城市污水生物脱氮技术变革: 厌氧氨氧化的研究与实践新进展

杜睿^{1,2}, 彭永臻^{1,2*}

1. 城镇污水深度处理与资源化利用技术国家工程实验室, 北京 100124;

2. 北京工业大学环境与生命学部, 北京 100124

* Email: pyz@bjut.edu.cn

收稿日期: 2020-10-04; 接受日期: 2020-12-07; 网络版发表日期: 2021-08-18

国家自然科学基金(批准号: 22006003)和北京市自然科学基金(编号: 8204056)资助项目

摘要 氮、磷营养过度排放诱发的水体富营养化是当前全球性水污染问题, 污水脱氮除磷势在必行。传统硝化/反硝化是最主要技术手段, 而随着世界各国污水排放标准愈加严格, 传统脱氮工艺效率不足、能耗巨大及其带来的二次污染问题日益凸显, 经济、高效与可持续的处理技术已成为污水处理领域的迫切需求。20世纪90年代发现的厌氧氨氧化(anaerobic ammonium oxidation, Anammox)工艺无需曝气与有机碳源, 是目前最经济高效的污水脱氮技术。然而, 该工艺至今未在城市污水处理中实现规模化应用, 其长期面临的瓶颈问题为反应基质亚硝酸盐(NO_2^-)难以稳定获取。短程反硝化(partial denitrification, PD)为破解上述难题提供了全新思路。我国学者在短程反硝化过程的发现、工艺研发与微生物学机理等方面率先开展探究与实践。基于短程反硝化与厌氧氨氧化协同耦合的新技术, 为城市污水低碳高效脱氮开辟了新途径, 已成为本领域研究热点和前沿。将城市污水与含硝态氮(NO_3^-)废水同步处理时, 该技术与传统硝化/反硝化相比, 节省100%曝气能耗和80%有机碳源, 大大减少剩余污泥产量与温室气体(CO_2 , N_2O)排放; 基于短程反硝化的Anammox工艺受基质浓度、温度等环境因素影响小, 且突破了Anammox理论脱氮效率上限(89%), 理论上可达到100%, 在实际工程中具有重要的研究意义与应用价值。

关键词 城市污水处理, 生物脱氮, 富营养化, 厌氧氨氧化, 短程反硝化, 短程硝化

1 引言

水环境污染问题是制约国民经济发展和生活水平提升的重要因素。我国人口数量较多, 对水资源的需求量也较大。虽然我国水资源总量丰富, 但人均占有量很低。2018年我国人均水资源量为1971.8 m^3 , 仅为世界

人均水平的1/4^[1]。与此同时, 我国面临的水污染问题较为严重, 加剧了安全供水与人民健康及经济社会可持续发展需求之间的矛盾。因此, 切实提高水污染控制技术水平、解决污水处理工程的技术瓶颈是及时有效地遏制水环境污染和保障水生态安全的迫切需求。近年来, 随着大中型城市污水处理厂的大规模建设和升

引用格式: 杜睿, 彭永臻. 城市污水生物脱氮技术变革: 厌氧氨氧化的研究与实践新进展. 中国科学: 技术科学, 2022, 52: 389–402

Du R, Peng Y Z. Technical revolution of biological nitrogen removal from municipal wastewater: Recent advances in Anammox research and application (in Chinese). Sci Sin Tech, 2022, 52: 389–402, doi: 10.1360/SST-2020-0407

级改造, 我国污水处理能力显著提升。然而, 我国水体富营养化问题尚未得到有效解决, 而且有日益严峻的趋势。富营养化是指水体中氮、磷等营养物过量导致的藻类大量繁殖、水质恶化的现象, 主要发生在流动性较差的湖泊和海湾等缓流水体。截至2019年, 我国仍有近30%重点湖(库)呈现富营养化状态。太湖、巢湖和滇池均面临不同程度的氮、磷污染, 黄河、海河和辽河流域的污染问题更为突出^[2]。我国城镇生活污水排放量逐年增加, 已超过工业废水, 是氮、磷的最主要来源^[3]。因此, 城市污水处理是水污染防治的关键, 也是我国社会、经济与生态环境绿色协调发展的重要环节。

为缓解水环境不断恶化的压力, 尤其是水体富营养化问题, 全国大部分城市和地区都开展了污水处理的提标工作^[4]。然而, 我国城市污水碳氮比(C/N)普遍较低, 出水总氮(total nitrogen, TN)达标是污水处理厂的重点和难点; 运行能耗和成本居高不下, 使污水处理厂面临着达标排放和节能降耗的双重挑战^[5]。此外, 传统工艺产生大量剩余污泥和温室气体等问题亦不容小觑。在环境污染、气候变化和能源危机日益凸显的严峻形势下, 低碳、高效与可持续的污水处理新技术成为当前迫切需求, 也是未来水环境科学技术研究与实践的重要方向。

