



文章栏目：环境生物技术

DOI 10.12030/j.cjee.202010033

中图分类号 X703

文献标识码 A

贺亮, 施万胜, 赵明星, 等. 基于分点进水的垃圾渗滤液短程硝化反硝化脱氮性能[J]. 环境工程学报, 2021, 15(5): 1753-1762.

HE Liang, SHI Wansheng, ZHAO Mingxing, et al. Nitrogen removal performance of short-cut nitrification and denitrification process based on step feeding strategy for landfill leachate treatment [J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2021, 15(5): 1753-1762.

基于分点进水的垃圾渗滤液短程硝化反硝化脱氮性能

贺亮¹, 施万胜^{1,2}, 赵明星^{1,2}, 陆东亮³, 华天宇³, 张炜³, 萧壮波³, 黄兴³, 阮文权^{1,2,*}

1. 江南大学环境与土木工程学院, 无锡 214122
2. 江苏省厌氧生物技术重点实验室, 无锡 214122
3. 无锡城市环境科技有限公司, 无锡 214026

第一作者: 贺亮(1995—), 男, 硕士研究生。研究方向: 水污染控制。E-mail: 775207347@qq.com

*通信作者: 阮文权(1966—), 男, 博士, 教授。研究方向: 厌氧生物处理技术等。E-mail: wqruan@jiangnan.edu.cn

摘要 在垃圾渗滤液短程硝化反硝化生物脱氮过程中, 过高浓度的游离氨(FA)会抑制氨氧化菌(AOB)的活性, 降低系统亚硝化速率和脱氮效率。采取分点进水的方法, 合理分配进入系统各单元的基质, 降低反应器营养负荷和FA浓度, 以期减少FA对AOB的抑制, 提高脱氮效率。结果表明, 通过控制DO浓度小于 $1.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 成功实现了稳定的短程硝化反硝化; 当水力停留时间(HRT)为6.25 d时, 亚硝态氮累积率(NAR)可达到84.97%; 当缩短HRT至5.5 d时, 氨氮去除率降低到69.63%左右, 总氮去除率(NRE)仅有18.06%。对系统内的FA分析发现, O1、O2池中FA浓度达到了 $36.32 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 以上, 均超过了AOB抑制浓度限值, 因而限制了亚硝化过程。采用分点进水方式运行后, HRT为5.5 d时, 氨氮去除率仍有89.86%, NRE为27.62%, NRE相比分点进水前提高了52.93%; 当HRT缩短到5.0 d时, 氨氮去除率仍然高于81.25%。分点进水条件下O1、O2池中FA浓度分别降低到 $7.91 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $5.81 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 此时, FA既能有效抑制NOB, 又不会对AOB产生严重抑制。以C/N=4向脱氮系统补充碳源后, 系统NRE迅速提升到80%左右。微生物测序结果表明, 分点进水后O1、O2、O3、O4池中AOB菌属相对丰度为2.27%、1.77%、2.75%、1.37%, 相比于分点进水前分别提升了12.37%、68.57%、57.14%、59.30%。这表明分点进水有利于提高AOB的生长优势和短程硝化过程。以上结果表明, 对于垃圾渗滤液的处理, 分点进水运行方式可以有效提高短程硝化和脱氮效率, 具有很好的工程应用价值。

关键词 垃圾渗滤液; 生物脱氮; 短程硝化反硝化; 游离氨; 分点进水

很长时间以来, 我国城市垃圾的处理主要是以卫生填埋为主^[1]。相对于其他处理方式来说, 卫生填埋处理成本低, 操作简便^[2]。但长期的实践经验表明, 填埋不仅会占用大量土地, 而且带来填埋场周围空气的污染; 更重要的是, 填埋过程中会产生大量的垃圾渗滤液需要处理^[3]。而垃圾渗滤液具有很高的氨氮浓度, 特别是老龄垃圾渗滤液具有高氨氮和低碳氮比的特征, 采用传统的脱氮方法往往面临着能耗高和碳源不足等问题。如何经济有效地处理垃圾渗滤液仍是一个挑战。

收稿日期: 2020-10-10; 录用日期: 2020-11-16

基金项目: 水体污染控制与治理科技重大专项(2017ZX07204-002)

生物脱氮是处理垃圾渗滤液较为经济有效的方法。在传统的生物处理过程中,高浓度的氨氮通过完全硝化与反硝化反应去除。然而,由于氨氮浓度很高且碳氮比低,导致硝化过程中需要大量曝气,能耗较高;同时,反硝化过程中需要投加大量的碳源,使得脱氮成本较高^[4]。短程硝化反硝化通过将硝化过程控制在亚硝化阶段,直接利用亚硝态氮进行反硝化,缩短了反应过程,能够加快反应速度,可节约20%左右的曝气量和40%左右的有机碳源^[5-11]。在高氨氮废水处理中,常利用游离氨(FA)对氨氧化菌(AOB)和亚硝酸盐氧化菌(NO₂-N)的抑制差异性实现短程硝化^[12]。然而,老龄垃圾渗滤液的碱度较高,水质偏碱性,进入生物脱氮系统后容易造成高浓度的FA,而FA具有较强的生物毒性,其对AOB和NOB均具有明显的抑制作用,从而导致系统亚硝化速率低。为此,在生物脱氮系统中合理降低FA浓度至关重要,而分点进水方式提供了一种比较可行的策略。采用分点进水方式合理分配进入系统各部分的基质浓度,可以在降低营养负荷和提高污泥浓度的同时降低FA浓度,以减少FA对AOB的抑制,提高亚硝化微生物的比生长优势^[13],增强系统亚硝化性能。

基于此,本研究采用分点进水短程硝化反硝化工艺对老龄垃圾渗滤液进行了处理,通过合理分配营养负荷,以改变系统中FA浓度和微生物生长环境,并提高AOB种群生长优势,提高生物亚硝化性能以及脱氮效率,以期为实现垃圾渗滤液的高效低耗处理提供技术参考。

