



文章栏目：环境生物技术

DOI 10.12030/j.cjee.202203057 中图分类号 X703.1 文献标识码 A

王佳伟, 郝桂珍, 王淑娜, 等. 包埋厌氧氨氧化颗粒污泥的生活污水 CANON 工艺脱氮特性[J]. 环境工程学报, 2022, 16(8): 2720-2729.
[WANG Jiawei, HAO Guizhen, WANG Shuna, et al. Nitrogen removal characteristics of immobilization of Anammox granular sludge in domestic sewage CANON process[J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2022, 16(8): 2720-2729.]

包埋厌氧氨氧化颗粒污泥的生活污水 CANON 工艺脱氮特性

王佳伟^{1,2,3}, 郝桂珍^{1,2,3}, 王淑娜^{1,2,3}, 杨宏^{3,✉}

1. 河北建筑工程学院市政与环境系, 张家口 075000; 2. 河北省水质工程与水资源综合利用重点实验室, 张家口 075000; 3. 北京工业大学城市建设学部, 北京 100124

摘要 为实现厌氧氨氧化 (Anammox) 包埋填料在城市污水中的稳定脱氮, 以除碳后的生活污水作为进水, 通过间歇曝气的运行方式, 研究了高氨氮废水处理系统中的厌氧氨氧化颗粒污泥 (AnGS) 及利用其制成的 Anammox 包埋填料在生活污水 CANON 工艺中的脱氮性能及微生物群落结构。结果表明, 在生活污水 CANON 工艺启动过程中, AnGS 系统的氨氮去除率和总氮去除率最高分别仅为 65.9% 和 59.3%, 而包埋填料后在启动仅 10 d 后, 氨氮去除率和总氮去除率分别可达 98.9% 和 72.4% 以上, 同时出水 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 TN 均能满足《城镇污水处理厂污染物排放标准 (GB 18918-2002)》中一级 A 的排放要求。提高曝气阶段的 DO 质量浓度 (2.9~3.1 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 提升到 3.9~4.1 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$) 会导致包埋填料出水 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 质量浓度增长至 9.7~11.1 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 从而破坏 CANON 工艺中的短程硝化导致出水总氮不达标。但将 DO 浓度恢复后, 包埋填料 CANON 工艺的脱氮效果能够恢复。运行后的包埋填料中 AAOB 主要菌属 *Candidatus Kuenenia* 和 *Candidatus Brocadia* 的占比为 21.11% 和 1.04%, 同时 NOB 主要菌属为 *Nitrospira*, 占比仅为 0.53%, 包埋填料在生活污水中能够保持 AAOB 菌群优势并有效抑制 NOB 的增长, 因此将包埋固定化技术用于城市污水 CANON 工艺脱氮中具有广阔的前景。

关键词 厌氧氨氧化 (Anammox); 固定化; CANON; 微生物群落结构; 生活污水

CANON (completely autotrophic N-removal over nitrite) 工艺是近年来提出的新型脱氮工艺, 其主要通过控制单级反应器的好氧与厌氧时间, 将短程硝化与厌氧氨氧化 (Anammox) 从时间上进行划分, 最终实现在一体反应器中完成脱氮^[1-2]。相比传统脱氮工艺, CANON 工艺具有能耗低、无需碳源等优势, 并在高氨氮废水处理中取得了良好的效果^[3-4]。但是, 由于城市污水所具有的低氨氮、低温和含有有机物的特点限制了 CANON 工艺在主流城市污水中的应用^[5-7]。一方面, 城市污水低温低氨氮的特点不利于短程硝化的维持和厌氧氨氧化菌 (AAOB) 活性的保持; 另一方面, 城市污水中的有机物会促进异养菌与氨氧化菌 (AOB) 及 AAOB 对于底物的竞争, 同时浪费了城市污水中大量的有机碳源。

颗粒污泥可以有效保留功能性微生物 (AOB 和 AAOB), 因此, 利用颗粒污泥是 CANON 工艺用于城市污水处理中获得更好性能的一种策略^[8-10]。但有研究表明, 将成熟的厌氧氨氧化颗粒污泥

收稿日期: 2022-03-08; 录用日期: 2022-07-18

基金项目: 河北建筑工程学院基本科研业务费项目 (2022QNJS10)

第一作者: 王佳伟 (1990—), 男, 博士, 讲师, 277233453@qq.com; ✉通信作者: 杨宏 (1963—), 男, 博士, 教授, yhong@bjut.edu.cn

(AnGS)用于城市污水中后,颗粒污泥多数出现了解体现象并且颗粒中AAOB丰度下降的现象^[11-12]。包埋固定化技术在增强细菌密度和减少细菌流失方面优于天然聚集的颗粒污泥^[13-14],并且在高氨氮废水处理系统中Anammox包埋填料显示了良好的脱氮效果^[15-16]。但是,在低氨氮城市污水中利用Anammox包埋填料脱氮的研究较少。因此,Anammox包埋填料在城市污水条件下的CANON工艺脱氮特性有待进一步研究。

本研究以除碳后的生活污水作为进水,考察了高氨氮废水处理系统中成熟的AnGS及其Anammox包埋填料在生活污水CANON工艺脱氮中的启动,研究了溶解氧(DO)浓度对包埋填料CANON工艺脱氮性能的影响,利用高通量16S rRNA基因测序分析了包埋填料的菌群结构,探究了包埋AnGS用于城市污水CANON工艺脱氮的可行性。

