李 冬,吕 璐,赖会彬,等.两级厌氧时间比对 PNPR-SAEPD 工艺同步脱氮除磷的影响 [J]. 中国环境科学, 2025,45(8):4245-4255.
Li D, Lv L, Lai H B, et al. Impact of two-stage anaerobic time ratio on simultaneous nitrogen and phosphorus removal in PNPR-SAEPD process [J]. China Environmental Science, 2025,45(8):4245-4255.

两级厌氧时间比对 PNPR-SAEPD 工艺同步脱氮除磷的影响

李 冬[1*],吕 璐[1],赖会彬[1],张 杰[1,2],王 凯[1] (1.北京工业大学,水质科学与水环境恢复工程北京市重点实验室,北京 100124；2.哈尔滨工业大学,城市水资源与水环境国家重点实验室,黑龙江 哈尔滨 150090)

摘要：本研究将生物除磷结合至 PN-SAEPD 工艺中,建立了 PNPR-SAEPD 系统,为了对有限的碳源进行合理分配,实验将两级厌氧时间比由 S1 阶段 3:1(90min:30min)依次调整为 S2 阶段 1:1(60min:60min)、S3 阶段 1:3(30min:90min),考察了两级厌氧时间比对 PNPR-SAEPD 系统的进水有机物转化、脱氮除磷性能以及微生物群落结构的影响.结果表明:S2 阶段两级厌氧时间比为 1:1,对进水有机碳源的分配最为合理,SAEPD、PNPR 反应器储存内碳源所消耗的 COD 分别为(89.3±8.4)mg/L 和(82.6±7.7)mg/L,PNPR 反应器的除磷贡献度为(79.1%±8.5%),为后续 SAEPD 反应器缺氧阶段营造了磷饥饿条件.SAEPD 反应器 DPAOs 对内碳源储存的贡献比例仅为 15%,储存内碳源所消耗的 COD 量为(10.1±4.0)mg/L,DPAOs 相对丰度降至 3.01%.将生物除磷结合到 PN 反应器中提高了短程硝化的稳定性,NOB 相对丰度由 3.86%逐渐降至 0.64%,NAR 保持在(82.1%±4.0%).S2 阶段 PNPR 反应器优越的 PN 性能和 SAEPD 反应器内 DGAOs 主导的 EPD 途径为 AnAOB 提供了充足的电子受体,厌氧氨氧化脱氮贡献度保持在(81.8%±3.6%),总氮去除率保持在(88.3%±1.6%),出水总氮浓度低于 10mg/L 且未出现硝酸盐积累;TP 去除率最高可达 93.7%,出水 TP 浓度基本降低到 0.5mg/L 以下.

关键词：两级厌氧时间比；内源性短程反硝化(EPD)；厌氧氨氧化(Anammox)；内碳源;反硝化聚糖菌(DGAOs)
中图分类号：X703 **文献标识码**：A **文章编号**：1000-6923(2025)08-4245-11

Impact of two-stage anaerobic time ratio on simultaneous nitrogen and phosphorus removal in PNPR-SAEPD process.

LI Dong[1*], LV Lu[1], LAI Hui-bin[1], ZHANG Jie[1,2], WANG Kai[1] (1.Beijing Key Laboratory of Water Quality Science and Water Environment Recovery Engineering, Beijing University of Technology, Beijing 100124, China；2.State Key Laboratory of Urban Water Resource and Environment, Harbin Institute of Technology, Harbin 150090, China). *China Environmental Science*, 2025,45(8)：4245~4255

Abstract：This study integrated biological phosphorus removal into the PN-SAEPD process, establishing a PNPR-SAEPD system. To allocate the limited carbon source reasonably, the experiment gradually adjusted the two-stage anaerobic time ratio from 3:1 (90min:30min) in the S1stage to 1:1 (60min:60min) in the S2 stage, and then to 1:3 (30min:90min) in the S3stage. The study investigated the impact of the two-stage anaerobic time ratio on the conversion of influent organic matter, nitrogen and phosphorus removal performance, and microbial community structure of the PNPR-SAEPD system. The results showed that in the S2 stage, with a two-stage anaerobic time ratio of 1:1, the allocation of inflow organic carbon sources was most reasonable. The average COD consumed by the SAEPD and PNPR reactors for storing internal carbon sources was (89.3±8.4)mg/L and (82.6±7.7)mg/L, respectively. The phosphorus removal contribution of the PNPR reactor was (79.1%±8.5%), creating phosphorus starvation conditions for the subsequent anaerobic stage of the SAEPD reactor. The contribution of DPAOs in the SAEPD reactor to the storage of internal carbon sources was only 15%, consuming (10.1±4.0)mg/L of COD. The relative abundance of DPAOs dropped to 3.01%, enhancing the synergistic denitrification of DGAOs and AnAOB. Integrating biological phosphorus removal into the PN reactor improved the stability of short-cut nitrification, with the relative abundance of NOB gradually decreasing from 3.86% to 0.64% and NAR maintaining at around (82.1%±4.0%). In the S2stage, the superior PN performance of the PNPR reactor and the EPD pathway dominated by DGAOs in the SAEPD reactor provided sufficient electron acceptors for AnAOB. The anaerobic ammonium oxidation denitrification contribution remained at about (81.8%±3.6%), the total nitrogen removal rate was maintained at around (88.3%±1.6%), and the effluent total nitrogen concentration was below 10mg/L. The TP removal rate could reach up to 93.7%, and the effluent TP concentration was basically reduced to below 0.5mg/L.

Key words：two-stage anaerobic time ratio；endogenous partial denitrification (EPD)；Anammox；internal carbon source；denitrifying glycogen-accumulating organisms (DGAOs)

收稿日期：2025-01-15
基金项目：北京高校卓越青年科学家计划项目(BJJWZYJH01201910005019)

* 责任作者，教授, lidong2006@bjut.edu.cn

城市污水排放量的增多以及低碳氮比的水质特点导致传统脱氮除磷工艺在实际运行中暴露出能源消耗大,成本效率低,剩余污泥量大等短板[1-2],难以满足日益严格的排放标准.厌氧氨氧化(Anammox)在缺氧条件下以亚硝态氮为电子受体将氨氮直接氧化为氮气[3],与硝化反硝化相比,不需要消耗外源有机碳,由于厌氧氨氧化菌的自养性质,剩余污泥产生量减少了 80%[4].由于仅 57%的铵被氧化为亚硝酸盐,部分硝化(PN)与厌氧氨氧化结合(PN-A 工艺)可以节省 50%以上的曝气能耗和曝气系统容量[5].然而,由于 PN 提供 NO_2^-的不稳定性[6]、有机物对厌氧氨氧化菌(AnAOB)生长的影响[7]、厌氧氨氧化反应产生 11%的 NO_3^-引起出水硝酸盐积累等问题,PN-A 工艺的应用受限[8-10].

目前,已有工艺通过低溶解氧(DO)[11]、间歇曝气[12]、调节进水分配比[13]和选择性排泥[14]等策略抑制亚硝酸盐氧化菌(NOB),实现 PN-A 工艺的主流应用,但在工艺稳定性和高效性等方面仍有不足.反硝化聚糖菌(DGAOs)能在厌氧阶段将水中有机物吸收至胞内转化为聚羟基脂肪酸酯(PHAs),在缺氧阶段以 PHAs 为碳源将 NO_3^-还原为 NO_2^-,为 AnAOB 提供电子受体[15-17].已有研究[18]将DGAOs主导的内源部分反硝化(EPD)和 Anammox 耦合在一个反应器(SAEPD)中,再联合 PN 单元提出新型双污泥 PN-SAEPD 工艺.EPD 与 PN-A 工艺结合缓解了进水有机物对 AnAOB 生长的影响,NO_3^-通过 EPD 途径还原为 NO_2^-供 AnAOB 利用,避免了出水硝酸盐积累的问题[19].