1 材料与方法

1.1 垃圾渗滤液水质

实验用水为老龄垃圾渗滤液,取自无锡市某垃圾渗滤液处理中心调节池,具体水质指标如表1所示。实验水质波动较大,偏碱性,具有高浓度的氨氮和总氮,C/N约为1.5。

表1 垃圾渗滤液水质特征

Table 1 Characteristics of landfill leachate

数值类型	COD/(mg·L ⁻¹)	NH ₄ ⁺ -N/(mg·L ⁻¹)	NO ₃ ⁻ -N/(mg·L ⁻¹)	NO ₂ ⁻ -N/(mg·L ⁻¹)	TN/(mg·L ⁻¹)	pH
平均值	3 588.54	1 615.41	36.42	0.11	1 991.21	8.13
最大值	5 600.84	1 722.24	48.27	0.28	2 198.51	8.61
最小值	2 096.62	1 057.56	14.19	未检出	1 763.11	7.51

1.2 实验装置与工艺流程

实验工艺过程如图1所示。核心实验装置主要包括UASB和曝气池2个部分,均由有机玻璃

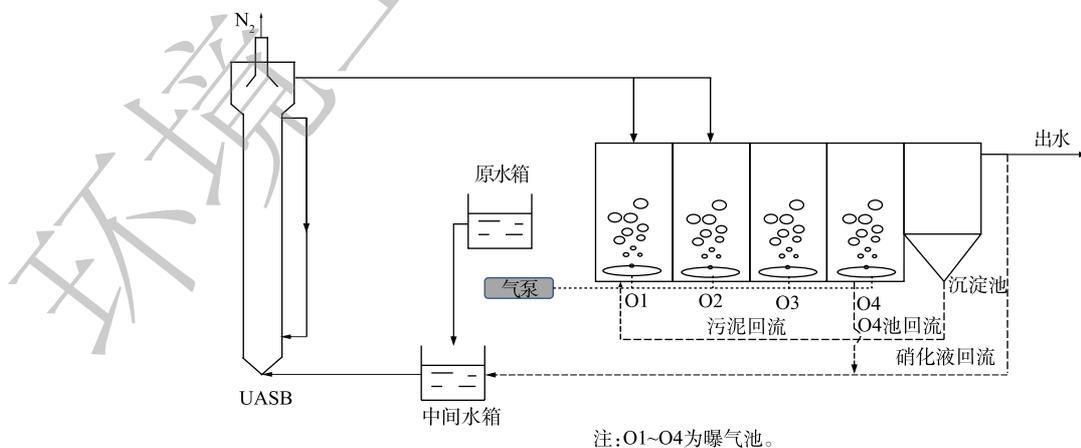


图1 实验装置示意图

Fig. 1 Experimental setup used in this study

制成，总有效容积为 50 L。UASB 反应器高为 2 m，内径为 0.1 m，有效容积为 10 L；曝气池长为 0.6 m，高为 0.5 m，宽为 0.2 m，有效容积 40 L，内装有生物填料以便挂膜。好氧区采用曝气泵曝气，进水、硝化液及污泥回流均采用蠕动泵进行精确控制。实验中反应器温度控制在 $(30 \pm 1) ^\circ\text{C}$ 。反应器用黑色材料覆盖，以防止光线穿透。

本研究工艺采用 UASB 作为前置反硝化单元，垃圾渗滤液原水首先与回流硝化液混合进入到脱氮反应器 UASB 中，利用原水中的有机物作为反硝化的电子供体，去除硝化液中部分亚硝态氮和硝态氮，同时为后续硝化反应提供碱度^[14]。随后反硝化单元出水通过单点或分点进水的方式进入到好氧系统中进行生物硝化反应。最后通过硝化液的回流与微生物反硝化实现脱氮。

1.3 实验方法

接种污泥取自无锡市某垃圾渗滤液处理中心的好氧池。其中曝气池 (O1~O4) 中接种污泥浓度为 $3 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ (以 MLSS 计)，UASB 中接种污泥浓度为 $10 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ (以 MLSS 计)。实验过程分为 2 个阶段。在阶段 1 (1~45 d)，通过逐步提高进水量方式快速启动短程硝化反硝化系统，在实验期间控制 DO 浓度低于 $1.0 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ，污泥回流比为 100%，硝化液和 O4 池回流比各为 100%。一直提升负荷至反应器崩溃，其后恢复系统至稳定运行 (系统崩溃后恢复至稳定状态 (46~54 d) 这阶段数据未展示)。在阶段 2，UASB 出水按流量比 1:1 分点进入硝化系统 O1 和 O2 池中，探究分点进水对于系统脱氮性能的影响。实验共设置 5 种工况：工况 I 取未分点进水条件下系统运行时 (40~45 d) 的结果作为参照，此时 HRT 为 5.5 d；工况 II 为未分点进水运行 (55~64 d)，控制 HRT 为 6.25 d；工况 III 为分点进水运行 (65~74 d)，控制 HRT 为 5.5 d；工况 IV 为分点进水运行 (75~84 d)，并提高系统负荷，控制 HRT 为 5.0 d；工况 V 为分点进水运行 (85~99 d)，HRT 为 5.0 d，按 C/N=4 在水中添加碳源。

1.4 测定项目与方法

进出水水样经 $0.45 \mu\text{m}$ 滤膜过滤后，滤液采用国标方法测试各项指标^[15]。 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 采用纳氏试剂分光光度法测定，硝态氮 ($\text{NO}_3\text{-N}$) 采用紫外分光光度法测定，亚硝态氮 ($\text{NO}_2\text{-N}$) 采用 N-(1-萘基)-乙二胺分光光度法测定，TN 采用过硫酸钾氧化-紫外分光光度法测定；污泥浓度 (MLSS) 按重量法测定；DO 采用便携式溶氧仪测定。亚硝态累积率 (NAR)、游离氨 (FA)、氨氧化速率 (AOR)、亚硝态氮氧化速率 (NOR)、总氮去除率 (NRE)、反应器总氮去除负荷 (NRR)、总氮容积负荷 (NLR) 的计算^[16-18] 如式 (1)~(7) 所示。

$$\eta_{\text{NAR}} = \frac{C_{\text{NO}_2\text{-N}}}{C_{\text{NO}_2\text{-N}} + C_{\text{NO}_3\text{-N}}} \times 100\% \quad (1)$$

