

文章栏目：面向减污降碳协同增效的污水处理系统运行管理研究与实践专题  
DOI 10.12030/j.cjee.202305041 中图分类号 X703 文献标识码 A

苑泉, 李美玲, 王铁健, 等. 一体式 PN/A 耦合 EBPR 工艺高效低耗处理实际低 C/N 主流城市污水[J]. 环境工程学报, 2023, 17(8): 2458-2467. [YUAN Quan, LI Meiling, WANG Tiejian, et al. Integrated PN/A and EBPR process for real low C/N mainstream municipal wastewater treatment[J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2023, 17(8): 2458-2467.]

## 一体式 PN/A 耦合 EBPR 工艺高效低耗处理实际低 C/N 主流城市污水

苑泉<sup>1,2,3</sup>, 李美玲<sup>4</sup>, 王铁健<sup>5</sup>, 娄雨晴<sup>1</sup>, 陈淞<sup>1</sup>, 贾真<sup>2</sup>, WELLS George<sup>2</sup>, 孙迎雪<sup>1</sup>, 王凯军<sup>3,✉</sup>

1. 北京工商大学生态环境学院, 北京 100048; 2. 西北大学, 埃文斯顿 IL 60201, 美国; 3. 清华大学环境学院, 北京 100084; 4. 交通运输部天津水运工程科学研究所, 天津 300456; 5. 唐山曹妃甸城市排水有限公司, 唐山 063200

**摘要** 针对低 C/N 城市污水脱氮除磷因碳源不足存在能耗、药耗高以及脱氮除磷效率低等问题, 开发一体式短程硝化/厌氧氨氧化 (PN/A) 耦合强化生物除磷工艺 (EBPR), 以降低碳源消耗和能耗、提高脱氮除磷效率, 从而实现高效低耗减污降碳。通过构建悬浮污泥和生物膜共存的混合系统, 采用厌氧-好氧运行模式以及间歇曝气, 考察短程硝化/厌氧氨氧化与强化生物除磷过程的耦合效果。结果表明, 反应器能长期稳定运行, 出水总无机氮 (TIN) 质量浓度稳定低于  $4 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ , 溶解态磷 (DP) 质量浓度约  $0.2 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ , TIN 平均去除率大于 90%, DP 的平均去除率大于 85%, 平均脱氮负荷为  $53 \text{ mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$ , 强化间歇曝气能够在系统内实现 NOB 抑制, 亚硝氮积累率可达 60% 以上, 甚至 100%。控制悬浮污泥好氧污泥龄为 3.5 d, NOB 由悬浮污泥向填料转移。由于生物膜传质受限, 系统的亚硝氮积累率并未受到影响。该系统内厌氧氨氧化活性提高了 5 倍, 厌氧氨氧化菌以 *Candidatus Brocadia* 为主, 相对丰度为 1.1%, 较主流条件下提高了 2.75 倍。本研究结果证实了主流条件下厌氧氨氧化与传统脱氮除磷工艺耦合的可行性, 这表明此耦合工艺具备更好应对水质波动的能力, 能保证稳定良好的出水水质。该案例可为低 C/N 城市污水实现高效低耗减污降碳的脱氮除磷提供参考。

**关键词** 高效低耗; 厌氧氨氧化; 强化生物除磷; 短程硝化; 双泥龄; 减污降碳

传统脱氮除磷工艺受其自身限制及城市污水 C/N 低的特点, 面临着脱氮除磷和节能降耗困难的两大难题<sup>[1]</sup>。其根本原因在于脱氮功能菌和除磷功能菌对碳源的竞争及污泥管理的矛盾<sup>[2]</sup>。因此, 亟需从脱氮除磷功能菌群等微生物管理入手, 解决碳源竞争和运行能耗高等问题, 实现污水处理节能减排, 创造更大的社会效益和经济效益, 助力实现“双碳”目标。

短程硝化/厌氧氨氧化 (partial nitrification/anammox, PN/A) 工艺是具有应用前景的节能节碳自养脱氮工艺, 相对于传统的硝化反硝化脱氮工艺, 可节约 100% 碳源消耗量、60% 能耗, 减少 80% 污泥产量<sup>[3-4]</sup>。其成功运行的关键在于保障稳定的短程硝化过程, 从而实现稳定的  $\text{NO}_2^-$  来源。目前, anammox 工艺已广泛应用于剩余污泥厌氧消化液等高氨氮浓度污水脱氮处理<sup>[5-6]</sup>。2010 年以来, 国内外学者致力于主流 anammox 工艺的研究及应用<sup>[7-8]</sup>。但由于城市污水有机物浓度较高、氨氮较低、水温较低, anammox 的主流应用面临巨大挑战, 极大限制了主流 anammox 工艺广泛应用。强化生物除磷 (enhanced biological phosphorus removal, EBPR) 是应用最广泛、最经济的除磷工艺<sup>[9-10]</sup>。

收稿日期: 2023-05-12; 录用日期: 2023-08-03

基金项目: 国家重点研发计划资助项目 (2022YFE0104900)

第一作者: 苑泉 (1990—), 女, 博士, 讲师, [yuanquan@btbu.edu.cn](mailto:yuanquan@btbu.edu.cn); ✉通信作者: 王凯军 (1960—), 男, 博士, 教授, [wkj@tsinghua.edu.cn](mailto:wkj@tsinghua.edu.cn)

PN/A 自养脱氮和 EBPR 生物除磷过程的耦合可使污水中的碳源全部流向除磷过程，避免脱氮除磷功能菌因碳源不足产生竞争，同时降低污水处理所需的能耗，以节省能耗、同步脱氮除磷、提高去除效率、减少污泥产量，为城市污水主流 anammox 组合除磷工艺的推广应用提供新思路<sup>[11]</sup>。

YANG 等<sup>[12]</sup>分别在 2 个序批式反应器 (sequencing batch reactor, SBR) 中运行 EBPR 和 PN/A 工艺。YUAN 等<sup>[11, 13-14]</sup>将 EBPR 和 PN 过程耦合于 SBR 1 反应器中，SBR 1 出水随即进入 SBR 2 反应器进行 anammox 脱氮反应。由于难以控制进行 anammox 反应的氨氮和亚硝氮比例，该工艺在实际应用中受到限制。亦有研究者利用反硝化除磷菌将硝氮还原为亚硝氮的过程，提出反硝化除磷耦合 anammox 工艺，利用反硝化除磷反应实现亚硝氮的积累，为后续的反硝化除磷过程提供基质<sup>[15-17]</sup>。然而分体式整体工艺结构和操作复杂，难以有效推广应用。HUANG 等<sup>[18]</sup>在一体式生物膜反应器内将 EBPR 和 PN/A 工艺耦合处理养猪废水厌氧消化上清液，在 30 °C 高温条件下，利用聚磷菌将外源有机物转化为内源有机物 (polyhydroxyalkanoate, PHA)，强化碳源利用的有效性，利用高浓度氨氮形成的 FA 抑制 NOB，为 anammox 菌提供基质，从而达到提高同步脱氮除磷效率的目的。

