



文章栏目：环境生物技术

DOI 10.12030/j.cjee.202101132

中图分类号 X703

文献标识码 A

孙峰,余昕洁,武威,等.基于 SNADPR 作用的复合式人工快速渗滤系统的运行性能及微生物学特征[J].环境工程学报,2021,15(10):3387-3399.

SUN Feng, YU Xinjie, WU Wei, et al. Study on the operation performance and microbiological characteristics of a hybrid constructed rapid infiltration system utilizing the SNADPR process[J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2021, 15(10): 3387-3399.

基于 SNADPR 作用的复合式人工快速渗滤系统的运行性能及微生物学特征

孙峰¹,余昕洁¹,武威¹,潘玲阳²,王振^{1,✉}

1. 安徽农业大学资源与环境学院,合肥 230036

2. 安徽新华学院城市建设学院,合肥 230088

第一作者:孙峰(1996—),男,硕士研究生。研究方向:污水生物资源化处理与回用技术。E-mail: sfaau1996@126.com

✉通信作者:王振(1985—),男,博士,副教授。研究方向:废水生物资源化处理与环境的可持续性。E-mail: zwang@ahau.edu.cn

摘要 将基于亚硝化的全程自养脱氮(CANON)作用的人工快速渗滤(CRI)装置与反硝化除磷(DPR)型 CRI 装置耦合为基于同步短程硝化、厌氧氨氧化、反硝化和反硝化除磷(SNADPR)作用的复合式人工快速渗滤(H-CRI)系统,探究了其运行性能及微生物学特征。当 H-CRI 系统按照内循环潮汐流模式连续运行时,反应装置在水力负荷为 $0.18 \text{ m}^3 \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ 的条件下对生活污水中有机物、TN、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 TP 的去除率分别可达 $(94.39 \pm 1.32)\%$ 、 $(97.87 \pm 0.43)\%$ 、 $(99.00 \pm 0.32)\%$ 和 $(95.96 \pm 2.79)\%$ 。其中, CANON 反应与生物蓄磷作用分别是系统脱氮除磷的主要途径,两者去除的氮磷量分别占 H-CRI 系统脱氮除磷总量的 $(72.13 \pm 6.12)\%$ 和 $(82.29 \pm 5.58)\%$ 。结合分子生物学实验结果可知,适宜的耦合模式有助于实现 H-CRI 系统中好氧氨氧化微生物、厌氧氨氧化菌、反硝化菌和聚磷菌群的有效协作,进而可促进 SNADPR 反应体系在其中形成并强化,实现对生活污水中有机物及氮磷元素的高效同步去除。

关键词 人工快速渗滤系统;厌氧氨氧化;反硝化除磷;耦合;运行特性

提高人工快速渗滤(constructed rapid infiltration, CRI)系统的脱氮除磷性能是确保该工艺高效处理城镇生活污水的关键^[1-2]。在诸多研究中,强化 CRI 系统中基于亚硝化的全程自养脱氮(completely autotrophic nitrogen removal over nitrite, CANON)作用被认为是提高该工艺脱氮效果的重要途径,此技术随之用于城镇生活污水处理^[3]。截至目前,有学者相继开展了常温和低 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 浓度下 CRI 系统中 CANON 作用的发生及强化研究,并取得了一定进展^[4-5]。然而,在处理城镇生活污水时, CANON 型 CRI 工艺仍存在不足,突出表现在以下 2 点:首先,由于污水中不可避免地含有

收稿日期:2021-01-21;录用日期:2021-09-13

基金项目:国家自然科学基金青年资助项目(51508002);安徽省重点研究与开发计划资助项目(202004h07020024, 201834040011);安徽省自然科学基金面上资助项目(2008085ME162);安徽省高等学校自然科学研究重点项目(KJ2020A0793)

一定浓度的有机物, CRI系统中的CANON作用通常与反硝化耦合, 以期通过构建同步亚硝化、厌氧氨氧化(anaerobic ammonia oxidation, ANAMMOX)与反硝化(simultaneous nitrification, ANAMMOX and denitrification, SNAD)耦合反应体系实现高效脱氮^[6], 然而, 生活污水中偏低的 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 浓度与较高的碳氮比(C/N)会影响CANON反应的强度及稳定性, 由此会引起系统脱氮性能的波动^[7]; 其次, 无论是CANON作用亦或是SNAD作用均无法去除污水中的磷素, CRI装置中的填料对磷素的吸附沉淀效果会随运行时间的延长而下降, 从而导致系统的除磷性能不可持续^[8]。

作为另一种备受关注的生物脱氮除磷新技术, 反硝化除磷(denitrifying phosphorus removal, DPR)工艺可消耗有机碳源, 并可发挥“一碳两用”的功能, 使除磷和反硝化在缺氧环境下同时完成^[9]。有研究结果初步证实, 反硝化除磷耦合ANAMMOX作用的生物同步脱氮除磷工艺具备高效处理市政污水的潜力^[10-11], 如能在CRI系统中实现CANON作用与DPR作用的耦合, 则CANON型CRI工艺的上述缺陷便有可能得到弥补。

本研究尝试构建了基于同步短程硝化、ANAMMOX、反硝化和反硝化除磷(simultaneous partial nitrification, ANAMMOX, denitrification and denitrifying phosphorus removal, SNADPR)作用的复合式人工快速渗滤(hybrid constructed rapid infiltration, H-CRI)系统, 考察和探究了该系统的运行效能及微生物特性, 而后对其中氮磷元素的归趋进行了解析。期望通过此研究, 可探寻有效措施以弥补CANON型CRI工艺在处理城镇生活污水时的缺陷, 提高其脱氮除磷性能及其稳定性, 进而推动新型生物同步脱氮除磷工艺的研发及应用。

1 材料与方法

1.1 实验装置

SNADPR型H-CRI装置构型见图1。

前期实验分别构建了CANON型CRI系统和DPR型CRI系统^[12-13]。其中: CANON型CRI系统由PVC管制成, 表面积约 314 cm^2 ($\phi=20\text{ cm}$), 其填料层厚度为 50 cm 且孔隙率约为37%: 底部为 5 cm 厚砾石承托层, 粒径为 $1\sim 3\text{ cm}$; 上部为 45 cm 厚沸石层, 粒径为 $5\sim 10\text{ mm}$ 。装置顶部和底部分别设有进水管和出水管, 出水管附有计量阀控制装置的排水速率(v_d)。前期研究中, 当 v_d 为 $0.5\text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ 时, 系统中的CANON作用得以强化, 其TN和 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除率分别为 $(85.02\pm 2.24)\%$ 和 $(94.16\pm 1.03)\%$ 。DPR型CRI系统的材质、尺寸及填料填充方式同CANON型CRI系统, 区别之处在于其填料层上部为 45 cm 厚陶粒层(粒径为 $5\sim 10\text{ mm}$)。装置侧壁分别设有进水管、排水管和反冲洗曝气管, 三者均安装于距装置底部 5 cm 处。其中, 反冲洗曝气管一端与埋设在砾石承托层中的曝气头连接, 一端与曝气泵相连。装置底部另设有排空管以收集反冲洗过程中填料层产生的富磷生物膜。前期研究中, $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 和有机碳源分开的两段进水潮流运行方式以及填料层中厌氧/缺氧交替的微环境强化了该系统中的DPR作用, 其时该系统对有

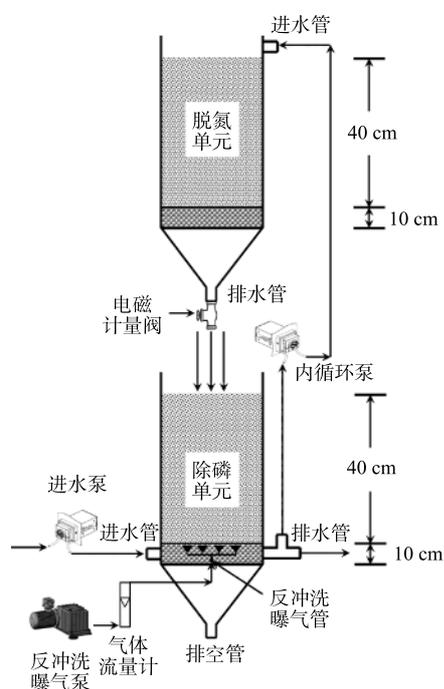


图1 SNADPR型H-CRI装置构型

Fig. 1 Schematic of a H-CRI system utilizing the SNADPR process

机物、 $\text{NO}_x\text{-N}$ 和 TP 的去除率分别为 $(96.09\pm 2.51)\%$ 、 $(93.74\pm 2.46)\%$ 和 $(97.49\pm 0.73)\%$ 。