式中： η_{NAR} 为亚硝态氮积累率； $C_{\text{NO}_2\text{-N}}$ 为反应器中亚硝态氮的质量浓度， $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ； $C_{\text{NO}_3\text{-N}}$ 为反应器中硝态氮的质量浓度， $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。

$$C_{\text{FA}} = \frac{17}{14} \times \frac{C_{\text{NH}_4^+\text{-N}} 10^{\text{pH}}}{e^{6.344/(273+T)} + 10^{\text{pH}}} \quad (2)$$

式中： C_{FA} 为游离氨的质量浓度， $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ； T 为该系统的温度， $^\circ\text{C}$ ； $C_{\text{NH}_4^+\text{-N}}$ 为反应器中氨氮的质量浓度， $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。

$$V_{\text{AOR}} = \frac{C_{\text{NH}_4^+\text{-N}_{\text{inf}}} - C_{\text{NH}_4^+\text{-N}_{\text{eff}}}}{24t} \quad (3)$$

$$V_{\text{NOR}} = \frac{C_{\text{NO}_3\text{-N}_{\text{eff}}} - C_{\text{NO}_3\text{-N}_{\text{inf}}}}{24t} \quad (4)$$

式中： V_{AOR} 为氨氧化速率， $\text{mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{h})^{-1}$ ； V_{NOR} 为亚硝态氮氧化速率， $\text{mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{h})^{-1}$ ； $C_{\text{NH}_4^+\text{-N}_{\text{inf}}}$ 和 $C_{\text{NH}_4^+\text{-N}_{\text{eff}}}$ 分别为进水和出水氨氮质量浓度， $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ； $C_{\text{NO}_3\text{-N}_{\text{inf}}}$ 和 $C_{\text{NO}_3\text{-N}_{\text{eff}}}$ 分别为进水和出水硝态氮质量浓度， $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ； t 为水力停留时间，d。

$$\eta_{\text{NRE}} = \frac{C_{\text{TN}_{\text{inf}}} - C_{\text{TN}_{\text{eff}}}}{C_{\text{TN}_{\text{inf}}}} \times 100\% \quad (5)$$

$$N_{\text{NRR}} = \frac{(C_{\text{TN}_{\text{inf}}} - C_{\text{TN}_{\text{eff}}})V_{\text{inf}}}{V \cdot t} \times 10^{-3} \quad (6)$$

$$N_{\text{NLR}} = \frac{C_{\text{TN}_{\text{inf}}}V_{\text{inf}}}{V \cdot t} \times 10^{-3} \quad (7)$$

式中： η_{NRE} 为总氮去除率； N_{NRR} 为总氮去除负荷， $\text{kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$ ； N_{NLR} 为总氮容积负荷， $\text{kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$ ； $C_{\text{TN}_{\text{inf}}}$ 和 $C_{\text{TN}_{\text{eff}}}$ 分别为进水和出水总氮质量浓度， $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ； V_{inf} 和 V 分别为进水体积和反应器容积，L， t 为水力停留时间，d。

1.5 微生物种群结构变化分析

分别在运行第1、40(分点进水运行前)和84天(分点进水运行后)取悬浮污泥样品进行分析。首先，采用试剂盒(PowerSoil DNA isolation kit, Mobio, USA)对样品微生物DNA进行提取，然后采用细菌的通用引物(338F:5'-ACTCCTACGGGAGGCAGCAG-3'和806R:5'-GGACTACHVGGGTWTCTAAT-3)对V3-V4可变区域进行PCR扩增，扩增片段长度约为200 bp；最后利用QuantiFluor™-ST (Promega, USA)进行检测定量，用分析软件QIIME1.8.0对微生物序列进行处理。

2 结果与讨论

2.1 短程硝化反硝化系统的启动与稳定运行

1) 短程硝化反硝化效果。在生物脱氮系统启动过程中，随时间变化，垃圾渗滤液中氨氮的去除效果如图2(a)所示。在1~4 d内，反应器对氨氮去除效果不高，去除率低于60%，平均氨氧化速率(AOR)仅为 $1.63 \text{ mg} \cdot (\text{L} \cdot \text{h})^{-1}$ ，出水中氨氮浓度高于 $700 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。由于反应系统接种污泥为全程硝化污泥，对低DO浓度环境敏感，部分菌体自溶，菌体活性变差^[19]。然而，经过一段时间的适应，氨氮去除率迅速上升。到第12天时，氨氮去除率上升到94.78%，AOR上升为 $5.21 \text{ mg} \cdot (\text{L} \cdot \text{h})^{-1}$ 。进一步提高总氮容积负荷(NLR为 $0.23 \text{ kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$)后，出水中氨氮浓度始终保持较低水平，微生物活性逐步上升。到第40天时，氨氮去除率达到92.57%，AOR从一开始的 $1.63 \text{ mg} \cdot (\text{L} \cdot \text{h})^{-1}$ 增加到 $12.57 \text{ mg} \cdot (\text{L} \cdot \text{h})^{-1}$ 。然而，当NLR提升为 $0.38 \text{ kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$ 时，系统处理氨氮能力迅速下降，出水中氨氮浓度迅速上升，氨氮去除率降至69.63%。

脱氮系统内的亚硝态氮变化如图2(b)所示。由于接种污泥为全程硝化污泥，在开始的前几天，系统内氨氮大部分被转化为硝态氮，出水中亚硝态氮含量较低($<100 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$)。当系统运行一段时间后，由于溶解氧的限制，NOB活性被限制，亚硝态氮氧化速率(NOR)始终维持在较低水平($0.78 \text{ mg} \cdot (\text{L} \cdot \text{h})^{-1}$)，而AOB具有较高活性。因此，系统内氨氮主要被转化成亚硝态氮，水中亚硝态氮含量迅速升高，系统NAR提高。到第40天时，NAR达到约84.97%，出水中亚硝态氮浓度达到 $818.66 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。因此，通过控制DO浓度小于 $1.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 成功启动了短程硝化反硝化系统。

