



文章栏目: 水污染防治

DOI 10.12030/j.cjee.202009144

中图分类号 X703.1

文献标识码 A

林欢, 焦彭博, 田晴, 等. 后置反硝化的设置对低温下碳源调控-回收磷工艺系统 (BBNR-CPR) 脱氮除磷的影响[J]. 环境工程学报, 2021, 15(4): 1260-1269.

LIN Huan, JIAO Pengbo, TIAN Qing, et al. Effect of post-denitrifying setup on nitrogen and phosphorus removal in the biofilm bio-nutrients removal-carbon source regulated phosphorus recovery process (BBNR-CPR) at low temperature[J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2021, 15(4): 1260-1269.

## 后置反硝化的设置对低温下碳源调控-回收磷工艺系统 (BBNR-CPR) 脱氮除磷的影响

林欢<sup>1,2</sup>, 焦彭博<sup>1,2</sup>, 田晴<sup>1,2,\*</sup>, 蒋涛<sup>1,2</sup>, 董雪彤<sup>1,2</sup>, 朱艳彬<sup>1,2</sup>, 李方<sup>1,2</sup>, 杨波<sup>1,2</sup>

1. 国家环境保护纺织工业污染防治工程技术中心, 上海 201620

2. 东华大学环境科学与工程学院, 上海 201620

第一作者: 林欢(1995—), 男, 硕士研究生。研究方向: 污水生物脱氮除磷。E-mail: 2181477@mail.dhu.edu.cn

\*通信作者: 田晴(1971—), 女, 博士, 副教授。研究方向: 污水生物脱氮除磷。E-mail: tq2004@dhu.edu.cn

**摘要** 采用连续运行式生物膜脱氮蓄磷-碳源调控回收磷系统 (biofilm bio-nutrient removal carbon source regulated phosphorus removal, BBNR-CPR) 处理低 C/N 比 (3.4~6.9) 模拟生活污水。通过反应器内生物膜来蓄积废水中的磷, 同时采用周期性投加高浓度的外加碳源, 诱导释放生物膜内蓄积的磷且对其进行回收。在此基础上, 通过增设后置缺氧段, 同时增加好氧内循环量、提高磷回收阶段补充碳源浓度等方式, 强化 BBNR-CPR 系统的运行, 以期实现低温下 (<15 °C) 系统的同步脱氮蓄磷/回收磷的目标。结果表明, 在低温下引入后置缺氧段, 可节省 27% 的曝气能耗, 并能维持该系统脱氮除磷性能的稳定性。在进水  $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、TP 浓度分别为  $50 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $15 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  的条件下, 该系统对  $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、TN 和 TP 的平均去除率分别达到了 89.12%、82.14% 和 89.24%。在单个生物蓄磷-磷回收周期 (7 d) 内, 随着系统运行时间的延长 (第 3~6 天), 生物膜内反硝化聚磷菌体内的 PHA 的不断消耗, 系统的缺氧吸磷速率仍可维持稳定, 第 3 和 6 天分别为  $7.51 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{h})^{-1}$  和  $7.83 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{h})^{-1}$ 。在该运行方式下, 系统后置缺氧段每去除  $1.00 \text{ mg NO}_3^-\text{-N}$  可耦合去除  $0.76 \text{ mg TP}$ ; 且该阶段限制反硝化除磷的主要因素是进水氨氮转化时产生的硝态氮 (反硝化吸磷电子受体) 的浓度。通过对生物膜样本进行 16S rRNA 高通量测序分析, 发现系统内的优势菌群为 *Candidatus Competibacter*、*Candidatus Nitrotoga*、*Phaeodactylibacter*、*Thiothrix* 和 *Dechloromonas*。

**关键词** 低温; 低 C/N 比; 同步脱氮除磷; 后置反硝化除磷; 生物膜

我国目前生活污水普遍具有含碳量低的特点, 这使得污水处理尾水中常含有大量的硝酸盐<sup>[1]</sup>。现有的污水处理厂中常因碳源不足而导致出水难以达到日益严格的 N、P 排放标准<sup>[2]</sup>。而后置反硝化生物滤池因其占地面积小、效率高、耐冲击负荷强等优点被广泛应用于各种深度脱氮 (硝酸盐去除) 的研究与实践<sup>[3]</sup>。此外, 由于季节变化导致的气温波动, 冬季污水处理厂内的水温可降至 10 °C 以内<sup>[4]</sup>。由于微生物生长普遍具有强温度依赖性<sup>[5-6]</sup>, 因此, 低温环境下维持废水的生物处理

收稿日期: 2020-09-21; 录用日期: 2021-01-12

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (21777024); 上海自然科学基金资助项目 (16ZR1402000); 国家重点研发计划 (2019YFC0408503)

效率较为困难。

污水中的磷通常以化学沉淀的形式外排, 这既污染环境又浪费了磷资源。而磷矿石作为一种不可再生资源, 其储量已经濒于枯竭<sup>[7]</sup>。因此, 国内外对磷的研究更倾向于对其进行回收利用, 以期实现磷资源的可持续利用<sup>[8-10]</sup>。而近期基于内碳源(聚羟基烷酸, PHA)的反硝化聚磷菌(DPAOs)的研究引起了人们的广泛关注<sup>[11-12]</sup>。DPAOs在缺氧段以PHA作为电子供体, 以 $\text{NO}_3^-/\text{NO}_2^-$ 为电子受体吸磷, 从而实现“一碳两用”<sup>[13-14]</sup>。DPAOs能够在厌氧/缺氧交替运行的反应器(A/A)内大量富集, 在缺氧环境中DPAOs缺氧吸磷速率(以 $\text{NO}_3^-/\text{NO}_2^-$ 为电子受体)仅仅略低于好氧吸磷速率(以 $\text{O}_2$ 为电子受体)<sup>[15]</sup>。还有部分DPAOs也可在厌氧/好氧交替的反应器(A/O)内大量富集。WONG等<sup>[16]</sup>研究发现, 即使反应器内的DO浓度较高, DPAOs也可利用污水与生物膜(絮体)内氧浓度的差异, 根据需要选择性地利用 $\text{O}_2$ 或 $\text{NO}_3^-/\text{NO}_2^-$ 作为电子受体吸磷。根据这一特性开发的反硝化除磷(DPR)技术能够缓解污水碳源含量不足所带来的难题, 反硝化聚磷菌(DPAOs)工艺可降低30%的能源需求和50%的污泥产量<sup>[17-19]</sup>。而将后置DPR工艺与厌氧/好氧(A/O)工艺联合, 在后置缺氧阶段利用内源碳(PHA)来驱动DPR过程, 可实现脱氮除磷的同时节省外碳源的投加量。

