

DOI:10.19853/j.zgjsps.1000-4602.2024.17.013

长期Hg(II)暴露对断流CANON工艺恢复性能的影响

马冰冰, 张肖静, 张楠, 张涵, 张佳杰, 龚瑶瑶, 左琦月
(郑州轻工业大学材料与化学工程学院 环境污染治理与生态修复河南省协同
创新中心, 河南 郑州 450001)

摘要: 为研究长期Hg(II)暴露对断流后全程自养脱氮(CANON)工艺恢复性能的影响,采用无Hg(II)暴露(R1)与Hg(II)暴露(R2)2个反应器,通过延长水力停留时间和控制溶解氧浓度为0.1 mg/L的策略,在进水氨氮为200 mg/L条件下进行脱氮性能的恢复。结果表明,R1经过55 d的运行,总氮去除率和总氮去除负荷分别从-24.7%、-0.201 kg/(m³·d)恢复至(68.8±10.8)%、(0.273±0.043) kg/(m³·d);R2经过52 d的运行,总氮去除率始终低于30%,而亚硝态氮积累率达到(93.5±6.5)%,CANON系统转变为短程硝化系统。在恢复初期R2出水中检测到6.0 μg/L的Hg(II),厌氧氨氧化菌受到了Hg(II)的持久性抑制。高通量测序结果表明,R1中厌氧氨氧化菌和好氧氨氧化菌的相对丰度在断流前分别为16.0%、0.6%,恢复前为9.4%、21.0%,恢复后为4.8%、4.8%;而R2在断流前分别为10.3%、0.5%,恢复前为10.8%、0.5%,恢复后为8.4%、11.9%。Hg(II)长期暴露后断流的污泥无法恢复高效脱氮性能,但可作为短程硝化污泥的来源。

关键词: 全程自养脱氮(CANON)工艺; 污泥活性恢复; Hg(II); 厌氧氨氧化

中图分类号: TU992 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-4602(2024)17-0084-08

Influence of Long-term Hg(II) Exposure on Recovery Performance of Interrupted CANON Process

MA Bing-bing, ZHANG Xiao-jing, ZHANG Nan, ZHANG Han, ZHANG Jia-jie,
GONG Yao-yao, ZUO Qi-yue

(Henan Collaborative Innovation Center for Environmental Pollution Control and Ecological
Restoration, School of Materials and Chemical Engineering, Zhengzhou University of Light
Industry, Zhengzhou 450001, China)

Abstract: To explore the impacts of long-term Hg(II) exposure on the recovery performance of an interrupted CANON process, two reactors, namely one without Hg(II) exposure (R1) and the other with Hg(II) exposure (R2), were employed to prolong the hydraulic retention time and regulate the dissolved oxygen to 0.1 mg/L, and the nitrogen removal performance was restored when the influent ammonia nitrogen was 200 mg/L. After 55 days of operation, the total nitrogen removal efficiency and total nitrogen removal rate of R1 recovered from -24.7% and -0.201 kg/(m³·d) to (68.8±10.8)% and (0.273±0.043) kg/(m³·d) respectively. However, the total nitrogen removal efficiency of R2 consistently remained below 30% after 52 days of operation, while the nitrite nitrogen accumulation rate was (93.5±6.5)%, and the CANON system was

基金项目: 河南省高校科技创新人才项目(20HASTIT014); 河南省自然科学基金资助面上项目(232300420171)

通信作者: 张肖静 E-mail: zhangxiaojing@zzuli.edu.cn

transformed into a partial nitrification system. Hg(II) was detected at a concentration of 6.0 $\mu\text{g/L}$ in the R2 effluent during the initial stage of recovery, and the anaerobic ammonia-oxidizing bacteria (AnAOB) were constantly inhibited by Hg(II). The outcomes of high-throughput sequencing indicated that the relative abundances of AnAOB and aerobic ammonia oxidizing bacteria in R1 were 16.0% and 0.6% prior to cut-off, 9.4% and 21.0% before recovery, and 4.8% and 4.8% after recovery, respectively. The corresponding values in R2 were 10.3% and 0.5% before cut-off, 10.8% and 0.5% before recovery, and 8.4% and 11.9% after recovery. The idle sludge after long-term exposure to Hg(II) was unable to restore high nitrogen removal performance, but could be utilized as a source of partial nitrifying sludge.