然而,SAEPD 反应器实际运行中往往伴随着反硝化聚磷菌(DPAOs)的生长.DPAOs 在厌氧阶段与 DGAOs 竞争有机物,在缺氧阶段与 AnAOB 竞争 NO_2^-[15],不利于DGAOs和AnAOB协同脱氮.DPAOs在缺氧阶段以正磷酸盐为基质合成聚磷酸盐(Poly-P),而 Poly-P 是 DPAOs 在厌氧阶段储存内碳源的主要能量来源.在缺氧阶段保持磷饥饿状态可以限制DPAOs合成Poly-P,进而抑制DPAOs在厌氧阶段对内碳源的储存,降低其活性[20].相关研究[21]通过将生物除磷与 PN 结合,利用 PAOs 与 AOB、NOB 对 O_2 亲和力的差异性提高PN的稳定性并实现高效除磷.在原有 PN-SAEPD 工艺的 PN 单元基础上结合生物除磷,可以提高 PN 的稳定性,并使 SAEPD 缺氧阶段保持磷饥饿状态,增强 DGAOs 与 AnAOB 协同脱氮,最终实现高效脱氮[22].

综上,本研究建立了 PNPR-SAEPD 系统,污水首先进入SAEPD-SBR,其中DGAOs吸收进水有机物储存为内碳源,自身生长的同时缓解了有机物对 Anammox 的冲击.在一级厌氧末将上清液泵入 PNPR-SBR,PAOs 在二级厌氧段吸收剩余有机物,随后曝气进行亚硝化和好氧吸磷.好氧结束将上清液泵回 SAEPD-SBR,SAEPD 缺氧阶段处于磷饥饿状态,DPAOs 被抑制,DGAOs 与 AnAOB 协同脱氮.由于生活污水中易生物降解的有机碳源十分有限,对进水有机物进行分配是系统成功运行的关键.而厌氧阶段的水力停留时间(HRT)决定 DGAOs 和 PAOs 储存内碳源的进程,因此本实验在 PNPR-SAEPD 系统中两级厌氧段总 HRT 不变的基础上,探究系统两级厌氧 HRT 比在调节 DGAOs 和 PAOs 内碳源分配进水有机物,促进系统脱氮除磷方面的影响.

1 材料与方法

1.1 实验装置与运行参数

设置两组高度、直径完全一致的 SBR 反应器,由有机玻璃制成,高50cm,内径14cm,有效容积为6L,换水比为 2:3,分别记为 R1、R2.两组反应器都配备机械搅拌装置,R2 配备曝气装置,曝气强度由气体流量计控制,进水通过蠕动泵控制,温度控制在 23±2 ℃,反应装置见图 1.R1 以厌氧/缺氧方式运行,R2 以厌氧/好氧方式运行,每天运行两个周期,其中进水 10min,沉淀 60min,排水 10min,其余时间闲置.

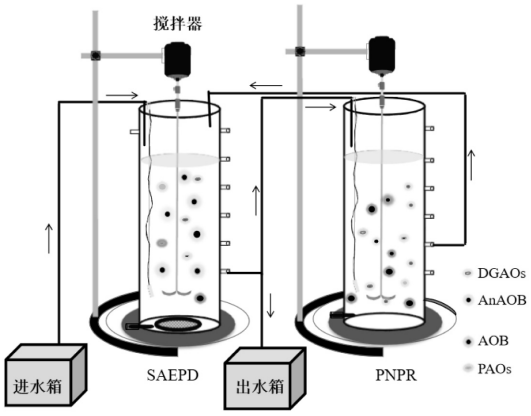


图 1 实验装置

Fig.1 Diagram of the experimental setup

试验分为 3 个阶段,一级厌氧时间由 90min 梯度缩短至 30min,同时二级厌氧时间由 30min 延长至 90min,三阶段两级厌氧时间比由 3:1 依次调整为 1:1 和 1:3,具体运行工况见表 1.

1.2　接种污泥与进水水质

SAEPD 反应器接种污泥由内源反硝化污泥和厌氧氨氧化污泥组成,内源反硝化污泥为实验室运行规模下前期培养的具有内源反硝化脱氮性能的絮状污泥,污泥质量浓度约为 2450mg/L,厌氧氨氧化污泥取自实验室成熟的厌氧氨氧化颗粒污泥,污泥质量浓度为 1420mg/L.两种污泥以体积比 2:1 混合.PNPR 反应器接种来自北京市某污水处理厂二沉池的污泥,在实验室运行超过 180d,污泥浓度约为 2000mg/L,平均粒径 380.63μm,氨氮去除率(ARE)为 82.53%.实验室进水采用模拟生活污水,按照实际生活污水的典型特征配制,由自来水、NH_4Cl、CH_3CH_2COONa、KH_2PO_4、$NaHCO_3$、$CaCl_2$ 和 $MgSO_4·7H_2O$ 混合配制,以 $NaHCO_3$ 模拟生活污水碱度并调节 pH 值稳定,具体水质指标见表 2.为避免模拟废水中的有机物在进水箱中因停留时间过长而降解,进水箱定期进行清洗并重新配置.

表 1　反应器运行参数

Table 1　Reactor operating parameters

运行参数	时间(d)	R1		R2		两级厌氧 HRT 比
		一级厌氧(min)	缺氧(min)	二级厌氧(min)	好氧(min)	
阶段 1	1~36	90	240	30	120	3:1
阶段 2	37~72	60	240	60	120	1:1
阶段 3	73~108	30	240	90	120	1:3

表 2　人工合成废水水质

Table 2　Water quality of artificial water

项目	COD (mg/L)	TP (mg/L)	NO_2^- (mg/L)	NO_3^- (mg/L)	pH 值
浓度	180~220	6~8	<1	0~2	7.6~8.2

1.3　分析项目与检测方法

试验期间,COD 和 TP 的测定采用连华科技 5B−6C 型多参数水质测定仪,NH_4^+−N 使用纳氏试剂分光光度法,NO_2^-−N 采用 N−(1−萘基)−乙二胺分光光度法,NO_3^-−N 采用溴麝香草酚蓝紫外分光光度法.DO、pH 值、温度使用 WTW−pH/Oxi 340i 便携式多参数测定仪测量.

1.4　计算公式

1.4.1　内碳源储存计算　厌氧阶段细胞内碳源储存量 COD_{intra} 及储存效率 $COD_{intra,efficiency}$(%)计算公式如下:

$$\rho(COD_{intra}) = \Delta\rho(COD) - 1.71\Delta\rho(NO_2^- - N) - 2.86\Delta\rho(NO_3^- - N) \quad (1)$$

$$COD_{intra,efficiency}(\%) = \rho(COD_{intra}) / \rho(COD_i) \times 100\% \quad (2)$$

式中:$\Delta\rho(COD)$、$\Delta\rho(NO_2^-N)$、$\Delta\rho(NO_3^-N)$分别表示厌氧段前后水中 COD、NO_2^-−N 和 NO_3^-−N 质量浓度之差,mg/L;$\rho(COD_i)$表示进水中 COD,mg/L;1.71 和 2.86 分别为单位 NO_2^-−N、NO_3^-−N 反硝化所消耗 COD 的理论值.

1.4.2　PAOs 和 GAOs　贡献比例 PAOs 和 GAOs 对厌氧段 COD_{intra} 贡献比例计算公式如下:

$$0.5P_{PAOs}(\%) = \rho(PRA)/\rho(COD_{intra}) \quad (3)$$

$$P_{GAOs}(\%) = 1 - P_{PAOs} \quad (4)$$

式中:$\rho(PRA)$为厌氧阶段 PO_4^{3-}−P 释放量,mg/L;0.5 为 PAOs 在厌氧条件下每储存单位质量 COD 所释放 PO_4^{3-}−P 的模型值;$\rho(COD_{intra})$为系统内碳源储存量,mg/L[23].