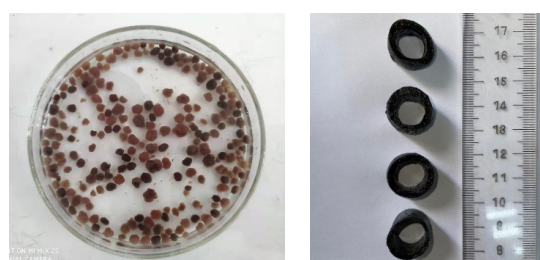
1 材料与方法

1.1 污泥来源及包埋填料制备

厌氧氨氧化颗粒污泥(AnGS)为某味精厂高氨氮废水处理系统中的AnGS(MLSS为7 785 mg·L⁻¹, MLVSS/MLSS为78.6%),其中粒径为2~3 mm的颗粒占90%以上。接种颗粒污泥取回后用蒸馏水清洗3次后平均分为2份备用。随后将其中1份的AnGS放入破碎机中破碎30 s,破碎后的颗粒污泥粒径为0.5~0.7 mm,随后采用课题组成熟的包埋填料制备方法^[17]进行Anammox包埋填料A1的制备。首先,将质量含量为20%的聚乙烯醇溶液(PVA,聚合度为2 200,醇解度为20%~99%)和破碎后的AnGS等量混合,并加入碳酸钙粉末和活性炭粉末(小于120目)用于增加填料强度并改善传质,混合均匀后得到水分含量为95%、污泥量(干质量)为4%的混合溶液。随后,在实验室自主研发的挤出设备中制备出直径为1.5 cm、厚度0.3 cm的中空圆筒,在过饱和硼酸溶液中交联后切成0.1 cm长的均匀圆筒型填料。最终在溶液浓度为5%的磷酸三钠溶液中浸泡3 h后用清水洗涤备用,AnGS及Anammox包埋填料实物图见图1。

1.2 实验装置及实验用水

城市污水包埋填料CANON工艺反应器为0.6 L的封口烧瓶,Anammox包埋填料填充率为20%。通过在瓶口开洞后,在烧瓶内加入曝气砂头利用增氧曝气机进行充氧曝气,排气孔使气体能够顺利从反应器中排出,同时DO探头能够从排气孔中伸入反应器中对DO浓度进行监测。运行方式为批次运行,运行周期为8 h,通过时间控制器控制反应器的每周期好氧/缺氧段时间为10 min/20 min,反应器放入30 ℃恒温摇床维持温度,控制摇床转速在80 r·min⁻¹以确保物料均匀。此外,设置AnGS反应器W1作为对照组,W1反应器中生物量与包埋填料反应器中一致,A1包埋填料反应器中的MLSS计算后为12 178 mg·L⁻¹,并且除曝气阶段DO浓度外的运行条件也与A1包埋填料反应器中一致。反应器示意图如图2所示。



(a) AnGS实物图

(b) Anammox包埋填料实物图

图1 AnGS及包埋填料实物图

Fig. 1 AnGS and immobilized filler of Anammox

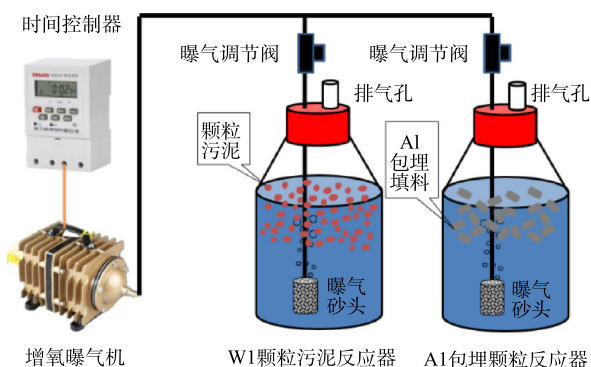


图2 城市污水包埋填料CANON工艺反应器

Fig. 2 CANON reactor of municipal wastewater in immobilized filler

城市污水取自北京工业大学西区家属院化粪池上清液, 由于生活污水中的有机物会干扰 CANON 工艺的脱氮性能, 因此, 在城市污水进水箱中放置曝气盘进行 24 h 曝气去除有机物, 溶解氧质量浓度维持在 $2\sim 3\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 利用城市污水中的异养菌对城市污水中的大部分有机物进行去除, 去除后的进水指标见表 1。

表 1 CANON 反应器进水水质指标

Table 1 Characteristics of the influent of CANON reactor

统计值	碳氮质量浓度/($\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$)					C/N比	pH
	COD	TN	$\text{NH}_4^+\text{-N}$	$\text{NO}_2^-\text{-N}$	$\text{NO}_3^-\text{-N}$		
范围	43.2~61.5	52.0~69.2	46.2~64.7	0.2~0.7	0.2~1.1	0.9~1.5	7.7~7.9
平均值	56.8	59.9	55.2	0.4	0.9	1.2	7.8

1.3 实验方法

实验分为 2 部分。第 1 部分是 CANON 工艺的启动实验, 反应器运行周期为 8.0 h。W1 颗粒污泥反应器启动分为 2 个阶段, 通过曝气调节阀维持曝气阶段 DO 质量浓度在 2 个阶段分别为 $1.4\sim 1.6\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $2.4\sim 2.6\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。由于包埋填料中存在溶解氧传质梯度, 反应器中需要较高的 DO 浓度在能满足包埋填料中 AOB 对于溶解氧的需求, 因此, A1 包埋填料反应器在曝气阶段 DO 质量浓度维持在 $2.9\sim 3.1\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 以考察城市污水条件下的 CANON 工艺启动。第 2 部分是 DO 浓度对包埋填料 CANON 工艺脱氮的影响实验, 反应器运行周期仍维持在 8.0 h。实验分为 2 个阶段, 阶段 I 中将 A1 包埋填料反应器在曝气阶段 DO 质量浓度提高至 $3.9\sim 4.1\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 阶段 II 中将 A1 包埋填料反应器在曝气阶段 DO 质量浓度恢复至 $2.9\sim 3.1\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。

1.4 检测项目及方法

水质测定采用国家标准方法^[18]: $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 采用纳氏试剂分光光度法; $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 采用 N-(1-萘基)-乙二胺光度法; $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 采用紫外分光光度法; 总氮 (TN) 采用德国 Multi N/C3000 型 TN/TOC 分析仪测定; 溶解氧 (DO) 采用 HACH HQ30d 溶解氧仪测定; pH 采用 METTLER TOLEDO FE28-Standard 分析仪测定。