2) FA和pH的变化分析。短程硝化反硝化脱氮系统内各取样点的FA和pH变化如图3所示。原水与回流硝化液混合后进入UASB中进行反硝化反应，并提高后续硝化反应的碱度。在硝化段即好氧段，氨氮浓度不断下降，碱度不断被消耗，pH不断下降，pH由O1的8.43降至O4的7.89，然后出水中pH略有上升，这可能是由于在沉淀池中发生了反硝化反应^[20]。有研究^[16]表明，FA是维持垃圾渗滤液短程硝化的重要因素之一。WEI等^[12]的研究表明，当FA浓度在 $0.1 \sim 1.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时，即可以抑制NOB的活性；与NOB相比，AOB承受FA的能力更强，当FA超过 $10 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时会对AOB产生抑制。因此，可以通过FA对AOB和NOB的选择性抑制实现短程硝化。由图3中可以看出，虽然随着微生物反应的进行好氧池中FA浓度逐渐降低，但在好氧阶段FA浓度最低也有 $8.13 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ (O4池)，说明在硝化阶段系统内全程均存在FA对NOB的抑制，从而降低亚硝态氮

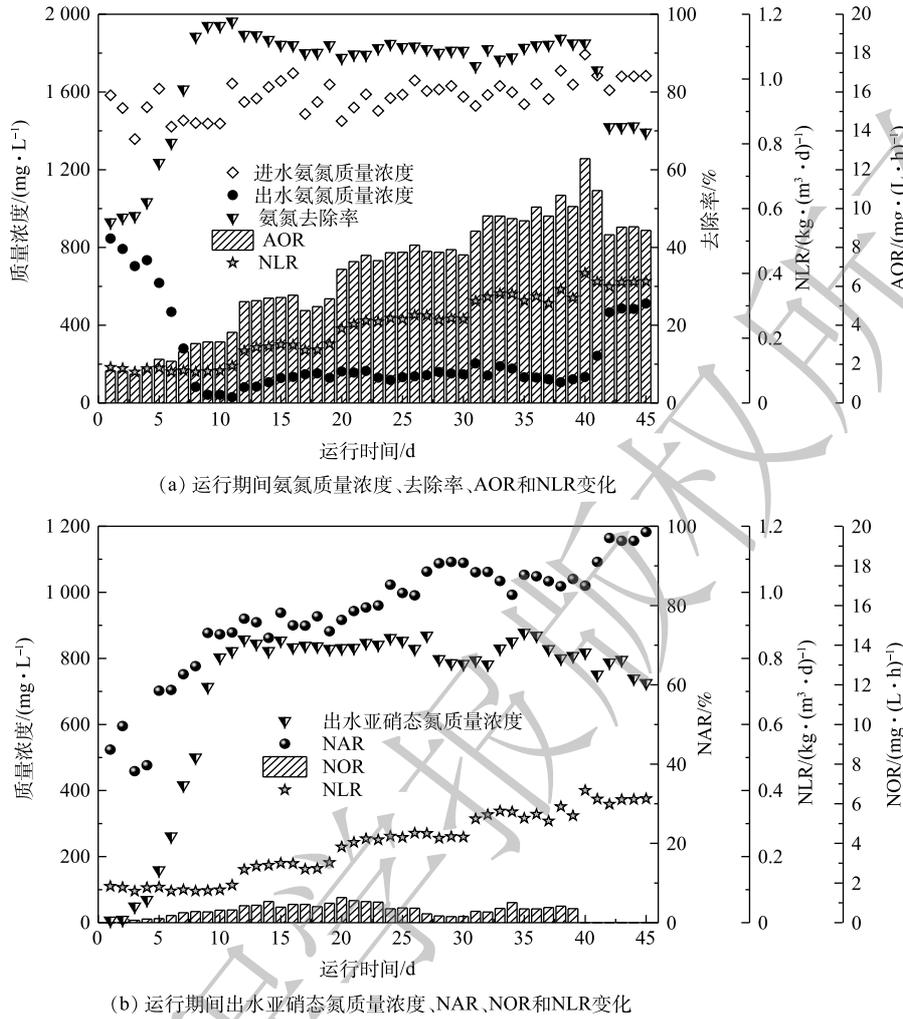


图 2 短程硝化反硝化脱氮系统的启动和运行情况

Fig. 2 Start-up and operation of short-cut nitrification and denitrification system

的进一步转化，实现稳定的短程硝化效果。此外，在 O1、O2 池中，FA 浓度大于 $36.32 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ，这不仅对 NOB 不利，而且远超过了 AOB 的耐受范围，即在抑制 NOB 的同时，也抑制了 AOB 的活性，从而不利于整体脱氮系统的亚硝化过程，限制了亚硝化效率的提升。

2.2 分点进水下脱氮系统的运行和分析

1) 系统的稳定运行情况。为了在抑制 NOB 的同时尽量避免 FA 对 AOB 的抑制，提高亚硝化速率，缩短反应时间，提高脱氮效率，本研究探讨了分点进水对系统脱氮性能的影响。分点进水后脱氮系统的运行结果如图 4 所示。分点进水前，脱氮系统的 HRT 缩短到 5.5 d 时 (工况 I)，氨氮去除率快速下降，低于 80% (图 2(a))。为了保持较高的氨氮氧化效率，在采用分点进水

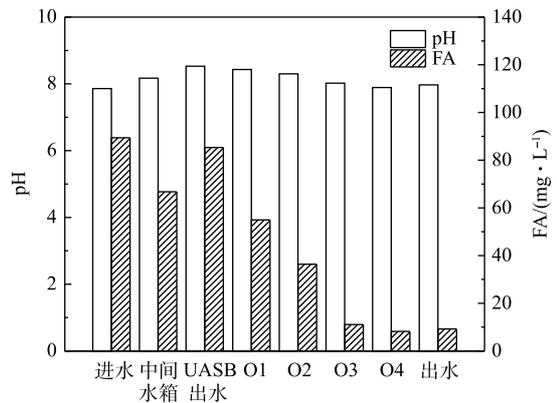


图 3 短程硝化反硝化脱氮系统内 FA 和 pH 沿程变化
 Fig. 3 Variation of FA and pH in the short-cut nitrification and denitrification system