1.4.3　厌氧氨氧化对 TIN 去除的贡献率

$$P_A(\%)=(1+1.32-0.26)\times[C_{aer}(NH_4^+-N)-Ce(NH_4^+-N)]/[C_i(TIN)-C_e(TIN)] \quad (5)$$

式中:$C_{aer}(NH_4^+-N)$表示好氧末 NH_4^+−N 浓度,mgN/L;$C_e(NH_4^+-N)$表示出水 NH_4^+−N 浓度,mgN/L;C_i(TIN)表示进水末 TIN 浓度,mgN/L;C_e(TIN)表示出水 TIN 浓度,mg N/L;P_A 表示 AnAOB 对 TIN 去除的贡献.

1.5　微生物群落分析

用土壤 DNA 提取试剂盒(E.Z.N.ATM Mag−Bind 土壤 DNA 试盒,OMEGA)从活性污泥中提取 DNA.使用引物 341F (5'−CCTACGGGNGGCWG−CAG−3')和 805R(5'−GACTACHVGGTATCTAAT−CC−3')通过聚合酶链反应(PCR)扩增细菌 16SrRNA 基因的 V3−V4 区域.提取两组反应器 35, 72,108d 的污泥样本,使用生工(中国上海)的 Illumina MiSeq 系统(Illumana Miseq300bp,美国)进行高通量焦磷酸测序.

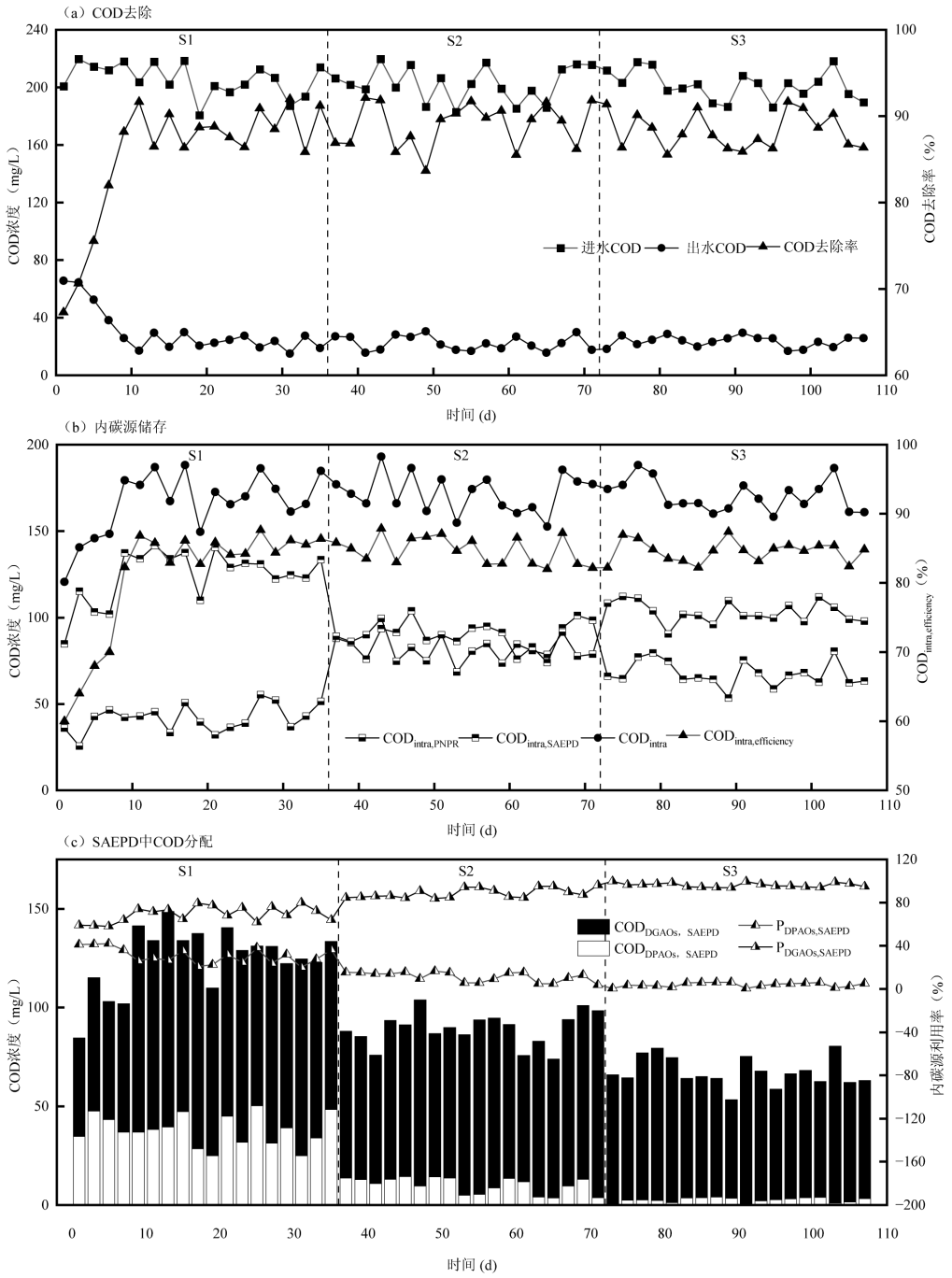


图 2 运行过程中 COD 变化

Fig.2 COD concentration changed during the operation

2 结果与讨论

2.1 C、P 污染物去除性能变化

2.1.1 COD 去除性能及内碳源储存 DPAOs 菌和 DGAOs 菌都是污水处理厂(WWTPs)中常见的具备储存内碳源能力的微生物,通常相互伴随共存于污泥中[24],在厌氧阶段对有机物的摄取存在着竞争关系[25-26].Poly-P 是 DPAOs 摄取有机物所依赖的能源物质,其水解功能速率(1.0mol ATP/mol Poly-P)远远超过 DGAOs 通过糖酵解获取能量的速率(0.5mol ATP/mol Glycogen),DPAOs 在与 DGAOs 竞争碳源的过程中占据优势地位.为强化 DGAOs 储存内碳源,促进 EPD 途径,本试验通过营造磷饥饿条件抑制 DPAOs 储存内碳源.

根据 PNPR-SAEPD 反应器中两级厌氧时间比的不同,将运行周期分为 3 个阶段,在整个试验运行

过程中对系统 COD 变化情况及去除率进行监测,如图 2(a)所示.运行期间进水 COD 浓度在 180~220mg/L 之间波动,由于实验初期系统污泥处于活性恢复阶段,COD 去除率在前 9d 内较低且不稳定,随后逐步上升趋于稳定,COD 去除率为(87.6%±2.1%),出水 COD 平均浓度为 25.3mg/L,小于 50mg/L,符合《城镇污水处理厂排放标准》(GB18918−2002)中一级 A 标准[27].

如图 2(b)所示,运行初期,由于 DPAOs 和 DGAOs 未适应新的环境,内碳源储存率较低,仅为 60.2%,随着 SAEPD 反应器厌氧/缺氧的交替运行、PNPR 反应器厌氧/好氧的交替运行,PAOs 和 GAOs 活性增强,内碳源储存率逐渐提高,系统稳定运行期间始终保持较高的 COD 去除率,约 87%的 COD 被系统厌氧储存为内碳源,内碳源储存量为(169.3±13.6)mg/L.随着两级厌氧时间比由 S1 阶段 3:1(90min:30min)依次调整为 S2 阶段 1:1(60min:60min)、S3 阶段 1:3(30min:90min),两反应器中 COD 贮存量(COD_{intra})随之改变,SAEPD 反应器中 COD 贮存量($COD_{intra,SAEPD}$)由 S1 阶段的(124.1±15.5)mg/L 降低到 S2 阶段(89.3±8.4)mg/L,最后降到 S3 阶段的(67.4±7.3)mg/L(P<0.05),PNPR 反应器中三阶段 COD 贮存量($COD_{intra,PNPR}$)则由 S1 阶段的(41.7±7.8)mg/L 上升至 S2 阶段的(82.6±7.7)mg/L,接着上升到 S3 阶段的(103.1±6.1)mg/L(P<0.05).