然而，一体式反应器在低氨氮浓度、低温的城市污水脱氮除磷中的应用仍需进一步探索。为此，本研究利用 SBR 反应器，将 PN/A 与 EBPR 工艺相结合，处理实际低 C/N 污水，考察其运行效果、功能菌活性变化和相对丰度变化等，为低 C/N 城市污水的高效、低耗、可持续、稳定脱氮除磷工艺的开发和调控提供新的方法和思路，以期能为脱氮除磷技术的工程应用提供参考。

## 1 材料与方法

### 1.1 反应器的构建

1) 反应器简介。反应器有效体积为 56 L，下部设计为锥体以利于污泥的沉淀 (图 1)。反应器安装于某污水厂，可直接利用经初沉池的初沉污水。反应器内安装了在线探头，包括用于检测 pH 和氨氮 (ammo:lyser™)、DO (oxi:lyser™) 和 ORP 的探头 (s::can, Vienna, Austria)。系统采用 PLC 控制，运用软件包含 Ignition SCADA、Inductive Automation (Fulsom, CA, 美国) 及 TwinCAT PLC 软件 (Beckhoff, Verl, 德国)。温度控制约为 19.8 °C。不控制 pH，反应期间 pH 为 7.0~7.8。反应器出水存于 56 L 的储水池中，该储水池用于混合几个周期的出水。

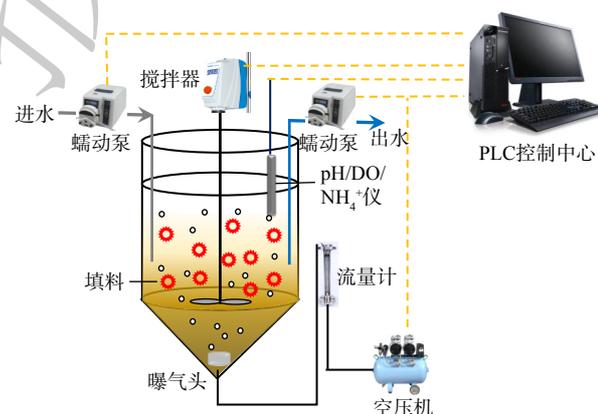


图 1 反应器示意图

Fig. 1 Reactor operation schematic diagram

2) 反应器运行方式。a) 进水段由蠕动泵控制，持续约 12 min。b) 厌氧段约 45 min，此阶段中搅拌器开启。c) 好氧段采用间歇曝气方式，先曝气 5 min，并由 PID 控制 DO 小于  $1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ；在停止曝气后，DO 开始下降，当 DO 降至  $0.05 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  时，开始持续 6 min 的缺氧段；当缺氧段结束后，再次开启曝气段，如此循环，其中气体流量由流量计控制，约  $15 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ ；当  $[\text{NH}_4^+ - \text{N}]$  低于  $1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  时，好氧段终止并进入下一阶段，好氧段总体时长控制为 60~600 min。d) 缺氧搅拌阶段约 30 min，此阶段搅拌器开启。e) 排泥阶段为排除适量剩余污泥，由 PLC 控制排泥泵开启时间。f) 沉淀阶段时长约 30~40 min，此阶段停止曝气和搅拌。g) 排水阶段时长约 10 min，排水体积为 35 L，即反应器的体积交换比为 62.5%。

3) 污泥的制备。反应器中悬浮污泥接种于同厂某强化生物除磷中试反应器，加入填料前已稳定运行约 500 d，通过控制间歇曝气和污泥龄实现了稳定的亚硝氮积累，亚硝氮积累率为 70%<sup>[19]</sup>。厌氧氨氧化填料接种于某侧流反应器中，并在某主流反应器中运行了 3 年，随后接种至本反应器中。填料总体积为 4 L，占本反应器体积约 7%。

## 1.2 进水水质

工艺进水来自某初沉池。反应器运行期间为7月至次年2月。由于7月至9月为雨季,进水污染物的质量浓度较低。进水中TCOD为 $(88.7\pm 27.3)\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ,  $[\text{NH}_4^+\text{-N}]$ 为 $(15.2\pm 4.3)\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ,  $[\text{NO}_2^-\text{-N}]$ 为 $(0.3\pm 0.3)\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ,  $[\text{NO}_3^-\text{-N}]$ 为 $(0.2\pm 0.5)\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , 总无机氮(TIN)为 $(15.5\pm 4.3)\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , 溶解态磷(DP)为 $(1.6\pm 0.6)\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。

## 1.3 活性实验

1) 悬浮污泥的AOB/NOB活性实验。在SBR的一个周期快结束时,即 $[\text{NH}_4^+\text{-N}]$ 约为 $1\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时,取300 mL混合均匀的悬浮污泥于锥形瓶中,置于摇床上,转速为 $120\sim 140\text{ r}\cdot\text{min}^{-1}$ ,以保证悬浮污泥能均匀混合,同时曝气使DO大于 $3\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。投加约 $15\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 氨氮和 $15\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 亚硝氮后约5 min开始取样,之后每隔20 min取样,共取5个样品。期间持续监测pH和DO,使pH维持在7~8,  $\text{DO} > 3\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。温度保持在约 $20\text{ }^\circ\text{C}$ 。样品经 $0.45\text{ }\mu\text{m}$ 一次性滤膜过滤后,保存于 $4\text{ }^\circ\text{C}$ 的冰箱中,24 h内化验三氮指标。当实验结束后,测定污泥的质量浓度,并根据以上数据计算AOB和NOB活性。为保证准确性,每次实验重复2次<sup>[19]</sup>。AOB和NOB活性计算方法参考式(1)~(2)。

$$S_{\text{AOB}} = \frac{d[\text{NH}_4^+\text{-N}]}{X} \quad (1)$$

$$S_{\text{NOB}} = \frac{d[\text{NO}_3^-\text{-N}]}{X} \quad (2)$$

式中:  $\frac{d[\text{NH}_4^+\text{-N}]}{dt}$ 表示氨氮的降解速率,  $\text{mg}\cdot(\text{h}\cdot\text{L})^{-1}$ ;  $X$ 为污泥质量浓度,  $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ;  $\frac{d[\text{NO}_3^-\text{-N}]}{dt}$ 表示硝氮的生成速率,  $\text{mg}\cdot(\text{h}\cdot\text{L})^{-1}$ 。

