



文章栏目: 水污染防治

DOI 10.12030/j.cjee.202004034

中图分类号 X703.1

文献标识码 A

赵良杰, 彭党聪, 吕恺, 等. 一段式部分亚硝化-厌氧氨氧化工艺处理中低浓度模拟氨氮废水[J]. 环境工程学报, 2021, 15(1): 143-151.

ZHAO Liangjie, PENG Dangcong, LYU Kai, et al. Treatment of simulated medium and low-strength ammonia wastewater by single-stage partial nitrification-anammox process[J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2021, 15(1): 143-151.

一段式部分亚硝化-厌氧氨氧化工艺处理中低浓度模拟氨氮废水

赵良杰^{1,2}, 彭党聪^{1,2,*}, 吕恺^{1,2}, 王静³

1. 西安建筑科技大学环境与市政工程学院, 西安 710055

2. 西北水资源与环境生态教育部重点实验室, 西安 710055

3. 中国市政工程设计院华北设计研究总院有限公司西安分公司, 西安 710016

第一作者: 赵良杰(1995—), 女, 硕士研究生。研究方向: 污水处理理论与技术。E-mail: zlj119951247@163.com

*通信作者: 彭党聪(1957—), 男, 硕士, 教授。研究方向: 污水处理理论与技术。E-mail: dcpeng@xauat.edu.cn

摘要 采用序批式反应器(sequencing batch reactor, SBR)研究了一段式部分亚硝化-厌氧氨氧化工艺处理中低浓度氨氮废水的运行稳定性。结果表明, 在温度为 35 ℃、进水氨氮浓度为 200 mg·L⁻¹、溶解氧为 0.2~0.4 mg·L⁻¹ 条件下, 一段式部分亚硝化-厌氧氨氧化反应器去除负荷(以 TN 计)可达到 0.24 kg·(m³·d)⁻¹, 平均去除率为 75.84%, 成功实现了一段式部分亚硝化-厌氧氨氧化的稳定运行。污泥中氨氧化菌(ammonia oxidizing bacteria, AOB)和厌氧氨氧化菌(anaerobic ammonia oxidation, Anammox)活性(以 NH₄⁺-N 计)分别稳定在 877.24 mg·(g·d)⁻¹ 和 127.61 mg·(g·d)⁻¹, 亚硝酸氧化菌(nitrite oxidizing bacteria, NOB)活性由 60.84 mg·(g·d)⁻¹(以 NO₂⁻-N 计)下降至 18.54 mg·(g·d)⁻¹, NOB 被成功抑制, AOB 与 Anammox 菌之间形成良好的协同作用, 保证了稳定的脱氮效果。FISH 结果表明, 污泥中的优势菌为 AOB 和 Anammox 菌, 从微生物角度佐证了一段式部分亚硝化-厌氧氨氧化反应器维持较好脱氮效果的长期运行稳定性。一段式部分亚硝化厌氧氨氧化工艺的稳定运行可为厌氧氨氧化技术处理中低浓度氨氮废水提供参考。

关键词 部分亚硝化; 厌氧氨氧化; 一段法; 间歇曝气; 氨氮; 亚硝氮积累

厌氧氨氧化(anaerobic ammonia oxidation, Anammox)是指在缺氧条件下, Anammox 菌利用 NO₂⁻-N 氧化 NH₄⁺-N, 最终生成 N₂ 和少量 NO₃⁻-N 的过程^[1-2]。一段式部分亚硝化-厌氧氨氧化工艺是将氨氮的亚硝化和厌氧氨氧化集成在一个反应器中, 从而一步实现氨氮的高效去除。与传统硝化反硝化工艺相比, 一段式部分亚硝化-厌氧氨氧化工艺具有无需消耗有机碳源、节省 60% 的曝气量和污泥产率低等显著优势^[3-5]。

目前, 该工艺已成功用于处理高氨氮废水, 如污泥消化液、垃圾渗滤液及畜牧业废水等^[6-8]。截至 2014 年, 全球已有 100 座以厌氧氨氧化工艺运行的污水处理工程, 其中, 88% 采用一段式部分亚硝化-厌氧氨氧化^[9]。一段式部分亚硝化-厌氧氨氧化稳定运行的关键在于维持反应器中氨氧化

收稿日期: 2020-04-07; 录用日期: 2020-05-30

基金项目: 陕西省 2019 年重点研发计划(2019ZDLSF06-05)

菌 (ammonia oxidizing bacteria, AOB) 和 Anammox 菌优势生长, 同时抑制亚硝酸氧化菌 (nitrite oxidizing bacteria, NOB)^[10-11]。现有研究表明, 在高氨氮环境下, 通过控制溶解氧 (dissolved oxygen, DO)、pH、游离氨 (free ammonia, FA)、游离亚硝酸 (free nitrite acid, FNA) 和污泥龄^[12-16]等均可实现抑制或者淘汰 NOB, 从而达到高氨废水的高效稳定脱氮。然而, 在中低浓度 (无厌氧消化的城市污水处理厂污泥水及部分工业废水) 条件下, FA 或 FNA 的浓度较低, 对 NOB 的抑制作用减弱甚至消失。而有研究^[17]发现, 仅通过低溶解氧很难实现对 NOB 的长期抑制。MIAO 等^[18]在研究一段式部分亚硝化-厌氧氨氧化处理中低浓度氨氮废水时发现, 在低溶解氧 (0.17 ± 0.08) $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 条件下, 出水 NO_3^- -N 浓度快速上升, TN 去除率下降至 14.7%, 这表明低溶解氧并未有效抑制 NOB。因此, 探究在中低浓度下一段式部分亚硝化-厌氧氨氧化工艺的的稳定运行具有重要意义。