SNADPR 型 H-CRI 系统由 CANON 型 CRI 装置 (标记为脱氮单元) 和 DPR 型 CRI 装置 (标记为除磷单元) 耦合而成 (图 1), 即两单元上下堆叠, 并设置 3 台泵控制其运行。其中, 1 台为进水泵, 与除磷单元的进水管相连; 1 台为内循环泵, 分别与除磷单元的排水管和脱氮单元的进水管相连, 可将前者出水泵入后者; 1 台为反冲洗曝气泵, 与除磷单元的反冲洗曝气管相连。此外, 本研究另设置 1 套 CANON 型 CRI 系统作为对照组, 用于和 SNADPR 型 H-CRI 系统进行对比。

1.2 运行方式

考虑到好氧氨氧化菌 (AOB)、厌氧氨氧化菌 (AnAOB)、反硝化菌和反硝化聚磷菌 (DPAOs) 等功能微生物各自的生理生化特性, 需对 SNADPR 型 H-CRI 系统进行空间或时间上的分割与交替, 才能确保上述功能微生物的高效协同。为此, 将该系统按照内循环潮汐流模式连续运行 150 个周期 (图 2), 每个周期时长为 12 h。运行方式为: 将 5 L 进水泵入除磷单元中, 使其进入释磷反应期, 期间脱氮单元处于闲置期; 随后, 内循环泵将污水自除磷单元的排水管泵入脱氮单元中, 使后者进入脱氮反应期, 期间除磷单元处于中间闲置期; 待脱氮单元的脱氮反应期结束后, 此单元中的污水通过排水管以 $0.5 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ 的排水速率跌入除磷单元中, 则除磷单元进入吸磷反应期, 而脱氮单元则进入二次闲置期; 最后, 除磷单元将处理后的污水排出系统。按照时间顺序, 上述典型周期内除磷单元的运行过程依次标记为进水期 (时长为 15 min)、释磷反应期 (时长为 150 min)、中间排水期 (时长为 15 min)、中间闲置期 (时长为 270 min)、中间进水期 (时长为 15 min)、吸磷反应期 (时长为 240 min) 和排水期 (时长为 15 min) 7 个阶段; 脱氮单元的运行过程依次为闲置期 (时长为 165 min)、进水期 (时长为 15 min)、脱氮反应期 (时长为 270 min)、排水期 (时长为 15 min) 和二次闲置期 (时长为 255 min) 5 个阶段。H-CRI 系统的污水处理量为 $10 \text{ L}\cdot\text{d}^{-1}$, 水力负荷 (HLR) 为 $0.18 \text{ m}^3\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$ 。

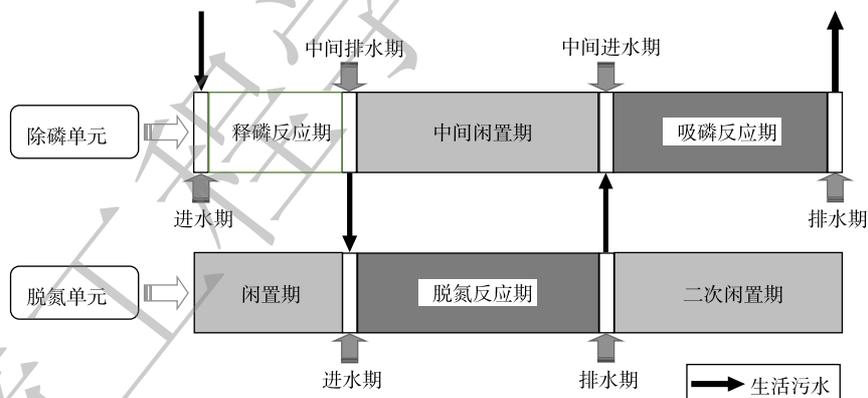


图 2 SNADPR 型 H-CRI 系统的运行模式

Fig. 2 Operation mode of a H-CRI system utilizing the SNADPR process

对照组在实验阶段以潮汐流模式亦连续运行了 150 个周期, 每个周期时长为 12 h, 包括进水期 (时长为 15 min)、淹水期 (时长为 270 min)、排水期 (时长为 15 min, $v_d=0.5 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$) 和闲置期 (时长为 420 min) 4 个阶段。该系统的污水处理量为 $10 \text{ L}\cdot\text{d}^{-1}$, HLR 为 $0.32 \text{ m}^3\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$ 。

1.3 反冲洗操作

每周对 H-CRI 系统中的除磷单元进行反冲洗, 以去除其中老化的生物膜, 维持 DPAOs 活性并确保填料层的孔隙率。采用气-水联合反冲洗方式对此单元进行反冲洗: 先对其单独气洗 4 min, 而后气-水联合反冲洗 5 min, 最后漂洗 9 min。此过程中水洗和气洗的强度分别为 $6 \text{ L}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{s})^{-1}$ 和 $12 \text{ L}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{s})^{-1}$ 。清洗液和脱落的生物膜通过该单元的排空管进行收集。

1.4 进水水质

实验用水为安徽农业大学园区内生活污水, 将其初沉后的上清液作为2组装置进水, 其耗氧有机物(以COD计)、TN、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 和TP的质量浓度分别为(274.44±27.72)、(40.96±1.42)、(39.54±1.45)、(1.01±0.21)、(0.40±0.03)和(5.66±1.15) $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。

1.5 分析方法

1) 水样采集及分析方法。每天采集装置进出水水样; 当各系统稳定运行时, 在其典型周期内实时采集填料层中的水样。水样中COD、TN、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 和TP的测定方法均参照文献[14]。典型周期内装置中的DO浓度和ORP值采用多功能水质分析仪(Multi 340i, WTW)进行原位测定。

2) 填料样品采集。在实验阶段末采集2组实验装置中的填料样品, 样品编号分别标记 S_1 (取自对照组)、 S_2 (取自H-CRI系统的脱氮单元)和 S_3 (取自H-CRI系统的除磷单元)。

3) 脱氮除磷性能测定。对于 S_1 和 S_2 , 其亚硝化活性(PPNA)、硝化活性(PNA)、反硝化活性(PDA)、短程反硝化活性(PBDA)及厌氧氨氧化比活性(SAA)分别参照文献[15-16]中方法进行测定; 对于 S_3 , 其生物膜中PHA、PHB、PHV、PH2MV和糖原(Gly)含量的测定参照文献[17], DPAOs占PAOs比例(即DPAOs/PAOs)的测定参照文献[18]。填料样品中全氮和全磷含量的测定方法均参照文献[19]。

4) 基于16S rDNA的Illumina平台高通量测序。获取上述填料样品表面的生物膜, 而后将其送至上海美吉生物科技医药公司进行高通量分析测序。测序分析后, 根据Barcode序列区分各个样本的数据, 进行嵌合体过滤, 得到可用于后续分析的有效数据, 即Clean reads。为了研究样品的物种组成多样性, 对所有样品的Clean reads进行聚类, 以97%的一致性(identity)将序列聚类成OTUs(operational taxonomic units), 然后对OTUs的代表序列进行物种注释。

1.6 数据处理

采用SPSS 22.0对试验数据进行统计分析; 采用one-way ANOVA进行方差分析; 采用Origin 2018作图, 图中相关数据为平均值±标准差; 文中污染物去除(转化)率(量)、累积率(量)等的计算方法均参照文献[20]; 实验装置中氮磷去除途径的解析方法参考文献[21]。