2) 填料的AOB/NOB活性测定。在周期结束时随机取37颗填料,放入锥形瓶中,加入过滤后的出水至300 mL,分别投加 $15\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 的氨氮和亚硝氮,放入摇床上混合均匀,5 min后开始取样。每隔20 min取1个样品,共取5个样品。样品经 $0.45\text{ }\mu\text{m}$ 的滤膜过滤后保存于 $4\text{ }^\circ\text{C}$ 的冰箱内,24 h内检测三氮指标。在实验结束后,随即选取4个填料,将填料生物膜刮下来测定其质量,换算为生物膜的质量。计算方法与悬浮污泥方法一致。

3) 厌氧氨氧化活性。由于厌氧氨氧化活性的测定对环境要求较高,故采用反应器内原位测定方法,即在一个反应周期将要结束,即 $[\text{NH}_4^+\text{-N}]$ 约为 $1\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时,关闭曝气仅开搅拌,当 $\text{DO} < 0.01\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时,在反应器内投加氨氮和亚硝氮储备液,使初始 $[\text{NH}_4^+\text{-N}]$ 和 $[\text{NO}_2^-\text{-N}]$ 约 $15\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ,每隔30 min取样,共取5个样品。样品经 $0.45\text{ }\mu\text{m}$ 的滤膜过滤后保存于 $4\text{ }^\circ\text{C}$ 冰箱内,并于24 h内检测三氮指标。根据 $[\text{NH}_4^+\text{-N}]$ 、 $[\text{NO}_2^-\text{-N}]$ 和 $[\text{NO}_3^-\text{-N}]$ 变化,计算各自消减或增长比值。由于悬浮污泥中存在一定反硝化作用,最终以 $[\text{NH}_4^+\text{-N}]$ 变化作为厌氧氨氧化活性。计算方法参考式(3)。

$$\text{SAA} = \frac{\frac{d[\text{NH}_4^+\text{-N}]}{dt} \times 2.06}{X_{\text{B}}} \quad (3)$$

式中:  $X_{\text{B}}$ 为生物膜的质量浓度,  $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。

## 1.4 周期内污染物浓度变化

为更好地了解周期内污染物浓度变化规律,在反应周期内进行取样以分析各污染物质量浓度,每隔15~30 min取样,样品经 $0.45\text{ }\mu\text{m}$ 的滤膜过滤后保存于 $4\text{ }^\circ\text{C}$ 冰箱内,并于24 h内检测三氮指标和DP。为了解好氧段间歇曝气过程中氮质量浓度的变化,取间歇曝气好氧和缺氧前后样品,经 $0.45\text{ }\mu\text{m}$ 的滤膜过滤后保存于 $4\text{ }^\circ\text{C}$ 冰箱内,并于24 h内检测三氮指标。

## 1.5 功能菌群分析

为了解反应器运行过程中微生物群落结构,尤其是脱氮的功能菌和除磷菌群的变化,分别选取侧流接种时期的填料(侧流条件)、主流运行3年后的填料(主流条件)及投入该反应器后运行

3 个月的填料 (本反应器) 及反应器运行 3 个月前后悬浮污泥 (SSA 和 SSB) 进行 16S rRNA 高通量测序。将填料保存于  $-80\text{ }^{\circ}\text{C}$  冰箱中, 用于后续 DNA 提取等工作。主要采用 HiSeq Illumina 高通量测序法, 包括 DNA 提取、设计合成引物接头、PCR 扩增和产物纯化、PCR 产物定量和均一化、HiSeq 文库制备、MiSeq 高通量测序及数据分析 (Illumina, San Diego, CA, USA)。引物采用 V4-V5 区的 515F-Y/926R。

### 1.6 Dynamic SRT 计算

反应器内污泥龄计算采用 Dynamic SRT, 其计算公式如 (4)<sup>[20]</sup>, 好氧 SRT<sub>好氧</sub> 计算式为 (5), 亚硝氮积累率 NAR 计算方法如公式 (6) 所示。

$$\text{SRT}_{t+\Delta t} = \text{SRT}_t \left( 1 - \frac{X_{\text{出水}} V_{\text{出水}} + X_{\text{反应器}} V_{\text{反应器}}}{X_{\text{反应器}} V_{\text{反应器}}} \right) + \Delta t \quad (4)$$

$$\text{SRT}_{\text{好氧}} = \text{SRT} \frac{t_{\text{好氧}}}{t_{\text{总}}} \quad (5)$$

$$\text{NAR} = \frac{[\text{NO}_2^- - \text{N}]}{[\text{NO}_2^- - \text{N}] + [\text{NO}_3^- - \text{N}]} \times 100\% \quad (6)$$

式中:  $X_{\text{出水}}$  是 SBR 反应器每个循环结束时出水的悬浮污泥质量浓度,  $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ ;  $V_{\text{出水}}$  是排水体积, L;  $X_{\text{反应器}}$  是反应器内悬浮污泥浓度,  $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ ;  $V_{\text{反应器}}$  是反应器的有效体积, L;  $\Delta t$  是每个 SBR 周期时长,  $\text{d}^{-1}$ 。 $\frac{t_{\text{好氧}}}{t_{\text{总}}}$  是指好氧反应时长占总反应时长的比值;  $[\text{NO}_2^- - \text{N}]$  为亚硝氮质量浓度,  $[\text{NO}_3^- - \text{N}]$  为硝氮质量浓度。

## 2 结果与讨论

### 2.1 反应器运行效果

进水水质表明该地区污染物质量浓度很低, 经初沉池后, 系统进水 TCOD 仅为  $43.4\sim 130.2\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , 平均  $[\text{NH}_4^+ - \text{N}]$  为  $15.2\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , DP 为  $1.6\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , 按传统硝化反硝化过程和生物除磷过程的需碳量计算, 该水质表现为碳源不足。图 2 表明, 出水 DP 约  $(0.2\pm 0.2)\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , 平均去除率约 87.4%, 未受进水水质波动影响。第 30 天至第 46 天, 反应器发生故障、污泥流失。除此之外, 系统出水水质保持较稳定水平。由于好氧反应终点是由氨氮控制, 故出水  $[\text{NH}_4^+ - \text{N}]$  一直保持在  $0.5\sim 1\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。随着时间的延长, 出水  $[\text{NO}_3^- - \text{N}]$  持续下降, 到反应器运行后期 (第 141 天), 出水  $[\text{NO}_3^- - \text{N}]$  几乎低于检出限 ( $0.1\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ )。出水  $[\text{NO}_2^- - \text{N}]$  平均约  $0.9\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , 并呈现不断下降趋势。这使得出水 TIN 不断下降, 从第 200 天到第 221 天, 出水 TIN 稳定低于  $1\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , 平均值仅为  $0.72\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。