本研究采用序批式反应器 (sequencing batch reactor, SBR), 通过控制溶解氧浓度 ($0.2\sim 0.4$ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$), 以间歇曝气的方式启动并连续运行一段式亚硝化-厌氧氨氧化, 对反应器的脱氮性能进行了分析评价, 同时测定了 AOB、NOB 和 Anammox 的活性变化, 并采用荧光原位杂交 (fluorescent in situ hybridization, FISH) 对污泥中功能微生物的群落结构进行了分析, 以期为一阶段式部分亚硝化-厌氧氨氧化提供理论基础和潜在的技术支持。

1 材料与方法

1.1 实验装置及运行

SBR 有效容积为 5 L, 水力停留时间 (hydraulic retention time, HRT) 为 15 h, 运行期间不排泥。反应器采用 PLC 控制系统实现自动控制, 设定运行周期为 6 h, 其中进水 10 min、反应时间 300 min (曝气 30 min (好氧)、搅拌 45 min (缺氧), 依次循环往复)、沉淀 30 min、排水 10 min、闲置 10 min。反应温度为 (35 ± 1) $^{\circ}\text{C}$, DO 控制在 $0.2\sim 0.4$ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$, pH 维持在 7.5~8.0。外部用锡箔纸包裹进行避光处理。

1.2 实验用水

实验用水采用人工配制, 其成分为 200 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ NH_4^+ -N (NH_4Cl)、 $1000\sim 2000$ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ KHCO_3 、 180 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ $\text{CaCl}_2\cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 、 100 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ $\text{MgSO}_4\cdot 7\text{H}_2\text{O}$ 、 50 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ KH_2PO_4 、微量元素 I 和微量元素 II 各 1 $\text{mL}\cdot\text{L}^{-1}$ 。微量元素 I 组分为 5 $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ EDTA、 9.14 $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ $\text{FeSO}_4\cdot 7\text{H}_2\text{O}$; 微量元素 II 组分为 0.43 $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ $\text{ZnSO}_4\cdot 7\text{H}_2\text{O}$ 、 0.24 $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ $\text{CoCl}_2\cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 、 0.99 $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ $\text{MnCl}_2\cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 、 0.25 $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ $\text{CuSO}_4\cdot 5\text{H}_2\text{O}$ 、 0.22 $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ $\text{NaMoO}_4\cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 、 0.19 $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ $\text{NiCl}_2\cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 、 0.21 $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ $\text{NaSeO}_4\cdot 10\text{H}_2\text{O}$ 、 0.014 $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ H_3BO_3 ^[19-21]。

1.3 接种污泥及策略

亚硝化阶段反应器接种污泥取自实验室稳定运行的亚硝化反应器, 接种量为 1.2 $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, AOB 活性 (以 NH_4^+ -N 计, 下同) 为 1258.62 $\text{mg}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$, NOB 活性 (以 NO_2^- -N 计, 下同) 281.02 $\text{mg}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$ 。通过溶解氧和 FA 的双重抑制实现亚硝化反应器的稳定运行, 在亚硝化反应器出水 NO_2^- -N 与 NH_4^+ -N 浓度之比接近 1 时, 接种厌氧氨氧化污泥启动一段式部分亚硝化-厌氧氨氧化, 反应器运行参数维持不变。Anammox 接种污泥取自以 SBR 方式稳定运行的厌氧氨氧化反应器, Anammox 活性 (以 NH_4^+ -N 计, 下同) 为 315.25 $\text{mg}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$, 该污泥颗粒化程度良好, 外观呈红棕色, 接种量为 1.72 $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 接种后的污泥浓度为 2.92 $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 。

1.4 常规水质及工艺参数测定

实验中各项常规水质指标测定按标准方法进行^[22]。 NH_4^+ -N 的测定采用纳氏试剂分光光度法, NO_2^- -N 的测定采用 N-(1-萘基)-乙二胺分光光度法, NO_3^- -N 的测定采用紫外分光光度法。pH 由在线式 pH 计 (Inpro 4010, 梅特勒) 测定。DO 由在线式溶氧仪 (Inpro 6050, 梅特勒) 测定。MLSS 和 MLVSS 均采用重量法。

游离氨 (FA) 和游离亚硝酸 (FNA) 值^[23] 按照式 (1) 和式 (2) 进行计算。

$$C_{FA} = \frac{C_{t,NH_3} 10^{pH}}{e^{6.344/(273+T)} + 10^{pH}} \quad (1)$$

$$C_{FNA} = \frac{C_{t,NO_2}}{(1 + e^{-2.300/(273+T)}) 10^{pH}} \quad (2)$$

式中： C_{FA} 为游离氨浓度， $mg \cdot L^{-1}$ ； C_{FNA} 为游离亚硝酸浓度， $mg \cdot L^{-1}$ ； C_{t,NH_3} 为总氨氮浓度， $mg \cdot L^{-1}$ ； C_{t,NO_2} 总亚硝酸盐浓度， $mg \cdot L^{-1}$ ； T 为温度， $^{\circ}C$ 。

