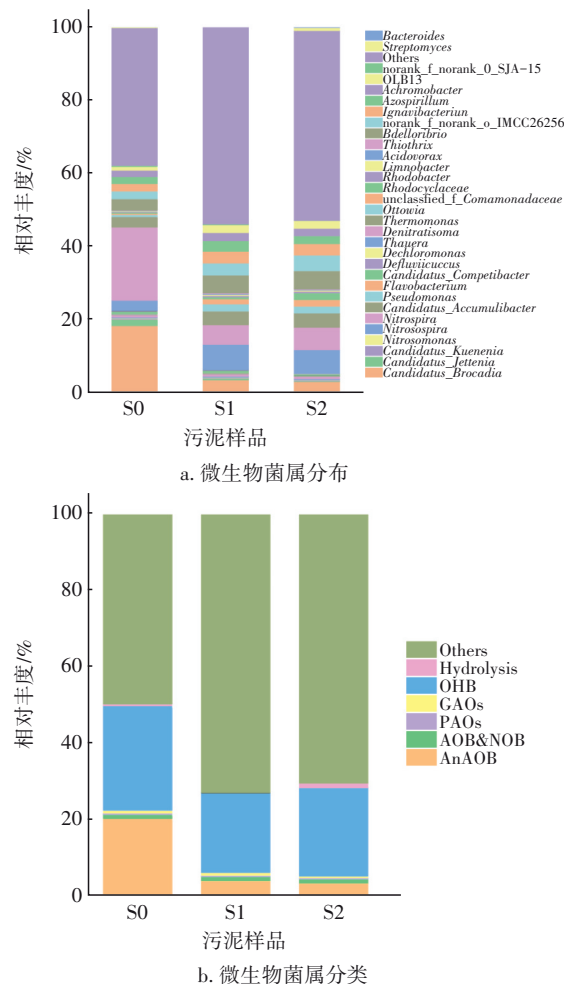


图 8 不同阶段 PD/A-CSTR 反应器中属水平上的微生物群落结构

Fig.8 Microbial community at genus level in PD/A-CSTR reactor during different stages

S0 作为典型 Anammox 系统的污泥样品, 其优势菌属为 Candidatus\_Brocadia (16.25%) 和 Candidatus\_Jettenia (3.72%); S1 和 S2 中, Candidatus\_Brocadia 作为唯一的 Anammox 优势菌属, 相对丰度分别降至 3.41% 和 2.97%, 这主要是由于有机碳源对 Anammox 优势菌属有富集和筛选作用<sup>[26]</sup>。Thauera 属作为实现高  $\text{NO}_2^-$ -N 积累的功能菌属而被广泛报道<sup>[27]</sup>, 其相对丰



度对PD/A系统的耦合性能影响极大,在3个污泥样品中的相对丰度高低顺序为S1(6.94%)>S2(6.52%)>S0(2.85%),说明单一碳源阶段PD/A系统耦合效果最佳,同时也解释了单一碳源阶段Anammox过程较高的TN去除贡献率。在S1和S2中检测出多种具有反硝化功能的优势菌属,其中*Denitratisoma*作为相对丰度最高的反硝化菌属,其在S2中的相对丰度(6.12%)略高于S1(5.28%),从属水平角度再次解释了混合碳源强化PD/A体系内反硝化过程这一现象。另外,相较于S0和S1,S2中检测出*Streptomyces*、*Bacteroides*等可有效降解淀粉等大分子物质的厌氧水解酸化(AnHA)菌属,但受制于其较低的相对丰度(仅1.02%),此阶段混合碳源利用率并不高。对比已有研究<sup>[8,13]</sup>可知,富集AnHA菌属可有效提升PD/A体系对淀粉等缓慢可生物利用碳源的利用率。