2 结果与讨论

2.1 运行性能

由图3可知, 作为前期已成功启动的CANON型CRI系统, 对照组具有良好的有机物去除性能 [$\eta \approx (82.10 \pm 0.12)\%$], 其出水的COD值 $< 50 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。有研究[4]表明, 由于生物膜结构及其内部微环境的复杂性, 某些CANON工艺中仍存在相当数量的异养型微生物, 其可获得高效的有机物去除效果。然而, 进水中的有机物却使对照组的脱氮性能出现下降, 其TN和 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除率分别由实验伊始的(87.91±5.28)%和(95.44±8.88)%降至稳定运行阶段的(61.12±2.85)%和(72.44±1.65)%。此外, 该系统出水中TP的质量浓度在实验阶段始终为(5.00±0.14) $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 即其TP去除率仅为(11.67±0.79)%。鉴于该装置除磷的主要途径为填料吸附沉淀作用, 其不佳的除磷性能应归因于沸石较低的磷吸附容量[22]。

在稳定运行期间, SNADPR型H-CRI系统对进水中有机物、TN、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和TP的去除率分别可达(94.39±1.32)%、(97.87±0.43)%、(99.00±0.32)%和(95.96±2.79)%, 即其出水中COD、TN、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 和TP分别稳定在(15.38±3.59)、(0.87±0.17)、(0.39±0.12)、(0.33±0.07)、(0.14±0.07)和(0.23±0.15) $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ (图3)。此外, 由图4和图5可知, 在释磷反应期内, 系统中除磷单元中DO浓度与ORP值分别维持在(0.15±0.01) $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和(-177±6) mV。期间, 伴随着此单元中COD值降至(32.30±

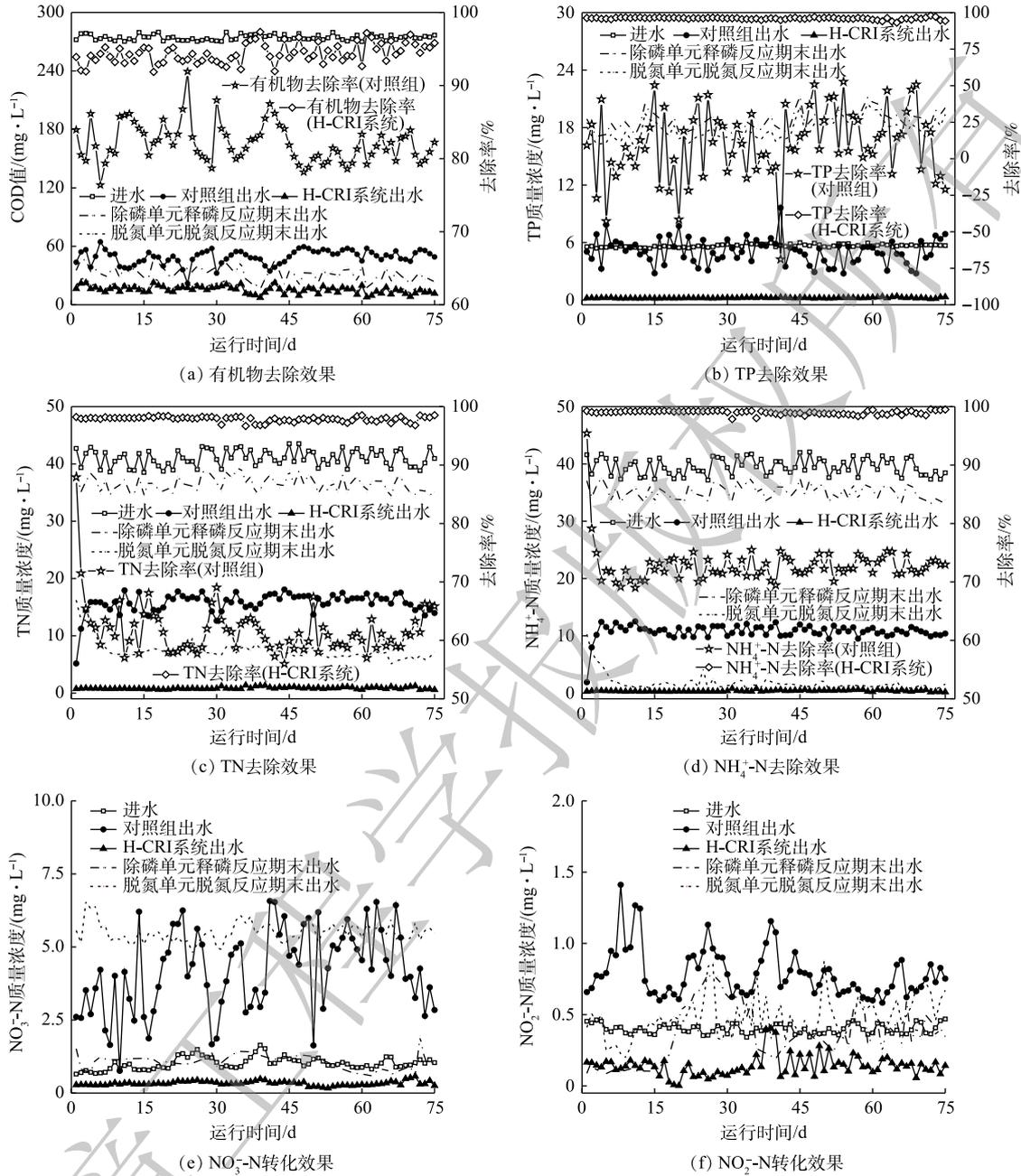


图 3 2组装置运行性能比较

Fig. 3 Comparison of the performance of two devices

7.20) mg·L⁻¹, 其释磷速率达 (5.22±0.48) mg·(L·h)⁻¹, 生物膜中的胞内碳源含量亦随着 Gly 的酵解显著增加, PHA、PHB、PHV 和 PH2MV 的合成量分别为 (3.97±0.62)、(3.08±0.45)、(0.45±0.07) 和 (0.73±0.15) mmol·g⁻¹。然而, 该单元中 TN 和 NH₄⁺-N 的浓度却仅在释磷反应期之初略有下降, 之后便稳定在 (37.02±0.54) mg·L⁻¹ 和 (35.58±0.54) mg·L⁻¹。释磷反应期结束后, 废水通过内循环泵泵入脱氮单元中, 该单元在脱氮反应期对 TN 和 NH₄⁺-N 的去除率随之可达 (80.54±3.72)% 和 (95.85±6.37)%, 其出水 TN 的浓度为 (7.12±0.87) mg·L⁻¹ 且主要以 NO₃⁻-N 为主, 即氮素在脱氮单元中的削减特征符合 CANON 作用的反应特点^[23]。此单元在脱氮反应期内还可进一步去除进水中的耗氧有机物, 使 COD 值进一步降至 (18.43±2.51) mg·L⁻¹。然而, 其 TP 去除效果不佳, 出水 TP 质量浓度仍达 (17.77±