S0 和 S1 分别为接种 AnGS 样本和 Anammox 包埋填料运行后的样本。使用 Illumina MiSeq 测序平台确定细菌群落结构, 引物用于细菌 16S rRNA 基因的 V3-V4 高变区的扩增和测序, 引物分别为 341F(CCTACGGGNGGCWGCAG) 和 805R (GACTACHVGGGTATCTAATCC)。使用美国国家生物技术信息中心 (NCBI) 数据库比对细菌的 16S rRNA 基因序列。对于测序数据, 使用 MEGAN 软件分析环境微生物的 16S rRNA 基因, 并根据一定的阈值对获得的序列进行分类, 以将多个序列聚类为可操作的分类单位 (OTU), 并根据 OTU 进行多样性分析。

2 结果与讨论

2.1 城市污水 CANON 工艺的启动

W1 在城市污水 CANON 工艺中启动阶段的脱氮特性如图 3 所示。城市污水进水中 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 质量浓度为 $46.2\sim 64.7\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, TN 质量浓度为 $51.9\sim 69.2\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。在阶段 I 中, 当反应器曝气阶段 DO 质量浓度控制为 $1.4\sim 1.6\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, W1 反应器的 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除率和 TN 去除率不断提高, 在启动过程中, 最高 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除率和 TN 去除率分别为 39.5% 和 25.5%, 出水最低 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 TN 质量浓度分别为 $32.1\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $43.7\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 出水浓度远高于《城镇污水处理厂污染物排放标准 (GB 18918-2002)》(以下简称国标) 中一级 A 标准, 表明 W1 颗粒污泥 CANON 反应器脱氮效率低且增长缓慢。图 3(b) 反映了 W1 反应器中 $\Delta\text{NO}_3^-\text{-N}/\Delta\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的变化情况。反应器初期由于运行环境的改变导致波动较

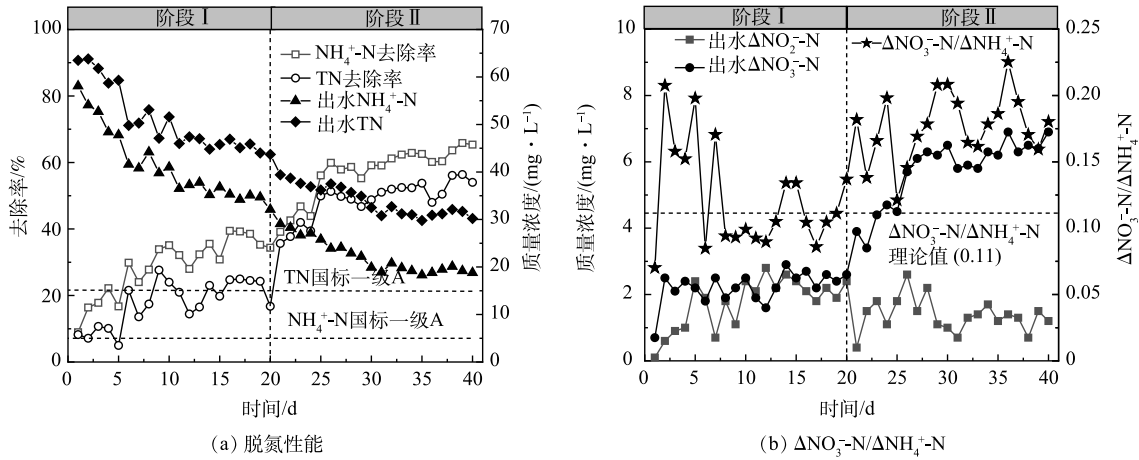


图 3 W1 颗粒污泥在城市污水包埋填料 CANON 工艺启动阶段的脱氮性能

Fig. 3 Nitrogen removal performance of CANON process of W1 granular sludge in municipal wastewater

大,但随着继续运行,反应器的 $\Delta\text{NO}_3^-\text{-N}/\Delta\text{NH}_4^+\text{-N}$ 为 0.09~0.13,基本维持在 CANON 工艺的 $\Delta\text{NO}_3^-\text{-N}/\Delta\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的理论值 0.11 附近^[19]。这表明高氨氮废水处理系统中的 AnGS 在城市污水条件下能维持 CANON 脱氮途径。同时发现,在阶段 I 中,出水 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 质量浓度始终维持在 $3 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 以下,表明 CANON 工艺中的短程硝化效果良好,并未出现 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 过量积累的现象,而出水 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 同样未出现过量积累也表明 Anammox 脱氮效果良好。综上所述,W1 反应器 CANON 工艺在阶段 I 中脱氮效果差的主要原因是 AOB 活性较低,导致 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 向 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 转换速率过慢,无法为 Anammox 脱氮提供充足底物。

在阶段 II 中,当 W1 反应器在曝气阶段的 DO 质量浓度提高至 $2.4\sim 2.6 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 后, $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除率和 TN 去除率分别上升至 $60.1\sim 65.9\%$ 和 $50.5\sim 56.3\%$,但出水 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 TN 质量浓度最低为 $18.3 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $30.2 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,出水仍远高于国标一级 A 标准。提高曝气阶段的 DO 浓度虽然能提高 W1 反应器的氨氧化速率,从而提高 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 TN 去除速率,但出水仍然难以满足排放要求。这是由于 AAOB 倾向生长于颗粒污泥上,因此,W1 反应器在启动过程中的 Anammox 脱氮效果良好。而 AOB、亚硝酸盐氧化菌 (NOB) 更倾向生长于絮状污泥中,因此导致 W1 反应器中新生长的 AOB 和 NOB 很容易随排水流失,虽然一方面通过污泥流失实现了对 NOB 的有效淘洗从而促进了短程硝化,但是另一方面也导致 AOB 的大量流失从而使氨氧化速率难以有效增长,因此即使提高 DO 浓度也只能促进 AOB 的活性表达提高反应器的氨氧化速率,但是难以有效维持 W1 反应器中 AOB 的菌群数量,最终导致短期内难以实现城市污水 CANON 工艺高效脱氮。王小龙^[20]的研究中同样发现,由于硝化细菌的生长特性,驯化 Anammox 颗粒污泥向 CANON 颗粒转化需要较长的启动时间。此外,图 3(b) 中显示了在 DO 浓度提高后,W1 反应器的 $\Delta\text{NO}_3^-\text{-N}/\Delta\text{NH}_4^+\text{-N}$ 增至 0.16~0.22,高于理论值,表明提高 DO 浓度虽然能够提高氨氧化速率,但同样会破坏短程硝化效果。