杨建鹏等提出了碳源调控-回收磷工艺系统(BBNR-CPR), 发现利用内源碳能够改善系统的耐低温特性<sup>[20]</sup>。本研究在此基础上, 引入后置反硝化段, 构建出A/O复合A/O/A(厌氧/好氧/缺氧)工艺, 采用延长好氧内循环时长等运行策略, 以期实现以下3点目标。一是培养与富集DPAOs, 强化系统的反硝化除磷性能; 二是在保证系统脱氮除磷效果的基础上降低系统能耗; 三是比较微生物菌群结构, 探明DPAOs菌群的组成。

## 1 材料与方法

### 1.1 实验装置

如图1(a)所示, BBNR-CPR系统是由上流式厌氧/好氧/缺氧(A/O/A)生物滤池、中间水箱、曝气装置以及配套的时间控制系统组成。反应器连续型进(出)水、内回流、阶段性曝气均由可编程时间控制器控制。如图1(a)所示, 本研究中连续流反应器的工作容积为8 L(高1.6 m、内径100 mm), 采用火山岩及石英砂作为生物载体, 运行时有效水位为1.1 m, 出水经过滤器去除微小生物膜后从滤池上部自动流出。如图1(b)所示, 系统运行由交替型生物蓄磷阶段/磷回收阶段组成。单个生物

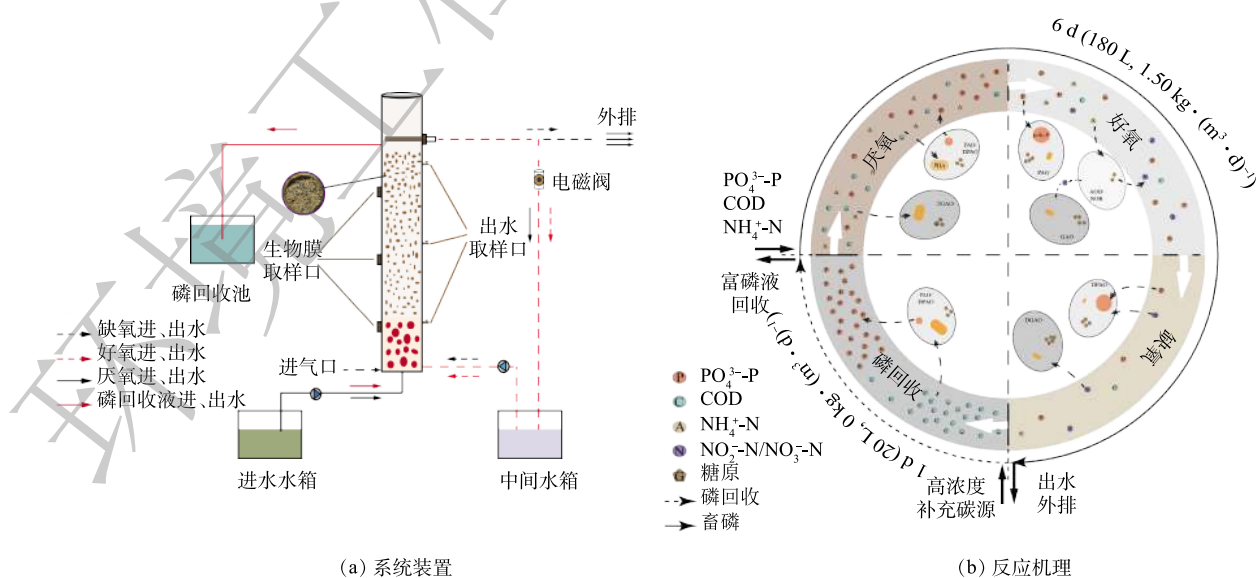


图1 BBNR-CPR运行机理

Fig. 1 Operation mechanism of BBNR-CPR reactor

蓄磷/磷回收的周期为7 d。如图1(b)所示：在生物蓄磷阶段(持续时长为6 d)，生物滤池以A/O(A)模式交替运行，每个运行周期为8 h，包括厌氧运行3 h(连续进出水，出水进入中间水箱)，好氧连续进、出水5 h(A/O/A模式下为3)(连续进出水，出水进入中间水箱，系统保持内循环状态)，缺氧运行2 h(连续进出水)；磷回收阶段(1 d)为序批式进水，厌氧进水为0.5 h，静置释磷为2 h。

在BBNR-CPR的蓄磷阶段，单个A/O或A/O/A周期(8 h)内可处理10 L模拟污水，完整生物蓄磷阶段总共处理模拟生活污水为180 L；在生物磷回收阶段，配置20 L高浓度补充碳源废水并间歇泵入生物滤池主体内，厌氧静置2 h后，排放反应器内高含磷液，并将这部分高磷液以液态磷肥的方式用于后续磷回收的研究。

### 1.2 进水水质及反应器运行策略

实验用废水采用人工配制的模拟废水。在生物蓄磷阶段的水质成分为 $\text{NaH}_2\text{PO}_4$  58  $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$  50~75  $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、乙酸钠 200  $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ (以COD计)， $\text{MgSO}_4\cdot 7\text{H}_2\text{O}$  70  $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、KCl 40  $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $\text{NaHCO}_3$  200  $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $\text{CaCl}_2$  20  $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $\text{FeCl}_3$  2  $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ；在磷回收阶段中，丙酸钠(补充碳源)的浓度为800/1 750  $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ (以COD计)。