### 2.5 PD/A工艺工程应用前景展望

基于淀粉和葡萄糖混合碳源<sup>[11]</sup>,本研究进一步证实了PD/A工艺同步高效处理工业园区内生活污水和硝酸盐废水的可行性<sup>[7]</sup>。然而污水碳源利用率低依旧是PD/A工艺工程应用的一大障碍,现有研究通常借助外碳源来解决这一障碍<sup>[28]</sup>,仅有少量学者围绕碳源利用率展开研究。Ji等<sup>[13]</sup>基于上流式反应器将PD/A工艺与原位发酵技术相结合,并未投加外碳源而实现了实际生活污水的有效处理,TN去除率达到93.1%,相应的AnHA菌属相对丰度高达3.67%。Shi等<sup>[8]</sup>仅以淀粉作为进水碳源,实现了PD工艺与AnHA工艺的耦合,并在长期运行中实现了81.3%的 $\text{NO}_2^-$ -N积累率,气相色谱检测结果表明,此时水中碳源以乙酸钠等易生物利用碳源为主(53.2%)。以上研究表明富集AnHA菌属可有效提升污水中碳源的利用率。

为此,本研究基于AnHA工艺提出一种致力于实现工业园区生活污水和硝酸盐废水同步高效去除的生物膜-活性污泥Anammox工程应用方案,如图9所示。该方案将主流PD/A工艺与侧流PN/A工艺相结合,主流工艺中,通过前置厌氧水解罐来提升市政污水中碳源的可利用性,以此提升PD/A工艺的脱氮效能,其运行的关键在于调控图9中a、b进水比例,并借助生物膜-活性污泥系统实现污泥的有效截留,以及脱氮系统高效的氮素传递效率。侧流

工艺则是借助发酵罐产甲烷,以实现能源的最大回收;而后利用PN/A工艺处理污泥消化上清液,其出水中的 $\text{NO}_3^-$ -N再经由泵站回流至主流工艺中用以补充基质。

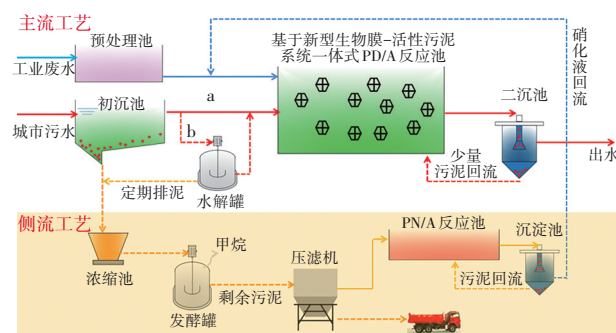


图9 新型生物膜-活性污泥系统Anammox工程应用方案

Fig.9 Anammox engineering application scheme of novel biofilm-activated sludge system

### 3 结论

① 仅以葡萄糖作为碳源,随着 $\text{COD}/\text{NO}_3^-$ -N的增加,PD/A体系对TN的去除效果先上升后下降,在 $\text{COD}/\text{NO}_3^-$ -N=4.5时,TN去除率最高(93.89%),此时Anammox对去除TN的贡献率高达95.83%。

② 以淀粉、葡萄糖构成混合碳源时,由于反硝化菌对混合碳源的利用率降低,PD/A体系的脱氮效果下降(TN去除率为90.53%),相应的最佳 $\text{COD}/\text{NO}_3^-$ -N为5,同时Anammox对去除TN的贡献率降至91.52%。

③ 变形菌门的相对丰度较高(大于50%)是PD/A-CSTR内氮素良好转化与去除的保证;较高的*Candidatus\_Brocadia*和*Thauera*相对丰度是单一碳源条件下PD/A工艺高效耦合脱氮的主要原因;另外,实现AnHA相关菌属富集有利于提升混合碳源条件下PD/A工艺中混合碳源的利用率。

④ 基于AnHA工艺对污水中碳源可利用性的提升,提出一种新型生物膜-活性污泥Anammox工程应用方案。

### 参考文献:

- [1] DU R, CAO S, LI X C, et al. Efficient partial-denitrification/anammox (PD/A) process through gas-mixing strategy: system evaluation and microbial analysis [J]. Bioresource Technology, 2020, 300: 122675.
- [2] LI J L, LI J W, PENG Y Z, et al. Insight into the