Key words: CANON process; sludge activity recovery; Hg(II); Anammox

氮素污染是我国水环境的主要污染之一,全程自养脱氮(CANON)工艺的出现为污水生物脱氮提供了新思路。该工艺在微氧条件下运行,一方面好氧氨氧化菌(AOB)将氨氮氧化成亚硝态氮,同时,厌氧氨氧化菌(AnAOB)将剩余的氨氮和生成的亚硝态氮转化为氮气。与传统的硝化反硝化工艺相比,CANON工艺具有节省有机碳源、减少污泥产量、降低耗氧量和耗碱量、无二次污染等优点^[1-2]。然而,AnAOB生长速度缓慢,容易受到温度、进水基质、pH等的影响^[3-4]。实际废水中含有的重金属、难降解有机化合物、病原菌等物质也可能会影响AnAOB活性。

目前,全球已有200多座自养脱氮工艺设施投入使用^[5],当处理的污(废)水中含有有毒物质时,或者遭遇工厂周期性运行、设备维修、自然灾害以及不可抵挡的外来阻力而导致的长期停产时,污泥的理化性质以及微生物活性会受到严重的影响^[6],如何快速恢复CANON工艺的脱氮性能是其大规模应用所必须要解决的问题。

CANON工艺在处理高氨氮废水方面展现出极大的应用潜力^[7-8]。然而,实际废水成分复杂,含有多种有毒物质,尤其是重金属离子在各种废水中被频繁检出,例如,在污水处理厂检测到2.0 $\mu\text{g/L}$ 的总汞^[9],在工业废水中检测到30 mg/L的Hg(II)^[10]。Hg(II)对微生物有强烈的毒害作用,抗汞细菌也只能耐受10 mg/L的Hg(II)^[11]。已有研究表明^[12],Hg(II)浓度达到20 mg/L时,可使厌氧氨氧化系统的总氮去除率下降至55%,相关基因最大可改变468.8倍。然而,关于Hg(II)是否对CANON系统存在持久性的影响,尤其是对其恢复能力的潜在影响目前尚未可知。而这对于污水厂接种CANON种

泥的选择、长期断流后工艺恢复措施的设置等至关重要。

笔者以突发状况下被迫停产的2个自养脱氮工艺运行的膜生物反应器(MBR)为研究对象,探究了长期断流后CANON工艺的恢复特性,主要包括脱氮性能、运行特征以及微生物群落结构的变化,考察了Hg(II)长期暴露对断流后CANON工艺恢复特性的影响,以期在实际工程中CANON工艺的恢复提供参考。

1 材料与方法

1.1 实验装置与方法

实验装置如图1所示,采用2个完全相同的MBR,分别标记为R1与R2。反应器由双层有机玻璃制成,高为70 cm,内径为10 cm,有效体积为4.5 L,内置中空纤维膜,膜丝有效面积为0.1 m^2 ,膜孔径为0.1 μm ,底部安装曝气环进行曝气。在反应器上部安装转子流量计和压力表,分别用来控制溶解氧(DO)浓度和监测膜污染程度,当压力表示数达到-30 kPa时清洗膜组件。进水和出水由蠕动泵控制,反应器内温度为 $(25\pm 3)^\circ\text{C}$ 。

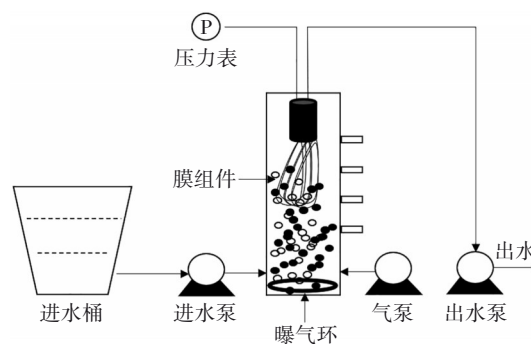


图1 实验装置

Fig.1 Schematics of experimental setup

在长期断流阶段,R1和R2反应器在室内放置

了5个月,温度为 $(10\pm 5)^{\circ}\text{C}$ 。其中,R2在长期断流前曾经在 $\text{Hg}(\text{II})$ 下长期暴露。长期断流后,通过调

整2个反应器的运行参数进行CANON工艺的恢复,具体运行条件如表1所示。

表1 各反应器的主要运行参数

Tab.1 Main operating parameters of each reactor

反应器	阶段	时间/d	氨氮/ $(\text{mg}\cdot\text{L}^{-1})$	HRT/h	曝气量/ $(\text{L}\cdot\text{min}^{-1})$	DO/ $(\text{mg}\cdot\text{L}^{-1})$	pH
R1	I	1~8	200	6	0.1	0.1	7.9
	II	9~17		8			7.9
	III	18~38		12			7.8
	IV	39~55		12	0.2	0.1	7.8
R2	I	1~3	200	6	0.1	0.6	7.8
	II	4~24		12	0.075	0.2	7.8
	III	25~52		12	0.05	0.1	7.9