方式前, 将脱氮系统的 HRT 调整为 6.25 d(工况 II), 并实现系统稳定的运行, 氨氮的去除率达到 90% 以上(图 4(a))。以分点进水前 HRT 为 5.5 d 时(工况 I)脱氮系统的运行效果为对照, 此时, 氨氮去除率迅速下降到 69.63%, 总氮去除率(NRE)仅有 18.06%(图 4(c)); 分点进水后, HRT 为 5.5 d 时(工况 III), 氨氮去除率仍有 89.86%, NRE 为 27.62%, 比分点进水前提高了 52.93%。可见, 通过分点进水的方式提高了系统的脱氮效率。当进一步提升负荷, HRT 缩短为 5.0 d 时(工况 IV), 出水中氨氮浓度上升, 氨氮去除率开始下降, 但氨氮去除率仍高于 81.25%, 出水中亚硝态氮含量先下降后上升, 微生物经过几天适应后, 亚硝态氮浓度开始上升, NAR 高于 80%。由图 4(c) 也可以看出, 分点进水前, 系统总氮容积负荷率(NLR)平均值为 $0.34 \text{ kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$, 分点进水后在 85~99 d(工况 IV), 系统平均 NLR 为 $0.42 \text{ kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$, 相比而言提升了 23.53%。AOR 从分点进水前平均 $10.37 \text{ mg} \cdot (\text{L} \cdot \text{h})^{-1}$ (55~64 d) 提升到了 $11.98 \text{ mg} \cdot (\text{L} \cdot \text{h})^{-1}$ (75~84 d), 这意味着将相同量的氨氮亚硝化所需要的时间缩短了 15.52%。在工况 V(85~99 d), 按 C/N=4 额外补充碳源后, 出水中氨氮浓度从第 86 天的 $271.32 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 下降到了 $155.25 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 氨氮去除率上升到 90.84%, 这主要是由于补充了碳源, 反硝化过程能够快速进行, 系统中亚硝态氮浓度快速降低(图 4(b)), 从而降低产物抑制作用, 促进氨氮氧化过程顺利进行。添加碳源后, 系统总氮去除率 NRE 迅速上升, 最终达到 80% 左右。

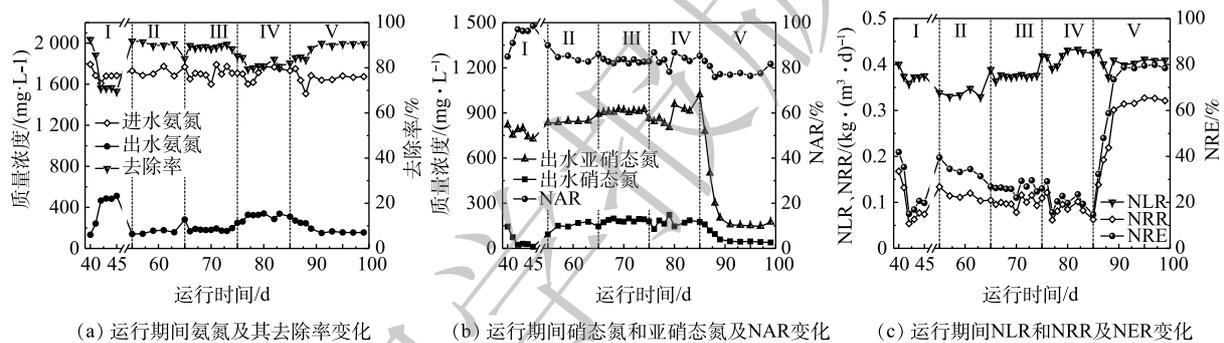


图 4 分点进水对短程硝化反硝化脱氮系统运行性能的影响

Fig. 4 Impact of step feeding mode on nitrogen removal performance in the short-cut nitrification and denitrification system

2) 系统内 FA 和 pH 的变化分析。为了探究分点进水后反应系统负荷提高并能实现稳定的短程硝化的原因, 在反应器 65~74 d(工况 III) 的运行过程中, 对系统内 FA 和 pH 的变化进行沿程分析, 结果如图 5 所示。垃圾渗滤液进水在经过反硝化系统后, 由于微生物的反硝化作用使得污水 pH 升高, FA 浓度上升到 $133.70 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 这严重超出了 AOB 对 FA 的耐受范围。通过分点进水的方式将反硝化系统出水分别进入到 O1 和 O2 池后, 在稀释作用下 FA 的浓度分别降低到 $7.91 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $5.81 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。CHUNG 等^[21] 的研究表明, 当 FA 浓度为 $5 \sim 10 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时, 能有效的抑制 NOB 的活性, 而不对 AOB 产生抑制作用。比较分点进水前后脱氮系统中 FA 浓度的变化可以发现, 未分点进水前, O1 和 O2 池中的 FA 浓度超过 $36.32 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ (图 3), 在抑制 NOB 的同时也严重抑制了 AOB 活性。而通过分点进水的方式降低了 O1、O2 池内的基质浓度, 使得 FA 浓度维持在抑制 NOB 活性的同时, 却对

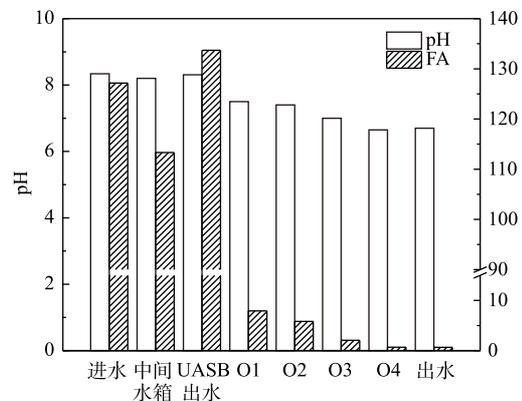


图 5 分点进水下脱氮系统内 FA 和 pH 沿程变化
Fig. 5 Variation of FA and pH in the nitrogen removal system with step feeding