实验中以温度为节点分为4个运行阶段，在各阶段系统的运行参数如表1所示。

表1 BBNR-CPR系统的运行设置

Table 1 Operational configuration of BBNR-CPR system

阶段	温度/ $^{\circ}\text{C}$	时间/d	$\text{NH}_4^+\text{-N}/$ ( $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ )	TN/ ( $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ )	C/N <sup>a</sup>	流量 $Q/$ ( $\text{L}\cdot\text{h}^{-1}$ ) <sup>b</sup>	磷回收当量值 (以COD计)/( $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ )	进水添加 $\text{NO}_3^-\text{-N}/$ ( $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ )	运行方式
I	20~25	45	70	70	3.87	3.33	800	无	A/O
II	25~30	48	70	75~80	3.44	3.33	800	5~10	A/O
III	15~25	40	65	65	4.07	3.33	800	无	A/O
IV	8~15	68	55	55	6.91	5.00	1 750	无	A/O+A/O/A

注：a表示C量由磷回收时的补充碳源和蓄磷阶段模拟废水中进水碳源两部分组成；b表示好氧(缺氧段进水流量变化)，而厌氧阶段进水流量始终保持为3.33  $\text{L}\cdot\text{h}^{-1}$ 。

### 1.3 监测参数及方法

系统出水水样每2 d测量1次，样品监测前均经过0.45  $\mu\text{m}$ 膜过滤。pH(PHS-2F，中国)和ORP(WTW，德国)数据由自动监测获得。此外，采用微波消解法测定COD，碱性过硫酸钾消解紫外分光光度法测定TN，过硫酸钾消解钼酸铵显色紫外分光光度法测定TP，采用纳氏试剂分光光度法测定 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ ，而 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 和 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 则分别采用紫外分光光度法和重氮耦合分光光度法测定。

### 1.4 16S rRNA微生物群落结构分析

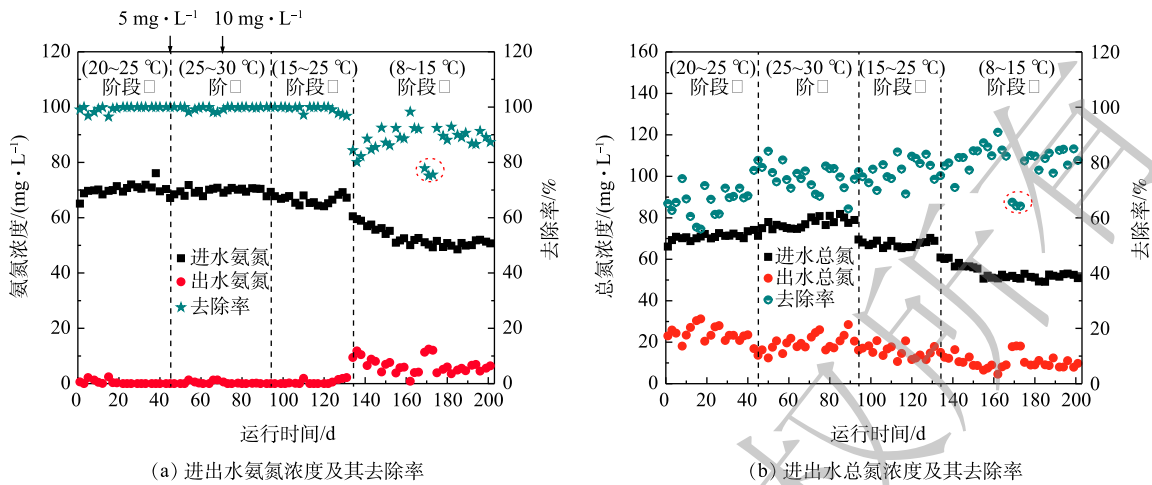
将生物膜从填料上剥离后，使用E.Z.N.A.®DNA萃取试剂盒提取DNA。采用引物338F(5'+ACTCC TACGGGAGGCAGCA-3')，806R(5'-GGACTACHVGGGTWICTAAT-3')对微生物菌群菌属扩增内保守区域16S rDNA的V3和V4区进行PCR扩增。DNA经纯化和量化处理后，委托上海美吉生物科技有限公司进行高通量测序分析生物种群多样性变化，扩增的具体操作细节参见以往的研究<sup>[20]</sup>。最后，登录美国国立生物技术信息中心(NCBI)数据库官网，将测序所得原始数据上传入库，获得序列号为SRR12574466，SRR12574468。

## 2 结果与讨论

### 2.1 不同阶段系统脱氮除磷效果的对比

1) BBNR-CPR系统在不同阶段运行过程中对氮(氨氮、总氮)的处理效果。由图2可知，第0~45天为稳定阶段(阶段I)，平均进水和出水氨氮浓度分别为70.13  $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和0.38  $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ，该阶段氨





注:箭头上方的数值为添加 $\text{NO}_3\text{-N}$ 的质量浓度;图中红色虚线框标记为当温度骤减时,反应器的氨氮、总氮出水浓度。

图2 系统内氨氮、总氮的长期去除效果

Fig. 2 Long-term ammonia nitrogen removal in the system

氮和总氮平均去除率分别为 99.45% 和 66.91%。第 46~93 天为阶段 II, 厌氧进水中加入  $\text{NO}_3\text{-N}$  模拟出水回流引入的  $\text{NO}_3\text{-N}$ , 以探究前置缺氧对系统脱氮和除磷效果的影响。在进水  $\text{NO}_3\text{-N}$  浓度为  $5.0 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  时, TN 平均去除率由 66.91% 升至 76.45% (出水平均  $\text{NO}_3\text{-N}$  浓度为  $17.80 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ )。这一结果与文献报道的“通过回流方式在进水中引入一定数量  $\text{NO}_3\text{-N}$  可显著提升系统的脱氮效率”这一结论<sup>[21]</sup>一致。此外, 在厌氧段进水中加入  $\text{NO}_3\text{-N}$  后, 系统依然能保持较高的脱氮效率, 这得益于周期性磷回收的过程。然而, 当进水  $\text{NO}_3\text{-N}$  为  $10.0 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  时, 系统 TN 去除率开始降低, 平均去除率降低至 72.57%。这可能是因为在加入过量硝态氮条件下, 缺氧环境会诱导 DPAOs 进行反硝化吸磷, 与普通反硝化细菌竞争碳源, 进而限制了同步硝化反硝化。