1.2 实验用水

实验用水为人工配制的模拟废水,具体成分包括 200 mg/L 的 NH_4^+-N [由 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 提供]、 $1\ 600\text{ mg/L}$ 的碱度(由 NaHCO_3 提供)、 68 mg/L 的 CaCl_2 、 68 mg/L 的 KH_2PO_4 、 150 mg/L 的 MgSO_4 、 1 mL/L 的微量元素溶液I和II。其中,微量元素溶液I的组分为: $5\ 000\text{ mg/L}$ 的EDTA、 $5\ 000\text{ mg/L}$ 的 FeSO_4 ,微量元素溶液II的组分为: $15\ 000\text{ mg/L}$ 的EDTA、 430 mg/L 的 $\text{ZnSO}_4\cdot 7\text{H}_2\text{O}$ 、 240 mg/L 的 $\text{CoCl}_2\cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 、 990 mg/L 的 $\text{MnCl}_2\cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 、 250 mg/L 的 $\text{CuSO}_4\cdot 5\text{H}_2\text{O}$ 、 220 mg/L 的 $\text{Na}_2\text{MoO}_4\cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 、 190 mg/L 的 $\text{NiCl}_2\cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 、 210 mg/L 的 $\text{Na}_2\text{SeO}_4\cdot 10\text{H}_2\text{O}$ 。所有实验药品均购自阿拉丁试剂有限公司。

1.3 分析项目与方法

NH_4^+-N 采用纳氏试剂分光光度法测定, NO_2^--N 采用N-(1-萘基)-乙二胺分光光度法测定, NO_3^--N 采用紫外分光光度法测定,pH、DO和温度采用WTW多参数测定仪测定。总氮以氨氮、亚硝态氮和硝态氮之和计算。另外,采集2个反应器长期断流前最后一天、恢复前最后一天以及恢复阶段第52天的活性污泥样品,送至上海生工生物工程有限公司,采用16S rRNA高通量测序技术检测微生物群落结构。

2 结果与讨论

2.1 未经 $\text{Hg}(\text{II})$ 暴露反应器断流后的恢复性能

R1反应器恢复过程的运行效果如图2所示。在第I阶段(1~8 d),水力停留时间(HRT)为6 h,进水氨氮平均浓度为 195.1 mg/L ,控制曝气量为 0.1 L/min ,DO平均浓度为 0.1 mg/L 。第1~3天,氨氮去除率平均值为47.4%,这说明经过长期饥饿后

AOB仍有一部分活性,可能是由于长期断流期间缺乏营养基质,导致部分微生物死亡分解为氨氮,为AOB提供了基质。何丽金等^[13]将室温储存161 d的厌氧氨氧化污泥进行活性恢复,初始氨氮去除率为75.3%,与本研究结果一致。TN去除率和TN去除负荷分别为-24.7%、 $-0.201\text{ kg}/(\text{m}^3\cdot\text{d})$,可能是运行初期HRT较短,活性较差的微生物被淘汰,死亡的微生物溶解在反应器中分解产生了氨氮^[14],导致出水TN浓度高于进水。接着运行5 d,出水氨氮浓度逐渐增加,氨氮去除率下降至17.4%,可能是长期无基质供给导致AOB表现出不稳定性。亚硝态氮积累率为 $(91.3\pm 5.2)\%$,这说明亚硝酸盐氧化菌(NO_B)在断流期间因缺乏基质已被淘汰,恢复初期系统内起作用的菌属主要是AOB。在第II阶段(9~17 d),保持曝气量不变,延长HRT至8 h,使微生物与氮素充分接触,与第I阶段末期相比,出水氨氮浓度最高下降了 39.0 mg/L ,但氨氮去除率、亚硝态氮积累率与TN去除率平均值无明显差异。

在第III阶段(18~38 d),仍保持曝气量不变,继续延长HRT至12 h,氨氮与TN去除率分别为 $(41.2\pm 19.1)\%$ 、 $(25.7\pm 18.9)\%$,亚硝态氮积累率下降至50.4%,出水检测到少量硝态氮。推测可能是AnAOB有初步恢复的迹象,使得部分总氮被去除,但出水氨氮浓度仍较高。为有效恢复AOB与AnAOB的活性,在第IV阶段(39~55 d),将曝气量提高至 0.2 L/min ,其他运行条件保持不变,DO平均浓度仍为 0.1 mg/L ,说明第III阶段的曝气量不足以供给好氧微生物呼吸。此阶段出水氨氮浓度立即下降,氨氮和TN去除率以及TN去除负荷逐渐增加,同时也伴随着硝态氮的产生。第41天,出水氨氮、亚硝态氮和硝态氮浓度分别为24.2、22.5、15.8 mg/L,

TN去除率和去除负荷分别为70.6%、0.300 kg/(m³·d), $\Delta\text{NO}_3^- - \text{N} / \Delta\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 为0.08,与理论值接近,认为R1反应器的CANON工艺成功恢复。继续运行14 d, TN去除率和去除负荷分别为(68.8±10.8)%、(0.273±0.043) kg/(m³·d), $\Delta\text{NO}_3^- - \text{N} / \Delta\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 稳定在0.10。R1反应器采用提高HRT和曝气量的方式,经过55 d的运行,成功恢复CANON工艺并实现高效稳定运行。