如图 3 所示,随着两级厌氧时间比的调整,PNPR 反应器分配到的有机物增多,PAOs 的活性逐渐提高,PNPR 反应器的除磷贡献度逐渐上升,由 S1 阶段的(37%±8.5%)上升至 S2、S3 阶段的(79.1%±8.5%)、(80.9%±5.7%).PNPR 反应器除磷贡献度的上升可使回流至 SAEPD 反应器的正磷酸盐浓度降低,为 SAEPD 反应器缺氧阶段营造了磷饥饿条件,DPAOs 菌胞内 Poly−P 合成减少,抑制了 DPAOs 储存内碳源的能力[28-29].如图 2(c)所示,对 SAEPD 反应器中三个阶段 DGAOs 和 DPAOs 储存内碳源所消耗的 COD($COD_{DGAOs,SAEPD}$,$COD_{DPAOs,SAEPD}$)及利用率分别进行计算,结果显示 S1 阶段 $COD_{DGAOs,SAEPD}$ 为(86.8±17.0)mg/L,$COD_{DPAOs,SAEPD}$ 为(37.9±7.9)mg/L.随着厌氧时间缩短 $COD_{DPAOs,SAEPD}$ 逐渐降低,S2、S3 阶段分别降低至(10.0±4.0)mg/L、(2.5±1.2)mg/L(P<0.05);$COD_{DGAOs,SAEPD}$ 在 S2 阶段变化不大,为(79.2±8.9)mg/L,S3 阶段 SAEPD 反应器分配的有机物量少,$COD_{DGAOs,SAEPD}$ 降低至(64.9±8.0)mg/L(P<0.05),DGAOs 对有机物的利用率由(69.2%±7.3%)依次上升至(88.7%±4.5%)、(96.2%±2.0%)(P<0.05).

2.1.2　总磷去除性能　对反应器运行三个阶段的进出水以及一级厌氧末的总磷(TP)质量浓度进行长期监测,如图 3 所示.在试验运行最初的 10d 内,系统出水 TP 去除效率较低但呈现上升趋势,这是由于接种初期系统污泥活性尚未得到完全恢复.在第 10d 后 TP 去除率最高可达 96.7%,出水 TP 质量浓度基本降低到 0.5mg/L 以下,达到 GB18918−2002《城镇污水处理厂污染物排放标准》中规定的一级 A 标准[27].

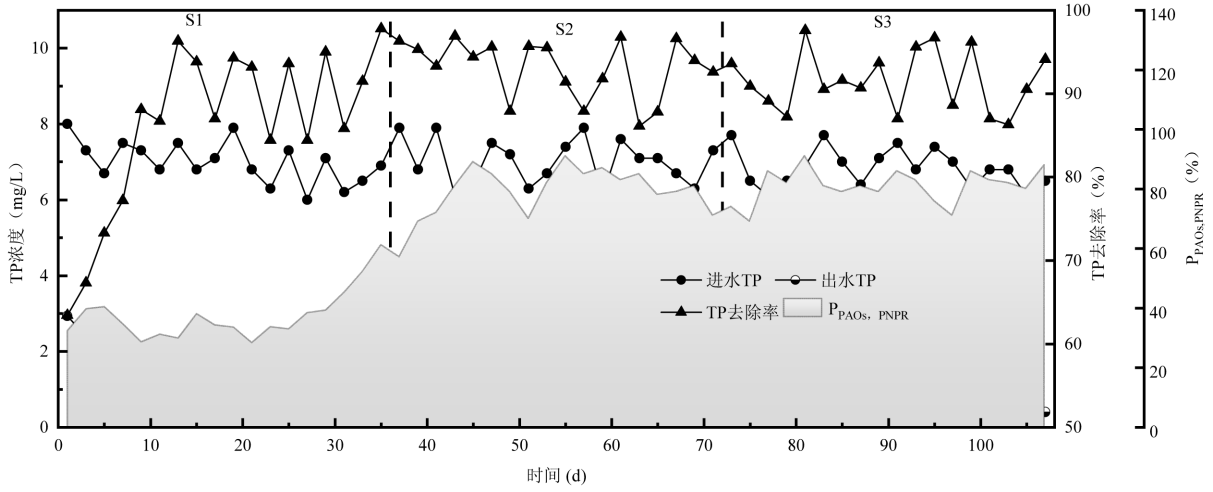


图 3　运行过程中 TP 变化

Fig.3　TP concentration changed during the operation

2.2 氮素去除性能

为满足厌氧氨氧化反应严格的 NO_2^-/NH_4^+配比(1.32)要求[4], PNPR 反应器设置了合适的曝气量使大约一半的 NH_4^+被氧化,如图 4(b)所示回流至 SAEPD 反应器的NH_4^+在 30~40mg/L 之间.随着两级厌氧时间比的调整,PNPR 反应器获得的有机物增多,PAOs 活性提高.由于 PAOs 对 AOB、NOB 产生的竞争性抑制,S2 和 S3 阶段的亚硝酸盐积累率(NAR)相较于 S1 阶段出现了明显的提高,与孙甜甜等人[21]的研究结果相一致.S1 阶段 PNPR 反应器的 NAR 在 60%~70%之间,而 S2、S3 阶段的 NAR 保持在 82.1%~85.8%,回流至 SAEPD 反应器的NO_3^-低于 S1 阶段,有助于减轻 DGAOs 将NO_3^-还原为NO_2^-的负担.