2 污水生物脱氮技术研究现状与发展态势

2.1 百年发展史为生物处理技术革新奠定坚实基础

目前, 国内外城市污水均采用生物法处理。与物理、化学法相比, 生物法在处理效率和经济性等方面均具有不可替代的优势。20世纪初, 活性污泥法的诞生开启了污水生物处理技术研发与应用的新篇章(图1)。最初, 污水处理仅以去除悬浮固体和有机物为主要目的。随着活性污泥法微生物学和动力学研究的不断发展, 人们对生化反应过程中溶解氧、水力停留时间、生物固体平均停留时间等参数的意义也有了更深入认识, 为生物处理工艺的优化提供了必要的理论基础。经历几十年发展, 衍生了渐减曝气活性污泥法、延时曝气活性污泥法、氧化沟等工艺。

随着工业生产快速发展, 水体富营养化在全球范围爆发, 污水的脱氮除磷处理成为世界性普遍需求。城市污水处理目标也由单一的有机物和悬浮固体去

除, 转变为碳、氮、磷污染物的同步削减, 处理工艺的发展由此进入以脱氮除磷为关键环节的新阶段。生物脱氮除磷也成为技术研究和工程应用的核心。化学除磷因其良好的去除效果现已在实际处理工程中普遍应用, 而脱氮仍需通过生物法。因此, 生物脱氮一直是污水处理的重点和难点。

传统生物脱氮过程主要通过硝化和反硝化作用完成^[6]。在硝化反应过程中, 化能自养的氨氧化菌(ammonia oxidizing bacteria, AOB)和亚硝酸盐氧化菌(nitrite oxidizing bacteria, NOB)在好氧条件下将氨氮(NH_4^+)氧化为亚硝态氮(NO_2^-)和硝态氮(NO_3^-); 反硝化反应过程中, 化能异养的反硝化菌在缺氧条件下, 以有机碳源为电子供体将 NO_3^- 还原为氮气(N_2), 从而实现污水脱氮。实际工程中, 由于不同功能的微生物生理代谢特性差异较大, 为使硝化和反硝化微生物生长代谢获得优势, 发展了前置缺氧/好氧(anoxic/oxic, A/O)工艺、厌氧/缺氧/好氧(anaerobic/anoxic/oxic, A²O)工艺及间歇式活性污泥法(sequencing batch reactor, SBR)等处理技术, 也是目前国内外应用最广泛的几种工艺。

无论应用何种工艺类型, 充足的有机碳源是实现高效脱氮的关键。然而, 城市污水中易生物降解有机物十分有限, 我国70%以上城市污水呈低碳氮比特征, 在污水处理排放标准日趋严格的形势下, 传统脱氮工艺需投加大量外加碳源。曝气和污泥处理所需能耗占整个污水处理厂运行能耗60%~80%, 并且不断攀升, 城市污水处理面临提质增效和节能降耗的双重压力^[7]。在全球能源危机与资源匮乏的背景下, 污水处理厂的功能已不仅是去除污染物, 而是更加强调可持续和低碳减排的原则, 甚至作为能源回收和输出的重要载体^[8,9]。因此, 突破污水处理技术瓶颈和创新生物脱氮理论, 以提高污染物去除效率、降低运行能耗, 并最大程度减少对环境的负影响, 是现阶段污水处理技术发展与创新的重要任务。

2.2 厌氧氨氧化过程的发现带来颠覆性技术变革

20世纪90年代初, 荷兰的Mulder在反硝化流化床反应器中发现了 NH_4^+ 与 NO_3^- 同时降低的现象, 并推测是一种新的氮转化途径。随后van de Graaf等人^[10]证明这是一种生物反应, 推测其反应基质是 NO_2^- 而非 NO_3^- , 将该过程称为厌氧氨氧化(anaerobic ammonium oxidation, Anammox), 并富集了一种新型微生物——厌氧

图 1 (网络版彩图)城市污水生物处理技术发展概况

Figure 1 (Color online) Development of biological technology for municipal wastewater treatment.

氨氧化菌. 该类细菌能够在缺氧条件下, 以 NO_2^- 作为电子受体, 将 NH_4^+ 氧化为 N_2 , 并产生少量 NO_3^- (式(1))^[11-13]. 这一发现不仅使人们对自然界氮循环有了新的认识, 也意味着微生物氮代谢途径本质上的改变, 推动了污水生物脱氮技术的发展, 开启了以Anammox为代表的新型工艺技术研究阶段. 厌氧氨氧化菌是化能自养菌, 以 CO_2 为无机碳源, 无需曝气和有机碳源, 从而大大节省能耗和药剂投加; 厌氧氨氧化菌倍增时间3~14 d, 污泥产量少; 而厌氧氨氧化能够实现较高脱氮负荷, 有报道其可达 $76.7 \text{ kg N}/(\text{m}^3 \text{ d})$ ^[14]. 因此, 厌氧氨氧化具有经济高效的重要优势, 已成为污水脱氮领域的研究热点^[15-17].