AOB 的活性不产生抑制，从而有利于提高 AOB 的比生长优势，提高系统的亚硝化反应速率。

系统内 FA 浓度主要受氨氮浓度、pH 和温度的影响^[16]，在本研究中温度保持不变，氨氮进行硝化反应浓度会降低，且硝化反应会消耗碱度降低 pH。进一步分析不同进水方式对系统 FA 的影响发现，分点进水方式降低 FA 主要通过以下 2 方面。一方面，进水被稀释，氨氮和碱度 (pH) 降低，从而导致 FA 降低：在单点进水时，UASB 中的出水全部进入到 O1 池中，造成较高的氨氮浓度和较高 pH，这使得 FA 浓度较高；而在分点进水时，UASB 出水通过分点方式进入硝化系统使得进入 O1 池中污水的量只有 50%，从而 O1 池的氨氮浓度和碱度 (pH) 比单点进水模式要低，降低了 FA 浓度。另一方面，在分点进水模式下，首先，脱氮系统中形成污泥浓度梯度分布，前端污泥浓度高，硝化速度快，抗冲击能力强；而且整个系统的微生物平均浓度得到提高^[22]，硝化性能提升，氨氮浓度降低，从而 FA 浓度降低；其次，由于 UASB 出水中还含有大量有机物^[23]，进入好氧池后有利于异养菌的繁殖，进而与自养型硝化菌竞争氧气；而分点进水下营养物质被稀释，限制了异养菌的大量繁殖竞争氧气，从而有利于提高硝化菌的种群优势，提高硝化效果^[24]。因此，采取分点进水方式，可以使 FA 保持在适宜范围内，利于 AOB 生长，进而提高系统亚硝化速率。

2.3 微生物种群分析

1) 物种多样性和种群结构的分析。对接种污泥和驯化后的污泥微生物 DNA 进行提取和高通量测序，得到优化序列 66 268 和 71 679，聚类相似度 97%。共识别出 3 148 个和 3 673 个 OTUs (operational taxonomic units)，如表 2 所示。2 个样本微生物群落多样性的覆盖度均在 99% 以上。

如表 2 所示，驯化后污泥的 Shannon 多样性指数 (5.45)、基于丰度的覆盖度估计量 (ACE) (1 468.29) 和 Chao 丰富度估计量 (1 468.73) 均高于种泥 (4.76、1 215.82 和 1 215.80)。驯化后的污泥和种泥 Simpson 指数分别为 0.01 和 0.03。利用 Shannon 指数和 Simpson 指数可以分别表示微生物群落的丰富度和多样性，Shannon、ACE、Chao 指数越高，Simpson 越低，说明微生物种群丰富度和多样性越高^[22]。上述结果表明，经过一段时间培养驯化后，微生物适应了进水水质，微生物多样性提高。有研究^[25]表明，微生物多样性越高，反应器的稳定性越好。

如图 6 所示，2 个污泥样本中 *Proteobacteria*、*Bacteroidetes*、*Chloroflexi* 为优势菌门，占比超过 65%。*Proteobacteria* 包含了多种代谢类型的菌种，包括 AOB、NOB 和反硝化细菌等^[26]。国内外的一些研究^[27-28]表明，大多数在生物脱氮过程中起重要作用的微生物均属于 *Proteobacteria* 菌门。驯化后污泥中的 *Proteobacteria* 微生物相对丰度增大，也是系统脱氮能力增强的主要原因之一。*Bacteroidetes* 菌门为化能有机营养菌，可以降解多种复杂有机物，代谢碳水化合物，主要进行有机物的降解，广泛存在于活性污泥系统中^[29]。驯化后 *Bacteroidetes* 菌相对丰度升高，这也与韩亚琳等^[30]的研究结果相似。

2) 分点后系统内脱氮功能菌的变化。为了

表 2 接种污泥和驯化后污泥中微生物种类的丰富性和多样性

Table 2 Abundance and diversity of microbial species in seed sludge and domesticated sludge

样本	Shannon	Simpson	ACE	Chao	覆盖率/%
驯化后污泥	5.45	0.01	1 468.29	1 468.73	99
种泥	4.76	0.03	1 215.82	1 215.80	99

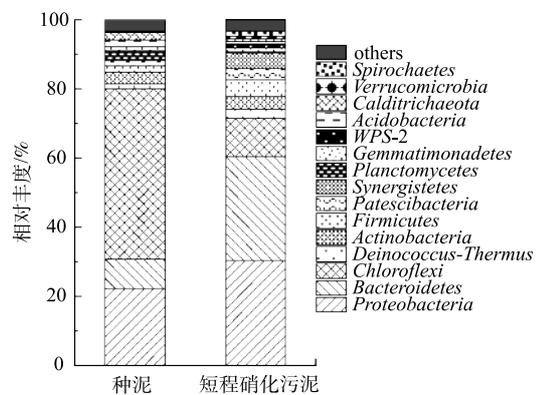


图 6 门级分类中种泥和驯化后污泥中细菌群落的相对丰度

Fig. 6 Relative abundance of bacterial communities in seed sludge and domesticated sludge in different phylum level classifications

评估分点进水对脱氮系统内微生物种群的影响,对系统内 O1、O2、O3、O4 池内微生物群落的属级别上的变化进行了分析,结果如图 7 所示。在所有样品中都检测到了 *Saprospiraceae* 和 *Thauera*, 这些菌种与有机物的降解有关^[31]。*Saprospiraceae* 可以降解多糖和蛋白质,然后利用水解产物作为能量和碳源来进行生长^[32]。*Nitrosomonas* 属于 AOB 菌属,与氨氮的氧化有关。分点进水前 O1、O2、O3、O4 中 *Nitrosomonas* 相对丰度分别为 2.02%、1.05%、1.75%、0.86%,分点进水模式下运行后细菌营养负荷被降低,*Nitrosomonas* 的相对丰度增加到 2.27%、1.77%、2.75%、1.37%。相较于分点进水前,4 个好氧区内 *Nitrosomonas* 的相对丰度分别提高了 12.37%、68.57%、57.14%、59.30%。以上结果表明,分点进水后由于 FA 和基质浓度均有所降低,AOB 菌属受到的抑制减弱,微生物生长优势提升,从而表现出亚硝化速率提高,系统脱氮能力增强。