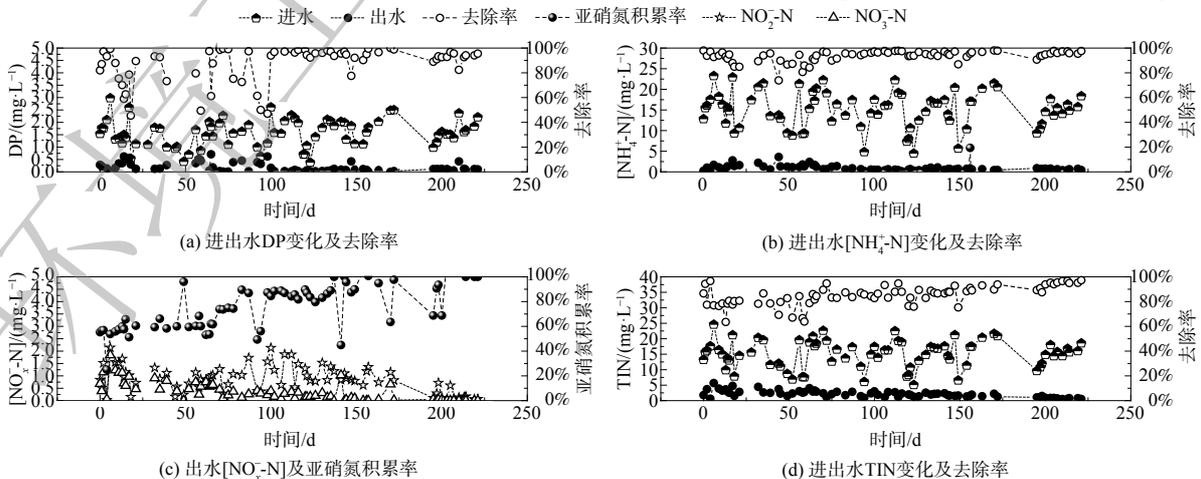


图 2 反应器运行效果

Fig. 2 Reactor operation performance

综上所述,在长达200余天的运行中,出水TIN能稳定低于 $4\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ,平均去除率为87%,这表明反应器结合了节约需碳量的短程硝化反硝化工艺和厌氧氨氧化工艺,能大大节约所需碳源,同时耦合生物强化除磷工艺,通过厌氧段实现脱碳可降低碳源对厌氧氨氧化的不利影响,故系统还表现出良好的脱氮除磷效能。

## 2.2 周期内各污染物浓度变化

反应周期内污染物质量浓度变化如图3所示。在厌氧阶段,DP快速上升,由 $2.56\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 增至 $11.51\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ,释磷速率约为 $290\text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$ 。此过程中硝氮和亚硝氮几乎检测不到,一方面是由于反应器内剩余的 $[\text{NO}_3^--\text{N}]$ 和 $[\text{NO}_2^--\text{N}]$ 较低,另一方面进水有机碳源较为充足,促进了反硝化过程的发生。 $[\text{NH}_4^+-\text{N}]$ 和TIN略有升高,这可能是由于厌氧水解过程中有机氮转化为氨氮,或厌氧段部分微生物解体,释放了少量氨氮。而在好氧阶段,DP迅速降低,吸磷速率可达 $129\text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$ 。这说明系统具有很好的强化生物除磷效果,而且在间歇曝气的好氧阶段,聚磷菌吸磷并未受到间歇曝气的影响,DP呈线性下降趋势。在反应174 min后,DP达到 $0.09\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ,此后便保持稳定,并在出水时进一步降至 $0.05\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。在好氧阶段,氨氮和TIN同步下降,随着好氧阶段时间的延长,出现少量硝氮和亚硝氮的积累。当 $[\text{NH}_4^+-\text{N}]$ 降至 $1\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时,即反应247 min后好氧阶段结束,进入30 min缺氧段。此时,由于填料上厌氧氨氧化菌的作用, $[\text{NH}_4^+-\text{N}]$ 和 $[\text{NO}_2^--\text{N}]$ 同步降低,TIN进一步降至 $0.8\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。在30 min缺氧段结束后,进入沉淀阶段和排水阶段。

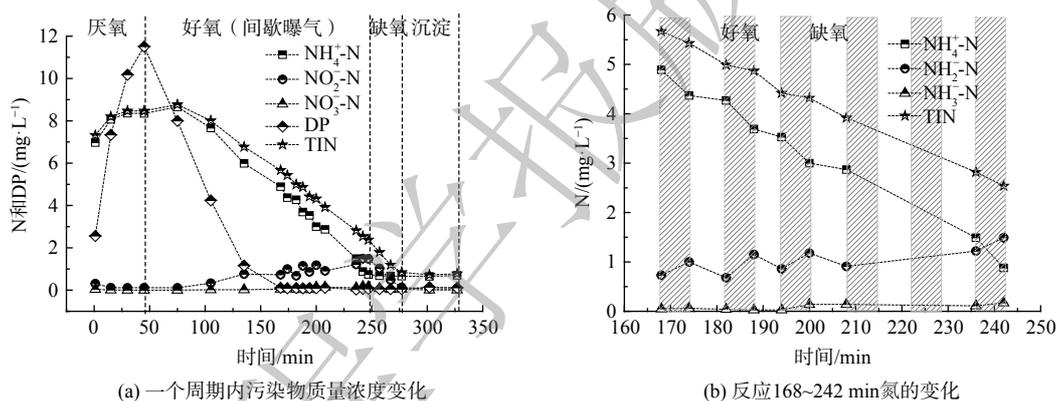


图3 SBR反应器内污染物的变化

Fig. 3 Pollutant concentration change in one SBR reactor cycle (a); nitrogen concentration change from 168<sup>th</sup> to 242<sup>nd</sup> min

为观察好氧段间歇曝气过程中氮的转化情况,选取反应168~242 min的数据进行分析。在灰色区域的好氧曝气段, $[\text{NH}_4^+-\text{N}]$ 下降、 $[\text{NO}_2^--\text{N}]$ 升高,TIN略有下降,在接下来的缺氧段中, $[\text{NH}_4^+-\text{N}]$ 和 $[\text{NO}_2^--\text{N}]$ 出现同步下降,TIN明显下降。缺氧段的亚硝氮去除量大于1.32倍的氨氮,故判断除了厌氧氨氧化反应,系统内还发生了亚硝氮的反硝化作用。利用这部分数据计算厌氧氨氧化贡献率,发现在好氧段厌氧氨氧化的贡献率为46%~73%,且随时间的变化而变化。在好氧前期,由于残存的有机物强化了反硝化过程,厌氧氨氧化的贡献率较低,随着时间的延长和有机物的消耗,系统厌氧氨氧化贡献率升高。