1.5 活性的测定

1) 硝化活性测定。从反应器中取 400 mL 泥水混合液，经去离子水淘洗后分别置于 2 个 500 mL 广口瓶中，分别加入 NH_4Cl (NH_4^+-N 为 $40 mg \cdot L^{-1}$)、 $NaNO_2$ ($NO_2^- -N$ 为 $30 mg \cdot L^{-1}$)，随后用去离子水定容至 400 mL，并在 $35^{\circ}C$ 条件下充分曝入空气，每间隔 10 min 从广口瓶中取样分别测定 NH_4^+-N 和 $NO_2^- -N$ 的浓度，取样结束后，分别测量 MLVSS 并计算 AOB 和 NOB 的活性。

2) 厌氧氨氧化活性测定。从反应器中取 400 mL 泥水混合液，经去离子水淘洗后，置于 500 mL 广口瓶中，同时加入基质 NH_4Cl 、 $NaNO_2$ 和微量元素 (NH_4^+-N 浓度为 $30 mg \cdot L^{-1}$ 、 $NO_2^- -N$ 为 $40 mg \cdot L^{-1}$)，然后使用去离子水定容至 400 mL，在 $35^{\circ}C$ 条件下采用高纯氮气进行曝气以维持缺氧环境，每间隔 20 min 取样测定 NH_4^+-N 的浓度，pH 控制在 7.5~8.3，取样结束后，测量 MLVSS 并计算 Anammox 的活性。

1.6 荧光原位杂交

Anammox 菌和硝化菌的荧光原位杂交参照 AMANN 等^[24] 描述方法进行。杂交后的污泥样品通过激光共聚焦显微镜 (TCS SP8, 莱卡) 进行观察，并在 100 倍物镜下采集图像。实验所用探针如表 1 所示。

表 1 荧光原位杂交所用的探针

Table 1 Probes used in FISH test

探针名称	RNA 序列(5'-3')	标记细菌种属	来源
Eub338	GCTGCCTCCCGTAGGAGT	<i>Eubacteria</i>	[25-26]
Eub338 II	GCAGCCACCCGTAGGTGT	<i>Eubacteria</i>	[25-26]
Eub338 III	GCTGCCACCCGTAGGTGT	<i>Eubacteria</i>	[25-26]
Nso1225	CGCCATTGTATTACGTGTGA	<i>Betaproteobacterial ammonia-oxidizing bacteria</i>	[27]
NmV	TCCTCAGAGACTACGCGG	<i>Nitrosococcus mobilis</i>	[28]
Cluster6a 192	CTTTCGATCCCCTACTTTCC	<i>Nitrosomonas oligotropha lineage</i>	[29]
Ntspa662	GGAATTCGCGCTCCTCT	<i>Genus Nitrospira</i>	[30]
Nit3	CCTGTGCTCCATGCTCCG	<i>Genus Nitrobacter</i>	[31]
Nsm156	TATTAGCACATCTTTCGAT	<i>Nitrosomonas</i>	[27]
Nsv443	CCGTGACCGTTTCGTTCCG	<i>Nitroso-spira, -lobus, -vibrio</i>	[27]
AMX368	CCT TTC GGG CAT TGG GAA	<i>All anammox bacteria</i>	[32]

2 结果与讨论

2.1 SBR 运行效果

反应器连续运行 110 d，运行效果见图 1。在亚硝化运行阶段 (0~44 d)，通过控制 DO 和 FA 浓度实现了 AOB 的富集和 NOB 的抑制，从而获得较大的氨氧化速率和较高的亚硝酸盐积累率。在反应器运行初期 (1~13 d)，出水 NH_4^+-N 浓度较高，对应的 FA 浓度高达 $10 mg \cdot L^{-1}$ 以上，此阶段内不

仅 NOB 被完全抑制 (FA 阈值为 $1.0 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$), AOB 也被部分抑制 (FA 阈值 $10 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$)^[23]; 随着运行时间的延长, AOB 逐渐适应, 出水 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 浓度逐渐降低, $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 浓度逐渐增高, 到第 18 天时, 出水氨氮浓度已经降至 $101.30 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 浓度达到 $83.23 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 出水 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 与 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 浓度之比为 0.82, 亚硝酸盐积累率达到了 86%, 其后出水 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 与 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 浓度之比稳定在 0.8~1.03。在此期间, 出水 FA 平均浓度为 $4.40 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 大于 NOB 抑制阈值 ($1 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$)^[23], 反应器内溶解氧浓度为 $0.2\sim 0.4 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 由于 AOB 对氧的亲合力大于 NOB, 溶解氧优先被 AOB 利用^[33-34], 表明此阶段 NOB 受到 DO 和 FA 的双重抑制作用。反应器出水的 pH 维持在 7.5~8.0, 即使在 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 浓度为 $98.87 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 的情况下, FNA 的浓度也小于 NOB 的抑制浓度 ($0.023 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$)^[35], 这说明采用 FNA 抑制 NOB 的策略只有在高氨废水时才有可能实现。