在阶段 III, 反应器运行温度开始逐渐降低, 在进水以氯化铵为氮源条件下, 系统的脱氮效能仍可以不断提高。在该阶段运行的前 30 d 内, 系统对氨氮和总氮的平均去除率分别为 99.28% 和 77.04%。然而, 当系统运行到第 124 天时, 环境温度发生骤降, 导致溶解氧在水中的饱和度增加, 在相同曝气量下, 反应器内溶解氧变大, 为充分利用这部分溶解氧, 反应器运行条件开始进行调整。从第 134 天起, 系统的运行方式由 A/O 工艺转变为 A/O+A/O/A 混合工艺, 即在蓄磷过程的前 2 d 以 A/O 工艺运行, 后 4 d 以 A/O/A 工艺运行。在 A/O/A 的运行方式中, 好氧阶段时长由 A/O 工艺的 5 h 缩短至 3 h。通过该运行模式, 蓄磷周期内系统减少了 27% 的曝气时长, 节约了大量曝气能耗; 同时, 好氧段的内循环比由 67% 提升至 150%, 内循环比的增加也缓解了低温对硝化/反硝化活性的影响。在改变运行条件的前期, 系统对氨氮和总氮的去除率仍不稳定, 这说明低温和运行条件的改变影响了系统内硝化反硝化过程。随着反应器长时间的运行, 系统对氨氮和总氮的去除率呈现上升趋势。这表明反应器内混合生长的微生物菌群逐渐适应了新的运行方式。在第 1 个蓄磷/磷回收周期内, 氨氮去除率降至 82.24%, 总氮去除率为 77.98%。该阶段进入稳定运行后, 系统对氨氮和总氮的去除率分别达到 89.12% 和 82.14%。LIN 等<sup>[12]</sup>在低温 ( $12\pm 2$  °C) 下探究内碳源深度脱氮中, TN 去除率为 71.08%。黄剑明等<sup>[22]</sup>利用  $\text{A}^2\text{O-BAF}$  工艺在低温 ( $11\sim 14$  °C) 下运行, TN 去除率达到 78.3%。这说明低温下引入后置反硝化除磷工艺是提高 TN 去除系统性能的有效手段。

为强化低温 ( $8\sim 15$  °C) 下微生物的脱氮除磷效果, 在阶段 IV, 将系统磷回收过程补充的碳源浓度由  $800 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  提升至  $1750 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , 使得系统进水平均 C/N 提升了 2.8, 这样可大幅提高系统内菌群体内贮存的 PHA 含量, 强化好氧阶段的同时硝化反硝化作用<sup>[23]</sup>。由于引入了后置缺氧段, 反硝

化聚磷菌也可以在后置缺氧段继续发挥反硝化除磷作用,使得系统的总氮去除效率明显增加。在低温冲击下,系统的总氮去除效率仍达到64.74%,这说明BBNR-CPR系统对温度骤变具有一定的耐受性。

2)不同阶段系统除磷效果的对比。如图3所示,在厌氧段引入低浓度硝酸盐后(阶段II),系统对磷的平均去除率由84.56%降至60.23%。其原因可能是,由于引入 $5\sim 10\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 的 $\text{NO}_3^-$ -N,在生物蓄磷后期,厌氧阶段出现缺氧吸磷而非释磷现象,DPAOs会在生物蓄磷后期优先吸收进水中的碳源,导致普通PAOs在好氧阶段能量不足而大幅减少了吸磷量,造成系统除磷效率大幅下降。在阶段III,为防止进水 $\text{NO}_3^-$ -N引入造成系统除磷的恶化,停止在厌氧阶段向进水添加 $\text{NO}_3^-$ -N,重新富集PAOs,系统除磷效果随之明显改善。在第116天时,反应器的除磷率高达98.51%,在116~132 d内TP平均去除率达到了90.19%(高于常温运行的阶段I)。在阶段IV的初期,TP去除率仅为65.06%。随着微生物逐渐适应,新运行(A/O+A/O/A复合运行)系统的除磷效率逐步提升,在本阶段系统稳定运行后,系统对TP平均去除率达到了89.75%。

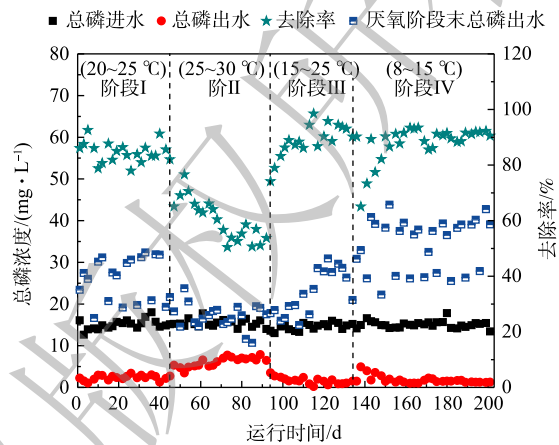
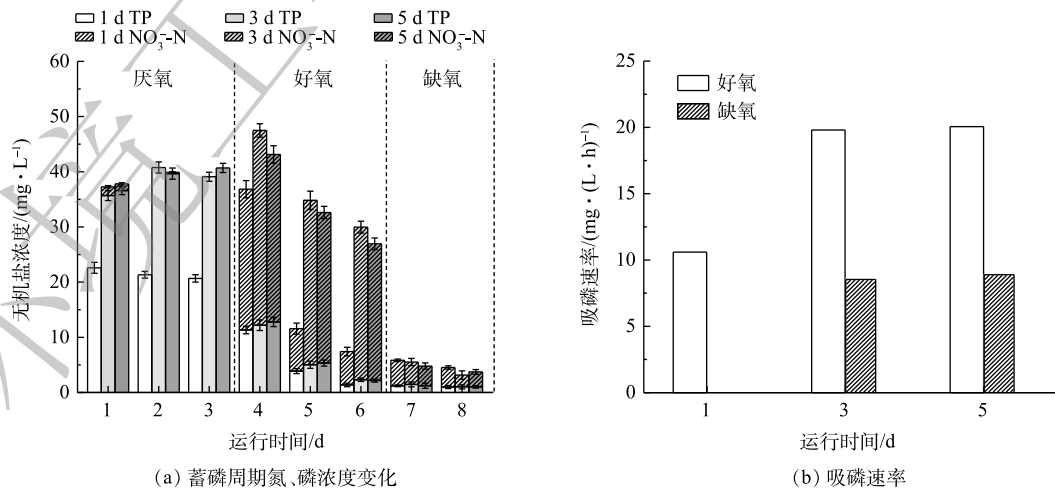