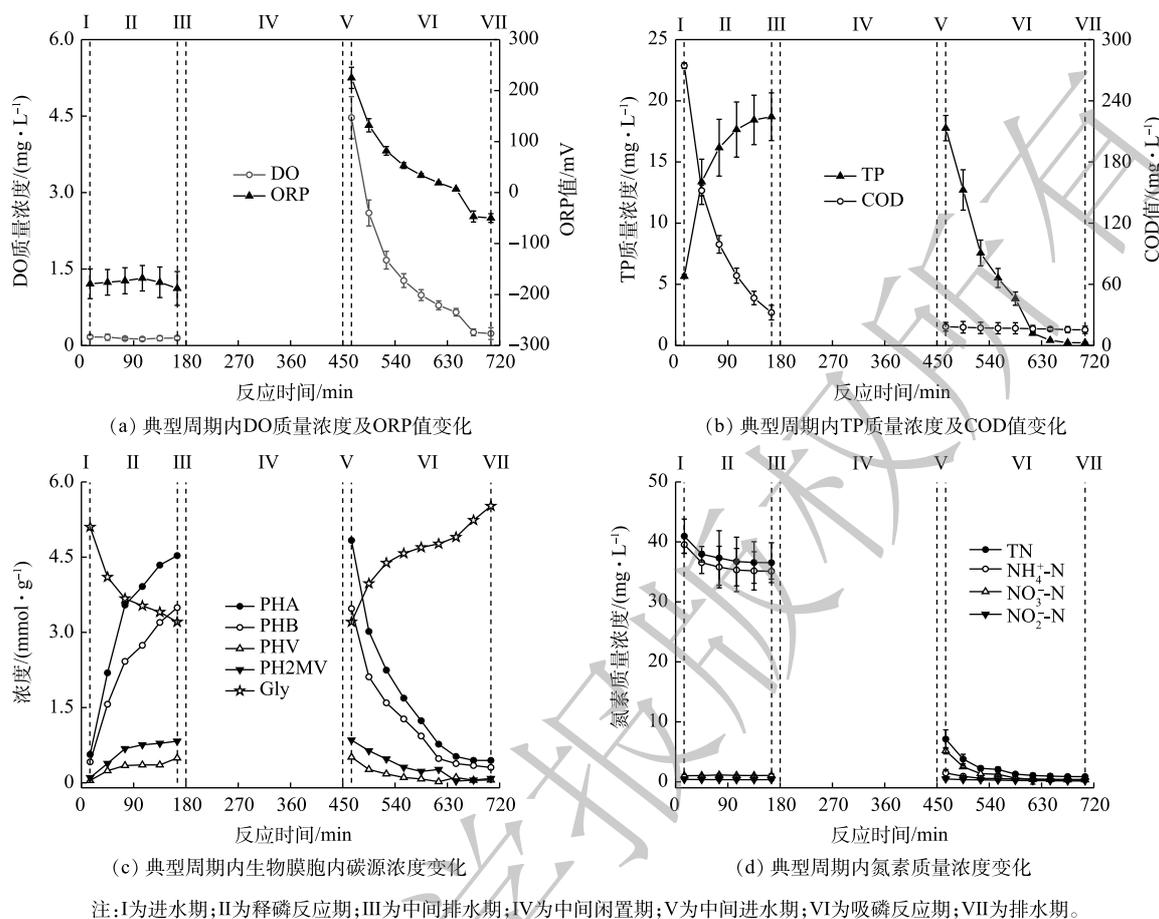


图4 典型周期内H-CRI系统除磷单元中污染物质量浓度变化

Fig. 4 Pollutant concentration variation of contaminants in phosphorus removal unit of the H-CRI system during a typical cycle

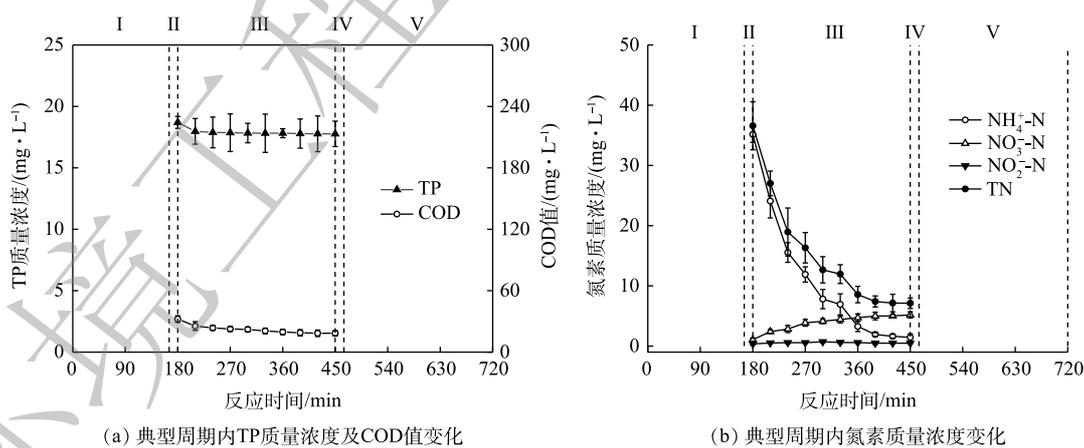


图5 典型周期内H-CRI系统脱氮单元中污染物质量浓度变化

Fig. 5 Pollutant concentration variation of in nitrogen removal unit of the H-CRI system during a typical cycle

1.03) $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。随着污水又复排入除磷单元, 其中的污染物 (尤其是 $\text{NO}_x\text{-N}$ 和TP) 得以进一步去除。吸磷反应期伊始, 由于中间闲置期的设置及其“跌水”式的中间进水方式, 其填料层中的DO浓度与ORP值分别达 $(4.47\pm 0.41)\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $(225\pm 20)\text{mV}$ 。随着吸磷反应期的进行, 填料层中的DO不断被

消耗, TP 和 $\text{NO}_3\text{-N}$ 的质量浓度同步下降, 同时该单元生物膜中的胞内碳源含量也不断降低, 期间 PHA、PHB、PHV 和 PH2MV 的消耗量分别为 (4.38 ± 0.75) 、 (3.17 ± 0.36) 、 (0.45 ± 0.12) 和 (0.76 ± 0.15) $\text{mmol}\cdot\text{g}^{-1}$, 生物膜胞内的 Gly 含量则由 (3.21 ± 0.74) $\text{mmol}\cdot\text{g}^{-1}$ 增至 (5.51 ± 0.18) $\text{mmol}\cdot\text{g}^{-1}$ 。经计算可知, H-CRI 系统中的脱氮单元可去除进水中 $(73.67\pm 1.88)\%$ 的 TN 和 $(86.08\pm 1.59)\%$ 的 $\text{NH}_4\text{-N}$; 有机物的降解与 TP 的超量吸收则主要发生在除磷单元中: 在释磷反应期, 其去除的有机物占系统有机物去除总量的 $(93.53\pm 2.42)\%$, 在此期间该单元释磷现象显著, 阶段末出水 TP 质量浓度达 (18.79 ± 0.93) $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$; 在吸磷反应期, 此单元转而超量吸磷, 除磷量为 (35.28 ± 2.17) $\text{mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$, 其对 $\text{NO}_3\text{-N}$ 的去除量亦达 (10.24 ± 0.60) $\text{mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$ 。

上述结果表明, 相较于对照组, H-CRI 系统具备更佳的有机物及氮磷去除性能, 可实现对生活污水的高效处理。对于该耦合装置, 内循环潮汐流运行模式的设置可使其中的脱氮单元和除磷单元高效协作, 且 2 单元中 CANON 作用和 DPR 作用的强度及稳定性均可得到充分保障。

2.2 微生物群落组成

由图 6 可知, 变形菌门 (*Proteobacteria*)、浮霉菌门 (*Planctomycetota*) 和绿弯菌门 (*Chloroflexi*) 是 S_1 和 S_2 中相对丰度较高的 3 个菌门。其中, *Proteobacteria* 在 2 组样本中的占比均 $>20\%$; *Planctomycetota* 在 S_1 中的相对丰度为 17.66%, 但其在 S_2 中的含量却可达 26.40%; 此外, S_1 中硝化螺旋菌门 (*Nitrospirota*) 的相对丰度较 S_2 (5.16%) 显著下降至 0.85%, 但其中酸杆菌门 (*Acidobacteriota*) 的含量却增至 6.72%, 高于 S_2 (0.91%)。有研究者指出, 多数 AOB (如 *Nitrosococcus*、*Nitrosomonas* 等) 属 *Proteobacteria*; AnAOB 共包括 5 个属 9 个菌种, 均属于 *Planctomycetota*; 亚硝酸盐氧化菌 (NOB) 属于 *Nitrospirota*; 反硝化菌则主要存在于 *Proteobacteria*; 另外, *Acidobacteriota* 中的部分功能菌也具备还原 $\text{NO}_3\text{-N}$ 和 N_2O 的能力^[24-25]。据此推断, 对于对照组和 H-CRI 系统中的脱氮单元, AOB 和 AnAOB 均是其中主要的脱氮微生物。此外, 各组装置中均还存在 NOB、反硝化菌及部分异养菌等, 上述微生物各异的丰度水平应归因于 2 组装置运行模式及进水水质的差异。*Proteobacteria*、*Chloroflexi* 和拟杆菌门 (*Bacteroidota*) 是 S_3 中相对丰度较高的 3 个菌门。有研究证实, *Proteobacteria* 和 *Bacteroidota* 是反硝化除磷系统中的优势菌门^[18], 故 H-CRI 系统的除磷单元中应存在较高强度的 DPR 作用, 而此单元中 NOB 的增殖应与其填料层中氧环境有所增强有关。