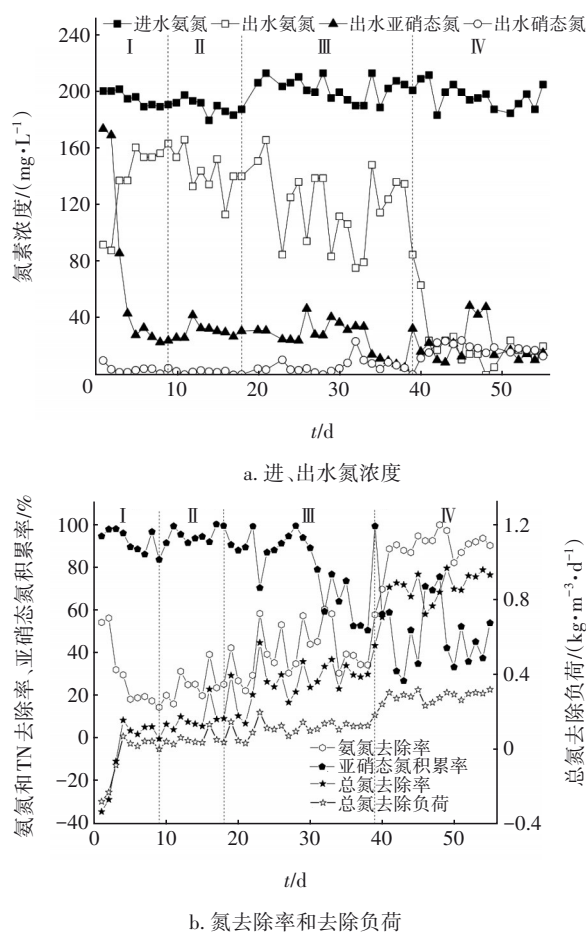


图2 R1反应器各阶段的运行效果

Fig.2 Operation effect of each stage in R1 reactor

2.2 Hg(II)暴露反应器断流后的恢复性能

R2反应器恢复过程的运行效果如图3所示。第Ⅰ阶段(1~3 d)的运行条件与R1相同,采用6 h的HRT和0.1 L/min的曝气量,反应器内DO平均浓度为0.6 mg/L,而R1仅为0.1 mg/L,说明R2的活性污泥消耗氧气少,好氧微生物活性差。进水氨氮平均浓度为186.3 mg/L,出水氨氮和亚硝态氮平均浓度分别为134.7、45.8 mg/L,氨氮去除率平均值为27.7%,这说明经过长期饥饿后AOB仍保留了一部

分活性,将部分氨氮氧化为亚硝态氮。相同条件下,R1的氨氮去除率为47.4%,说明R1中AOB的活性高于R2,这与反应器内DO浓度的差异一致。出水硝态氮平均浓度为2.2 mg/L, TN去除率和去除负荷平均值分别为3.6%、0.027 kg/(m³·d),说明AnAOB未表现出活性,活性污泥在断流前Hg(II)暴露及长期饥饿的双重作用下,AnAOB活性受到严重的持久性抑制。亚硝态氮积累率平均值为96.1%,说明NOB已在系统中被抑制或者淘洗,在长期饥饿后系统内起脱氮作用的菌群主要是AOB,与R1相同。Chen等^[12]的研究表明,厌氧氨氧化系统能够完全抵抗低浓度Hg(II)(≤10 mg/L)的暴露,当Hg(II)浓度达到20 mg/L时,表现出显著的抑制作用,由此说明本研究中Hg(II)的暴露对长期饥饿后厌氧氨氧化污泥活性的恢复具有不利影响。

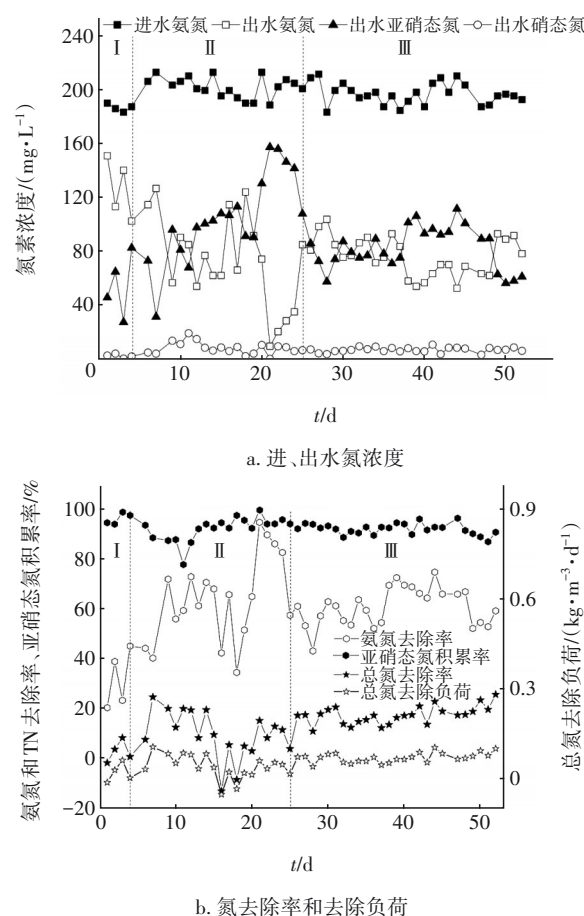


图3 R2反应器各阶段的运行效果

Fig.3 Operation effect of each stage in R2 reactor

在第Ⅱ阶段(4~24 d),将HRT提高至12 h,基于AnAOB不能承受太高浓度的DO,将曝气量调整为0.075 L/min, DO随之降为0.2 mg/L。出水氨氮浓度