图3 系统内总磷不同阶段去除效果  
Fig. 3 Total phosphorus removal at different stages in the system

### 2.2 蓄磷-磷回收周期内反硝化除磷效果变化

在单个蓄磷-磷回收周期内,PHA随着时间的延续不断被消耗。为了解PHA含量变化对系统脱氮除磷性能的影响,对磷回收后的第1、3、5天出水的水质变化进行了监测。由图4(a)可见,磷回收阶段生物膜内的PHA储备充足,使得蓄磷前期普通反硝化菌活性较高,代谢旺盛,生物膜内的微生物能在好氧阶段进行快速同时硝化反硝化,好氧末期出水 $\text{NO}_3^-$ -N仅为 $3.54\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。此外,磷回收中生物膜内蓄磷量的大幅降低导致厌氧释磷浓度的下降,故在蓄磷前期,系统磷出水浓度能够保持较低水平,系统整体的脱氮和除磷效果较好。在单个蓄磷周期内,随着蓄磷时长的不断增



注: 1 d, 3 d, 5 d 分别表示磷回收后的第1, 3, 5天。

图4 在A/O/A模式下的1个磷回收周期内的反硝化除磷效率

Fig. 4 Efficiency of denitrifying phosphorus removal in a phosphorus recovery cycle of AOA mode

加, 生物膜内的蓄磷量增长迅速, 反应器厌氧阶段的释磷量也明显增加; 且随着生物膜内贮存的PHA消耗量增加, 好氧段同时硝化反硝化效果下降, 造成出水 $\text{NO}_3\text{-N}$ 浓度增加( $\text{NO}_3\text{-N}$ 浓度高于 $25\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ), 为后续缺氧段提供了充足的电子受体, 可以保证稳定的除磷率(平均为93%)。

根据蓄磷周期内1h滤池进、出水磷浓度, 计算了单个蓄磷/磷回收周期内的吸磷速率, 结果如图4(b)所示。由图4(b)可见, 第3天和第5天的缺氧吸磷速率相似。这说明, 虽然在蓄磷周期内系统生物膜中PHA贮量随时间不断下降<sup>[23]</sup>, 但其对于(D)PAOs吸磷而言仍是充足的。因此, 限制后置反硝化吸磷速率的主要原因仍是水体中总磷和电子受体( $\text{NO}_3\text{-N}$ )的浓度。

如图4所示, 本系统在低温下的缺氧阶段, 每去除 $1.00\text{ mg}\text{ NO}_3\text{-N}$ 平均耦合去除 $0.76\text{ mg}\text{ PO}_4^{3-}\text{-P}$ , 其他研究工艺在反硝化除磷过程中的氮/磷消耗比如表2所示。电子受体的种类、PHA含量和厌氧释磷量是影响吸磷速率的主要因素。其中, 以交替厌氧好氧(A/O)方式运行, 即以氧气作为电子受体, 产生的同时硝化/反硝化吸磷速率远高于以硝酸根作为电子受体的吸磷速率<sup>[13,24]</sup>, 而以厌氧/缺氧交替(A/A)方式运行下系统的最大反硝化吸磷速率则次之。此外, 提高释磷量是提高吸磷速率的关键, 而释磷量提高与聚磷菌在厌氧段吸收的VFA的量相关, 聚磷菌吸收VFA的量越多, 其在后续好氧/缺氧阶段的吸磷速率就越大。因此, 高浓度的补充碳源促使本研究的好氧吸磷速率显著高于其他研究的结果(表2)。

表2 不同运行条件下缺氧段氮磷消耗比值

Table 2 Comparison of nitrogen and phosphorus consumption ratio at anoxic stage in different studies

运行工艺	C:N:P	缺氧段进水 硝态氮浓度/( $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ )	进水TP/ ( $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ )	温度/ $^{\circ}\text{C}$	吸磷速率(好氧/ 缺氧)/( $\text{mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{h})^{-1}$ )	$\Delta\text{P}/\Delta\text{N}$ (缺氧阶段)	来源
AO/AOA	25:3.7:1	14.4	14.9~16.5	8~15	19.93/7.67 <sup>a</sup>	0.76	本研究
AO/AA	20.0:1.5:1	40.0	20.0	25~29	13.87~16.32/6.30~11.38	0.29/0.43	[15]
AAO	26.7:4.2:1	50.0	10.0~15.0	25	8.40/8.00	1.00	[26]
AAO	36.6:10.3:1	30.0	3.6~9.3	19~21	—	1.25	[27]
AO/AA	25.3:2.5:1	35.5	12.0~17.0	21~R23	15.59/13.11	0.23	[28]
AO	20.8:4.8:1	44.2	9.0~12.0	—	14.17/12.85 <sup>b</sup>	0.80	[29]