A1 包埋填料在城市污水 CANON 工艺中启动阶段的脱氮特性如图 4 所示。A1 包埋填料 CANON 反应器出水在第 10 d 后逐渐趋于稳定,在 11~20 d 反应器的 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除率和 TN 去除率分别为 98.9% 和 72.4% 以上,出水 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 TN 质量浓度分别为 $0\sim 0.8 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $11.4\sim 14.5 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,出水能够满足国标一级 A 标准,表明 A1 包埋填料 CANON 反应器仅用 10 d 就成功启动。由于包埋填料能够将细菌固定在填料内部,因此可以大量的减少 AOB 的流失,同时包埋填料为 AOB 的生长提供了良好的环境,能够促进 AOB 在填料内部生长,因此包埋填料相比 AnGS 能够实现更高的氨氧化速率。此外,包埋填料中的 DO 传质梯度能够有效抑制 NOB 的活性,同时也减少了曝气阶段溶解氧对 AAOB 活性的影响,其他研究中也表明利用包埋固定化技术能够有效促进短程硝化^[17,21]。

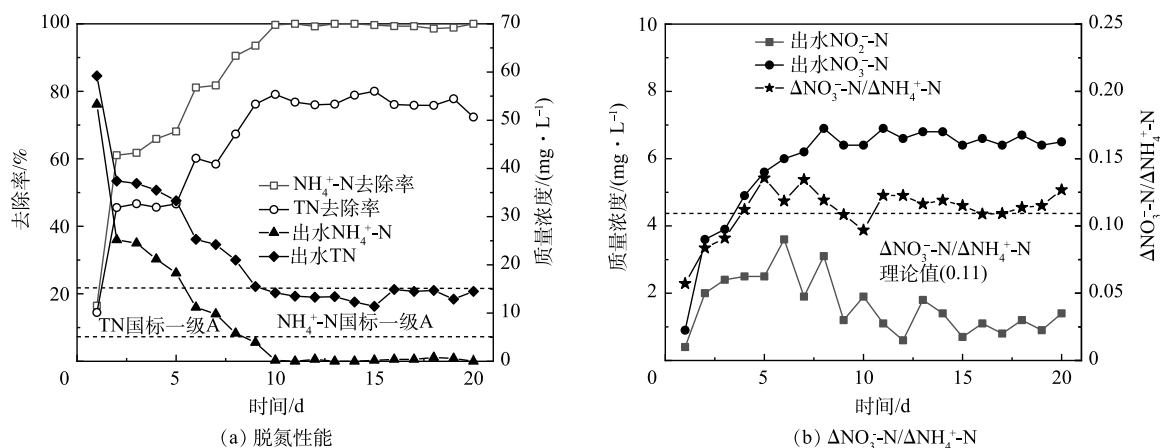


图4 A1包埋填料在城市污水包埋填料CANON工艺启动阶段的脱氮性能

Fig. 4 Nitrogen removal performance of CANON process of A1 immobilized filler in municipal wastewater

这些因素的共同作用使得A1包埋填料能够快速启动城市污水CANON工艺。此外，A1包埋填料CANON反应器在启动后的 $\Delta\text{NO}_3^-\text{-N}/\Delta\text{NH}_4^+\text{-N}$ 一直在0.11左右波动，表明了A1包埋填料CANON反应器的良好脱氮特性。

李田等^[22]通过同时接种亚硝化污泥和厌氧氨氧化污泥，在模拟除碳生活污水条件下，采取低溶解氧驯化的方式，在55 d内成功启动了CANON工艺。刘竹寒等^[23]通过向淹没式生物滤池接种污水处理厂活性污泥，在运行过程中逐渐降低DO浓度，最终在48 d时成功启动了CANON工艺。由于城市污水低氨氮的特点，传统的活性污泥系统往往需要较长的时间驯化硝化菌群和AAOB菌群使其适应城市污水水质。而包埋填料中AOB和AAOB能够根据溶解氧梯度形成良好空间分布^[24]，同时能够有效减少功能菌群流失，这对于快速启动CANON工艺具有重要作用。在启动过程中，A1包埋填料脱氮能力的增长一方面由于固定化过程中失活的细胞逐步恢复活性，因为包埋过程会对微生物产生毒性而抑制其活性；另一方面则是由于颗粒内微生物的繁殖生长导致脱氮能力提升。WIJFFELS等^[25]在固定化颗粒培养过程中发现，微生物的增殖会导致颗粒中的菌落不断膨胀，并且由于传质作用，靠近颗粒表面的微生物比位于中心部位的微生物的增殖速率快得多，随着增长的微生物触及载体颗粒表面，并由表面泄漏到溶液中去，最终随着微生物的不断增长整个颗粒内的生物量达到一个稳定值。因此，对于A1包埋填料，当填料中的微生物量达到峰值后，增殖的微生物会通过填料表面进入溶液中并排出，这也表明了在水负荷不变的条件下，A1包埋填料在启动成功后脱氮能力并未进一步增长主要是由于填料内的生物量达到了稳定值。此外，由于包埋填料传质的影响，填料内部基质较低，可能会出现由于基质缺乏导致的微生物衰亡，最终微生物分解后填料内部形成类似大颗粒污泥内部的“空腔”。但是，通过降低接种AnGS粒径增强了包埋填料在城市污水低浓度条件下的传质，有效减少了填料内部微生物的衰亡。