## 2.3 反应器的氮转化速率和磷转化速率

为了解反应器脱氮除磷速率的变化,每两周开展周期实验以测定聚磷菌的吸磷和释磷速率、脱氮菌的氨氮转化速率和TIN转化速率,结果如图4所示。释磷和吸磷率波动较大,释磷率为 $136\sim 435\text{ mg}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$ ,平均值为 $266\text{ mg}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$ ,吸磷率为 $52\sim 204\text{ mg}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$ ,平均值为 $111\text{ mg}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$ ,这主要是由进水水质的波动造成的,但出水DP并未受较大影响,能稳定低于 $0.5\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。

氨氮和TIN的去除速率明显低于DP的去除速率,这说明氨氮转化是脱氮除磷反应器的限速步骤,也是把 $[\text{NH}_4^+-\text{N}]$ 作为反应器指示终点的原因。氨氮转化速率高于TIN,但在反应后期,氨氮和TIN转化速率接近,这表明出水中 $[\text{NO}_3^--\text{N}]$ 和 $[\text{NO}_2^--\text{N}]$ 越来越低,从而使出水TIN能降至 $1\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 以下。

该反应器在投加填料前已稳定运行500余天，出水TIN约 $4.4 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ，氨氮和TIN去除率约为87%和67%，填料的投加大大提高了硝氮和亚硝氮的去除量，出水TIN降低了近 $4 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ，系统氨氮和TIN去除率分别提高到了93.6%和85.9%。在反应器运行后期，TIN去除率进一步提升至93%。氨氮去除速率为 $37\sim 85 \text{ mg}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$ ，平均值为 $65 \text{ mg}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$ ，TIN转化速率略低于氨氮转化速率，为 $40\sim 61 \text{ mg}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$ ，平均值为 $53 \text{ mg}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$ 。填料上的厌氧氨氧化作用在间歇曝气的缺氧时段也造成了 $[\text{NH}_4^+\text{-N}]$ 的降低，从而缩短了以 $[\text{NH}_4^+\text{-N}]$ 指示好氧反应终点的反应时长。因此，填料的投加对系统整体脱氮除磷效果产生了积极的作用。

#### 2.4 反应器HRT、SRT和污泥质量浓度的变化

该反应器的HRT和SRT变化如图5所示。反应器运行第30天进水电磁阀开合故障，反应器持续进水，导致污泥大量溢流，污泥质量浓度由原 $1112 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 降至 $146 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ，污泥流失量达90%，从而造成反应器的好氧时段大大延长。为快速恢复反应器正常运行，停止排泥阶段，而SRT计算式(4)和图5表明，此阶段SRT计算值明显升高，直到第46天，当反应器的污泥质量浓度逐渐增至 $1336 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ，预示着反应器恢复正常，系统恢复排泥，此时的SRT逐渐下降。除了故障

时段，好氧SRT变化维持在 $3.5\sim 4.5 \text{ d}$ ，平均为 $3.7 \text{ d}$ 。维持降低的好氧SRT有利于淘汰NOB，从而促进亚硝氮的积累。由于反应器的反应时长波动，HRT是个不断变化的值。在其他条件不变的情况下，如气体流量、曝气频率等，好氧段时长明显缩短，HRT由 $(6.8\pm 2.8) \text{ h}$ 降至 $(6.3\pm 1.7) \text{ h}$ 。以上结果表明，厌氧氨氧化菌填料的投加提高了系统的脱氮效率，与反硝化菌共同作用，使系统出水TIN进一步降至 $1 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ，并缩短了系统的HRT，系统表现出高效稳定的脱氮除磷效果。

#### 2.5 功能微生物活性变化

1) AOB/NOB活性变化。选择该反应器的目的之一是在其中成功运行PN/A工艺，故亚硝氮的积累和NOB活性的抑制是维持反应平衡的关键。图6为反应器运行过程中悬浮污泥和填料上AOB和NOB活性变化。在投加填料前，反应器已实现很好的短程硝化反硝化效果，亚硝氮积累率约50%到70%<sup>[19]</sup>，AOB/NOB约为3.23。在投加填料后，悬浮污泥的AOB活性约为 $7.2 \text{ mg}\cdot(\text{g}\cdot\text{h})^{-1}$ ，明显高于NOB活性 $1.7 \text{ mg}\cdot(\text{g}\cdot\text{h})^{-1}$ 。填料在接种至该反应器前就已表现出NOB活性高于AOB活性。随着运行时间的延长，明显发现悬浮污泥的NOB活性逐渐降低，而填料上的NOB活性呈现上升趋势，由 $1 \text{ mg}\cdot(\text{g}\cdot\text{h})^{-1}$ 增至 $3 \text{ mg}\cdot(\text{g}\cdot\text{h})^{-1}$ ，填料的AOB活性变化不大。总体AOB/NOB能维持在1.5~2。这可能是由于悬浮污泥的污泥龄较短，会淘洗NOB，NOB为了生存会附着在填料上。但填料上附着的NOB并没有影响系统亚硝氮积累率。这是因为DO在悬浮污泥中具有更好的传质能力，相对生物膜的分层结构而言，DO更易于被悬浮污泥中的AOB利用，产生的亚硝氮随即进入缺氧段，与剩余的氨氮一起被填料上的厌氧氨氧化菌所利用。填料上附着的NOB并没有发挥作用，从而没有影响整个反应的亚硝氮积累率。在反应器运行晚期，硝氮的产生量很少，亚硝氮积

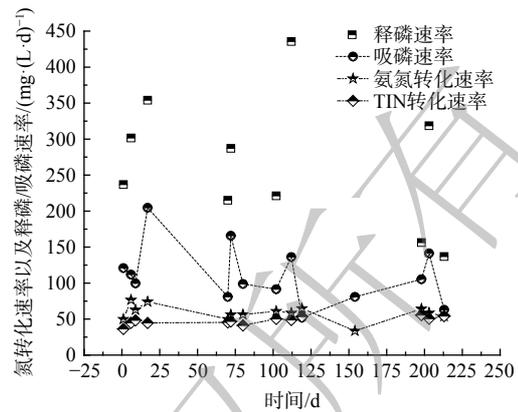


图4 反应器的脱氮除磷速率变化

Fig. 4 Nitrogen and phosphorus removal rate changes in the reactor

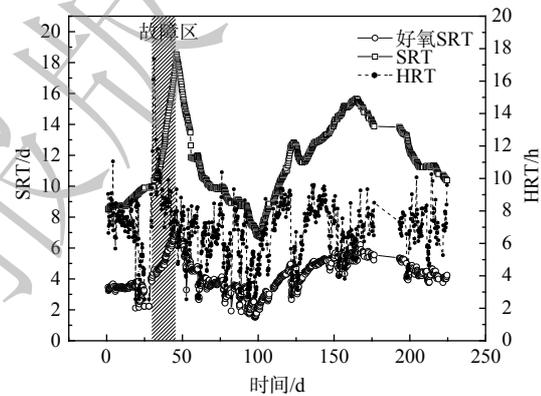


图5 反应器的SRT和HRT变化

Fig. 5 Changes in SRT and HRT of the reactor

累率接近 100%。这也是与文献 [21-25] 中提及在主流条件下亚硝氮积累率达到的最高值相似。由此可见,亚硝化过程主要发生于悬浮污泥中,填料的投加并没有对系统 AOB 和 NOB 活性产生负面影响。