由图 7 可知, S_1 和 S_2 中的优势菌属均包括 *Candidatus Brocadia* 和 *Nitrosomonas*, 2 种菌属与 CANON 反应相关^[24]。其中, *Candidatus Brocadia* 是上述样本中检出的唯一 AnAOB, 此结果与 HU 等^[26] 和 GONZALEZ 等^[27] 的研究结

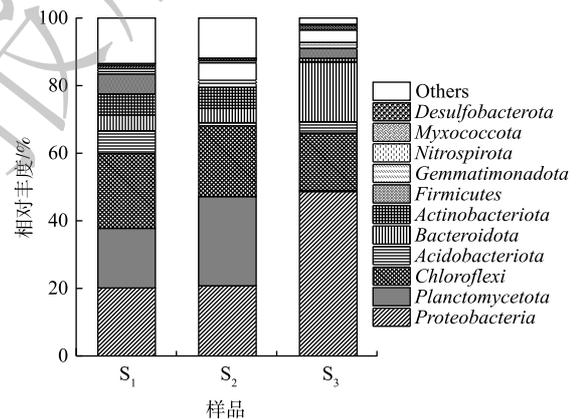


图 6 各样本中主要菌门相对丰度

Fig. 6 Relative abundance at phylum level in the samples

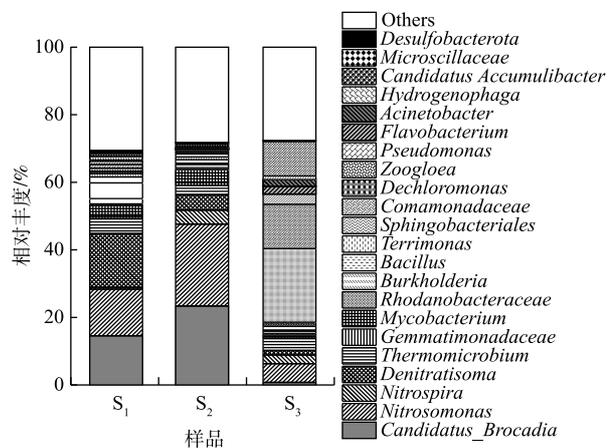


图 7 各样本中主要菌属相对丰度

Fig. 7 Relative abundance at genus level in the samples

论相符。*Nitrosomonas* 是各样本中唯一检出的 AOB, 相较于 *Nitrospira* 与 *Nitrospina*, 该菌属被证实更易在 CANON 系统中生长^[28]。与图 6 相呼应, *Candidatus Brocadia* 和 *Nitrosomonas* 在 S_1 中的相对丰度 (14.56% 和 13.80%) 低于 S_2 (23.38% 和 24.25%); 硝化螺旋菌属 (*Nitrospira*) 在 S_1 中的含量也明显低于 S_2 。然而, 属红环菌科 (*Rhodocyclaceae*) 的反硝化菌属——*Denitratisoma* 此时却是 S_1 中的优势菌属, 其相对丰度可达 15.89%, 这表明, 对照组的反硝化性能较 H-CRI 系统的脱氮单元有所增强。上述结果进一步证实: 对照组和 H-CRI 系统的脱氮单元中均存在 CANON 反应体系; 对照组由于受到进水中较高浓度有机物的影响, 导致其中的异养菌 (包括反硝化菌) 滋生, 随之影响了 AOB 与 AnAOB 的丰度及活性, 进而影响了 CANON 作用的强度。而对于 H-CRI 系统的脱氮单元, 由于除磷单元与之耦合后可缓解有机物对其微生物群落结构的冲击, 则脱氮单元中 CANON 作用的强度及稳定性得到保障。 S_3 中的第 1 大优势菌属为 *Dechloromonas* (21.83%)。在侧流 EBPR 工艺中, *Dechloromonas* 是常见的优势微生物, 其具备缺氧吸磷的能力^[29]。此结果表明 H-CRI 系统的除磷单元具备较理想的反硝化除磷性能。*Zoogloea* (13.11%) 是 S_3 中的第 2 大优势菌属, 其能够合成胞内碳源进行内源反硝化作用^[30], 此样品中较高丰度的 *Zoogloea* 预示着 H-CRI 系统的除磷单元还具有一定的内源反硝化性能。值得注意的是, S_3 中还存在一定含量的 *Candidatus Accumulibacter* (10.23%) 和 *Pseudomonas* (3.01%), 此 2 种微生物均可进行反硝化除磷作用^[31-32], 则两者均对除磷单元的反硝化除磷效果有促进作用。有研究表明, 除了 $\text{NO}_3\text{-N}$, *Candidatus Accumulibacter* 还能以 O_2 为电子受体进行超量吸磷, 且厌氧/好氧交替的运行环境更有利于该菌属的生长代谢^[31], 故内循环潮汐流运行模式下除磷单元中增强的氧环境应促进了 *Candidatus Accumulibacter* 的增殖。相应地, S_3 中 AOB 和 NOB 的相对丰度在此条件下亦得到提高, 这一点亦与图 6 相呼应。另外, 除磷单元中聚糖菌 (GAOs) (如 *Candidatus Competibacter*、*Candidatus Contendobacter* 和 *Defluviicoccus* 等) 的相对丰度均极低, 即 GAOs 对底物的竞争并不会影响到 PAOs 的丰度与活性, 该结果应归因于反应装置较低的有机负荷^[33]。

2.3 功能微生物活性

由图 8 可知, 对照组的 PPNA 和 SAA 分别为 $(5.43 \pm 0.86) \text{ mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{h})^{-1}$ 和 $(3.16 \pm 0.32) \text{ mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{h})^{-1}$, 而其 PBDA 和 PDA 则分别为 $(2.98 \pm 1.04) \text{ mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{h})^{-1}$ 和 $(2.32 \pm 0.85) \text{ mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{h})^{-1}$ 。与同类型研究^[4]相比, 此系统中 CANON 作用的强度偏低, 但其反硝化性能却有较大幅度的提升。相较于对照组, H-CRI 系统中脱氮单元的 PPNA 和 SAA 分别增至 $(7.73 \pm 1.60) \text{ mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{h})^{-1}$ 和 $(5.70 \pm 0.64) \text{ mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{h})^{-1}$, 但该单元的 PBDA 和 PDA 有所下降, 分别稳定在 $(1.29 \pm 0.08) \text{ mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{h})^{-1}$ 和 $(1.03 \pm 0.10) \text{ mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{h})^{-1}$ 。据此判断, 脱氮单元中的 CANON 作用此时具备较高的强度, 其反硝化性能也得到一定程度的强化。进水 C/N 会影响 CANON 系统中各功能微生物之间的竞争和协同关系^[24]: 当进水中有机物浓度适量时, 各类脱氮功能微生物可共存并互相促进, 即系统中的 AOB 和 AnAOB 协作完成 CANON 反应, 反硝化菌则以有机碳源为电子供体, 将体系中剩余的 $\text{NO}_2\text{-N}$ 以及 CANON 反应产生的 $\text{NO}_3\text{-N}$ 还原为 N_2 或 N_2O ; 而当有机物浓度过高时, AnAOB 的竞争优势会被反硝化菌取代, 同时过量增殖的好氧异养菌亦会与 AOB 竞争 DO 并抑制其活性, 随之恶化系统的脱氮效果。有文献证实, 在处理 $\text{C/N} \geq 2$ 的污水时, CANON 工艺中的微生物群落结构会发生演替, 系统的脱氮途径与效能随之会出现不同程度的改变^[34-35]。本研究中所用生活污水的 $\text{C/N} \approx 6.50$ 且其 COD 值达 $(274.44 \pm 27.72) \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 结合 2.2 节中报告的结果可推断, 进水中较高含量的有机物应是造成对照组中微生物群落结构改变及其脱氮性能下降的主因; 而对于 H-CRI 系统, 由于其中的除磷单元对进水中有机物的消纳, 致使脱氮单元进水中的 COD 值仅为 $(32.30 \pm 7.25) \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 此水平的 $\text{C/N} (\approx 0.88)$ 不仅未显著影响脱氮单元中 CANON 作用的稳定性, 还会促使该单元中形成 SNAD 耦合反应体系, 因而有助于其脱氮性能的进一步提高。H-CRI 系统中除磷单元的厌氧释磷量稳定在 $(14.22 \pm 0.76) \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 其好/缺氧吸磷