近年来, 围绕厌氧氨氧化菌生长代谢特性与工艺开发及应用的研究成果颇丰^[18-20]. 荷兰代尔夫特理工大学在菌种鉴定、反应器开发与运行方面取得了突出成果, 为后续研究奠定了重要基础; 2010年, Kartal等人^[16]在*Science*上发表文章, 指出了Anammox技术在污水处理领域的重要意义和应用前景, 并运用荧光原位杂交(FISH)、宏转录组分析、同位素示踪、酶系提取、纯化与活性检测等多种技术手段, 揭示了厌氧氨氧化菌的生理代谢途径, 成果发表于*Nature*上^[11].

(1)

一般自然水体中, 厌氧氨氧化反应的电子受体 NO_2^- 并不存在, 需通过其他途径获取. 目前普遍采用的 NO_2^- 获取途径是短程硝化过程, 即在好氧条件下, NH_4^+ 氧化为 NO_2^- 而不被继续氧化为 NO_3^- (式(2))^[21,22]. 将该过程与Anammox结合的自养脱氮工艺可节省70%曝气能耗和100%有机碳源, 有望实现污水处理过程的能量自给(图2). 奥地利Strass污水处理厂成功将这一技术应用于污泥消化液处理, 通过厌氧消化产生沼气并回收利用实现了能源自给, 成为全球可持续污水处理标志性示范厂之一^[23]. 目前, 该技术已成功应用于污泥消化液、垃圾渗滤液、制药废水等高氨氮废水处理工程, 应用较多的为美国、德国、奥地利和中国^[24,25]. 然而, 对于氨氮浓度较低的城市污水, 该工艺至今未实现规模化应用, 关键在于难以稳定获取反应基质 NO_2^- .

2.3 基于短程硝化的厌氧氨氧化技术瓶颈亟待突破

基于短程硝化提供基质 NO_2^- 的Anammox工艺多年来一直是城市污水处理领域的研究热点. 通过控制溶解氧(DO)、pH、SRT等关键参数, 以及利用游离氨(FA)和游离亚硝酸(FNA)抑制NOB活性的方法, 被证明能够实现短程硝化过程^[26-28]. 然而, 实际污水处理过程中, 基于短程硝化的厌氧氨氧化工艺仍面临以下关键问题.

图2 (网络版彩图) (a) 短程硝化为Anammox过程提供 NO_2^- 的自养脱氮过程; (b) 短程反硝化为Anammox提供 NO_2^- 的新型PD/A工艺与传统反硝化对比

Figure 2 (Color online) (a) Autotrophic nitrogen removal process with partial nitrification providing nitrite for anammox; (b) autotrophic comparison of novel PD/A process with partial-denitrification providing nitrite for anammox with traditional denitrification process.

(1) 城市污水氨氮浓度较低, 缺乏FA或FNA对NOB活性抑制, 难以实现和维持稳定的短程硝化过程, 这也是制约该工艺应用于城市污水处理的最主要因素^[28,29]. 通常认为控制低DO有利于实现短程硝化. 然而, 有研究表明, 在长期低DO条件下, *Nitrospira*菌生长占据优势, 导致短程硝化被破坏而转变为全程硝化^[30]. 此外, 进水 NH_4^+ 浓度波动易导致过度曝气, 造成短程硝化效果恶化. Jin等人^[31]在处理城市污水的短程硝化/Anammox工艺研究中发现, 未根据进水水质波动及时调控会导致整个系统崩溃. 此外, 长期FA或FNA抑制作用下, NOB会出现适应性, 故其有效性和稳定性仍有待进一步研究^[32]. 不仅如此, 短程硝化遭到破坏后, 效果恢复往往需要更加复杂的控制手段.

(2) 短程硝化受温度影响较大, 通常认为 $28^\circ\text{C}\sim 35^\circ\text{C}$ 的条件有利于实现短程硝化^[33,34]. 城市污水的温度波动较大, 特别在冬季低温时, 短程硝化极易遭到破坏.

城市污水水量较大, 对其加热无实际可操作性. 当温度低于 15°C 时, NOB活性难以被有效抑制将导致短程硝化遭到破坏, 常需要不同控制方法以持留AOB和抑制NOB^[22]. 在 25°C 的中试规模的悬浮污泥系统, 实现短程硝化需控制较短的SRT, 同时采用较高DO的间歇曝气策略; 在 15°C 条件下, 颗粒污泥系统淘洗NOB需控制低DO连续曝气和较短的絮体污泥SRT. 厌氧氨氧化菌生长速率较慢, 特别是低温条件下, 需要足够长的SRT保证厌氧氨氧化菌的有效持留, 这一矛盾使得低温下系统的运行控制更为复杂. 分别控制同一系统中生物膜或颗粒污泥及絮体污泥的SRT是较为常见的控制方法^[35]. 然而, 围绕关键参数及其对AOB, NOB和厌氧氨氧化菌生长和抑制的影响及不同SRT控制方法的研究仍有待深入.