2) 填料的厌氧氨氧化活性变化。对填料的厌氧氨氧化活性变化进行分析。由文献 [26] 可知,在将填料接种至本反应器前,填料的厌氧氨氧化活性为  $181 \text{ mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$ ,在主流 IFAS 反应器运行一段时间后活性降低至  $70 \text{ mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$ 。而接种到本反应器后,填料的厌氧氨氧化活性明显升高(图 7),厌氧氨氧化活性平均值为  $215 \text{ mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$ ,最高值可达  $356 \text{ mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$ ,活性是文献 [27] 中主流反应器的 3 倍,甚至高于由侧流接种时的填料所表现出的活性。在主流条件下,厌氧氨氧化活性主要受亚硝氮浓度限制<sup>[8]</sup>,而本反应器中,间歇曝气过程中  $[\text{NO}_2^- \text{-N}]$  的最高值小于  $1.5 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ,但并没有限制厌氧氨氧化菌的活性。这说明该反应器中的  $[\text{NO}_2^- \text{-N}]$  指标能满足系统内的厌氧氨氧化过程,而且使厌氧氨氧化活性得到提高。XU 等<sup>[28]</sup>在运行一体式短程硝化反硝化、厌氧氨氧化和生物强化除磷反应器时,总氮去除率可达 89%,厌氧氨氧化活性维持在 112 到  $140 \text{ mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$ ,但反应器运行的温度为  $30 \text{ }^\circ\text{C}$ ,明显高于本反应器的运行温度(约  $20 \text{ }^\circ\text{C}$ )。LOTTI 等<sup>[27]</sup>在主流条件下运行厌氧氨氧化颗粒污泥中试反应器时,厌氧氨氧化活性在  $57\text{--}90 \text{ mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$ 。相比之下,本反应器可维持很好的厌氧氨氧化活性。这说明主流条件下附着在填料上的厌氧氨氧化菌可与悬浮污泥中的 AOB、NOB 和反硝化菌等和谐共生,使反应器呈现高效稳定的脱氮效果。

## 2.6 微生物群落结构的变化

对比了填料从侧流接种时、主流反应器运行时及在本反应器中菌群结构变化,可明显看出(图 8(a)),作为厌氧氨氧化菌的载体,以 *Candidatus Brocadia* 为主的厌氧氨氧化菌在侧流条件下的相对丰度最高,为 6.6%。经过长期主流条件下的运行,相对丰度降低至 0.4%,但在本反应器中,其丰度明显提高,增至 1.1%。

而 NOB 丰度也发生明显变化。在侧流条件下,NOB 的相对丰度很低,检测不到,这说明了侧流条件下 FA 对 NOB 产生有效抑制。但在主流条件下,NOB 相对丰度明显升高,升至 1.6%,在本反应器中进一步增至 2.6%,这也与填料的 AOB/NOB 活性变化一致。在主流条件下,由于缺少 NOB 的抑制条件,NOB 菌在填料上的相对丰度逐渐增加。但 NOB 在填料生物膜中的不断富集并不一定会影响反应器运行效果。由于系统 DO 较低,而悬浮污泥的传质效率优于生物膜,填料生物膜中的 NOB 由于传氧限制,并不会发生明显硝化作用,这也是反应器能实现较高的亚硝氮积累效果的原因之一。

填料接种于侧流条件下时,反应器以 MBBR 形式运行,即 AOB 和厌氧氨氧化菌都在填料上,可看出此时 AOB 相对丰度较高,为 2.1%,在主流条件下是以填料和悬浮污泥共存形式运行。在此状态下,AOB 和 NOB 倾向于生长在悬浮污泥中,而由于较短的好氧污泥龄,NOB 面临淘洗的危

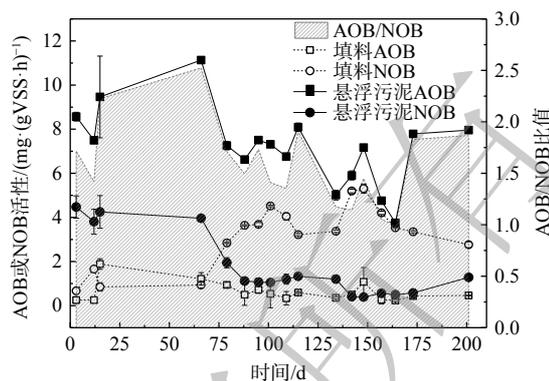


图 6 反应器内悬浮污泥和填料的 AOB 和 NOB 活性  
Fig. 6 AOB and NOB activity of suspended solids and carriers in the reactor