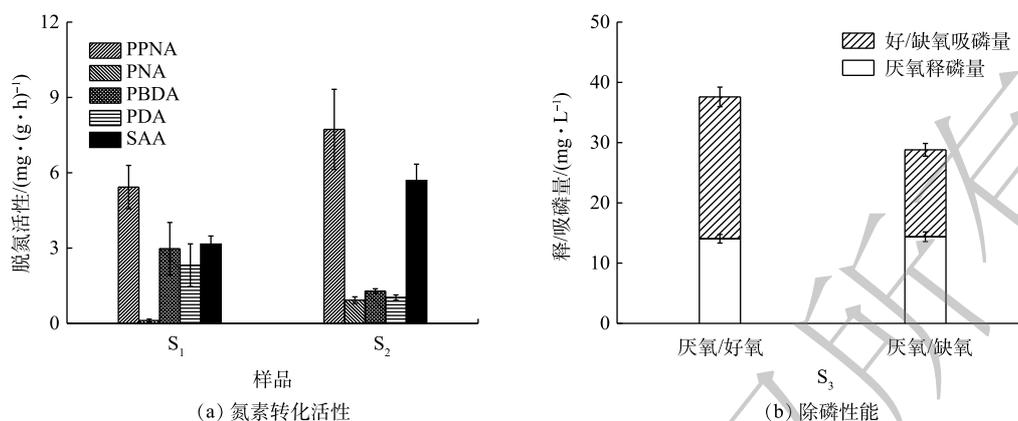


图 8 各样品的脱氮除磷性能

Fig. 8 Nitrogen and phosphorus removal of the samples

量则分别为 $(23.54 \pm 1.63) \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $(14.43 \pm 1.05) \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 即该单元中的 DPAOs/PAOs 为 $(61.30 \pm 5.12)\%$ 。相较于前期实验结果及其他研究^[36], 除磷单元中 DPAOs 在 PAOs 中的占比处于较高水平, 因而使得 H-CRI 系统中的除磷单元具备较强的生物蓄磷能力, 且其在典型周期内表现出较鲜明的反硝化除磷特征。

上述结果表明, 与对照组相比, 内循环潮汐流运行模式下的 H-CRI 系统凭借其 2 个子单元的高效耦合分别为 AOB、AnAOB、异养反硝化菌和 PAOs(包括 DPAOs) 提供了其各自适宜的生态位, 确保了此 4 类功能微生物对底物的合理竞争, 进而实现了对生活污水的高效处理。其中: 除磷单元中富集的 PAOs(包括 DPAOs) 可在释磷反应期内利用有机物合成胞内碳源, 因而削弱乃至消除了有机物对脱氮单元运行性能的影响, 确保了其中 CANON 作用的稳定; 除磷单元中的 PAOs 在吸磷反应期通过消耗内碳源实现了对脱氮单元出水中 TP 的超量吸收; 脱氮单元出水中的 $\text{NO}_x^- \text{-N}$ 可作为除磷单元中 DPAOs 进行超量吸磷的电子受体, 有助于维持除磷单元中 DPR 作用的稳定。

2.4 氮磷去除途径解析

由图 9 可知, H-CRI 系统在实验阶段的 TN 去除量为 $(1\ 082.39 \pm 27.82) \text{ g}$ 。其中, 除磷单元的 $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 和 $\text{NO}_2^- \text{-N}$ 去除量分别为 (156.29 ± 10.65) 、 (129.30 ± 7.13) 和 $(10.27 \pm 3.35) \text{ g}$; 脱氮单元的 $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 去除量为 (900.70 ± 58.05) , $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 和 $\text{NO}_2^- \text{-N}$ 释放量分别为 (110.87 ± 25.63) 和 $(3.30 \pm 1.24) \text{ g}$ 。除磷单元通过微生物吸收/转化作用去除的 TN 为 $(275.95 \pm 12.01) \text{ g}$, 占该单元 TN 去除量的 93.27%, 而通过填料吸附作用去除的 TN $[(19.91 \pm 2.14) \text{ g}]$ 仅占此单元氮素去除量的 6.73%。与除磷单元类似, 脱氮单元中氮素的主要去除途径亦为微生物吸收/转化作用, 此途径去除的 TN 占该单元氮素去除量的 99.26%。另由图 9 可知, 除磷与脱氮 2 单元的 TP 去除量分别为 $(121.61 \pm 18.50) \text{ g}$ 和 $(25.07 \pm 3.87) \text{ g}$ 。其中, 除磷单元通过 PAOs 的过量吸磷作用及其他微生物的吸收/转化作用去除了 $(120.70 \pm 9.25) \text{ g}$ 磷素, 占此单元 TP 去除量的 99.25%, 而填料的吸附沉淀作用仅去除了 0.75% 的磷素。脱氮单元截留的磷量远低于除磷单元, 其通过填料吸附沉淀作用而去除的磷量占该单元 TP 去除量的 82.93%, 其次为微生物的吸收/转化作用 ($\approx 17.07\%$)。该结果表明, 当 H-CRI 系统稳定运行时, 脱氮单元中的 CANON 作用是其氮素脱除的主要途径, 而磷的去除则主要依赖于除磷单元中 PAOs 的过量吸磷作用, 两者去除的氮磷量分别占该耦合系统脱氮除磷总量的 $(72.13 \pm 6.12)\%$ 和 $(82.29 \pm 5.58)\%$ 。需注意的是, 实验期间 2 单元中的填料对氮磷去除的贡献率均极低。此结果应归因于填料有限的氮磷吸附容量及其对不同形态氮素迥异的吸持能力^[22, 37]。

综上所述, 内循环潮汐流运行模式可将 DPR 型 CRI 装置与 CANON 型 CRI 装置成功耦合为 SNADPR 型 H-CRI 系统, 此工艺在处理生活污水时可摆脱低 $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 浓度 ($< 100 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$) 和高 C/N (\geq

2.0) 等因素的制约, 进而达到理想的同步脱氮除磷效果。该耦合系统弥补了 CANON 型 CRI 工艺在处理城镇生活污水时的不足, 且与已报道的基于活性污泥法或生物膜法的 SNADPR 工艺相比^[38-40], SNADPR 型 H-CRI 系统结构紧凑, 运行流程相对简单且其运行维护成本偏低(尤其节省了曝气能耗), 相较而言更有利于在实际工程中应用和推广。本研究成果进一步拓展了基于 ANAMMOX 作用的生物同步脱氮除磷工艺的应用范围, 并可为生活污水的高效低成本处理与新型 CRI 设备的研发提供参考。