2.2 DO浓度对城市污水包埋填料CANON工艺中脱氮性能的影响

由图5可以看出，在阶段I中，当A1包埋填料CANON反应器在曝气阶段的DO质量浓度由 $2.9\sim 3.1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 提升至 $3.9\sim 4.1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 后，A1包埋填料反应器的TN去除率迅速下降至 $61.9\%\sim 70.9\%$ ，同时出水TN质量浓度增长至 $17.1\sim 20.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。表明提高A1包埋填料曝气阶段的DO浓度会导致脱氮性能变化。同时， $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除率仍维持在97.3%以上，表明DO浓度的提高并未影响A1包埋填料对城市污水中的氨氮的去除效果。由图5(b)可见，出水 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 在DO质量浓度提高后迅速增长至 $9.7\sim 11.1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ，同时反应器 $\Delta\text{NO}_3^-\text{-N}/\Delta\text{NH}_4^+\text{-N}$ 增长至 $0.17\sim 0.21$ ，远高于CANON工艺脱氮的理论值。这表明A1包埋填料由于曝气阶段DO浓度提高导致CANON工艺的短程硝化破坏，出水

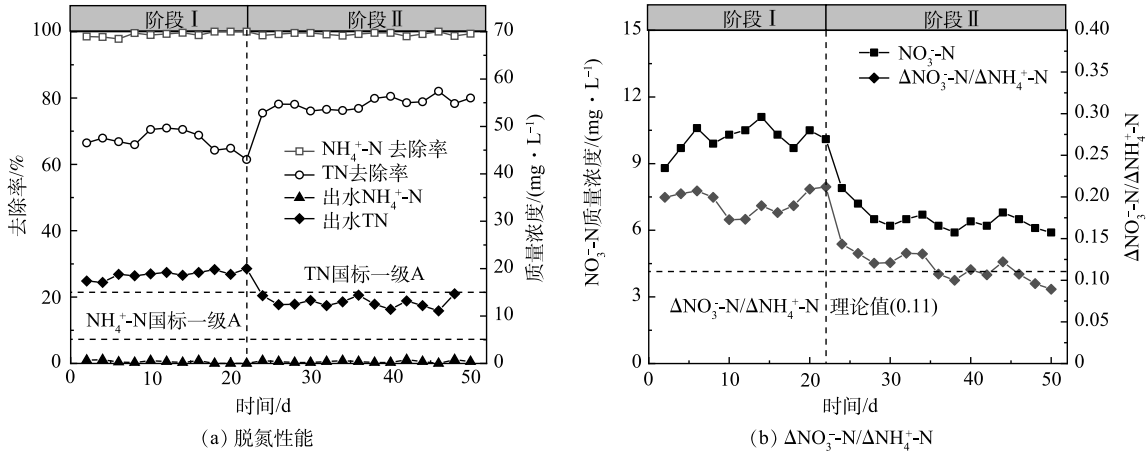


图 5 不同 DO 浓度下城市污水包埋填料 CANON 工艺中脱氮性能的变化

Fig. 5 Changes in nitrogen removal performance of CANON process of municipal wastewater in immobilized filler at different DO concentrations

NO_3^- -N 增加导致出水 TN 不达标。溶解氧在 A1 包埋填料中的传质分为 2 个部分，一部分是是填料表面到颗粒外层形成的传质梯度，此时包埋填料中游离的 AOB 和 NOB 在这个传质梯度中利用溶解氧；另一部分是颗粒外层到颗粒内层形成的传质梯度，此时颗粒内的 AOB 和 NOB 在这个传质梯度中利用溶解氧。因此，当 A1 包埋填料 CANON 工艺中的 DO 质量浓度提高后，包埋填料中游离的 NOB 和颗粒中的 NOB 的活性提高导致短程硝化破坏。此外，HAN 等^[26]的研究中发现不同粒径颗粒污泥中溶解氧浓度分布差异较大，随着粒径的增大，颗粒内部的 DO 质量浓度越低，由于 A1 包埋填料的接种污泥为小颗粒，因此，高 DO 环境不利于抑制包埋填料颗粒中的 NOB 活性。

在阶段 II 中，当 A1 包埋填料反应器在曝气阶段的 DO 质量浓度恢复至 $2.9\sim 3.1\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 后，反应器中 TN 去除率提升至 $75.5\sim 82.0\%$ ，出水 TN 质量浓度降低至 $11.4\sim 14.3\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ，出水 NO_3^- -N 质量浓度降低至 $5.9\sim 7.9\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ， ΔNO_3^- -N/ ΔNH_4^+ -N 同样恢复至 0.11 左右。这表明短期的高 DO 运行并不会破坏 CANON 工艺的脱氮效果。黄鹏飞等^[27]的研究同样表明，在高 DO 的条件下，CANON 工艺脱氮稳失活，但通过降低反应器中的 DO 质量浓度，能够恢复 CANON 工艺脱氮效果。上述实验结果表明，合理控制包埋填料反应器的 DO 质量浓度从而实现稳定的短程硝化是实现包埋填料城市污水 CANON 工艺脱氮的关键。

2.3 包埋填料在城市污水 CANON 工艺运行后的菌群分析

1) 微生物多样性。表 2 反映了接种 AnGS 和 A1 包埋填料在城市污水 CANON 工艺运行后的菌群多样性，由表 2 中可以看出，高氨氮废水处理系统中的 AnGS 在制成 A1 包埋填料且在城市污水 CANON 工艺运行后，ACE 和 Chao1 指数在运行后上升，而 Simpson 指数下降。这表明 A1 包埋填料在城市污水 CANON 工艺运行后的微生物多样性高于接种 AnGS。一方面在包埋填料制作过程中使 AnGS 的粒径减小，改变了不同微生物的生态环境，导致菌群多样性改变^[28]；另一方面，城市污水条件的复杂水质条件和间歇曝气的运行方式改变了原有 AnGS 的运行环境，导致了其他功能微生物的生长，从而增加了微生物的多样性。

2) 微生物多样性。样本门和属水平的微生物群落多样性如图 6 所示。由图 6 可以看出，接种 AnGS 样本 S0 在门水平的主要菌属为浮霉菌门 (*Planctomycetes*)，占全菌属中的 41.36%，随后依次是绿弯菌门 (*Chloroflexi*) 占比 17.97%，