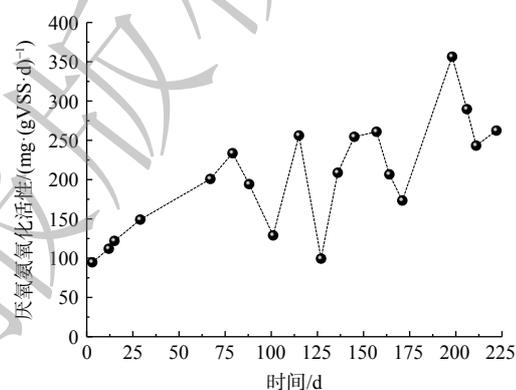


图 7 反应器内最大比厌氧氨氧化活性的变化  
Fig. 7 Change of maximum SAA in the reactor

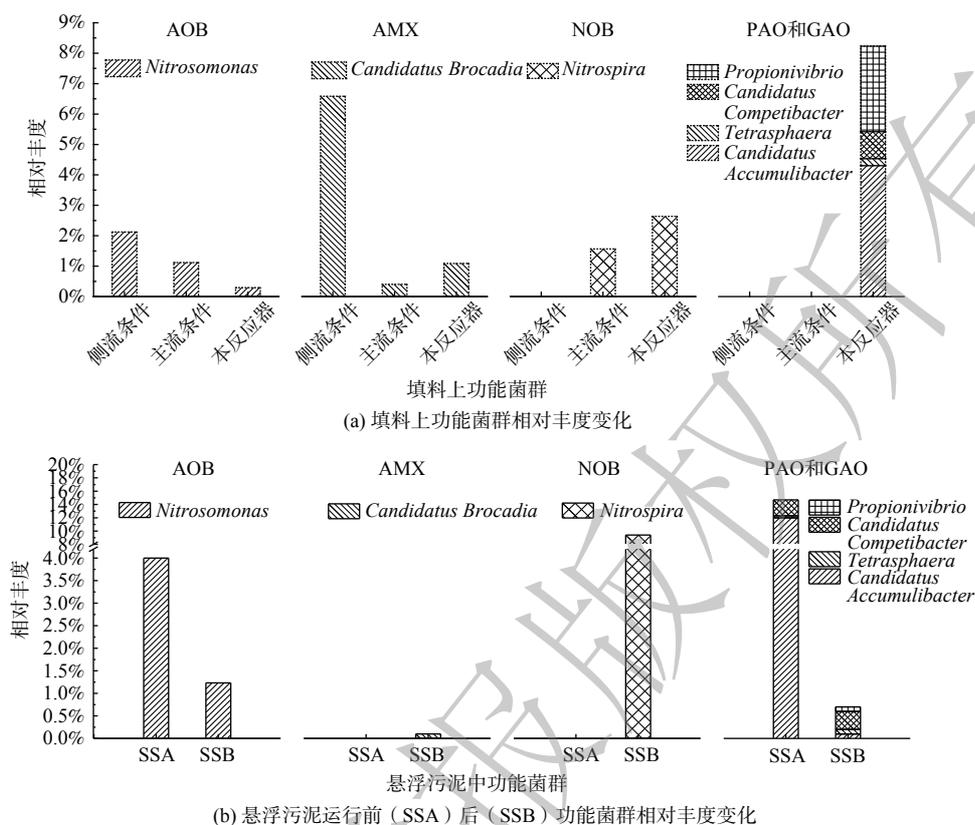


图 8 功能菌群相对丰度变化

Fig. 8 The relative abundance of dominant functional bacterial changes in the carriers before and after operation (a); the relative abundance of dominant functional bacterial changes in the suspended solids before and after operation (a);

险，则倾向于由悬浮污泥转向填料式的附着生长。将填料投加至该反应器后，聚磷菌也开始在填料上聚集，相对丰度共 8.2%，主要菌群为 *Candidatus Accumulibacter* 和 *Propionivibrio*，与悬浮污泥的聚磷菌种类一致。反应器运行 3 个月后，悬浮污泥中也呈现出丰度较高的 AOB 和 NOB (图 8 (b))，但聚磷菌的相对丰度仅为 0.1%，比投加填料前的 6.6% 到 12.0% 低很多，这可能是由于反应器前期经历了污泥损失后，污泥的微生物群落结构变化较大，还未恢复初始水平，但这并未影响反应器的运行效果。

### 3 结论

1) 该一体式反应器能长期稳定运行，出水氮磷指标较低，TIN 和 DP 的去除率分别达 87% 和 87.4%，PN/A 和 EBPR 能很好地耦合于同一反应器中。2) 强化间歇曝气能在系统内实现 NOB 抑制，亚硝氮积累率可达到 60% 以上，甚至 100%。悬浮污泥中较短好氧污泥龄会淘汰 NOB，而 NOB 开始由悬浮污泥向填料转移，受限于生物膜 DO 传质，系统的亚硝氮积累率未受影响。该系统为厌氧氨氧化菌提供了亚硝氮，厌氧氨氧化活性得到显著增加。3) 进水水质影响聚磷菌的释磷速率，进而影响吸磷速率。好氧段间歇曝气并未影响聚磷菌吸磷，反应器的出水磷浓度能够稳定低于  $0.5 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。4) 主流条件下附着在填料上的厌氧氨氧化菌可与悬浮污泥中的 AOB、NOB 和反硝化菌和谐共生，使反应器呈现高效稳定的脱氮效果。厌氧阶段聚磷菌充分利用有机物，进一步降低 C/N，为好氧段厌氧氨氧化作用提供了有利条件。

### 参考文献

[1] 杜睿, 彭永臻, 城市污水生物脱氮技术变革: 厌氧氨氧化的研究与实

践新进展[J]. 中国科学: 技术科学, 2022. 52(3): 389-402.