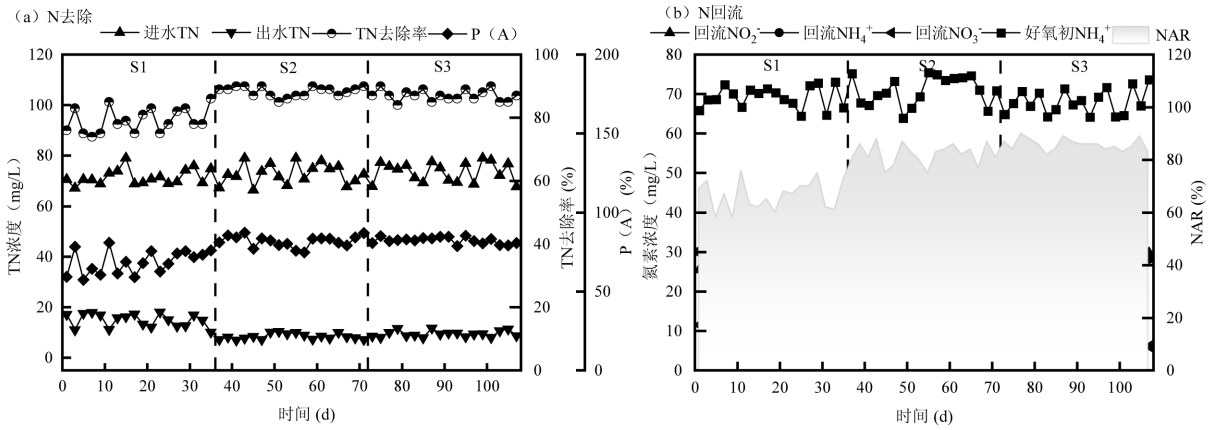


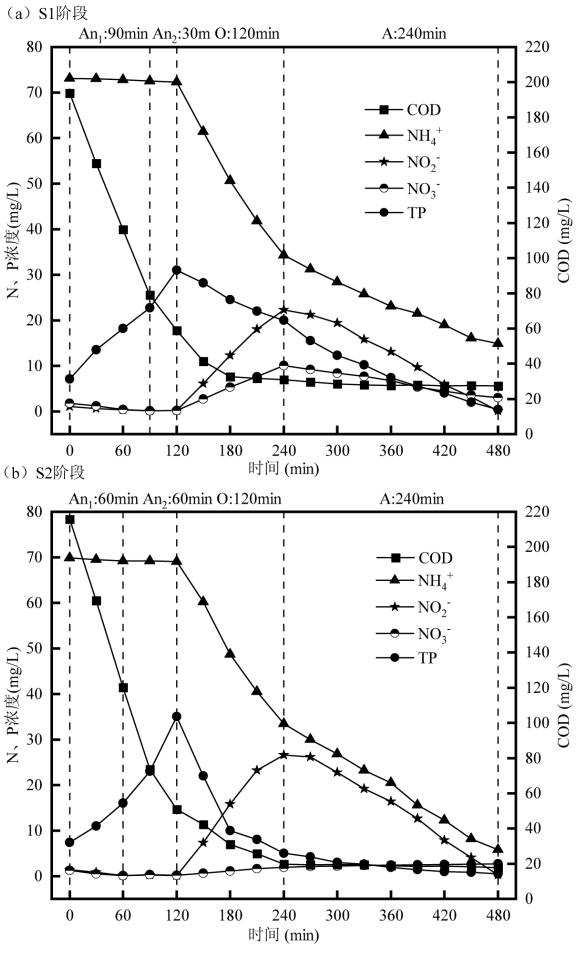
图 4 运行过程中氮素变化

Fig.4 Nitrogen concentration changed during the operation

图 4(a)反映了 PNPR-SAEPD 系统的总氮去除性能,由图可见,在 S1 阶段,由于 DPAOs 与 AnAOB 竞争NO_2^-,厌氧氨氧化脱氮贡献度在 50%~60%之间,系统的异养脱氮性能受限于进水有限的碳源.S1 阶段总氮去除率最高仅达到 79%,脱氮性能波动较大,出水总氮浓度大于 15mg/L.而在 S2 阶段,PNPR 反应器优越的 PN 性能和 DGAOs 主导的 EPD 途径为 AnAOB 提供了充足的电子受体,S2 阶段的厌氧氨氧化脱氮贡献度为(81.8%±3.6%).S2 阶段总氮去除性能得到了优化,总氮去除率保持在(88.3%±1.6%),TN 去除性能最好,出水总氮浓度低于 10mg/L,达到 GB18918-2002《城镇污水处理厂污染物排放标准》中规定的一级 A 标准[27].S3 阶段一级厌氧时间进一步缩短,SAEPD 中分配的有机物过少,DGAOs 储存的内碳源减少,其主导的 EPD 途径容量小,NO_3^-还原减少,TN 去除率略有下降.

2.3 典型周期内污染物去除情况变化

为了深入研究不同两级厌氧时间比下 PNPR-SAEPD 系统的处理性能,分别选取每个阶段稳定期的 1d 作为典型周期,探究其 C、N、P 去除效果,如图 5 所示.



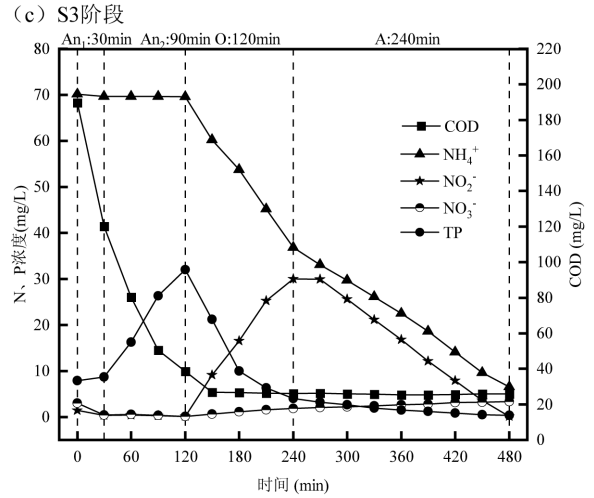


图 5　典型周期内 C、N、P 变化

Fig.5　Changes in C, N and P during a typical cycle

PAOs、GAOs 等内源性异养菌在厌氧阶段将水中 COD 吸收至胞内储存为 PHAs,观察到在两级厌氧阶段 COD 浓度出现了不同程度的降低.随着两级厌氧时间比由 S1 阶段 3:1(90min:30min)依次调整为 S2 阶段 1:1(60min:60min)、S3 阶段一级厌氧阶段消耗的 COD 由 S1 阶段的 114.8mg/L 降至 S2 阶段的 95.5mg/L,到 S3 阶段降至 69.5mg/L,而二级厌氧阶段消耗的 COD 则由 S1 阶段的 20.0mg/L 升至 S2 阶段的 69.3mg/L,S3 阶段继续上升至 81.7mg/L.由于 PAOs 储存内碳源的能量来源于 Poly−P,在储存内碳源伴随着正磷酸盐的释放,换言之,厌氧阶段的释磷量可反映 PAOs 储存的内碳源量.一级厌氧阶段的释磷量由 S1 阶段的 15.6mg/L 降至 S2 阶段的 8.6mg/L,继续下降至 S3 阶段的 0.8mg/L,这意味着 SAEPD 反应器的 DPAOs 储存内碳源的能力逐渐被抑制.随着 PNPR 反应器分配得的有机物逐渐增多,二级厌氧阶段的释磷量由 S1 阶段的 8.3mg/L 增至 S2 阶段的 19mg/L 再增至 S3 阶段 26.3mg/L,表明 PAOs 储存的内碳源量逐渐增多,其活性逐渐增强.PNPR 好氧阶段的吸磷量由 S1 阶段的 11mg/L 增至 S2、S3 阶段的 30 和 28mg/L,而回流至 SAEPD 反应器的正磷酸盐浓度则由 S1 阶段的 20mg/L 降至 S2 阶段的 5mg/L 再继续降低至 S3 阶段的 4mg/L,逐渐为 SAEPD 反应器营造了磷饥饿条件,DPAOs 得不到足够的基质合成 Poly−P,印证了 DPAOs 储存内碳源的能力逐渐被抑制这一现象.此外,在厌氧阶段进水 NO_2^-、NO_3^-浓度逐渐降低,表明系统中存在的一部分异养反硝化菌消耗少量有机碳源将 NO_2^-、NO_3^-还原为 N_2.

由于 S1 阶段 DPAOs 活性较高,反应器中的 NO_2^-被用于反硝化除磷[30],导致 AnAOB 没有足够的电子受体,Anammox 性能较差,S1 阶段出水 NH_4^+为 14.9mg/L.DGAOs 与 DPAOs 对进水碳源具有竞争性,随着 SAEPD 反应器 DPAOs 储存内碳源的能力逐渐被抑制,DGAOs 储存内碳源量相对增多,DGAOs 将 NO_3^-还原为 NO_2^-为 AnAOB 提供电子受体,S2、S3 阶段出水 NH_4^+分别为 5.8 和 6.5mg/L.由于 S3 阶段 SAEPD 反应器分配的有机物过少,在降低 DPAOs 内碳源储存的同时,DGAOs 内碳源储存量也减少,DGAOs 还原 NO_3^-的性能相对于 S2 阶段较差,出水 NO_3^-为 3.3mg/L,高于 S2 阶段的 2.7mg/L.