当反应器接种厌氧氨氧化菌转入一段式亚硝化-厌氧氨氧化方式运行后 (45~110 d), 在曝气阶段, AOB 可正常工作进行亚硝化; 在停止供氧后, Anammox 菌利用亚硝化产生亚硝酸, 对氨进行氧化。因此, 出水 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 浓度迅速降低, 而 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 浓度在增加, 这说明亚硝化和厌氧氨氧化协同作用发生。随着运行时间的延长, 污泥中的 AOB 活性逐渐增加, 出水 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 浓度也逐渐降低。到 70 d 时, 出水 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 为 $26.81 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 浓度在 $1 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 以下, $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 浓度为 $24.10 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 反应器氨氮去除率和 TN 去除率分别达到 86.60% 和 73.75%, 其后

反应器出水维持稳定, 直至运行结束。在进入该反应阶段后, 由于进行了 Anammox 反应, 出水 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 浓度的降低使得出水中 FA 浓度相应降低, 但 FA 浓度处于抑制 NOB 的阈值范围内, 因此, NOB 会受到 FA 的抑制作用, 使系统中的 Anammox 菌能稳定利用 AOB 转化的亚硝酸盐进行 Anammox 反应, 为一段式亚硝化-厌氧氨氧化反应器的稳定运行和获得较好的脱氮效果奠定了基础。韩志勇等^[36]通过控制曝气时间和曝气量, 采用 MBR 研究了一段式部分亚硝化-厌氧氨氧化处理氨氮废水的运行特性, 在进水氨氮浓度为 $200 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 条件下, 氨氮和 TN 去除率分别为 88.91% 和 58.87%。而本研究采用 SBR 反应器在低溶解氧条件下, 获得较高的 AOB 和 Anammox 活性 (图 2), 成功实现了一段式部分亚硝化-厌氧氨氧化的稳定运行, 从而获得较好的脱氮效果。

2.2 典型周期 DO 及氮浓度的变化

图 2 为一段式亚硝化-厌氧氨氧化阶段典型周期内 DO、pH、氮素及 FA 浓度的变化。由图 2 可见, 在进水结束后, 由于进水中含有一定量的 DO, 首个好氧段的 DO 浓度可达 $0.6 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 以上,