- [2] YUAN Q, GONG H, XI H, et al. Aerobic granular sludge formation based on substrate availability: Effects of flow pattern and fermentation pretreatment[J]. *Frontiers of Environmental Science & Engineering*, 2020, 14(3): 49.
- [3] KARTAL B, KUENEN J G, VAN LOOSDRECHT M C. Sewage treatment with anammox[J]. *Science*, 2010, 328(5979): 702-703.
- [4] GU J, YANG Q, LIU Y. Mainstream anammox in a novel A-2B process for energy-efficient municipal wastewater treatment with minimized sludge production[J]. *Water Research*, 2018, 138: 1-6.
- [5] 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.
- [6] VAN DER STAR W R, ABMA W R, BLOMMERS D, et al. Startup of reactors for anoxic ammonium oxidation: experiences from the first full-scale anammox reactor in Rotterdam[J]. *Water Research*, 2007, 41(18): 4149-63.
- [7] CAO Y S, VAN LOOSDRECHT M C, DAIGGER G T. Mainstream partial nitrification-anammox in municipal wastewater treatment: status, bottlenecks, and further studies[J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2017, 101(4): 1365-1383.
- [8] LAW Y, SWA THI S, CHEN X M, et al. The Start-up of Mainstream Anammox Process Is Limited Only by Nitrite Supply. \Frontiers in Wastewater Treatment and Modelling [M]. Cham: Springer International Publishing, 2017: 18-21.
- [9] 俞小军, 李杰, 王亚娥, 等. 微好氧EBPR系统污泥的同步脱氮及吸磷特性[J]. *兰州交通大学学报*, 2017, 36(3): 97-105.
- [10] ZHANG H L, FANG W, WANG Y P, et al. Species of phosphorus in the extracellular polymeric substances of EBPR sludge[J]. *Bioresource Technology*, 2013, 142: 714-718.
- [11] YUAN C S, WANG B, PENG Y Z, et al. Simultaneous enhanced biological phosphorus removal and semi-nitrification (EBPR-SN) followed by anammox process treating municipal wastewater at seasonal temperatures: From summer to winter[J]. *Science of Total Environment*, 2021, 757: 144048.
- [12] YANG Y D, ZHANG L, SHAO H D, et al. Enhanced nutrients removal from municipal wastewater through biological phosphorus removal followed by partial nitrification/anammox[J]. *Frontiers of Environmental Science & Engineering*, 2017, 11(2): 8.
- [13] YUAN C S, PENG Y Z, JI J T, et al. Advanced nitrogen and phosphorus removal from municipal wastewater via simultaneous enhanced biological phosphorus removal and semi-nitrification (EBPR-SN) combined with anammox[J]. *Bioprocess and Biosystems Engineering*, 2020, 43(11): 2039-2052.
- [14] YUAN C S, WANG B, PENG Y Z, et al. Nutrient removal and microbial community in a two-stage process: Simultaneous enhanced biological phosphorus removal and semi-nitrification (EBPR-SN) followed by anammox[J]. *Bioresource Technology*, 2020, 310: 123471.
- [15] 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.
- [16] WANG Q Y, YU D S, WANG X S, et al. Development of novel denitrifying nitrite accumulation and phosphorus removal (DNAPR) process for offering an alternative pretreatment to achieve mainstream Anammox[J]. *Bioresource Technology*, 2021, 319: 124164.
- [17] JI J T, PENG Y Z, WANG B, et al. A novel SNPR process for advanced nitrogen and phosphorus removal from mainstream wastewater based on anammox, endogenous partial-denitrification and denitrifying dephosphatation[J]. *Water Research*, 2020, 170: 115363.
- [18] HUANG W, ZHOU J, HE X J, et al. Simultaneous nitrogen and phosphorus removal from simulated digested piggery wastewater in a single-stage biofilm process coupling anammox and intracellular carbon metabolism[J]. *Bioresource Technology*, 2021, 333: 125152.
- [19] ROOTS P, SABBA F, ROSENTHAL A F, et al. Integrated shortcut nitrogen and biological phosphorus removal from mainstream wastewater: process operation and modeling[J]. *Environmental Science: Water Research & Technology*, 2020, 6(3): 566-580.
- [20] LAURENI M, WEISSBRODT D G, VILLEZ K, et al. Biomass segregation between biofilm and flocs improves the control of nitrite-oxidizing bacteria in mainstream partial nitrification and anammox processes[J]. *Water Research*, 2019, 154: 104-116.
- [21] DOLD P, DU W W, BURGER G, et al. Is Nitrite-Shunt Happening in the System? Are Nob Repressed?[J]. *Proceedings of the Water Environment Federation*, 2015(13): 1360-1374.
- [22] ZENG W, LI B, WANG X, et al. Integration of denitrifying phosphorus removal via nitrite pathway, simultaneous nitrification-denitrification and anammox treating carbon-limited municipal sewage[J]. *Bioresource Technology*, 2014, 172: 356-364.
- [23] PEREZ J, LOTTI T, KLEEREBEZEM R, et al. Outcompeting nitrite-oxidizing bacteria in single-stage nitrogen removal in sewage treatment plants: a model-based study[J]. *Water Research*, 2014, 66: 208-218.
- [24] WANG H, XU G, QIU Z, et al. NOB suppression in pilot-scale mainstream nitrification-denitrification system coupled with MBR for municipal wastewater treatment[J]. *Chemosphere*, 2019, 216: 633-639.
- [25] LI J L, ZHANG L, PENG Y Z, et al. NOB suppression in partial nitrification-anammox (PNA) process by discharging aged flocs: Performance and microbial community dynamics[J]. *Chemosphere*, 2019, 227: 26-33.
- [26] ROOTS P, ROSENTHAL A F, YUAN Q, et al. Optimization of the carbon to nitrogen ratio for mainstream deammonification and the resulting shift in nitrification from biofilm to suspension[J]. *Environmental Science-Water Research & Technology*, 2020, 6(12): 3415-3427.
- [27] LOTTI T, KLEEREBEZEM R, HU Z, et al. Pilot-scale evaluation of anammox-based mainstream nitrogen removal from municipal wastewater[J]. *Environment Technology*, 2015, 36(9/10/11/12): 1167-1177.
- [28] XU X C, QIU L Y, WANG C, et al. Achieving mainstream nitrogen and phosphorus removal through Simultaneous partial Nitrification, Anammox, Denitrification, and Denitrifying Phosphorus Removal (SNADPR) process in a single-tank integrative reactor[J]. *Bioresource Technology*, 2019, 284: 80-89.

(责任编辑: 靳炜)

## Integrated PN/A and EBPR process for real low C/N mainstream municipal wastewater treatment

YUAN Quan<sup>1,2,3</sup>, LI Meiling<sup>4</sup>, WANG Tiejian<sup>5</sup>, LOU Yuqing<sup>1</sup>, CHEN Song<sup>1</sup>, JIA Zhen<sup>2</sup>, WELLS George<sup>2</sup>, SUN Yingxue<sup>1</sup>, WANG Kaijun<sup>3,\*</sup>

1. School of Ecology and Environment, Beijing Technology and Business University, Beijing 100048, China; 2. Northwestern University, Evanston IL 60201, USA; 3. School of Environment, Tsinghua University, Beijing 100084, China; 4. Tianjin Research Institute for Water Transport Engineering, M.O.T, Tianjin 300456, China; 5. Tangshan Caofeidian City Drainage Co., Ltd., Tangshan 063200, China

\*Corresponding author, E-mail: wkj@tsinghua.edu.cn

**Abstract** An integrated partial nitrification/anammox (PN/A) coupled with enhanced biological phosphorus removal process (EBPR) has been developed to decrease carbon source consumption and energy consumption, as well as improve nitrogen and phosphorus removal efficiency, in response to the problems of energy consumption, high drug consumption, and low efficiency in nitrogen and phosphorus removal of low C/N municipal wastewater due to insufficient carbon source. The operation efficiency of the integrated process was investigated by establishing a mixed system comprising suspended sludge and biofilm and employing anaerobic-aerobic operation mode and intermittent aeration strategy. The results showed that the reactor operated stably in a long term, with a total inorganic nitrogen (TIN) concentration lower than  $4 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  and a phosphorus concentration of  $0.2 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  in the effluent. The average TIN removal efficiency was above 90%, the average P removal rate was over 85%, and the average nitrogen removal rate was  $53 \text{ mg}\cdot(\text{gVSS}\cdot\text{d})^{-1}$ . With enhanced intermittent aeration, nitrite oxidation bacteria (NOB) can be well suppressed in the system and the rate of nitrite nitrogen accumulation reached up to 60% or even 100%. After adopting a tight aerobic sludge age (3.5 days) control for suspended sludge, NOB started to move from suspended sludge to biofilm, however, the accumulation rate of nitrite was unaffected due to the restriction of biofilm mass transfer. The specific anaerobic ammonia oxidation activity in this system has increased by 5 times. *Candidatus Brocadia* was the dominant anaerobic ammonia oxidizing bacteria genus with a relative abundance of 1.1%, which is 2.75 times greater than under mainstream conditions. This work demonstrated the feasibility of cooperation of PN/A and EBPR for low C/N municipal wastewater treatment. This process has a good ability to cope with quality fluctuations and ensures a stable operation.

**Keywords** simultaneous nitrogen and phosphorus removal; anammox; enhanced biological phosphorus removal; partial nitrification; dual-SRT; carbon and pollution reduction