2.4　微生物群落分析

为了研究两级厌氧时间比对系统内微生物的影响,对 S1(第 35d)、S2(第 72d)、S3(第 108d)阶段污泥微生物群落进行分析.表 3 为系统中微生物的 Alpha 多样性变化情况,样品 Coverage 指数均高于 0.99,测序结果可以代表系统微生物群落的情况.ACE 和 Chao1 指数是度量物种丰富度和多样性的指标,其数值越大群落物种种类越丰富.Simpson 和 Shannon 指数是估算样本微生物多样性的指标,Simpson 指数越大群落多样性越低,Shannon 指数越大群落多样性越高.随着厌氧时间缩短,SAEPD 内微生物群落的物种丰富度逐渐降低,S2 阶段物种多样性最低.PNPR 中物种丰富度上升,种群多样性降低,推测可能与功能菌群逐渐富集有关.

图 6 为系统污泥门水平的分布情况,运行期间微生物种群组成变化不大.SAEPD 中优势菌门主要为变形菌门(Proteobacteria)、拟杆菌门(Bacteroidota)和绿弯菌门(Chloroflexi).Proteobacteria 门在污水生物处理中发挥降解有机物、参与氮磷硫循环、形成生物膜和适应恶劣环境等作用,其三阶段相对丰度分别为 32.7%、44.7%、42.5%;Bacteroidota 门参与反硝化过程,具备反硝化除磷能力,随着一级厌氧时间缩短,Bacteroidota 门相对丰度由 19.2%降低至 15.2%、13.1%,三阶段 Chloroflexi 门的丰度变化不大.由于有机碳源和 DO 的限制,Planctomycetota 门受到抑制,相对丰度由 7.7%降低至 2.1%.PNPR 中的主要优势菌门为 Proteobacteria,三阶段相对丰度分别为 42.4%、43.1%、45.3%.Planctomycetota 门的相

对丰度由 6.4%降低至 1.5%,推测是由于有机物的不足,好氧异养菌活性受到抑制.

表 3 不同厌氧时间下 SAEPD、PNPR 系统的 Alpha 多样性指数

Table 3 Alpha diversity of the SAEPD and PNPR system under different anaerobic conditions

样品		序列数	OTUs	Chao1	Ace	Shannon	Simpon	Coverage
SAEPD	S1	69340	1754	1757.62	1789.66	4.32446	0.05332	0.99796
	S2	60384	1687	1673.85	1733.46	3.67886	0.06325	0.996064
	S3	63546	1576	1608.13	1692.73	4.92235	0.04556	0.999543
PNPR	S1	57865	1674	1423.33	1607.34	5.23557	0.05997	0.99546
	S2	65784	1763	1620.45	1687.88	4.55872	0.06986	0.99932
	S3	60663	1656	1652.77	1705.92	4.47483	0.07356	0.99873

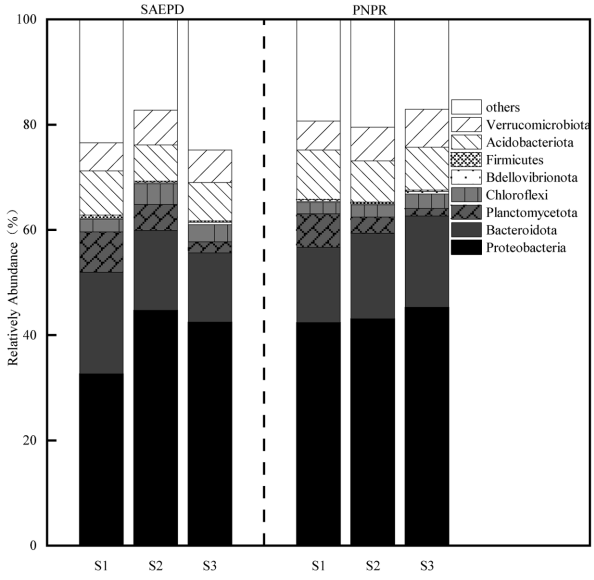


图 6 功能微生物在门水平上的丰度变化

Fig.6 Changes in abundance of functional microorganisms at the phylun level

三阶段功能微生物在属水平的相对丰度如图 7 所示.SAEPD 系统内 DGAOs 和 DPAOs 存在底物竞争[31],典型的 DGAOs 主要包含 *Candidatus_Competibacter* 及 *Defluviicoccus*.由图 7(a)可以看出,S1 阶段 DGAOs 总的相对丰度为 2.56%,其中 *Defluviicoccus* 丰度最高.通过对两级厌氧时间比进行调整,36d 后 *Defluviicoccus* 的相对丰度提高了 2 倍,为 5.86%,*Candidatus_Competibacter* 为 0.82%,DGAOs 成功富集.S3 阶段一级厌氧时间缩短到 30min,系统内 DGAOs 可利用的碳源不足,活性下降,观察到DAOs相对丰度降低到4.06%.DPAOs相对丰度由 S1 阶段的 6.71%逐渐降低,在 S3 阶段达到 2.13%,系统中检出了 3 种典型的 DPAOs 菌(*Dechloromonas*、*Candidatus_Accumulibacter* 以及 *Pseudomonas*[32]).*Dechloromonas* 属于 *Rhodocyclaceae* 科,是以 NO_3^--N 或 O_2 为电子受体的 DPAOs[33],于 2005 年首次在 EBPR 系统内被检测到, *Candidatus_Accumulibacter* 菌属于红环菌科,具备以硝酸盐氮作为电子受体的不完全除磷代谢途径[34], *Dechloromonas* 和 *Candidatus_Accumulibacter* 被认为是目前反硝化除磷系统内已知的最主要的 DPAOs.由图 7(a)可见,在 S1 阶段,*Dechloromonas* 的相对丰度高达 5.86%,*Candidatus_Accumulibacter* 为 0.2%左右,该阶段 SAEPD 反应器承担着系统主要的除磷作用,随着一级厌氧时间的缩短,*Dechloromonas* 的相对丰度逐渐下降,在 S3 阶段降至 1%左右,*Candidatus_Accumulibacter* 相对丰度下降至 0.1%以下,表明在长期保持磷饥饿的状态下,DPAOs 活性受到抑制.

在 PNPR 反应器中观察到 S3 阶段 PAOs 的相对丰度较 S1 阶段增长了 2 倍左右,达到 5.85%,表明在二级厌氧时间延长的过程中,PAOs 等异养菌的增殖速率较大,PAOs 的富集使得系统的除磷性能逐渐趋于稳定,PNPR 系统能够稳定运行.SAEPD 反应器内的 DPAOs 丰度渐减,而 PNPR 中 PAOs 迅速富集,与 S2、S3 阶段系统回流污水较低的 TP 含量佐证了系统除磷阶段贡献度的转移.

AOB 为 PNPR 系统硝化过程中的主要菌群,检测到系统内 *Nitrosomonas* 和 *Nitrospira* 相对丰度分别达到 3.28%和 2.7%左右,为主要的 AOB 菌种.*Nitrobcater* 是在污水处理厂中广泛存在的一种 NOB 菌种,在 S1 阶段相对丰度达到 3.86%.Wett 等人[35]研究表明,在长期低氧环境下,*Nitrobcater* 的丰度明显低于 *Nitrospira*,即低 DO 的条件下 *Nitrospira* 对 O_2 的竞争力明显优于 *Nitrobcater*.PAOs 作为异养菌在好氧段能够优先利用 O_2,随着系统的运行迅速

增殖,与 AOB 和 NOB 竞争 DO 进行好氧吸磷,AOB 和 NOB 因缺乏充足的氧气,活性受到抑制.