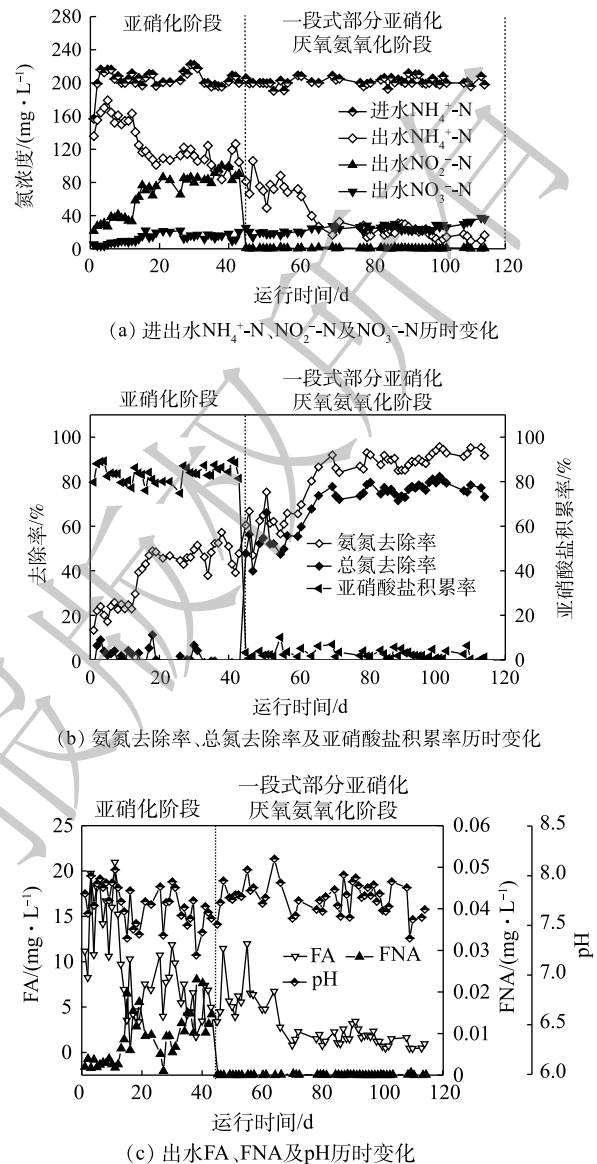


图 1 反应器运行效果

Fig. 1 Performance of reactor

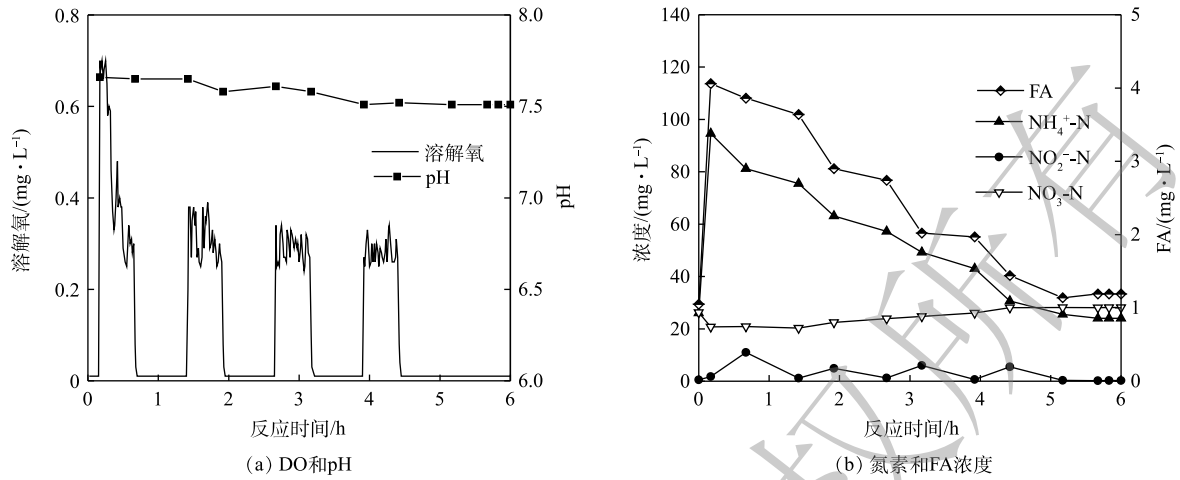


图 2 典型周期内 DO、pH、氮素和 FA 浓度变化

Fig. 2 Variations of DO, pH, nitrogen and FA concentrations during a typical cycle

随着反应的进行，DO 浓度快速下降并趋于稳定，而其余好氧段的 DO 浓度始终维持在 0.2~0.4 mg·L⁻¹，为亚硝化创造了良好的条件。在好氧段，氨氧化菌工作，NH₄⁺-N 被氧化为 NO₂⁻-N，导致 NH₄⁺-N 下降和 NO₂⁻-N 增加；在随后的缺氧段，Anammox 菌开始工作，利用好氧段产生的 NO₂⁻-N 氧化 NH₄⁺-N，导致 NH₄⁺-N 和 NO₂⁻-N 浓度同时减少；其后循环往复，直至反应结束，此时，NH₄⁺-N 浓度由周期起始时的 95.76 mg·L⁻¹ 降低到 27.06 mg·L⁻¹，NO₂⁻-N 浓度在 1 mg·L⁻¹ 以下。由于好氧段部分 NO₂⁻-N 被 NOB 氧化为 NO₃⁻-N 和缺氧段厌氧氨氧化反应产生部分 NO₃⁻-N，导致整个周期内 NO₃⁻-N 浓度持续上升，由周期起始最低时的 20.76 mg·L⁻¹ 增加到周期结束时的 28.28 mg·L⁻¹。在整个周期内，混合液中的 FA 浓度大于 1 mg·L⁻¹，大于 FA 对 NOB 的抑制阈值，从而使得 NOB 被部分抑制。在周期内 DO 和 FA 的浓度变化结果说明本反应器的操作达到了 DO 和 FA 对 NOB 的双重抑制，通过间歇曝气在 SBR 中实现了一段式亚硝化-厌氧氨氧化脱氮。

值得注意的是，在好氧段 NH₄⁺-N 浓度平均下降了约 10 mg·L⁻¹，而 NO₂⁻-N 浓度平均增加了 5.61 mg·L⁻¹，NO₃⁻-N 浓度增加了不到 1 mg·L⁻¹，约 40% 的氮在好氧段损失 (被 Anammox 菌转化为氮气)，氮平衡计算结果间接表明，在好氧段发生了同步亚硝化-厌氧氨氧化过程。这一结果说明在连续曝气 (低 DO) 的条件下，同样可实现一段式亚硝化-厌氧氨氧化。

2.3 污泥浓度及活性变化

图 3 和图 4 分别为反应器运行期间污泥浓度和各功能微生物活性变化。由图 3 可知，污泥浓度基本维持稳定，在亚硝化阶段污泥浓度维持稳定在 1.2 g·L⁻¹ 左右，接种厌氧氨氧化污泥后，污泥