缓慢降低,出水亚硝态氮浓度逐渐增加,第22~24天,氨氮去除率平均值为86.4%,说明AOB活性得到了恢复;TN去除率平均值为9.8%,说明AnAOB仍未表现出活性;亚硝态氮积累率平均值为92.6%,说明该系统的反应只进行到了短程硝化阶段。研究表明,AnAOB的细胞密度 $>10^{10}$ 个/mL时才能显现出活性^[15],推测可能是AnAOB的细胞密度较低而未表现出活性。CANON工艺需要AOB与AnAOB的协同合作完成脱氮过程,此阶段AOB活性已得到恢复。

在第Ⅲ阶段(25~52 d),保持HRT为12 h,继续减小曝气量至0.05 L/min,为AnAOB提供厌氧环境,DO平均浓度随之降为0.1 mg/L,出水氨氮浓度立即增加,氨氮去除率平均值为60.9%,说明降低DO浓度限制了AOB活性。TN去除率平均值为17.2%,说明AnAOB始终未表现出活性。经过52 d的运行,通过降低进水氮负荷和DO浓度的方法进行CANON工艺的恢复,TN去除率始终低于30%,TN去除负荷稳定在 $0.105 \text{ kg}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$ 以下,氨氮去除率和亚硝态氮积累率平均值分别为60.9%、92.3%,整个系统已由断流前的CANON工艺转变为短程硝化工艺。此外,在恢复阶段第1天的出水中检测到 $6.0 \mu\text{g/L}$ 的Hg(Ⅱ),说明Hg(Ⅱ)具有较强的累积毒性,这是因为重金属不具有代谢的特性,其在微生物细胞内难以排出或缓慢排出。Bi等^[16]通过批量实验研究Hg(Ⅱ)对厌氧氨氧化的短期影响,发现Hg(Ⅱ)对厌氧氨氧化活性污泥具有持续的毒性,这进一步说明Hg(Ⅱ)的累积毒性抑制了AnAOB活性的恢复。

2.3 运行性能与微生物特征的对比

为进一步分析2个反应器的恢复性能,采用高通量测序技术检测在长期断流前最后一天、恢复前最后一天与恢复阶段第52天的微生物群落结构变化,结果如图4所示。

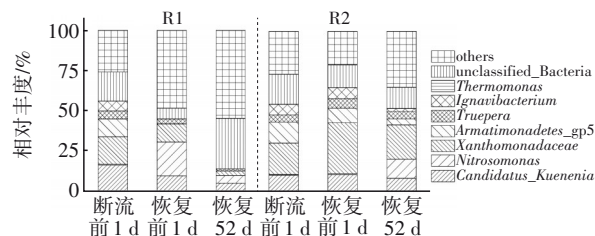


图4 属水平上的微生物群落分布

Fig.4 Distribution of microbial communities at genus level

由图4可知,2个反应器在不同阶段的AnAOB均为*Candidatus_Kuenenia*,在断流前的相对丰度分别为16.0%、10.3%,恢复前的相对丰度分别为9.4%、10.8%,长期饥饿后R2中AnAOB的相对丰度无明显变化,可能是由于断流前AnAOB在核糖体内储存能量,在断流期间将其用作能量^[17],R1与R2在恢复初期(1~3 d)的TN去除负荷分别为-0.201、 $0.027 \text{ kg}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$,虽然AnAOB的相对丰度变化不大,但其经过长期饥饿后活性较低。恢复阶段第52天,2个反应器中AnAOB的相对丰度分别为4.8%、8.4%,TN去除负荷分别为 0.294 、 $0.102 \text{ kg}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$,AnAOB的相对丰度与TN去除负荷呈负相关,分析其原因:①R1中的优势菌是AnAOB,而R2中则为反硝化菌(27.8%)和AOB(11.9%);②R1中检测到的未分类微生物较多,相对丰度达到37.4%,而在R2中仅为9.5%;③R2中Hg(Ⅱ)的累积毒性抑制了AnAOB活性。