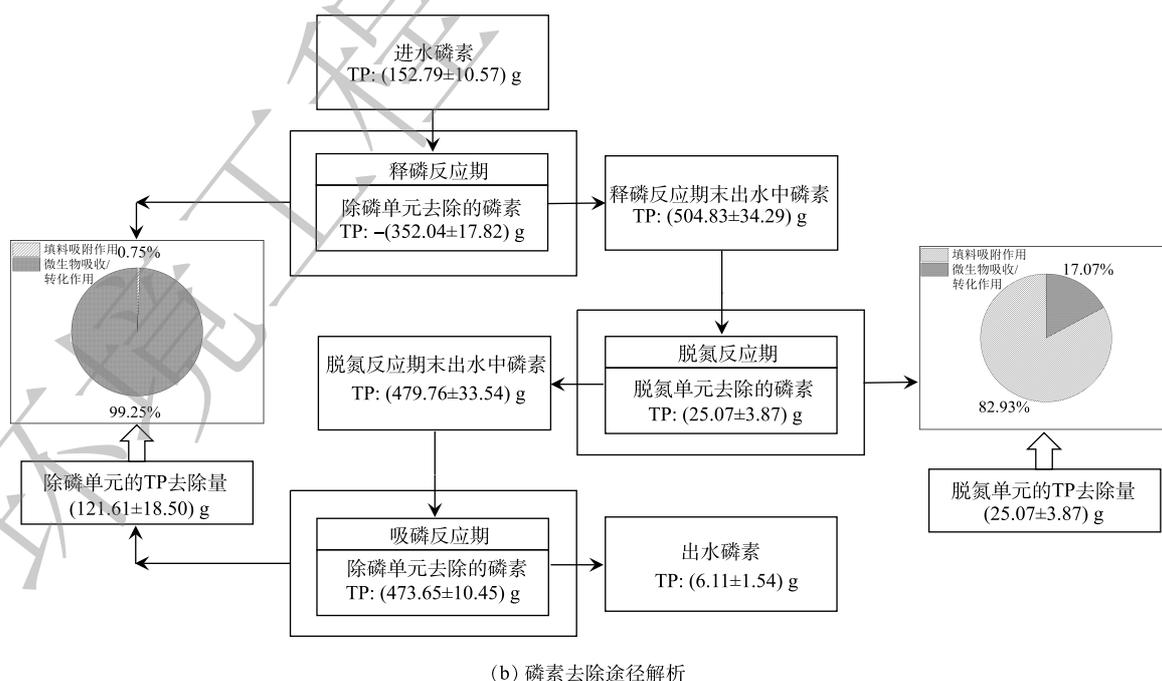
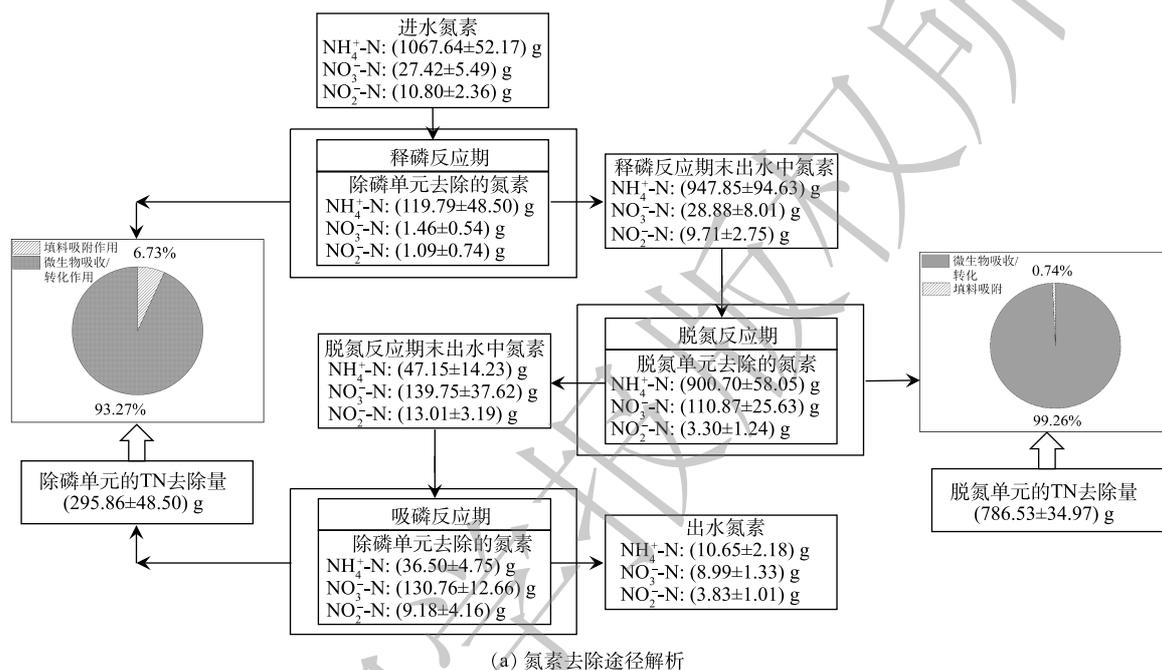


图9 H-CRI系统中氮磷去除途径解析

Fig. 9 Nitrogen and Phosphorus removal pathways in the H-CRI system

3 结论

1) 对于由 CANON 型 CRI 装置和 DPR 型 CRI 装置耦合而成的 H-CRI 系统, 当其按照内循环潮汐模式连续运行时, 有助于其中 SNADPR 作用的发生和强化。

2) 当 HLR 为 $0.18 \text{ m}^3 \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ 时, SNADPR 型 H-CRI 系统可实现对生活污水中有机物及氮磷的高效同步去除, 其对有机物、TN、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 和 TP 的去除率分别为 $(94.39 \pm 1.32)\%$ 、 $(97.87 \pm 0.43)\%$ 、 $(99.00 \pm 0.32)\%$ 和 $(95.96 \pm 2.79)\%$ 。

3) 脱氮单元中的 CANON 作用是 SANDPR 型 H-CRI 系统脱氮的主要途径, 而系统中磷素的去除主要依赖于除磷单元中 PAOs 的过量吸磷作用, 两者去除的氮磷量分别占 H-CRI 系统脱氮除磷总量的 $(72.13 \pm 6.12)\%$ 和 $(82.29 \pm 5.58)\%$ 。

参考文献

- [1] 韩亚鑫. 人工快渗污水处理工艺调研及问题研究[D]. 重庆: 重庆交通大学, 2016.
- [2] SU C Y, HUANG Z, CHEN M L, et al. Effects of infiltrator structure and hydraulic loading rates on pollutant removal efficiency and microbial community in a modified two-stage constructed rapid infiltration systems treating swine wastewater[J]. *Environmental Progress & Sustainable Energy*, 2019, 38(6): 1-7.
- [3] 陈佼, 陆一新, 汪锐, 等. 基质含量对人工快渗滤池厌氧氨氧化脱氮的影响[J]. *水处理技术*, 2019, 45(7): 101-106.
- [4] 陈佼. 人工快渗系统PN-ANAMMOX耦合脱氮性能及机理研究[D]. 成都: 西南交通大学, 2018.
- [5] WINKLER M K H, STRAKA L. New directions in biological nitrogen removal and recovery from wastewater[J]. *Current Opinion in Biotechnology*, 2019, 57: 50-55.
- [6] WEN D, VALENCIA A, ORDONEZ D, et al. Comparative nitrogen removal via microbial ecology between soil and green sorption media in a rapid infiltration basin for co-disposal of stormwater and wastewater[J]. *Environmental Research*, 2020, 184: 109338.
- [7] GONG Q, WANG B, GONG X, et al. Anammox bacteria enrich naturally in suspended sludge system during partial nitrification of domestic sewage and contribute to nitrogen removal[J]. *Science of the Total Environment*, 2021, 787: 147658.
- [8] SU C Y, ZHU X W, SHI X W, et al. Removal efficiency and pathways of phosphorus from wastewater in a modified constructed rapid infiltration system[J]. *Journal of Cleaner Production*, 2020, 267: 122063.
- [9] 赵伟华, 李健伟, 王梅香, 等. 前置 A_2NSBR 系统硝化和反硝化除磷的特性[J]. *中国环境科学*, 2019, 39(11): 4660-4665.
- [10] ZENG W, LI B X, WANG X D, 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.
- [11] XU X, QIU L, 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.
- [12] 靳慧征, 王振, 丁亚男. 排水速率对潮汐流人工湿地中CANON作用的强化[J]. *中国环境科学*, 2018, 38(6): 2182-2192.
- [13] 王振, 齐冉, 李莹莹, 等. 潮汐流人工湿地中生物蓄磷的强化及其稳定性[J]. *中国环境科学*, 2017, 37(2): 534-542.
- [14] 国家环境保护总局. 水和废水监测分析方法[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 2002: 227-285.
- [15] 高瑶远, 彭永臻, 包鹏, 等. 低溶解氧环境下全程硝化活性污泥的特性[J]. *中国环境科学*, 2017, 37(5): 1769-1774.
- [16] 宋成康, 王亚宜, 韩海成, 等. 温度降低对厌氧氨氧化脱氮效能及污泥胞外聚合物的影响[J]. *中国环境科学*, 2016, 36(7): 2006-2013.
- [17] OEHMEN A, KELLER-LEHMANN B, ZENG R J, et al. Optimisation of poly- β -hydroxyalkanoate analysis using gas chromatography for enhanced biological phosphorus removal systems[J]. *Journal of Chromatography A*, 2005, 1070(1): 131-136.
- [18] LIN Z Y, WANG Y M, HUANG W, et al. Single-stage denitrifying phosphorus removal biofilter utilizing intracellular carbon source for advanced nutrient removal and phosphorus recovery[J]. *Bioresource Technology*, 2019, 277: 27-36.
- [19] 国家环境保护总局. 土壤农化分析[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 1986: 66-70.
- [20] 时霞. 基于微氧调控的建筑废料垂直流人工湿地中氮磷迁移转化研究[D]. 济南: 山东大学, 2018.
- [21] 刘冰, 郑煜铭, 李清飞, 等. 复合人工湿地中反硝化除磷作用的发生及其稳定性[J]. *环境科学*, 2019, 40(12): 5401-5410.
- [22] 王振, 刘超翔, 董健, 等. 人工湿地中除磷填料的筛选及其除磷能力[J]. *中国环境科学*, 2013, 33(2): 227-233.
- [23] NIELSEN M, BOLLMANN A, SLIEKERS O, et al. Kinetics, diffusional limitation and microscale distribution of chemistry and organisms in a CANON reactor[J]. *FEMS Microbiology Ecology*, 2005, 51(2): 247-256.