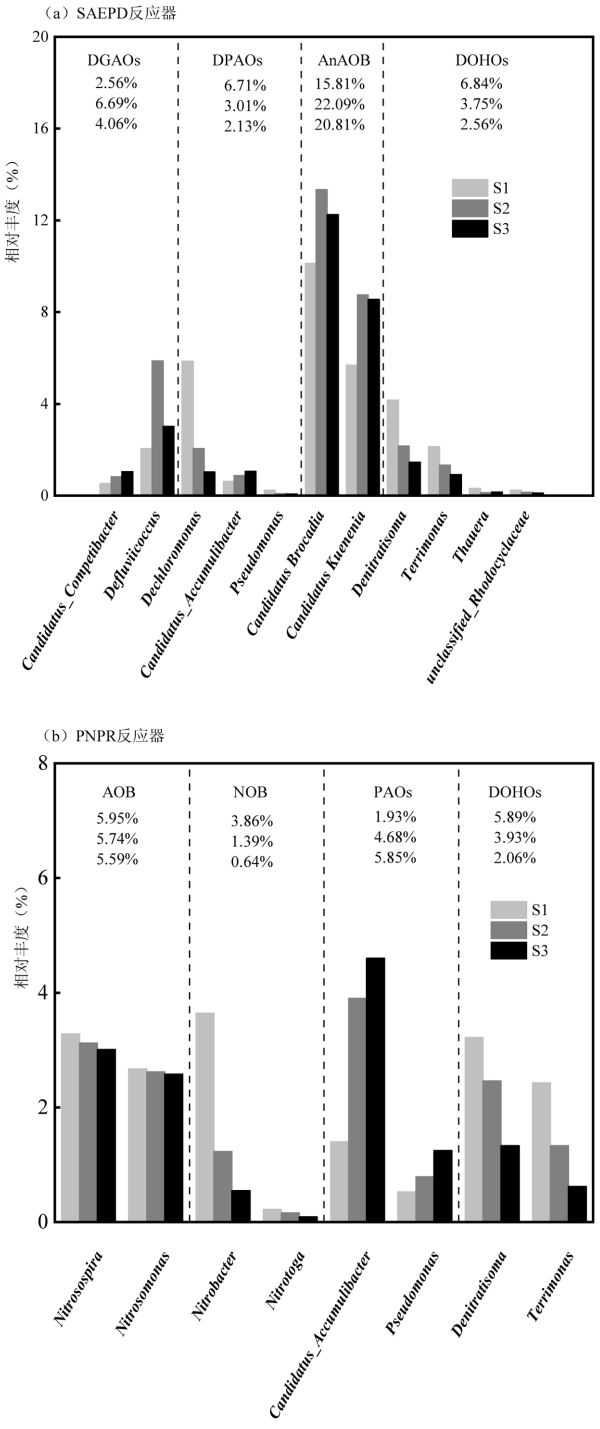


图 7　功能微生物在属水平上的丰度变化

Fig.7　Changes in abundance of functional microorganisms at the genus level

然而在图 7(b)中可以观察到,在与 PAOs 竞争 O_2 的过程中,AOB 的相对丰度并未明显降低,表明其对 *Nitrospira* 并没有表现出明显的抑制作用,短程硝化仍能稳定维持,推测在 DO 不充足的情况下,活性较高的 AOB 仍能进行硝化作用[22],这与运行过程中 NAR 上升的结果保持一致.NOB 的丰度则由 3.86%降低到 0.64%,到 S3 阶段 *Nitrospira* 的丰度为 *Nitrobcater* 的 8.7 倍左右,进一步说明好氧段 DO 的不足能够有效抑制 NOB 中 *Nitrobcater* 的生长,这与 Liu 等[36]的研究结果一致.此外,在两反应器内都观察到异养反硝化菌($DOHO_S$),这与厌氧初始阶段 NO_x^-浓度迅速下降的结果相一致.

3　结论

3.1　保持系统厌氧段总水力停留时间不变,通过调节两级厌氧时间比对进水有机物进行分配,S2 阶段两级厌氧时间比为 1:1(60min:60min),对进水有机碳源的分配最为合理,SAEPD、PNPR 反应器储存内碳源消耗的 COD 值分别为(89.3 ± 8.4)和(82.6 ± 7.7)mg/L.

3.2　S2 阶段 PNPR 反应器的除磷贡献度为(79.1% ±8.5%),回流至 SAEPD 反应器的正磷酸盐浓度仅为 5mg/L,为其缺氧阶段营造了磷饥饿条件,反应器内 DPAOs 对内碳源储存的贡献比例仅为 15%,储存内碳源仅消耗 COD (10.1±4.0)mg/L,相对丰度降至 3.01%, DGAOs 得到了强化,其相对丰度升至 6.69%.

3.3　将生物除磷结合到 PN 反应器中提高了短程硝化的稳定性,NOB 相对丰度由 3.86%逐渐降至 0.64%,NAR 保持在(82.1%±4.0%).

3.4　S2 阶段 PNPR 反应器优越的 PN 性能和 SAEPD 反应器 DGAOs 主导的 EPD 途径为 AnAOB 提供了充足的电子受体,厌氧氨氧化脱氮贡献度保持在(81.8%±3.6%),脱氮效果最好,总氮去除率保持在(88.3%±1.6%),出水总氮浓度低于 10mg/L 且出水未出现硝酸盐积累.

参考文献:

[1] 王夏童,房　平,赵学敏,等.水体中氮素污染危害及其治理的研究综述 [J]. 广东化工, 2021,48(5):92−93.
Wang X T, Fang P, Zhao X M, et al. Review on the hazards and treatment of nitrogen pollution in rivers [J]. Guangdong Chemical Industry, 2021,48(5):92−93.

[2] 冯琪瑞,唐玉朝,伍昌年,等.反硝化除磷工艺进展及影响因素 [J]. 环境监测管理与技术, 2023,35(4):7−12.
Feng Q R, Tang Y C, Wu C N, et al. Progress and influencing factors of denitrifying phosphorus removal process [J]. The Administration

and Technique of Environmental Monitoring, 2023,35(4):7−12.

[3] 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.

[4] Cao Y, Van Loosdrecht M C M, Daigger G T. Mainstream partial nitritation–anammox in municipal wastewater treatment: status, bottlenecks, and further studies [J]. Applied Microbiology and Biotechnology, 2017,101(4):1365−1383.

[5] Daigger G T. Oxygen and carbon requirements for biological nitrogen removal processes accomplishing nitrification, nitritation, and anammox [J]. Water Environment Research, 2014,86(3):204−209.

[6] Izadi P, Izadi P, Eldyasti A. Towards mainstream deammonification: Comprehensive review on potential mainstream applications and developed sidestream technologies [J]. Journal of Environmental Management, 2021,279.

[7] Zhou M, Wang J, Wang H, et al. Revealing the comprehensive impact of organic compounds on the partial nitrification−anammox system during incineration leachate treatment: metabolic hierarchy and adaptation [J]. Water Research, 2024,255.

[8] Dan Q, Wang T, Li J, et al. Enhanced anammox performance under lower nitrite accumulation in modified partial nitritation−anammox (PN/A) process [J]. Bioresource Technology, 2024,406.

[9] 万家秀,王家骐,郑 平,等.厌氧氨氧化组合脱氮工艺研究进展 [J]. 生物工程学报, 2022,38(4):1351−1359.
Wan J X, Wang J Q, Zheng P, et al. Research progress of combined anaerobic ammonium oxidation (ANAMMOX) process for nitrogen removal [J]. Chinese Journal of Biotechnology, 2022,38(4):1351−1359.

[10] 左富民,郑 蕊,隋倩雯,等.一体式短程硝化−厌氧氨氧化工艺启动过程的亚硝酸盐调控 [J]. 环境科学, 2021,42(11):5472−5480.
Zuo F M, Zheng R, Sui Q W, et al. Nitrite regulation during start−up of combined partial nitritation and ANAMMOX process [J]. Environmental Science, 2021,42(11):5472−5480.

[11] Xu G, Zhang Z, Gao F. Effect of COD/N ratios and DO concentrations on the NOB suppression in a multi−cycle SBR [J]. Journal of Environmental Chemical Engineering, 2021,9(4):105735.

[12] 谢怡漪,李 祥,袁 怡,等.主流条件下间歇曝气抑制NOB与微生物动态响应 [J]. 中国环境科学, 2023,43(9):4616−4625.
Xie Y Y, Li X, Yuan Y, et al. The way of coupling intermittent aeration strategy to inhibit NOB activity in mainstream environment and the dynamic response of microorganisms [J]. China Environmental Science, 2023,43(9):4616−4625.