- impacts of organics on anammox and their potential linking to system performance of sewage partial nitrification-anammox (PN/A): a critical review [J]. *Bioresource Technology*, 2020, 300: 122655.
- [3] ZHANG M, WANG S Y, JI B, *et al.* Towards mainstream deammonification of municipal wastewater: partial nitrification-anammox versus partial denitrification-anammox [J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 692: 393-401.
- [4] DU R, PENG Y Z, JI J T, *et al.* Partial denitrification providing nitrite: opportunities of extending application for anammox [J]. *Environment International*, 2019, 131: 105001.
- [5] 张星星, 张钰, 王超超, 等. 短程反硝化耦合厌氧氨氧化工艺及其应用前景研究进展[J]. *化工进展*, 2020, 39(5): 1981-1991.
- ZHANG Xingxing, ZHANG Yu, WANG Chaochao, *et al.* Research progress of short-term denitrification coupled anaerobic ammonia oxidation process and its application prospects [J]. *Chemical Industry and Engineering Progress*, 2020, 39 (5): 1981-1991 (in Chinese).
- [6] 黄斯婷, 杨庆, 刘秀红, 等. 不同碳源条件下污水处理反硝化过程亚硝态氮积累特性的研究进展[J]. *水处理技术*, 2015, 41(7): 21-25.
- HUANG Siting, YANG Qing, LIU Xiuhong, *et al.* Research progress of nitrite accumulation characteristics in denitrification process of wastewater treatment under different carbon sources [J]. *Water Treatment Technology*, 2015, 41 (7): 21-25 (in Chinese).
- [7] WANG X M, WANG J L. Removal of nitrate from groundwater by heterotrophic denitrification using the solid carbon source [J]. *Science in China (Series B: Chemistry)*, 2009, 52(2): 236-240.
- [8] SHI L L, DU R, PENG Y Z, *et al.* Successful establishment of partial denitrification by introducing hydrolytic acidification of slowly biodegradable organic matter [J]. *Bioresource Technology*, 2020, 315: 123887.
- [9] 王维奇, 王秀杰, 李军, 等. 部分反硝化耦合厌氧氨氧化脱氮性能研究[J]. *中国环境科学*, 2019, 39 (2): 641-647.
- WANG Weiqi, WANG Xiujie, LI Jun, *et al.* Study on denitrification performance of partial denitrification coupled anaerobic ammonia oxidation [J]. *China Environmental Science*, 2019, 39 (2): 641-647 (in Chinese).
- [10] DU Y Q, YU D S, WANG X X, *et al.* Achieving simultaneous nitrification, anammox and denitrification (SNAD) in an integrated fixed-biofilm activated sludge (IFAS) reactor: quickly culturing self-generated anammox bacteria [J]. *Science of the Total Environment*, 2021, 768: 144446.
- [11] LUO W, YANG C P, HE H J, *et al.* Novel two-stage vertical flow biofilter system for efficient treatment of decentralized domestic wastewater [J]. *Ecological Engineering*, 2014, 64: 415-423.
- [12] DE KREUK M K, KISHIDA N, TSUNEDA S, *et al.* Behavior of polymeric substrates in an aerobic granular sludge system [J]. *Water Research*, 2010, 44 (20): 5929-5938.
- [13] JI J T, PENG Y Z, WANG B, *et al.* Synergistic partial-denitrification, Anammox, and in-situ fermentation (SPDAF) process for advanced nitrogen removal from domestic and nitrate-containing wastewater [J]. *Environmental Science & Technology*, 2020, 54 (6): 3702-3713.
- [14] DU R, PENG Y Z, CAO S B, *et al.* Mechanisms and microbial structure of partial denitrification with high nitrite accumulation [J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2016, 100(4): 2011-2021.
- [15] DU R, CAO S B, PENG Y Z, *et al.* Combined partial denitrification (PD)-Anammox: a method for high nitrate wastewater treatment [J]. *Environment International*, 2019, 126: 707-716.
- [16] WANG D, ZHENG Q, HUANG K, *et al.* Metagenomic and metatranscriptomic insights into the complex nitrogen metabolic pathways in a single-stage bioreactor coupling partial denitrification with anammox [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2020, 398: 125653.
- [17] BIN M, WANG S Y, CAO S B, *et al.* Biological nitrogen removal from sewage via anammox: recent advances [J]. *Bioresource Technology*, 2016, 200: 981-990.
- [18] DU R, CAO S B, ZHANG H Y, *et al.* Flexible nitrite supply alternative for mainstream Anammox: advances in enhancing process stability [J]. *Environmental Science & Technology*, 2020, 54(10): 6353-6364.
- [19] JIANG H, WANG Z, REN S, *et al.* Enrichment and retention of key functional bacteria of partial denitrification-Anammox (PD/A) process via cell immobilization: a novel strategy for fast PD/A application