注: a表示本研究A/O/A模式中, 缺氧阶段2h的平均吸磷速率; b表示研究中3h去除速率的均值; “—”表示数据未提及。

本研究在低温厌氧条件下, 采用丙酸钠作为补充碳源( $1\ 750\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , 以COD计)的模拟废水, 连续进入反应器, 高浓度的补充碳源激发了磷在生物膜内单个生物蓄磷周期内的蓄积, 并以 $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ 的形式过量释放进入到磷回收液内。该方法不仅可以回收反应器内生物膜在生物蓄磷周期内富集的磷酸盐, 还能够在生物膜内富集大量的PHA<sup>[23]</sup>。然而, 有研究<sup>[25-26]</sup>表明, DPAOs可在不摄磷状态下可进行反硝化作用, 且DGAOs/DPAOs胞内PHA含量水平高时, PHA优先用于反硝化去除 $\text{NO}_3\text{-N}$ 。在本研究中, 生物膜内PHA含量具有在蓄磷周期内随着蓄磷时间增加而逐渐下降的独特优势, 反应器在好氧阶段出水 $\text{NO}_3\text{-N}$ 浓度随着蓄磷周期的延长而不断增加。因此, 在低温下, 可以运用系统这一运行特点, 在系统原有A/O运行基础上, 增设后置缺氧段充分利用好氧段出水 $\text{NO}_3\text{-N}$ 代替 $\text{O}_2$ 作为电子受体, 不仅能够节约曝气量, 还能够充分利用反应器生物膜内残留的PHA贮存量, 真正实现反硝化除磷过程的一碳双用。

### 2.3 微生物群落结构分析

如图5所示, 运行工艺的变换及温度变化导致反应器内部的群落结构发生明显的变化。其中, A/O工艺系统中丰度较高的菌属为*Candidatus Competibacter* (53.34%)、*Defluviicoccus* (12.65%)、*Run-SP154* (6.79%)、*Dechloromonas* (6.14%)、*Thiothrix* (5.29%)。随着温度的降低以及运行工艺的变



化, 系统内的优势菌群变为 *Candidatus Competibacter* (20.09%)、*Candidatus Nitrotoga* (8.82%)、*Phaeodactylibacter* (8.75%)、*Thiothrix* (3.30%)、*Dechloromonas* (2.71%), 且阶段IV中系统群落多样性明显更丰富。*Candidatus Competibacter* (*Ca. Competibacter*) 在2种条件下丰度均最高。TU等<sup>[30]</sup>的研究表明, 除磷系统中乙酸钠含量高于  $200 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  时, GAOs 便成为系统的优势菌属。*Ca. Competibacter* 能够利用VFA合成PHA, 具有更强的反硝化特性和耐逆性。此外, *Ca. Competibacter* 中一些菌属已被证明具有吸收磷酸盐的能力, 但无法释磷<sup>[20]</sup>。*Candidatus Nitrotoga* 作为一种耐低温的硝化菌属, 其丰度也显著提高。好氧反硝化细菌 *Phaeodactylibacter* 存在于污水处理系统的低温阶段, 主要功能是降解污水中的有机物<sup>[31]</sup>。

低温下, 这2种菌属与系统在有氧阶段仍能保持较高的TN去除率密切相关。更重要的是, 系统在A/O方式运行中 *Phaeodactylibacter* 从未成为BBNR-CPR系统的优势菌群。同时, NCBI数据库中 (Genome ID为83475和88035) 已经发现 *Phaeodactylibacter* 属中的成员编码了PPK1 (polyphosphate kinase) 基因, 而PPK1一般被认为是传统聚磷菌的系统发育标记基因<sup>[32]</sup>。因此, 我们推测, 本研究中 *Phaeodactylibacter* 可能在缺氧阶段起到反硝化吸磷的作用。

然而, 在本研究中作为聚磷菌, *Candidatus Accumulibacter* (*Ca. Accumulibacter*) 的相对丰度仅为1.36%。有研究<sup>[33]</sup>表明, *Ca. Accumulibacter* 不仅能利用  $\text{O}_2$  作为电子受体吸磷, 还能利用  $\text{NO}_3^-$ -N 作为电子受体氧化PHA进行反硝化吸磷。在本研究中, *Ca. Accumulibacter* 的丰度显然没有随着后置反硝化段的引入而大幅提升, 相反, 被少量研究报道的PAOs物种 (*Thiothrix*) 的丰度仍达3.30%。NIELSEN等<sup>[34]</sup>的研究表明, *Thiothrix* 广泛存在于EBPR系统中, 其具有反硝化除磷的功能。此外, *Thauera*、*Dechloromonas*、*Acinetobacter*、*Pseudomonas*、*Flavobacterium* 等物种丰度总计达到8.93%。而这些物种在各类具有反硝化除磷的功能系统中大量富集<sup>[35-38]</sup>, 但其是否是潜在的DPAOs还需要进一步研究加以证明。以上研究结果说明, 后置反硝化段的引入可增加系统内潜在的聚磷菌的物种多样性, 从而提高系统脱氮除磷性能。

### 3 结论

1) 在低温条件下, 可在生物蓄磷/回收磷系统BBNR-CPR基础上引入后置缺氧运行的新模式; 相比原系统的厌氧/好氧运行方式, 利用PHA驱动后置反硝化吸磷过程, 能够使系统节省27%的曝气成本。

2) 引入后置缺氧段, 系统生物膜内菌群可在厌氧条件下利用磷回收过程中过量贮存的内碳源进行反硝化吸磷, 强化低温下的脱氮除磷性能, 从而节省外加碳源。

3) 通过提高补充碳源的浓度, 延长内循环时长, 同时引入后置缺氧段, 可以增加BBNR-CPR系统内聚磷菌的物种多样性, 从而改善系统在低温下的氮磷去除性能。

### 参考文献

- [1] CAO S B, DU R, PENG Y Z, et al. Novel two stage partial denitrification (PD)-anammox process for tertiary nitrogen removal

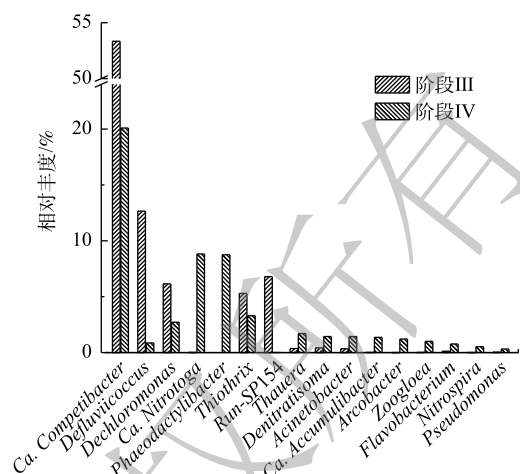


图5 A/O(阶段III)和A/O+A/O/A工艺(阶段IV)生物膜种群组成(属水平)对比

Fig. 5 Relative abundances of dominant communities at genus level in the biomass of BBNR-CPR system in the A/O process (stage III) and the A/O + A/O/A process (stage IV)