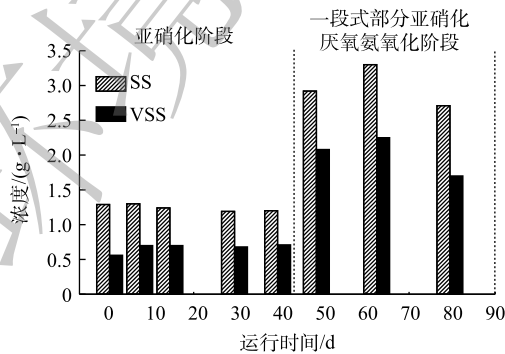


图 3 反应器中污泥浓度的变化

Fig. 3 Variations of sludge concentration in the reactor

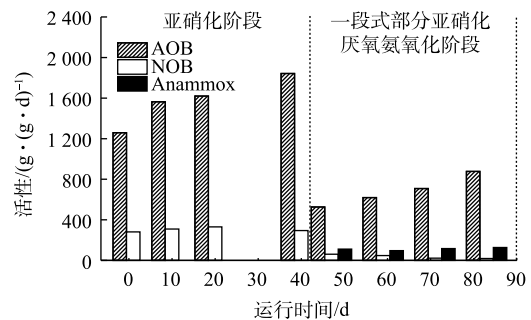


图 4 反应器中 AOB、NOB 及 Anammox 活性变化

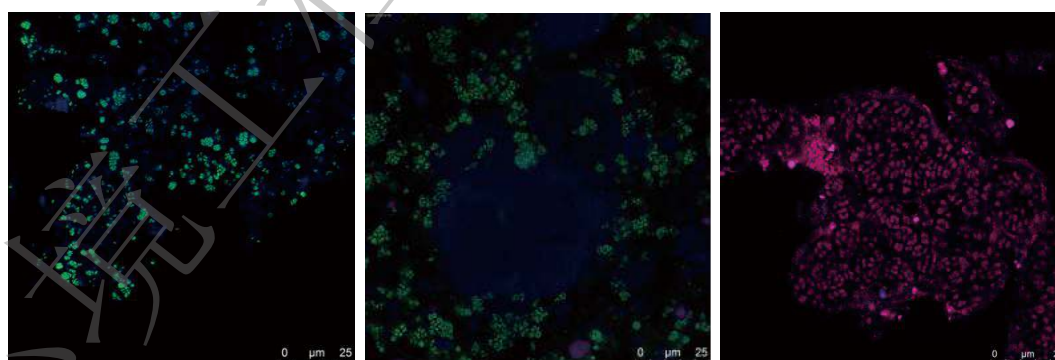
Fig. 4 Variations in activities of AOB, NOB and Anammox in the reactor

浓度稳定在 $2.8 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 。由图4可知,在亚硝化阶段,AOB活性逐渐升高,由 $1\,258.62 \text{ mg}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$ 升至 $1\,842.80 \text{ mg}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$,而NOB活性由于受到溶解氧和FA的双重抑制而稳定在 $281.02\sim 330.03 \text{ mg}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$ 。在此阶段,AOB活性快速上升而NOB活性维持稳定,上述结果表明,反应器在成功富集培养AOB的同时,也有效抑制了NOB,从而实现了亚硝酸盐的稳定积累。

接种厌氧氨氧化污泥后,污泥浓度的增加,污泥中AOB和NOB所占份额下降而导致AOB和NOB的活性分别下降至 $526.13 \text{ mg}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$ 和 $60.84 \text{ mg}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$ 。由图4可知,随着反应器的运行,AOB活性总体呈现升高的趋势,最终活性达到 $815 \text{ mg}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$ 。而此阶段NOB受到DO和FA的双重抑制,在与Anammox菌竞争 NO_2^- -N时处于劣势,这使得NOB活性始终处于较低水平并呈下降趋势,最低下降至 $18.54 \text{ mg}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$ 。Anammox活性在接种后略有下降,这主要是由于Anammox菌未适应好氧/缺氧交替环境,在运行一段时间后,Anammox活性开始恢复并缓慢增加,其平均和最大活性分别为 $113.09 \text{ mg}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$ 和 $127.61 \text{ mg}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$ 。由此可见,AOB和Anammox菌在反应器中优势生长,反应器内微生物之间形成良好的协同作用,系统具有良好的运行稳定性和较好的脱氮效果。李军等^[37]采用间歇曝气模式启动一段式亚硝化-厌氧氨氧化反应器处理中低浓度废水,在稳定运行后,AOB和Anammox活性分别为 $403 \text{ mg}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$ 和 $221 \text{ mg}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$ 。MIAO等^[38]研究认为,AOB活性是一段式部分亚硝化-厌氧氨氧化在间歇曝气模式下稳定运行的关键因素,Anammox活性随着AOB活性的增加而增加,反应器的脱氮效果也随之上升。本研究中AOB和Anammox活性逐渐上升,NOB活性逐渐下降,AOB和Anammox活性远大于NOB,更有利于一段式亚硝化-厌氧氨氧化反应器的长期稳定运行。

2.4 微生物污泥 FISH 分析

反应器中AOB、NOB及Anammox的FISH图像如图5所示。由图5可见,在亚硝化阶段,AOB所占份额较高,而基本检测不出NOB。这表明在亚硝化阶段通过低溶解氧和FA的双重抑制成功富集AOB的同时也达到了抑制NOB的目的,实现了亚硝化的稳定运行。在一段式亚硝化-厌氧氨氧化阶段中,AOB和Anammox菌所占份额明显高于NOB,这说明此阶段AOB和Anammox菌为反应器中的优势菌,从微生物角度表明一段式亚硝化-厌氧氨氧化反应器可实现良好的脱氮效果和长期运行稳定性。



(a) 20 d (AOB和NOB)

(b) 85 d (AOB和NOB)

(c) 85 d (Anammox)

注:蓝色表示EUB;绿色表示AOB;紫红色表示NOB;粉色表示AMX, Bar=25 μm。

图5 反应器中AOB、NOB及Anammox FISH图

Fig. 5 FISH pictures of AOB, NOB and Anammox bacteria in reactor

3 结论

1) 在温度为 $35\text{ }^\circ\text{C}$ 、进水 NH_4^+ -N浓度为 $200 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、DO浓度为 $0.2\sim 0.4 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 条件下,一段式亚硝化-厌氧氨氧化反应器处理负荷(以TN计)可达到 $0.24 \text{ kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$,TN平均去除率为 75.84% ,成