2个反应器中的AOB均为*Nitrosomonas*,在断流前的相对丰度分别为0.6%、0.5%,恢复前的相对丰度分别为21.0%、0.5%,恢复初期氨氮去除率分别为47.4%、27.7%,AOB的相对丰度与氨氮去除率一致;在恢复阶段第52天,R1与R2中AOB的相对丰度分别为4.8%、11.9%,氨氮去除率分别为93.2%、58.9%。一方面,AOB的相对丰度与氨氮去除率呈负相关,出现这一现象的原因与AnAOB一致,因此,R1中有一部分氨氮去除率是AnAOB完成的;另一方面,R1中AOB的相对丰度在恢复前增加,恢复后减小,也可能是AOB更容易恢复活性,AnAOB在后期恢复活性后,开始消耗氨氮,AOB因此减少。2个反应器中微生物群落的对比结果表明,Hg(Ⅱ)的积累没有直接将AOB与AnAOB灭活,而是抑制了其脱氮活性。

2个反应器中的反硝化菌主要为*Truepera*、*Xanthomonadaceae*、*Ignavibacterium*。*Xanthomonadaceae*属于变形菌门,有研究认为其在SBR中具有反硝化作用^[18]。*Truepera*对环境具有高抵抗性^[19]。陈彦霖等^[20]认为*Ignavibacterium*属于厌氧异养菌,可能具有反硝化或异化硝酸盐还原功能。在断流前,R1中*Xanthomonadaceae*、*Truepera*、*Ignavibacterium*的相对丰度分别为17.2%、5.0%、6.1%,R2中为19.6%、4.4%、6.6%,2个反应器中反硝化菌的相对丰度无明显差异;恢复前,R1中*Xanthomonadaceae*、

Truepera、*Ignavibacterium*的相对丰度分别为11.3%、2.8%、0,R2中为31.8%、6.0%、7.0%,R2中反硝化菌的相对丰度增加,可能是在长期断流期间部分微生物由于缺乏基质逐渐死亡,反硝化菌利用菌体死亡裂解产生的有机物而生存;恢复阶段第52天,R1中*Xanthomonadaceae*、*Truepera*、*Ignavibacterium*的相对丰度分别为2.7%、1.4%、0,R2中为21.4%、4.6%、1.8%,说明R1的主要脱氮微生物是AOB与AnAOB,而R2则为AOB和反硝化菌,但R2并未表现出脱氮性能,可能是恢复阶段反硝化菌可利用的有机碳源较少,而且反硝化菌总相对丰度的下降也证明其因缺乏基质而死亡。因此,R2中的反硝化菌在恢复阶段没有起到脱氮作用。

2.4 Hg(II)暴露影响工艺恢复的机理

2个反应器经过长期饥饿后,恢复初期的脱氮性能均较差。R1能够成功恢复CANON工艺并稳定运行的主要原因是:①适当延长HRT。彭永臻等^[21]研究发现,在较低的氮负荷下,微生物可以分泌更多的胞外聚合物,而且降低氮负荷减小了对微生物的冲击,更有利于系统脱氮功能菌的恢复。Chen等^[22]研究发现,HRT从24~48 h下降到12 h,TN去除率从90%下降到80%。在本研究中,R1的HRT从第I阶段的6 h逐渐增加至第III阶段的12 h,TN去除率从-24.7%增加至(25.7±18.9)%,AnAOB有初步恢复的迹象。这充分说明适当延长HRT有利于微生物与基质充分接触,进一步促进微生物的生长。②适当调整曝气量,将反应器内DO浓度控制在0.1 mg/L,为AOB与AnAOB提供适宜的生存环境,同时有效抑制了NOB的活性。李亚峰等^[23]采用UASB反应器研究HRT、DO和有机物对厌氧氨氧化脱氮性能的影响,发现HRT和DO的影响较大,有机物的影响较小,同时DO较高时,虽然反应受到影响,但随之降低DO,脱氮性能可逐渐恢复。在本研究中,R1的曝气量从第III阶段的0.1 L/min增加至第IV阶段的0.2 L/min,TN去除率由(25.7±18.9)%增加至(68.8±10.8)%,这说明有效调控DO浓度是CANON工艺恢复的关键。因此,经过长期断流的自养脱氮污泥,可以采用提高HRT、降低氮负荷以及调控DO的方式进行微生物活性的恢复。