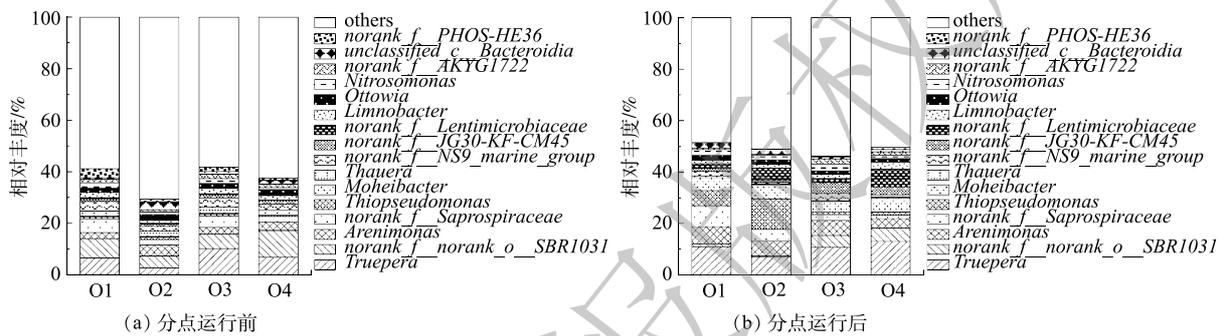


图 7 属级分类中分点运行前后污泥中细菌群落的相对丰度变化

Fig. 7 Variation of the relative abundance of bacterial communities in sludge before and after step feeding operation in different genera

3 结论

1) 控制 DO 浓度小于 $1.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 可成功实现短程硝化反硝化系统的快速启动,亚硝态氮累积率(NAR)能达到 84.97%; NOB 在低氧环境下活性受到抑制, NOR 仅有 $0.78 \text{ mg} \cdot (\text{L} \cdot \text{h})^{-1}$; 同时,由于 O1、O2 池中 FA 浓度较高,在抑制 NOB 的同时也抑制了 AOB 活性,从而降低了系统亚硝化速率。

2) 分点进水运行有效降低了 O1、O2 中的 FA 浓度,可使其对 NOB 产生抑制的同时不抑制 AOB 的活性,提高了亚硝化速率,系统总氮容积负荷相比未分点进水时提升了 23.53%。

3) 分点进水运行后, O1、O2、O3、O4 中 AOB 相对丰度均有提高,进一步表明分点进水模式下运行可以降低 FA 对 AOB 的抑制,提高了 AOB 的生长优势和亚硝化速率,实现高效短程硝化效果;同时,亚硝化过程形成的高浓度亚硝态氮经外加碳源的反硝化过程后浓度快速降低,总氮去除率达到 80% 左右。

参考文献

- [1] 张军,沈碧瑶,侯瑞,等. 高热值城市生活垃圾归类分流处置的能值分析[J]. 环境工程学报, 2016, 10(10): 5943-5950.
- [2] 何若,沈东升. 生物反应器-填埋场处理渗滤液的试验[J]. 环境科学, 2001, 22(6): 99-102.
- [3] MOHAIERI S, HAMIDI A A, ISA M H, et al. Landfill leachate treatment through electro-Fenton oxidation[J]. Pollution, 2019, 5(1): 199-209.
- [4] OLOIBIRI V, CHYS M, WANDEL S D, et al. Removal of organic matter and ammonium from landfill leachate through different scenarios: Operational cost evaluation in a full-scale case study of a Flemish landfill[J]. Journal of Environmental Management, 2017, 203(2): 774-781.

- [5] GE S, WANG S, YANG X, et al. Detection of nitrifiers and evaluation of partial nitrification for wastewater treatment: A review[J]. *Chemosphere*, 2015, 140: 85-98.
- [6] 张周, 赵明星, 阮文权, 等. 短程硝化反硝化工艺处理低C/N餐厨废水[J]. *环境工程学报*, 2015, 9(9): 4165-4170.
- [7] 蒋杭城, 马艺鸣, 张源凯, 等. 城市生活污水短程硝化系统的恢复与启动[J]. *环境工程学报*, 2017, 11(9): 4952-4957.
- [8] 曹雨佳. ASBR型厌氧氨氧化反应器的启动及运行研究[D]. 北京: 北京化工大学, 2008.
- [9] KEMPEN R V, MULDER J W, UIJTERLINDE C A, et al. Overview: Full scale experience of the sharon process for treatment of rejection water of digested sludge dewatering[J]. *Water Science and Technology*, 2001, 44(1): 145-152.
- [10] VERSTRAETE W, PHILIPS S. Nitrification-denitrification processes and technologies in new contexts[J]. *Environmental Pollution*, 1998, 102(1): 717-726.
- [11] TURK O, MAVINEI D S. Selective inhibition: A novel concept for removing nitrogen from highly nitrogenous wastes[J]. *Environmental Technology Letters*, 1987(8): 419-426.
- [12] WEI D, NGO H H, GUO W S, et al. Partial nitrification granular sludge reactor as a pretreatment for anaerobic ammonium oxidation(anammox): Achievement, performance and microbial community[J]. *Bioresource Technology*, 2018, 269: 25-31.
- [13] YUI C S W, YA S I, TSUNEO S, et al. Ammonia oxidizing bacteria with different sensitivities to $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ in activated sludges[J]. *Water Research*, 1994, 28(7): 1523-1532.
- [14] 徐恒娟. 连续流前置A/O工艺短程硝化反硝化的实现及稳定性研究[D]. 杭州: 浙江工商大学, 2014.
- [15] 国家环境保护总局. 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.
- [16] SVEHLA P, BARTACEK J, PACEK L, et al. Inhibition effect of free ammonia and free nitrous acid on nitrite-oxidising bacteria during sludge liquor treatment: Influence of feeding strategy[J]. *Chemical Papers*, 2014, 68(7): 871-878.
- [17] 卞伟, 李军, 赵白航, 等. 硝化污泥中AOB/NOB对硝化特性的影响[J]. *中国环境科学*, 2016, 36(8): 2395-2401.
- [18] MIAO L, WANG S, CAO T, et al. Optimization of three-stage anammox system removing nitrogen from landfill leachate[J]. *Bioresource Technology*, 2015, 185: 450-455.
- [19] LU Y F, MA L J, MA L, et al. Improvement of start-up and nitrogen removal of the anammox process in reactors inoculated with conventional activated sludge using biofilm carrier materials[J]. *Environmental Technology*, 2017, 39 (1): 59-67.
- [20] 薛欢婷, 袁林江, 刘小博, 等. 连续流系统中好氧段及沉淀段对污泥及其缺氧段脱氮能力的影响[J]. *环境科学*, 2019, 40(8): 3675-3682.
- [21] CHUNG J, SHIIM H, PARK S J, et al. Optimization of free ammonia concentration for nitrite accumulation in shortcut biological nitrogen removal process[J]. *Bioprocess and Biosystems Engineering*, 2006, 28(4): 275-282.
- [22] JOHNSON B R, GOODWIN S, DAIGGER G T, et al. A comparison between the theory and reality of full-scale step-feed nutrient removal systems[J]. *Water Science and Technology*, 2005, 52(10/11): 587-596.
- [23] ZIGLIO G, ANDREOTTOLA G, FOLADORI P, et al. Experimental validation of a single-OUR method for wastewater RBCOD characterisation[J]. *Water Science and Technology*, 2001, 43(11): 119-126.
- [24] 李若谷. 分点进水A/O工艺及其模型与分点优化的研究[D]. 徐州: 中国矿业大学, 2012.
- [25] YAO R, YANG H, YU M, et al. Enrichment of nitrifying bacteria and microbial diversity analysis by high-throughput sequencing[J]. *RSC Advances*, 2016, 6: 113959-113966.
- [26] ZHANG T, SHAO M, YE L. 454 pyrosequencing reveals bacterial diversity of activated sludge from 14 sewage treatment plants[J]. *ISME Journal*, 2012, 6(6): 1137-1147.
- [27] WOEBKEN D, FUECHS B M, KUYPERS M M M, et al. Potential interactions of particle-associated anammox bacteria with bacterial and archaeal partners in the namibian upwelling system[J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2007, 73(14):