功实现了一段式部分亚硝化-厌氧氨氧化的稳定运行。

2) 反应器内 AOB 和 Anammox 菌形成良好的协同作用并有效抑制 NOB, 一段式部分亚硝化-厌氧氨氧化具有较好的运行稳定性。

3) 一段式亚硝化-厌氧氨氧化反应器的成功启动并稳定运行, 为 Anammox 技术处理中低浓度氨氮废水提供了参考。

参 考 文 献

- [1] 郑平, 徐向阳, 胡宝兰. 新型生物脱氮技术[M]. 北京: 科学出版社, 2004.
- [2] KUENEN J G. Anammox bacteria: from discovery to application[J]. *Nature Reviews Microbiology*, 2008, 6(4): 320-326.
- [3] KARTAL B, KUENEN J G, VAN LOOSDRECHT M C M. Sewage treatment with anammox Science[J]. *Science*, 2010, 328: 702-703.
- [4] ALI M, OSHIKI M, OKABE S. Simple, rapid and effective preservation and reactivation of anaerobic ammonium oxidizing bacterium *Candidatus Brocadia sinica*[J]. *Water Research*, 2014, 57: 215-222.
- [5] YANG W, HE S L, HAN M, et al. Nitrogen removal performance and microbial community structure in the start-up and substrate inhibition stages of an anammox reactor[J]. *Journal of Bioscience & Bioengineering*, 2018, 126(1): 88-95.
- [6] MIAO Y Y, PENG Y Z, ZHANG L, et al. Partial nitrification-anammox (PNA) treating sewage with intermittent aeration mode: Effect of influent C/N ratios[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2018, 334: 664-672.
- [7] MIAO L, WANG K, WANG S, et al. Advanced nitrogen removal from landfill leachate using real-time controlled three-stage sequence batch reactor (SBR) system[J]. *Bioresource Technology*, 2014, 159: 258-265.
- [8] MOLINUEVO B, GARCIA M C, KARAKASHEV D, et al. Anammox for ammonia removal from pig manure effluents: Effect of organic matter content on process performance[J]. *Bioresource Technology*, 2009, 100(7): 2171-2175.
- [9] 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.
- [10] HU Y H, ZHAO X H, ZHAO Y Z. Achieving high-rate autotrophic nitrogen removal via Canon process in a modified single bed tidal flow constructed wetland[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2014, 237: 329-335.
- [11] ZHANG Z J, CHEN S H, WU P. Start-up of the canon process from activated sludge under salt stress in a sequencing batch biofilm reactor (SBBR)[J]. *Bioresource Technology*, 2010, 101(16): 6309-6314.
- [12] 王嗣禹, 刘灵婕, 王芬, 等. 溶解氧对悬浮与附着生长系统短程硝化反应的影响机制[J]. *环境科学*, 2019, 40(12): 5430-5437.
- [13] YUE X, YU G, LIU Z, et al. Fast start-up of the CANON process with a SABF and the effects of pH and temperature on nitrogen removal and microbial activity[J]. *Bioresource Technology*, 2018, 254: 157-165.
- [14] POOT V, HOEKSTRA M, GELEIJNSE M A A, et al. Effects of the residual ammonium concentration on NOB repression during partial nitrification with granular sludge[J]. *Water Research*, 2016, 106: 518-530.
- [15] CUI H, ZHANG L, ZHANG Q, et al. Stable partial nitrification of domestic sewage achieved through activated sludge on exposure to nitrite[J]. *Bioresource Technology*, 2019, 278: 435-439.
- [16] 范建华, 张朝升, 方茜, 等. 通过控制泥龄实现亚硝酸盐型同步硝化反硝化[J]. *中国给水排水*, 2007, 23(3): 102-105.

- [17] LIU G Q, WANG J M. Long-term low DO enriches and shifts nitrifier community in activated sludge[J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47: 5109-5117.
- [18] MIAO Y Y, ZHANG L, YANG Y D, et al. Start-up single partial nitrification-anammox process treating low-strength sewage and its restoration from nitrate accumulation[J]. *Bioresource Technology*, 2018, 218: 771-779.
- [19] GRAAF V D A A, DE BRUIJN P D, ROBERTSON L A, et al. Autotrophic growth of anaerobic ammonium-oxidizing microorganisms in a fluidized bed reactor[J]. *Microbiology*, 1996, 142(8): 2187-2196.
- [20] HE S L, CHEN Y, QIN M, et al. Effects of temperature on anammox performance and community structure[J]. *Bioresource Technology*, 2018, 260: 186-195.
- [21] SUN S H, SONG Y, YANG X J, et al. Strategies for improving nitrogen removal under high sludge loading rate in an anammox membrane bioreactor operated at 25 °C[J]. *Chemical Engineering Science*, 2018, 183: 106-114.
- [22] 国家环境保护局. 水和废水监测分析方法[M]. 4版. 北京: 中国环境科学出版社, 2002.
- [23] ANTHONISEN A C, LOEHR R C, PRAKASAM T B S, et al. Inhibition of nitrification by ammonia and nitrous acid[J]. *Journal of Water Pollution Control Federation*, 1976, 48(5): 835-852.
- [24] AMANN R I, KRUMHOLZ L, STAHL D A. Fluorescent-oligonucleotide probing of whole cells for determinative, phylogenetic, and environmental studies in microbiology[J]. *Journal of Bacteriology*, 1990, 172(2): 762-770.
- [25] AMANN R I, BINDER B J, OLSON R J, et al. Combination of 16S rRNA-targeted oligonucleotide probes with flow cytometry for analyzing mixed microbial populations[J]. *Applied & Environmental Microbiology*, 1990, 56(6): 1919-1925.
- [26] DAIMS H, BRUHL A, AMANN R, et al. The domain-specific probe EUB338 is insufficient for the detection of all bacteria: Development and evaluation of a more comprehensive probe set[J]. *Systematic and Applied Microbiology*, 1999, 22(3): 434-444.
- [27] MOBARRY B K, WAGNER M, URBAN V, et al. Phylogenetic probes for analyzing abundance and spatial organization of nitrifying bacteria[J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 1996, 62(6): 2156-2162.
- [28] WAGNER M, RATH G, AMANN R I, et al. In situ identification of ammonia-oxidizing bacteria[J]. *Systematic and Applied Microbiology*, 1995, 18(2): 251-264.
- [29] JURETSCHKO S, TIMMERMANN G, SCHMID M, et al. Combined molecular and conventional analyses of nitrifying bacterium diversity in activated sludge: *Nitrosococcus mobilis* and *Nitrospira*-like bacteria as dominant populations[J]. *Systematic and Applied Microbiology*, 1998, 64(8): 3042-3051.
- [30] ADAMCAYK J, HESSELSON M, IVERSEN N, et al. The isotope array a new tool that employs substrate-mediated labeling of rRNA for determination of microbial community structure and function[J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2003, 69(11): 6875-6887.
- [31] DAIMS H, NIELSEN J L, NIELSEN P H, et al. In situ characterization of *Nitrospira*-like nitrite-oxidizing bacteria active in wastewater treatment plants[J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2001, 67(11): 5273-5284.
- [32] KARTAL B, RATTRAY J, NIFTRIK L A V, et al. Candidatus "*Anammoxoglobus propionicus*" a new propionate oxidizing species of anaerobic ammonium oxidizing bacteria[J]. *Systematic & Applied Microbiology*, 2007, 30(1): 39-49.
- [33] SCHRAMM A, DE BEER D, VAN DEN HEUVEL J C, et al. Microscale distribution of populations and activities of