R1与R2在恢复前的运行条件完全相同,恢复期间的反应器形式、进水基质及浓度也相同,而R2采用同样的方式却没有成功恢复CANON工艺,主

要原因是:R2在长期断流前曾经在Hg(II)下长期暴露,再经过长达5个月的室温静置后导致AnAOB的活性难以恢复。有研究通过批量实验发现^[24],Hg(II)的半抑制浓度(IC₅₀)为2.3 mg/L,厌氧氨氧化活性污泥具有较高的重金属累积能力,这也是活性被抑制的关键原因,同时活性污泥和胞外聚合物所具有的官能团可能有助于重金属的吸附。此外,在Hg(II)暴露下,胍脱氢酶活性和血红素C浓度也降低^[16],这说明Hg(II)容易吸附在微生物细胞内。有研究评估了铜、镉和汞在不同剂量单独或联合添加对微生物群落结构的短期影响,结果表明,金属毒性存在累积效应^[25]。Pei等^[26]研究表明,Hg的累积能力很强,可以使微生物群落结构发生改变。在开始恢复的第1天R2出水中也检测到了微量的Hg(II),Hg(II)在微生物细胞内长期存在,抑制了AnAOB活性,导致其难以恢复。在恢复阶段的第52天,R2中的优势菌属是AOB和反硝化菌,也进一步证明了Hg(II)对AnAOB的持久抑制性。此外,R2的氨氮去除率和亚硝态氮积累率平均值分别为60.9%、92.3%,整个系统已由断流前的CANON工艺转变为短程硝化工艺。在实际应用中,一方面,由于NOB难以被抑制,导致短程硝化工艺很难实现,R2的污泥可以直接作为短程硝化的种泥来源,解决短程硝化工艺启动难的问题;另一方面,R2的污泥可以与厌氧氨氧化反应器串联,成为两级式的短程硝化-厌氧氨氧化工艺,但不能单独作为厌氧氨氧化污泥发挥脱氮作用。

3 结论

① 未经Hg(II)暴露的R1在长期断流后,经过55 d的运行,TN去除率恢复至(68.8±10.8)%;而经过Hg(II)长期暴露的R2,TN去除率始终低于30%,亚硝态氮积累率达到(93.5±6.5)%,CANON工艺转变为短程硝化工艺。Hg(II)在微生物细胞内难以排出而长期积累,使AnAOB受到了Hg(II)的持久性抑制,从而导致CANON工艺未成功恢复。

② 高通量测序结果表明,R1中AnAOB和AOB的相对丰度在断流前分别为16.0%、0.6%,恢复前为9.4%、21.0%,恢复后为4.8%、4.8%;而在R2中,长期断流前分别为10.3%、0.5%,恢复前为10.8%、0.5%,恢复后为8.4%、11.9%。

③ 经过长期断流的自养脱氮污泥,可以采用

提高HRT、降低氮负荷以及调控DO的方式进行微生物活性的恢复;经过Hg(Ⅱ)长期暴露后,再经过长期断流的自养脱氮污泥可以作为短程硝化的种泥来源,与厌氧氨氧化反应器串联发挥脱氮作用。

参考文献:

- [1] KARTAL B, KUENEN J, LOOSDRECHT M. Sewage treatment with Anammox [J]. *Science*, 2010, 328: 702-703.
- [2] 张肖静,傅浩强,张楠,等. 低基质厌氧氨氧化滤柱的快速启动及稳定运行[J]. *轻工学报*, 2018, 33(4): 42-49.
ZHANG Xiaojing, FU Haoqiang, ZHANG Nan, *et al.* Rapid start-up and stable operation of low-matrix anammox filtration for treating low nitrogen sewage [J]. *Journal of Light Industry*, 2018, 33(4): 42-49 (in Chinese).
- [3] YIN Z X, DOS SANTOS C E D, VILAPLANA J G, *et al.* Importance of the combined effects of dissolved oxygen and pH on optimization of nitrogen removal in anammox-enriched granular sludge [J]. *Process Biochemistry*, 2016, 51(9): 1274-1282.
- [4] ISANTA E, BEZERRA T, FERNANDEZ I, *et al.* Microbial community shifts on an anammox reactor after a temperature shock using 454-pyrosequencing analysis [J]. *Bioresource Technology*, 2015, 181: 207-213.
- [5] XU D D, KANG D, DING A Q, *et al.* Response of FANIR system to starvation stress: "dormancy" [J]. *Water Research*, 2020, 171: 115380.
- [6] YE L H, LI D, ZANG J, *et al.* Resuscitation of starved anaerobic ammonium oxidation sludge system: impacts of repeated short-term starvation [J]. *Bioresource Technology*, 2018, 263: 458-466.
- [7] JOSS A, SALZGEBER D, EUGSTER J, *et al.* Full-scale nitrogen removal from digester liquid with partial nitrification and anammox in one SBR [J]. *Environmental Science & Technology*, 2009, 43(14): 5301-5306.
- [8] LIANG Z, LIU J X. Landfill leachate treatment with a novel process: anaerobic ammonium oxidation (Anammox) combined with soil infiltration system [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2008, 151(1): 202-212.
- [9] MAO Y X, CHENG L, MA B J, *et al.* The fate of mercury in municipal wastewater treatment plants in China: significance and implications for environmental cycling [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2016, 306: 1-7.
- [10] MANOHAR D M, ANOOP KRISHNAN K, ANIRUDHAN T S. Removal of mercury (Ⅱ) from aqueous solutions and chlor-alkali industry wastewater using 2-mercaptobenzimidazole-clay [J]. *Water Research*, 2002, 36(6): 1609-1619.
- [11] WAGNER-DBLER I. Pilot plant for bioremediation of mercury-containing industrial wastewater [J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2003, 62(2/3): 124-133.
- [12] CHEN Z, ZHANG X J, MA Y P, *et al.* Anammox biofilm system under the stress of Hg(Ⅱ): nitrogen removal performance, microbial community dynamic and resistance genes expression [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2020, 395: 122665.
- [13] 何丽金,王少坡,毕艳孟,等. 长期饥饿后SPNA微颗粒污泥系统性能恢复[J]. *中国环境科学*, 2021, 41(12): 5646-5653.
HE Lijin, WANG Shaopo, BI Yanmeng, *et al.* Performance recovery of SPNA micro-granular sludge system after long-term starvation [J]. *China Environmental Science*, 2021, 41(12): 5646-5653 (in Chinese).
- [14] ZHANG X, ZHOU Y, ZHANG N, *et al.* Effect of CuO nanoparticles on ammonia removal and EPS secretion of CANON sludge in the presence of nitrite suppression [J]. *Environmental Technology*, 2018, 39(19): 2551-2558.
- [15] STROUS M, FUERST J A, KRAMER E H, *et al.* Missing lithotroph identified as new planctomycete [J]. *Nature*, 1999, 400(6743): 446-449.
- [16] BI Z, QIAO S, ZHOU J T, *et al.* Inhibition and recovery of Anammox biomass subjected to short-term exposure of Cd, Ag, Hg and Pb [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2014, 244: 89-96.
- [17] XING B S, GUO Q, JIANG X Y, *et al.* Long-term starvation and subsequent reactivation of anaerobic ammonium oxidation (anammox) granules [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2016, 287: 575-584.
- [18] MERZOUKI M, DELGENÈS J, BERNET N, *et al.* Polyphosphate-accumulating and denitrifying bacteria isolated from anaerobic-anoxic and anaerobic-aerobic sequencing batch reactors [J]. *Current Microbiology*, 1999, 38: 9-17.
- [19] ZHANG Y, CHEN L J, SUN R H, *et al.* Effect of