表 2 微生物多样性评估
Table 2 Microbial diversity assessment

样本名称	序列数	OUT数	ACE指数	Chao1指数	Simpson指数
S0	55 901	1 395	1 705.56	1 624.73	0.12
S1	41 417	2 621	19 118.57	10 527.83	0.06

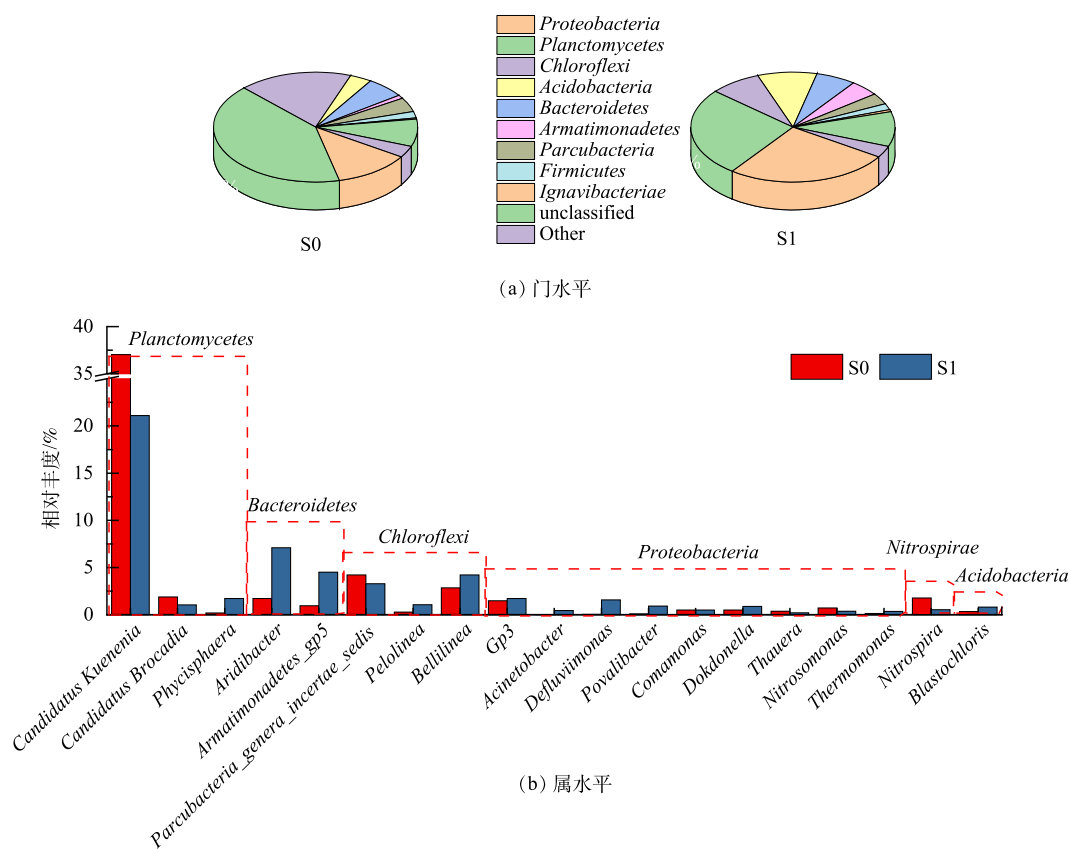


图6 门和属水平微生物群落的多样性

Fig. 6 Microbial community diversity at phylum and genus level

变形菌门 (*Proteobacteria*) 占比 12.09%，拟杆菌门 (*Bacteroidetes*) 占比 6.15%，酸杆菌门 (*Acidobacteria*) 占比 3.47%，S0 在门水平上的构成属于典型 Anammox 系统^[29-30]。当接种 AnGS 制成包埋填料用于城市污水 CANON 工艺脱氮运行后，变形菌门占比上升至 26.13%，成为主要菌属，涉及氨氮转化的硝化菌属以及反硝化脱氮的相关菌属均属于此菌属。DU 等^[31]的研究同样表明，利用成熟的 Anammox 系统对城市污水进行脱氮后，Anammox 系统中的主要菌属为变形菌门。这表明城市污水 CANON 工艺条件促进了 Anammox 脱氮系统其他相关菌群的生长。同时，AAOB 所属的浮霉菌门占比下降至 25.95%，成为占比第 2 的菌属。这表明包埋填料中的 AAOB 菌群即使在低氨氮的城市污水中仍能维持一定的菌群优势。

属水平的聚类分析更清晰地显示出接种 AnGS 制成包埋填料后在 CANON 工艺运行后的菌群变化。S0 接种 AnGS 中的主要 AAOB 菌属为 *Candidatus Kuenenia* 和 *Candidatus Brocadia*，这 2 种菌属均为污水处理系统中常见的厌氧氨氧化菌属^[32]。运行后的 S1 样本中 *Candidatus Kuenenia* 和 *Candidatus Brocadia* 占比分别由 37.02% 和 1.88% 分别降低至 21.11% 和 1.04%，虽然 AAOB 占比降低，但仍是 A1 包埋填料中的占比最高的优势菌群，这表明包埋填料能够维持 AAOB 在城市污水条件下的菌群优势。PVA 载体具有多孔结构、良好的生物相容性和扩散性^[33]，因此是包埋 AAOB 的理想载体。此外，包埋填料的接种 AnGS 用于处理高氨氮废水，在高浓度条件下，大颗粒有助于提高系统的脱氮性能并抵御冲击负荷带来的不利影响^[9]。但针对低浓度的城市污水，大颗粒不利于传质，因此，通过破碎成小颗粒的方式，能够提高 AAOB 对低基质的利用。包埋填料为小颗粒结构中的 AAOB 在城市污水中提供了良好的微环境，从而保持了 AAOB 的菌群优势。