- Nitrospira* and *Nitrosospira* spp. Along a macroscale gradient in a nitrifying bioreactor: Quantification by in situ hybridization and the use of microsensors[J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 1999, 65(8): 3690-3696.
- [34] SCHRAMM A, DE BEER D, GIESEKE A, et al. Microenvironments and distribution of nitrifying bacteria in a membrane-bound biofilm[J]. *Environmental Microbiology*, 2000, 2(6): 680-686.
- [35] VADIVELU V M, YUAN Z G, FUX C, et al. The inhibitory effects of free nitrous acid on the energy generation and growth processes of an enriched nitrobacter culture[J]. *Environmental Science & Technology*, 2006, 40(14): 4442-4448.
- [36] 韩志勇, 殷文翔, 刘新德. MBR-CANON工艺快速启动实验研究[J]. *工业催化*, 2017, 25(5): 67-80.
- [37] 李军, 杜佳, 郑照明, 等. 间歇曝气实现厌氧氨氧化快速启动的研究[J]. *中国给水排水*, 2018, 34(11): 200-26.
- [38] MIAO Y Y, ZHANG L, LI B K, et al. Enhancing ammonium oxidizing bacteria activity was key to single stage partial nitrification-anammox system treating low-strength sewage under intermittent aeration condition[J]. *Bioresource Technology*, 2017, 231: 36-44.

(本文编辑: 曲娜, 郑晓梅)

Treatment of simulated medium and low-strength ammonia wastewater by single-stage partial nitrification-anammox process

ZHAO Liangjie^{1,2}, PENG Dangcong^{1,2,*}, LYU Kai^{1,2}, WANG Jing³

1. School of Environmental and Municipal Engineering, Xi'an University of Architecture and Technology, Xi'an 710055, China

2. Key Laboratory of Northwest Water Resource, Environment and Ecology, Ministry of Education, Xi'an 710055, China

3. Xi'an Branch of North China Municipal Engineering Design & Research Institute Co. Ltd., Xi'an 710016, China

*Corresponding author, E-mail: dcpeng@xauat.edu.cn

Abstract The stability of single-stage partial nitrification-anammox process was studied using a sequencing batch reactor (SBR) treating medium and low-strength ammonia wastewater. Results showed that TN removal loading and average TN removal efficiency could reach $0.24 \text{ kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$ and 75.84% in the single-stage partial nitrification-anammox reactor, respectively, at 35 °C, the influent ammonia concentrations of $200 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ and the dissolved oxygen of $0.2 \sim 0.4 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$. The stable running of the reactor was achieved with high performance of nitrogen removal. The activities of ammonia oxidizing bacteria (AOB) and anaerobic ammonia oxidation bacteria (Anammox) stably maintained at about $877.24 \text{ mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$ and $127.61 \text{ mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$ (as $\text{NH}_4^+\text{-N}$), respectively. At the same time, the activity of nitrite oxidizing bacteria (NOB) decreased from $60.84 \text{ mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$ to $18.54 \text{ mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$ (as $\text{NO}_2^-\text{-N}$), thus NOB was successfully inhibited. AOB and Anammox bacteria could build a better collaborative relationship that ensured the stable nitrogen removal effect. The FISH results indicated that AOB and Anammox bacteria were dominant bacteria, which proved the long stability of efficient nitrogen removal for the single stage partial nitrification-anammox process from the viewpoint of microbiology. The stable operation of the single stage partial nitrification-anammox process provides reference for medium and low-strength concentration ammonia wastewater treatment by anaerobic ammonia oxidation technology.

Keywords partial nitrification; anaerobic ammonia oxidation; single stage; intermittent aeration; ammonia nitrogen; nitrite accumulation