- [24] 闫媛, 黎力, 王亚宜, 等. 采用高通量测序分析全程自养脱氮(CANON)系统不同脱氮效能下的微生物群落结构[J]. 北京工业大学学报, 2015, 41(10): 1485-1492.
- [25] BAGCHI S, BISWAS R, NANDY T. Autotrophic ammonia removal processes: Ecology to technology[J]. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology*, 2012, 42(13): 1353-1418.
- [26] HU B, ZHENG P, TANG C, et al. Identification and quantification of anammox bacteria in eight nitrogen removal reactors[J]. *Water Research*, 2010, 44(17): 5014-5020.
- [27] GONZALEZ-MARTINEZ A, RODRIGUEZ-SANCHEZ A, GARCIA-RUIZ M J, et al. Performance and bacterial community dynamics of a CANON bioreactor acclimated from high to low operational temperatures[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2016, 287: 557-567.
- [28] 韩文杰, 吴迪, 周家中, 等. CANON生物膜载体储存及活性恢复研究[J]. *中国环境科学*, 2020, 40(5): 2062-2072.
- [29] YUAN Y, LIU J, MA B, et al. Improving municipal wastewater nitrogen and phosphorous removal by feeding sludge fermentation products to sequencing batch reactor (SBR)[J]. *Bioresource Technology*, 2016, 222: 326-334.
- [30] HUANG Y. Detection of polyhydroxyalkanoate-accumulating bacteria from domestic wastewater treatment plant using highly sensitive PCR primers[J]. *Journal of Microbiology and Biotechnology*, 2012, 22(8): 1141-1147.
- [31] FIGDORE B A, STENSEL H D, WINKLER M H. Comparison of different aerobic granular sludge types for activated sludge nitrification bioaugmentation potential[J]. *Bioresource Technology*, 2018, 251: 189-196.
- [32] LIU H, WANG Q, SUN Y, et al. Isolation of a non-fermentative bacterium, *Pseudomonas aeruginosa*, using intracellular carbon for denitrification and phosphorus-accumulation and relevant metabolic mechanisms[J]. *Bioresource Technology*, 2016, 211: 6-15.
- [33] WANG L, LIU J, OEHMEN A, et al. Butyrate can support PAOs but not GAOs in tropical climates[J]. *Water Research*, 2021, 193: 116884.
- [34] BI Z, TAKEKAWA M, PARK G, et al. Effects of the C/N ratio and bacterial populations on nitrogen removal in the simultaneous anammox and heterotrophic denitrification process: Mathematic modeling and batch experiments[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2015, 280: 606-613.
- [35] WANG D, WANG G W, YANG F L, et al. Treatment of municipal sewage with low carbon-to-nitrogen ratio via simultaneous partial nitrification, anaerobic ammonia oxidation, and denitrification (SNAD) in a non-woven rotating biological contactor[J]. *Chemosphere*, 2018, 208: 854-861.
- [36] ZHENG X, SUN P, HAN J, et al. Inhibitory factors affecting the process of enhanced biological phosphorus removal (EBPR): A mini-review[J]. *Process Biochemistry*, 2014, 49(12): 2207-2213.
- [37] 汪文飞, 王若凡, 王煜钧, 等. 潜流湿地填料比选及对氨氮的去除效应研究[J]. *环境污染与防治*, 2020, 42(7): 864-868.
- [38] 邱林远. SNADPR工艺脱氮除磷性能及其微生物群落研究[D]. 大连: 大连理工大学, 2019: 15-16.
- [39] ZHANG M J, QIAO S, SHAO D H, et al. Simultaneous nitrogen and phosphorus removal by combined anammox and denitrifying phosphorus removal process[J]. *Journal of Chemical Technology and Biotechnology*, 2018, 93(1): 94-104.
- [40] HE Q, SONG Q, ZHANG S, et al. Simultaneous nitrification, denitrification and phosphorus removal in an aerobic granular sequencing batch reactor with mixed carbon sources: Reactor performance, extracellular polymeric substances and microbial successions[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2018, 331: 841-849.

(责任编辑: 曲娜)

Study on the operation performance and microbiological characteristics of a hybrid constructed rapid infiltration system utilizing the SNADPR process

SUN Feng¹, YU Xinjie¹, WU Wei¹, PAN Lingyang², WANG Zhen^{1,*}

1. School of Resources and Environment, Anhui Agricultural University, Hefei 230036, China

2. School of Urban Construction, Anhui Xinhua University, Hefei 230088, China

*Corresponding author, E-mail: zwang@ahau.edu.cn

Abstract This study was conducted to explore the operation performance and associated microbiological characteristics of a hybrid constructed rapid infiltration (H-CRI) system utilizing the simultaneous partial nitrification, ANAMMOX, denitrification, and denitrifying phosphorus removal (SNADPR) process, which was composed of a constructed rapid infiltration (CRI) device utilizing the completely autotrophic nitrogen removal over nitrite (CANON) process and a CRI device with the denitrifying phosphorus removal (DPR) process. The results showed that, as the H-CRI system was operated according to the internal circulation tidal flow operation mode, the average removal efficiencies of organics, TN, $\text{NH}_4\text{-N}$, and TP by the coupling device could reach $(94.39\pm 1.32)\%$, $(97.87\pm 0.43)\%$, $(99.00\pm 0.32)\%$, and $(95.96\pm 2.79)\%$ at the hydraulic loading rate (HLR) of $0.18 \text{ m}^3\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$, respectively. Regarding the coupling system, the CANON process and luxury phosphorus uptake by PAOs were the main pathways in nitrogen and phosphorus removal, which accounted for $(72.13\pm 6.12)\%$ and $(82.29\pm 5.58)\%$ of total nitrogen and phosphorus removal, respectively. In combination with the results of experiments of the molecular biology, the appropriate coupling mode could be conducive to the effective collaboration among four functional microbes [namely aerobic ammonia-oxidizing microorganisms, anaerobic ammonia oxidizing bacteria (AnAOB), denitrifying bacteria, and polyphosphate-accumulating organisms (PAOs)] in the H-CRI system when treating domestic sewage, then promoted the formation and reinforcement of the SNADPR process, which resulted in the simultaneous efficient removal of organics, nitrogen, and phosphorus by the system.

Keywords constructed rapid infiltration system; anaerobic ammonia oxidation; denitrifying phosphorus removal; coupling; operational characteristics