除 AAOB 外, A1 包埋填料中与氮转化有关的细菌还包括硝化细菌群和反硝化细菌群, 它们共同对城市污水 CANON 脱氮过程产生影响。运行后的 A1 包埋填料中的主要 AOB 菌属为 *Nitrosomonas*, 是污水处理系统中最常见的 AOB 菌属^[34], 占比为 0.37%。主要 NOB 菌属为 *Nitrospira*, 占比为 0.53%。*Nitrospira* 属于 K-strategists 型细菌, 更容易在低底物条件下生长。LIU 等^[35] 发现长期低溶解氧运行的生物反应器中主要 NOB 菌属为 *Nitrospira*, 这表明即使包埋填料反应器中的 DO 浓度维持在较高水平, 但是包埋填料内仍能维持较低的 DO 浓度, 同时由于间歇曝气的运行方式能够进一步抑制 NOB 的活性, 因此 A1 包埋填料中的 NOB 丰度在城市污水 CANON 工艺中维持在较低水平。此外, A1 包埋填料中的主要反硝化菌属为 *Comamonas*、*Thermomonas* 和 *Thauera*, 占比由接种 AnGS 中的 0.5%、0.37% 和 0.13% 分别变为 0.49%、0.2% 和 0.35%, 表明反硝化菌群并未出现明显变化, 这是由于城市污水经过除碳后, 进水中有机物浓度较低, 因此削弱了反硝化对 CANON 工艺脱氮的影响。

3 结论

1) 以去除有机物后的城市污水作为进水, 通过间歇曝气的运行方式成功启动了 AnGS 包埋填料的 CANON 工艺, 出水 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 TN 均能满足国标一级 A 的要求, 与 AnGS 系统的处理效果对比表明, 包埋固定化技术在减少功能菌群 (AOB 和 AAOB) 流失和提高功能菌群活性方面的优势是实现 CANON 工艺在城市污水条件下快速启动的关键。

2) 合理控制包埋填料反应器的 DO 浓度从而实现稳定的短程硝化是实现包埋填料城市污水 CANON 工艺脱氮的关键, 并且短期的高 DO 冲击运行并不会破坏包埋填料 CANON 工艺的脱氮效果。

3) 城市污水 CANON 工艺运行前后的高通量检测结果表明, 包埋填料在城市污水中能够在保持 AAOB 菌群优势的同时有效抑制 NOB 的增长, 包埋固定化技术可为在城市污水条件下实现 CANON 工艺脱氮提供参考。

参 考 文 献

- [1] THIRD K, SLIEKERS A, KUENEN J, et al. The CANON system (Completely Autotrophic Nitrogen-removal Over Nitrite) under ammonium limitation: Interaction and competition between three groups of bacteria[J]. *Systematic and Applied Microbiology*, 2001, 24(4): 588-596.
- [2] DU R, PENG Y, CAO S, et al. Advanced nitrogen removal with simultaneous Anammox and denitrification in sequencing batch reactor[J]. *Bioresource Technology*, 2014, 162: 316-322.
- [3] VARAS R, GUZMÁN-FIERRO V, GIUSTINIANOVICH E, et al. Startup and oxygen concentration effects in a continuous granular mixed flow autotrophic nitrogen removal reactor[J]. *Bioresource Technology*, 2015, 190: 345-351.
- [4] NSENGA KUMWIMBA M, LOTTI T, ŞENEL E, et al. Anammox-based processes: How far have we come and what work remains? A review by bibliometric analysis[J]. *Chemosphere*, 2020, 238: 124627.
- [5] 李冬, 苏庆岭, 梁瑜海, 等. CANON 颗粒污泥高效脱氮及处理生活污水实验研究[J]. *哈尔滨工业大学学报*, 2015, 47(8): 79-86.
- [6] 付昆明, 仇付国, 左早荣. 厌氧氨氧化技术应用于市政污水处理的前景分析[J]. *中国给水排水*, 2015, 31(4): 8-13.
- [7] MA B, WANG S, CAO S, et al. Biological nitrogen removal from sewage via Anammox: Recent advances[J]. *Bioresource Technology*, 2016, 200: 981-990.
- [8] NI B, HU B, FANG F, et al. Microbial and physicochemical characteristics of compact anaerobic ammonium-oxidizing granules in an upflow anaerobic sludge blanket reactor[J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2010, 76(8): 2652-2656.
- [9] TANG C, ZHENG P, WANG C, et al. Performance of high-loaded Anammox UASB reactors containing granular sludge[J]. *Water Research*, 2011, 45(1): 135-144.
- [10] GONZALEZ-GIL G, SOUGRAT R, BEHZAD A, et al. Microbial community composition and ultrastructure of granules from a full-scale Anammox reactor[J]. *Microbial Ecology*, 2015, 70(1): 118-131.
- [11] 王衫允. 低氨氮浓度厌氧氨氧化工艺强化及颗粒污泥菌群特性研究[D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2016.
- [12] 高梦佳, 王淑莹, 王衫允, 等. 生活污水对成熟厌氧氨氧化颗粒污泥的影响[J]. *化工学报*, 2017, 68(05): 2066-2073.