- wastewater disposal on the bacterial and archaeal community of sea sediment in an industrial area in China [J]. FEMS Microbiology Ecology, 2014, 88 (2): 320-332.
- [20] 陈彦霖, 隋倩雯, 姜黎安, 等. 厌氧氨氧化菌快速富集培养及微生物机制解析[J]. 中国给水排水, 2018, 34(13): 26-31.
CHEN Yanlin, SUI qianwen, JIANG Li' an, *et al.* Quick enrichment of anammox bacteria and microbial community mechanism analysis [J]. China Water & Wastewater, 2018, 34(13): 26-31 (in Chinese).
- [21] 彭永臻, 王锦程, 李翔晨, 等. 氮负荷对短程反硝化耦合厌氧氨氧化生物膜系统脱氮性能的影响[J]. 北京工业大学学报, 2021, 47(12): 1367-1376.
PENG Yongzhen, WANG Jincheng, LI Xiangchen, *et al.* Effect of nitrogen loading rates on nitrogen removal performance of partial denitrification coupling with anammox biofilm system [J]. Journal of Beijing University of Technology, 2021, 47(12): 1367-1376 (in Chinese).
- [22] CHEN C J, ZHU W J, HUANG X X, *et al.* Effects of HRT and loading rate on performance of carriers-amended Anammox UASB reactors [J]. Water Environment Research, 2018, 89(1): 43-50.
- [23] 李亚峰, 于耀滢, 杨嗣靖, 等. HRT, DO和有机物对厌氧氨氧化脱氮性能的影响研究[J]. 工业水处理, 2020, 40(8): 27-31.
- LI Yafeng, YU Yaofu, YANG Sijing, *et al.* The impact of HRT, DO and organic matter on the nitrogen removal performance of anammox [J]. Industrial Water Treatment, 2020, 40(8): 27-31 (in Chinese).
- [24] YU C, SONG Y X, CHAI L Y, *et al.* Comparative evaluation of short-term stress of Cd(II), Hg(II), Pb(II), As(III) and Cr(VI) on anammox granules by batch test [J]. Journal of Bioscience and Bioengineering, 2017, 122(6): 722-729.
- [25] RANJARD L, LIGNIER L, CHAUSSOD R, *et al.* Cumulative effects of short-term polymetal contamination on soil bacterial community structure [J]. Applied and Environmental Microbiology, 2006, 72 (2): 1684-1687.
- [26] PEI P G, SUN T, XU Y M, *et al.* Soil aggregate-associated mercury (Hg) and organic carbon distribution and microbial community characteristics under typical farmland-use types [J]. Chemosphere, 2021, 275: 129987.
-
- 作者简介: 马冰冰(1997-), 女, 河南开封人, 硕士研究生, 主要研究方向为污水生物处理。
E-mail: 846837964@qq.com
收稿日期: 2023-02-08
修回日期: 2023-04-22

(编辑: 刘贵春)

加快推动发展方式绿色低碳转型,
因地制宜发展新质生产力,
积极稳妥推进碳达峰碳中和