4648-4657.

- [28] 侯爱月, 李军, 卞伟, 等. 不同短程硝化系统中微生物群落结构的对比分析[J]. *中国环境科学*, 2016, 36(2): 428-436.
- [29] 常玉梅, 杨琦, 郝春博, 等. 城市污水厂活性污泥强化自养反硝化菌研究[J]. *环境科学*, 2011, 32(4): 1210-1216.
- [30] 韩亚琳, 王福浩, 王群, 等. HSBBR运行模式对同步短程硝化反硝化脱氮及微生物群落特征的影响[J]. *环境工程*, 2020, 39(1): 51-57.
- [31] 赵志瑞, 马斌, 张树军, 等. 高氨氮废水与城市生活污水短程硝化系统菌群比较[J]. *环境科学*, 2013, 34(4): 1448-1456.
- [32] YE L, LI D, ZHANG J, et al. Start-up and performance of partial nitritation process using short-term starvation[J]. *Bioresource Technology*, 2019, 276: 190-198.

(责任编辑: 曲娜)

Nitrogen removal performance of short-cut nitrification and denitrification process based on step feeding strategy for landfill leachate treatment

HE Liang¹, SHI Wansheng^{1,2}, ZHAO Mingxing^{1,2}, LU Dongliang³, HUA Tianyu³, ZHANG Wei³, XIAO Zhuangbo³, HUANG Xing³, RUAN Wenquan^{1,2,*}

1. School of Environment and Civil Engineering, Jiangnan University, Wuxi 214122, China

2. Jiangsu Key Laboratory of Anaerobic Biotechnology, Wuxi 214122, China

3. Wuxi City Environmental Technology Co. Ltd., Wuxi 214026, China

*Corresponding author, E-mail: wqruan@jiangnan.edu.cn

Abstract During biological nitrogen removal process treating landfill leachate by using short-cut nitrification and denitrification technology, high concentration of free ammonia (FA) can inhibit the activity of ammonia oxidizing bacteria (AOB), reduce the nitrification rate and nitrogen removal efficiency. In this study, step feeding strategy was used to reduce the inhibition of FA on AOB and thereby improve the nitrogen removal efficiency because of the rational distribution of the substrates and decrease of the substrate/microorganism ratio and FA content. The result showed that the stable short-cut nitrification and denitrification was successfully realized through controlling the DO concentration below $1.0 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, and the nitrite accumulation rate (NAR) reached 84.97% at the hydraulic retention time (HRT) of 6.25 d. When HRT was shortened to 5.5 d, the $\text{NH}_4^+\text{-N}$ removal rate decreased to about 69.63%, and nitrogen removal efficiency (NRE) was 18.06%. It found that FA concentrations in the O1 and O2 tanks were higher than $36.32 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, which exceeded the AOB inhibitory concentration limit, and the short-cut nitrification process was inhibited. After step feeding mode was used, $\text{NH}_4^+\text{-N}$ removal rate was 89.86% at HRT of 5.5 d, and NRE was 27.62% which was 52.93% higher than that before step feeding. When HRT was shortened to 5.0 d, the $\text{NH}_4^+\text{-N}$ removal rate was still higher than 81.25%. FA concentrations in O1 and O2 tanks decreased to $7.91 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ and $5.81 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, respectively in the step feeding process. Under this condition, FA could effectively inhibit NOB while didn't severely inhibit AOB. After supplementing the carbon source according to $\text{C/N}=4$, the NRE of the system reached about 80%. The microbial sequencing results showed that the relative abundances of AOB in O1, O2, O3 and O4 tanks were 2.27%, 1.77%, 2.75% and 1.37%, respectively, which increased by 12.37%, 68.57%, 57.14% and 59.30% compared with the process without step feeding mode. This further indicated that the step feeding process was beneficial for the growth of AOB and short-cut nitrification process. The above results showed that for the treatment of landfill leachate, the step feeding strategy can effectively improve the short-cut nitrification and nitrogen removal efficiency, and it's valuable for practical application.

Keywords landfill leachate; biological nitrogen removal; short-cut nitrification and denitrification; free ammonia; step feeding