- [J]. *Bioresource Technology*, 2021, 326: 124774.
- [20] 张星星, 王超超, 王垚, 等. 基于不同废污泥源的短程反硝化快速启动及稳定性[J]. *环境科学*, 2020, 41(8): 3715–3724.
- ZHANG Xingxing, WANG Chaochao, WANG Yao, *et al.* Rapid start-up and stability of shortcut denitrification based on different waste sludge sources [J]. *Environmental Science*, 2020, 41(8): 3715–3724 (in Chinese).
- [21] 陈凯琦, 张亮, 孙事昊, 等. 新型PD/A工艺同步处理低C/N生活原水和二级出水[J]. *中国环境科学*, 2020, 40(4): 1515–1522.
- CHEN Kaiqi, ZHANG Liang, SUN Shihao, *et al.* Simultaneous treatment of low C/N domestic raw water and secondary effluent by new PD/A process [J]. *China Environmental Science*, 2020, 40(4): 1515–1522 (in Chinese).
- [22] LAWSON C E, WU S, BHATTACHARJEE A S, *et al.* Metabolic network analysis reveals microbial community interactions in anammox granules [J]. *Nature communications*, 2017, 8: 15416.
- [23] WU P, ZHANG X X, WANG Y G, *et al.* Development of a novel denitrifying phosphorus removal and partial denitrification anammox (DPR+PDA) process for advanced nitrogen and phosphorus removal from domestic and nitrate wastewaters [J]. *Bioresource Technology*, 2021, 327: 124795.
- [24] WANG X J, YANG R L, GUO Y, *et al.* Investigation of COD and COD/N ratio for the dominance of anammox pathway for nitrogen removal via isotope labelling technique and the relevant bacteria [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2019, 366: 606–614.
- [25] CAO S, DU R, LI B, *et al.* High-throughput profiling of microbial community structures in an ANAMMOX-UASB reactor treating high-strength wastewater [J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2016, 100(14): 6457–6467.
- [26] QIN Y, CAO Y, REN J, *et al.* Effect of glucose on nitrogen removal and microbial community in anammox-denitrification system [J]. *Bioresource Technology*, 2017, 244: 33–39.
- [27] DU R, CAO S B, ZHANG H Y, *et al.* Formation of partial-denitrification (PD) granular sludge from low-strength nitrate wastewater: the influence of loading rates [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2020, 384: 121273.
- [28] CAO S, PENG Y Z, DU R, *et al.* Feasibility of enhancing the denitrifying ammonium oxidation (DEAMOX) process for nitrogen removal by seeding partial denitrification sludge [J]. *Chemosphere*, 2016, 148: 403–407.

作者简介:王超超(1995–),男,河南驻马店人,硕士研究生,主要研究方向为污水处理与资源化利用。

E-mail:3295634910@qq.com

收稿日期:2021-06-25

修回日期:2021-11-03

(编辑:刘贵春)

依法划定河湖管理范围

严格水域岸线水生态空间管控