- from low carbon/nitrogen (C/N) municipal sewage[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2018, 362: 106-115.
- [2] LV X M, LI J, SUN F Y, et al. Denitrifying phosphorus removal for simultaneous nitrogen and phosphorus removal from wastewater with low C/N ratios and microbial community structure analysis[J]. *Desalination & Water Treatment*, 2016, 57(4): 1890-1899.
- [3] CHEN Y, LAN S, WANG L, et al. A review: Driving factors and regulation strategies of microbial community structure and dynamics in wastewater treatment systems[J]. *Chemosphere*, 2017, 174: 173-182.
- [4] AUGELLETTI F, JOUSSET A, AGATHOS S N, et al. Diversity manipulation of psychrophilic bacterial consortia for improved biological treatment of medium-strength wastewater at low temperature[J]. *Frontiers in Microbiology*, 2020, 11: 1490.
- [5] ZHOU H X, LI X, XU G, et al. Overview of strategies for enhanced treatment of municipal/domestic wastewater at low temperature[J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 643: 225-237.
- [6] HUANG Z S, QIE Y, WANG Z D, et al. Application of deep-sea psychrotolerant bacteria in wastewater treatment by aerobic dynamic membrane bioreactors at low temperature[J]. *Journal of Membrane Science*, 2015, 475: 47-56.
- [7] MACDONALD G K, BENNETT E M, POTTER P A, et al. Agronomic phosphorus imbalances across the world's croplands[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2011, 108(7): 3086-3091.
- [8] YILMAZEL Y D, DEMIRER G N. Nitrogen and phosphorus recovery from anaerobic co-digestion residues of poultry manure and maize silage via struvite precipitation[J]. *Waste Management & Research*, 2013, 31(8): 792-804.
- [9] KELLY P T, HE Z. Nutrients removal and recovery in bioelectrochemical systems: A review[J]. *Bioresource Technology*, 2014, 153: 351-360.
- [10] TIAN Q, ONG S K, XIE X, et al. Enhanced phosphorus recovery and biofilm microbial community changes in an alternating anaerobic/aerobic biofilter[J]. *Chemosphere*, 2016, 144: 1797-1806.
- [11] JI J, PENG Y, 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*, 2019, 170: 115363.
- [12] LIN Z, WANG Y, 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.
- [13] 王爱杰, 吴丽红, 任南琪, 等. 亚硝酸盐为电子受体反硝化除磷工艺的可行性[J]. *中国环境科学*, 2005, 25(5): 515-518.
- [14] CAMEJO P Y, OWEN B R, MARTIRANO J, et al. *Candidatus Accumulibacter phosphatis* clades enriched under cyclic anaerobic and microaerobic conditions simultaneously use different electron acceptors[J]. *Water Research*, 2016, 102: 125-137.
- [15] HU J Y, ONG S L, NG W J, et al. A new method for characterizing denitrifying phosphorus removal bacteria by using three different types of electron acceptors[J]. *Water Research*, 2003, 37(14): 3463-3471.
- [16] WONG P Y, CHENG K Y, KAKSONEN A H, et al. A novel post denitrification configuration for phosphorus recovery using polyphosphate accumulating organisms[J]. *Water Research*, 2013, 47(17): 6488-6495.
- [17] HU X, WISNIEWSKI K, CZERWIONKA K, et al. Modeling the effect of external carbon source addition under different electron acceptor conditions in biological nutrient removal activated sludge systems[J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, 50(4): 1887-1896.
- [18] 韦佳敏, 黄慧敏, 程诚, 等. 污泥龄及pH值对反硝化除磷工艺效能的影响[J]. *环境科学*, 2019, 40(4): 1900-1905.
- [19] 刘建业, 曹薇薇, 张雁秋, 等. SBR新型运行方式下的反硝化脱氮除磷效能[J]. *环境工程学报*, 2015, 9(8): 3859-3864.
- [20] 杨建鹏, 张健, 田晴, 等. 内源碳PHA的贮存对混合菌群耐低温特性的影响[J]. *环境科学*, 2019, 40(4): 1914-1921.