[13] 李 冬,王凯璐,祝彦均,等.进水分配比对分段进水 PN/A 工艺脱氮性能影响 [J]. 中国环境科学, 2024,44(7):3672−3681.
Li D, Wang K L, Zhu Y J, et al. Optimizing nitrogen removal in PN/A process: Step−feed influence analysis [J]. China Environmental Science, 2024,44(7):3672−3681.

[14] Li J, Zhang L, Peng Y, et al. NOB suppression in partial nitritation−anammox (PNA) process by discharging aged flocs: Performance and microbial community dynamics [J]. Chemosphere, 2019,227:26−33.

[15] Rubio−Rincón F J, Lopez−Vazquez C M, Welles L, et al. Cooperation between *Candidatus Competibacter* and *Candidatus Accumulibacter* clade I, in denitrification and phosphate removal processes [J]. Water Research, 2017,120:156−164.

[16] Ji J, Peng Y, Wang B, et al. Achievement of high nitrite accumulation via endogenous partial denitrification (EPD)[J]. Bioresource Technology, 2017,224:140−146.

[17] Chen S, Zhang Q P, Zhang J S, et al. Enhanced nitrogen removal for low C/N wastewater via preventing futile carbon oxidation and augmenting anammox [J]. Water Research X, 2024,25.

[18] Ji J, Peng Y, Li X, et al. A novel partial nitrification−synchronous anammox and endogenous partial denitrification (PN−SAEPD) process for advanced nitrogen removal from municipal wastewater at ambient temperatures [J]. Water Research, 2020,175.

[19] Shang T, Zhu X, Gong X, et al. Efficient nitrogen removal in a total floc sludge system from domestic wastewater with low C/N: High anammox nitrogen removal contribution driven by endogenous partial denitrification [J]. Bioresource Technology, 2023,378.

[20] Wang H, Zhang L, Dan Q, et al. Ultra−high nitrogen removal from real municipal wastewater using selective enhancement of glycogen accumulating organisms (GAOs) in a partial nitrification−anammox (PNA) system [J]. Water Research, 2023,230.

[21] Sun T, Du R, Dan Q, et al. Rapidly achieving partial nitrification of municipal wastewater in enhanced biological phosphorus removal (EBPR) reactor: Effect of heterotrophs proliferation and microbial interactions [J]. Bioresource Technology, 2021,340.

[22] Daverey A, Su S H, Huang Y T, et al. Partial nitrification and anammox process: A method for high strength optoelectronic industrial wastewater treatment [J]. Water Research, 2013,47(9):2929−2937.

[23] Ding J, Gao X, Peng Y, et al. Anaerobic duration optimization improves endogenous denitrification efficiency by glycogen accumulating organisms enhancement [J]. Bioresource Technology, 2022,348.

[24] Zeng R J, Van Loosdrecht M C M, Yuan Z, et al. Metabolic model for glycogen‐accumulating organisms in anaerobic/aerobic activated sludge systems [J]. Biotechnology and Bioengineering, 2002,81(1): 92−105.

[25] Welles L, Tian W D, Saad S, et al. Accumulibacter clades Type I and II performing kinetically different glycogen−accumulating organisms metabolisms for anaerobic substrate uptake [J]. Water Research, 2015,83:354−366.

[26] Petriglieri F, Singleton C, Peces M, et al. "*Candidatus Dechloromonas phosphoritropha*" and "*Ca. D. phosphorivorans*", novel polyphosphate accumulating organisms abundant in wastewater treatment systems [J]. The ISME Journal, 2021,15(12):3605−3614.

[27] GB 18918—2002 城镇污水处理厂污染物排放标准 [S].
GB 18918—2002 Discharge standard of pollutants for municipal wastewater treatment plant [S].

[28] Zhang H, Zhang S S, Zhang W, et al. Clarification of the phosphorus release mechanism for recovering phosphorus from biofilm sludge in alternating aerobic/anaerobic biofilm system [J]. Science of The Total Environment, 2023,904.

[29] Li S, Guo Y, Zhang X, et al. Advanced nitrogen and phosphorus removal by the symbiosis of PAOs, DPAOs and DGAOs in a

pilot-scale A2O/A+MBR process with a low C/N ratio of influent [J]. Water Research, 2023,229.

[30] 张贤庆,俞小军,张　琨,等.基于碳源转变的协同生物除磷模式构建及运行效能 [J]. 中国给水排水, 2024,40(19):1-8.
Zhang X Q, Yu X J, Zhang K, et al. Establishment of synergistic biological phosphorus removal pattern based on carbon source transformation and its performance [J]. China Water & Wastewater, 2024,40(19):1-8.

[31] Fan Z, Zeng W, Wang B, et al. Transcriptional responses of *Candidatus Accumulibacter* clades to environmental dynamics in enhanced biological phosphorus removal [J]. Bioresource Technology, 2020,306.

[32] Chen P, Wu J, Lu X, et al. Denitrifying phosphorus removal and microbial community characteristics of two-sludge DEPHANOX system: Effects of COD/TP ratio [J]. Biochemical Engineering Journal, 2021,172.

[33] 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.

[34] Zhao W, Bi X, Peng Y, et al. Research advances of the phosphorus-accumulating organisms of *Candidatus Accumulibacter*, Dechloromonas and Tetrasphaera: Metabolic mechanisms, applications and influencing factors [J]. Chemosphere, 2022,307.

[35] O'shaughnessy M, Nyhuis G, Takács I, et al. Going for mainstream deammonification from bench to full scale for maximized resource efficiency [J]. Water Science and Technology, 2013,68(2):283-289.

[36] 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.

作者简介：李　冬(1976-),女,辽宁丹东人,教授,博士,主要研究方向为水环境恢复理论及关键技术.发表论文 200 余篇.lidong2006@bjut.edu.cn.

2025 年度《中国环境科学》青年编委会名单

安　东　安俊琳　安立会　班巧英　伯　鑫　蔡子颖　曾现来　昌　盛　陈操操　陈　丹
陈多宏　陈　欢　陈建新　陈菁泉　陈庆彩　陈重军　成小翔　程　凯　程志鹏　代　伟
邓启红　丁光辉　董战峰　董志文　樊　程　樊　琦　房德琳　冯　颖　付　杰　高艳珊
高　阳　龚小波　官冬杰　韩东飞　韩红桂　韩永和　何红弟　何秋来　何文天　贺维鹏
侯赟璐　胡建林　胡鹏博　黄　凯　黄少丹　解玉磊　金仁村　金小伟　李　超　李　凯
李荣华　李　祥　李英杰　刘　成　刘桂林　刘洪涛　刘沙沙　刘世梁　刘双星　刘维涛
刘义青　刘永泽　刘　喆　刘智峰　卢少勇　鲁　仙　罗　笠　吕　凡　马　本　马　杰
马　群　毛熙彦　聂　玮　欧阳少虎　潘　峰　潘月鹏　祁承都　乔　玮　秦昌波　秦传玉
曲　蛟　任宏宇　任强强　孙广义　孙士权　孙兆彬　谈云志　唐崇俭　唐　欢　汪俊峰
王　刚　王　好　王华伟　王丽娜　王启元　王树宾　王学佳　王　莹　卫皇曌　温　维
吴起鑫　武　君　武云飞　向　垒　谢　旻　邢建伟　徐　江　徐湘博　薛丽坤　薛文博
薛英文　杨　斌　姚彦坡　印红玲　于　磊　虞先玉　袁自冰　张　冰　张　根　张海涵
张　建　张　静　张可佳　张利飞　赵海明　赵中华　钟华　周　鑫　朱联东　朱曙鹏
朱小萤