- [13] ZHANG L, NARITA Y, GAO L, et al. Maximum specific growth rate of Anammox bacteria revisited[J]. *Water Research*, 2017, 116: 296-303.
- [14] SUN L, WANG J, LIANG J, et al. Boric acid cross-linked 3D polyvinyl alcohol Gel beads by NaOH-Titration method as a suitable biomass immobilization matrix[J]. *Journal of Polymers and the Environment*, 2020, 28(2): 532-541.
- [15] ISAKA K, ITOKAWA H, KIMURA Y, et al. Novel autotrophic nitrogen removal system using gel entrapment technology[J]. *Bioresource Technology*, 2011, 102(17): 7720-7726.
- [16] ISAKA K, KIMURA Y, MATSUURA M, et al. First full-scale Nitrification- Anammox plant using gel entrapment technology for ammonia plant effluent[J]. *Biochemical Engineering Journal*, 2017, 122: 115-122.
- [17] WANG X, YANG H, SU Y, et al. Characteristics of anammox granular sludge using color differentiation, and nitrogen removal performance of its immobilized fillers based on microbial succession[J]. *Bioresource Technology*, 2021, 333: 125188.
- [18] 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.
- [19] 李津青, 韩晓宇, 黄京, 等. CANON体系中颗粒污泥粒径及C/N比对反应器脱氮性能的影响[J]. *中国科学院大学学报*, 2018, 35(6): 845-850.
- [20] 王小龙. 基于颗粒污泥的单级自养脱氮系统构建及其脱氮效能研究[D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2018.
- [21] RONGSAYAMANONT C, LIMPIYAKORN T, KHAN E. Effects of inoculum type and bulk dissolved oxygen concentration on achieving partial nitrification by entrapped-cell-based reactors[J]. *Bioresource Technology*, 2014, 164: 254-263.
- [22] 李田, 印雯, 王昕竹, 等. ABR除碳-CANON耦合工艺除碳脱氮特性[J]. *环境科学*, 2019, 40(2): 823-828.
- [23] 刘竹寒, 岳秀, 于广平, 等. CANON在SBAF中的快速启动及其微生物特征[J]. *环境科学*, 2017, 38(1): 253-259.
- [24] YANG Y, LI Y, GU Z, et al. Quick start-up and stable operation of a one-stage deammonification reactor with a low quantity of AOB and ANAMMOX biomass[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 654: 933-941.
- [25] WIJFFELS R, DE GOOIJER C, KORTEKAAS S, et al. Growth and substrate consumption of nitrobacter agilis cells immobilized in carrageenan: Part 2. Model evaluation[J]. *Biotechnology and Bioengineering*. 1991, 38(3): 232-240.
- [26] HAN Y, LIU J, GUO X, et al. Micro-environment characteristics and microbial communities in activated sludge flocs of different particle size[J]. *Bioresource Technology*, 2012, 124: 252-258.
- [27] 黄鹏飞, 张锦耀, 秦玉洁, 等. CANON工艺的典型抑制及其恢复性策略[J]. *环境工程学报*, 2016, 10(5): 2387-2393.
- [28] 王晓曦, 杨宏. 基于粒径分化的厌氧氨氧化污泥性能与微生物多样性分析[J]. *环境科学*, 2021, 42(4): 1930-1938.
- [29] WANG X, YANG R, GUO Y, et al. Investigation of COD and COD/N ratio for the dominance of Anammox pathway for nitrogen removal via isotope labelling technique and the relevant bacteria[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2019, 366: 606-614.
- [30] 曹雁, 王桐屿, 秦玉洁, 等. 厌氧氨氧化反应器脱氮性能及细菌群落多样性分析[J]. *环境科学*, 2017, 38(4): 1544-1550.
- [31] DU R, CAO S, WANG S, et al. Performance of partial denitrification (PD)- Anammox process in simultaneously treating nitrate and low C/N domestic wastewater at low temperature[J]. *Bioresource Technology*, 2016, 219: 420-429.
- [32] ARAUJO J, CAMPOS A, CORREA M, et al. Anammox bacteria enrichment and characterization from municipal activated sludge[J]. *Water Science and Technology*, 2011, 64(7): 1428-1434.
- [33] WANG X, YANG H, LIU X, et al. Effects of biomass and environmental factors on nitrogen removal performance and community structure of an Anammox immobilized filler[J]. *Science of the Total Environment*, 2020, 710: 135258.
- [34] 马斌. 城市污水连续流短程硝化厌氧氨氧化脱氮工艺与技术[D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2012.
- [35] LIU G, WANG J. Long-Term low DO enriches and shifts nitrifier community in activated sludge[J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47(10): 5109-5117.

(责任编辑: 曲娜)

Nitrogen removal characteristics of immobilization of Anammox granular sludge in domestic sewage CANON process

WANG Jiawei^{1,2,3}, HAO Guizhen^{1,2,3}, WANG Shuna^{1,2,3}, YANG hong^{3,*}

1. Department of Municipal and Environmental Engineering, Hebei University of Architecture, Zhangjiakou 075000, China;

2. Hebei Key Laboratory of Water Quality Engineering and Comprehensive Utilization of Water Resources, Zhangjiakou 075000, China; 3. Faculty of architecture, Civil and Transportation Engineering, Beijing University of Technology, Beijing 100124, China

*Corresponding author, E-mail: yhong@bjut.edu.cn

Abstract In order to achieve the stable nitrogen removal of Anammox immobilized filler in domestic sewage, the decarbonized domestic sewage was used as the feed water, the aeration method was intermittent aeration, the nitrogen removal performance and microbial community structure of anaerobic ammonia oxidation granular sludge (AnGS) in the high ammonia wastewater treatment system and the Anammox immobilized filler made of AnGS in the CANON process of municipal wastewater were studied. The results showed that during the start-up of the CANON process of domestic sewage, the highest removal rates of ammonia and total nitrogen in the AnGS system were only 65.9% and 59.3%, respectively. After 10 days of start-up of the immobilized filler, the removal rates of ammonia and total nitrogen could reach over 98.9% and 72.4%, respectively, and the effluent $\text{NH}_4^+\text{-N}$ and TN could meet the discharge requirements of level A in the "Emission Standard for Pollutants for Urban Wastewater Treatment Plants (GB 18918-2002)". Increasing the DO concentration in the aeration stage (from 2.9~3.1 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ to 3.9~4.1 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$) resulted in the increase of the effluent $\text{NO}_3^-\text{-N}$ of the immobilized filler to 9.7~11.1 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$, thus the short-cut nitrification of the CANON process was destroyed and the effluent total nitrogen did not meet the standard accordingly. However, after the DO concentration was returned to previous value, the nitrogen removal effect of the immobilized filler CANON process could recover. After the immobilized filler operation, the main AAOB bacteria were *Candidatus Kuenenia* and *Candidatus Brocadia*, accounted for 21.11% and 1.04%, respectively, while the main NOB bacterium was *Nitrospira*, accounting for only 0.53%. Immobilized filler can maintain the advantages of the AAOB flora in domestic sewage and inhibit the growth of NOB, so the immobilization technology has broad prospects for the nitrogen removal from municipal wastewater by CANON process.

Keywords anaerobic ammonium oxidation (Anammox); immobilization; CANON; microbial community structure; domestic sewage