- [21] CHEN Y, PENG C, WANG J, et al. Effect of nitrate recycling ratio on simultaneous biological nutrient removal in a novel anaerobic/anoxic/oxic (A<sup>2</sup>O)-biological aerated filter (BAF) system[J]. *Bioresource Technology*, 2011, 102(10): 5722-5727.
- [22] 黄剑明, 赵智超, 郑隆举, 等. 低温下A<sup>2</sup>O-BAF反硝化除磷脱氮特性[J]. *环境科学*, 2018, 39(10): 4621-4627.
- [23] TIAN Q, ZHUANG L, ONG S K, et al. Phosphorus (P) recovery coupled with increasing influent ammonium facilitated intracellular carbon source storage and simultaneous aerobic phosphorus & nitrogen removal[J]. *Water Research*, 2017, 119: 267-275.
- [24] KERRN-JESPERSEN J P, HENZE M. Biological phosphorus uptake under anoxic and aerobic conditions[J]. *Water Research*, 1993, 27(4): 617-624.
- [25] 吴鹏, 程朝阳, 沈耀良, 等. 基于ABR-MBR组合工艺不同进水C/N比对反硝化除磷性能的影响机制[J]. *环境科学*, 2017, 38(9): 3781-3786.
- [26] 刘建广, 付昆明, 杨义飞, 等. 不同电子受体对反硝化除磷菌缺氧吸磷的影响[J]. *环境科学*, 2007, 28(7): 1472-1476.
- [27] SUN Y, PENG Y, ZHANG J, et al. Effect of endogenous metabolisms on survival and activities of denitrifying phosphorus removal sludge under various starvation conditions[J]. *Bioresource Technology*, 2020, 315: 123839.
- [28] 刘小英, 林慧, 马兆瑞, 等. 同步脱氮除磷颗粒污泥硝化反硝化特性试验研究[J]. *环境科学*, 2014, 35(1): 214-220.
- [29] 李勇智, 王淑滢, 吴凡松, 等. 强化生物除磷体系中反硝化聚磷菌的选择与富集[J]. *环境科学学报*, 2004, 24(1): 45-49.
- [30] TU Y J, SCHULER A J. Low acetate concentrations favor polyphosphate-accumulating organisms over glycogen-accumulating organisms in enhanced biological phosphorus removal from wastewater[J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47(8): 3816-3824.
- [31] XU J, PANG H, HE J, et al. Start-up of aerobic granular biofilm at low temperature: Performance and microbial community dynamics[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 698: 134311.
- [32] ZHANG Y, HUA Z S, LU H, et al. Elucidating functional microorganisms and metabolic mechanisms in a novel engineered ecosystem integrating C, N, P and S biotransformation by metagenomics[J]. *Water Research*, 2019, 148: 210-230.
- [33] OEHMEN A, CARVALHO G, FREITAS F, et al. Assessing the abundance and activity of denitrifying polyphosphate accumulating organisms through molecular and chemical techniques[J]. *Water Science and Technology*, 2010, 61(8): 2061-2068.
- [34] NIELSEN P H, MIELCZAREK A T, KRAGELUND C, et al. A conceptual ecosystem model of microbial communities in enhanced biological phosphorus removal plants[J]. *Water Research*, 2010, 44(17): 5070-5088.
- [35] SUN L, ZHAO X, ZHANG H, et al. Biological characteristics of a denitrifying phosphorus-accumulating bacterium[J]. *Ecological Engineering*, 2015, 81: 82-88.
- [36] GUO Y, ZENG W, LI N, et al. Effect of electron acceptor on community structures of denitrifying polyphosphate accumulating organisms in anaerobic-anoxic-oxic (A<sup>2</sup>O) process using DNA based stable-isotope probing (DNA-SIP)[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2018, 334: 2039-2049.
- [37] DU S, YU D, ZHAO J, et al. Achieving deep-level nutrient removal via combined denitrifying phosphorus removal and simultaneous partial nitrification-endogenous denitrification process in a single-sludge sequencing batch reactor[J]. *Bioresource Technology*, 2019, 289: 121690.
- [38] XU J, PANG H, HE J, et al. The effect of supporting matrix on sludge granulation under low hydraulic shear force: Performance, microbial community dynamics and microorganisms migration[J]. *Science of the Total Environment*, 2020, 712: 136562.

(责任编辑: 曲娜)

## Effect of post-denitrifying setup on nitrogen and phosphorus removal in the biofilm bio-nutrients removal-carbon source regulated phosphorus recovery process (BBNR-CPR) at low temperature

LIN Huan<sup>1,2</sup>, JIAO Pengbo<sup>1,2</sup>, TIAN Qing<sup>1,2,\*</sup>, JIANG Tao<sup>1,2</sup>, DONG Xuotong<sup>1,2</sup>, ZHU Yanbin<sup>1,2</sup>, LI Fang<sup>1,2</sup>, YANG Bo<sup>1,2</sup>

1. State Environmental Protection Engineering Center for Pollution Treatment and Control in Textile Industry, Shanghai 201620, China

2. College of Environmental Science and Engineering, Donghua University, Shanghai 201620, China

\*Corresponding author, E-mail: tq2004@dhu.edu.cn

**Abstract** A continuous biofilm bio-nutrient removal-carbon source regulated phosphorus removal (BBNR-CPR) process was used as the alternative anaerobic/aerobic and alternative anaerobic/aerobic/anoxic biofilter to treat the simulated municipal wastewater with low C/N ratio (influent C/N ratio from 3.44 to 6.91). Phosphorus (P) in the wastewater was accumulated in the biomass, and at the same time, a high concentration of external carbon source was periodically introduced to release the accumulated P in the biofilm for further recovery. On this basis, the BBNR-CPR system was enhanced to achieve the goal of simultaneous P storage/ removal at low temperature during aerobic and post-denitrification phase, which was achieved by the post-anoxic phase setup, the increase of the internal circulation during aerobic phase and the supplementary carbon source amount during periodical P-harvesting phase under anaerobic conditions. The results showed that the system could save 27% of energy supply by introducing a post anoxic phase, and maintain a stable nitrogen and phosphorous removal performance at low temperatures (<15 °C). Meanwhile, the average removal rates of  $\text{NH}_4^+\text{-N}$ , TN and TP reached 89.12%, 82.14% and 89.24%, respectively, at the influent  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  of 50  $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$  and TP of 15  $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ . During a P accumulation/recovery cycle (7 days), the PHA storage amount in the biomass of denitrification phosphorous accumulation organisms (DPAOs) was continuously consumed with the extension of the biofilter operating time (day 3 - day 6), while the rate of denitrifying P uptake maintained stable ( $7.51 \text{ mg} (\text{L}\cdot\text{h})^{-1}$  on the 3rd day,  $7.83 \text{ mg} (\text{L}\cdot\text{h})^{-1}$  on the 5th day). The post-denitrifying phase could removal 0.76 mg TP when it removed 1.00 mg  $\text{NO}_3^-\text{-N}$ . The main limiting factor of denitrifying phosphorus removal at this stage was the availability of nitrate nitrogen (as the electron acceptor for denitrifying phosphorus uptake) produced during ammonia nitrogen transformation. 16S rRNA high-throughput sequencing analysis of biofilm samples showed that the dominate functional communities in the reactor were the genus of *Candidatus Competibacter*, *Candidatus Nitrotoga*, *Phaeodactylibacter*, *Thiothrix*, and *Dechloromonas*.

**Keywords** low temperature; low C/N ratio; simultaneous nitrogen and phosphorus removal; post-denitrifying phosphorus removal; biofilm