(3) 城市污水中有机物对厌氧氨氧化菌具有潜在抑制作用. 研究表明, 当C/N为2.7~2.9时, AOB与Ana-

mmox活性均下降^[36]; C/N由0.5升高至0.75时, 短程硝化/Anammox脱氮效率由79%降低至52%^[37]. 为减少有机物的不利影响, 并回收有机物和资源化利用, 在短程硝化/Anammox工艺前端增加有机物吸附去除单元(Adsorption)的新型A-B工艺近年来受到较多关注^[38]. 对于低基质浓度的城市污水, 如何提高有机物回收利用效率和控制稳定的脱氮效率是该工艺未来应用的关键. 实际短程硝化过程中难以实现100%的 NO_2^- 积累率, 不可避免地产生 NO_3^- ; Anammox反应本身也会产生一定 NO_3^- ; 而进入Anammox系统的污水往往不含易降解有机物, 导致系统中 NO_3^- 大量积累, 降低系统脱氮效率. 这一问题在高氨氮废水的厌氧氨氧化处理系统中更加明显.

由此可见, 该工艺处理低基质废水仍面临诸多问题, 厌氧氨氧化反应电子受体的稳定来源及其调控技术亟待突破.

3 厌氧氨氧化基质 NO_2^- 获取的新途径——短程反硝化

3.1 反硝化过程中 NO_2^- 积累现象

反硝化是污水生物脱氮的最主要途径. 反硝化过程分别在多种还原酶作用下, 将 NO_3^- 经 NO_2^- , NO和 N_2O 最终还原为 N_2 (图3), 参与反硝化过程的几种主要酶分别为: NO_3^- 还原酶(Nar)、 NO_2^- 还原酶(Nir)、NO还原酶(Nor)及 N_2O 还原酶(Nos)^[39]. 反硝化过程以 NO_2^- 为中间产物可以分为 NO_3^- 还原为 NO_2^- (式(3))及 NO_2^- 还

原为 N_2 的过程(式(4))^[40].

NO_2^- 是反硝化过程重要的中间产物. 反硝化过程在不同 NO_3^- 浓度、C/N、碳源类型、pH等条件下均可能出现不同程度的 NO_2^- 积累. Krishna Mohan等人^[41]研究认为, 高基质浓度易导致 NO_2^- 积累, NO_3^- 浓度高达5400 mg N/L且COD/ NO_3^- -N为2.0时, NO_2^- 积累达到3500 mg N/L. Glass等人^[42]研究发现, 基质浓度与pH均会影响中间产物积累, NO_3^- 浓度为1350 mg N/L及pH为7.5~9.0的条件下, 对应 NO_2^- 积累达到250~900 mg N/L. 在碱性pH条件下, 细胞周质中质子浓度有限, 导致 NO_2^- 还原受抑制而大幅积累^[42]. Bilanovic等人^[43]研究认为 NO_2^- 积累与反硝化电子供体有关, 相比于乙酸钠为电子供体, 以甲醇为电子供体时出现较高 NO_2^- 积累. Ge等人^[44]发现 NO_2^- 积累受COD/ NO_3^- -N影响较大, COD/ NO_3^- -N从1.0升高到15.0时, NO_2^- 积累量随之增加. 可见, 基质浓度、电子供体类型、pH等环境条件均会影响 NO_2^- 积累. 但是, 由于 NO_2^- 对微生物具有一定毒性抑制作用, 此前报道旨在减少或避免 NO_2^- 的积累. 随着厌氧氨氧化研究的不断深入, 反硝化过程中 NO_2^- 积累现象在近年来得到了新的认识.

图3 (网络版彩图)反硝化反应及相关酶系的电子传递过程

Figure 3 (Color online) The electron transfer in denitrification process and the related enzymes.

3.2 短程反硝化为Anammox基质 NO_2^- 稳定获取提供新途径

短程反硝化是近年由我国学者首次提出和重点研发的新技术。在实验室规模污水处理系统中, Gong等人^[45]发现反硝化过程中 NO_2^- 积累率可达到71.7%; Cao等人^[46]在3种类型的活性污泥反硝化批次试验中发现, NO_3^- 还原过程均出现不同程度的 NO_2^- 积累, 其中, 污泥发酵耦合反硝化系统的活性污泥表现出最高 NO_2^- 积累效率, 其 NO_3^- 仅还原为 NO_2^- 的转化率(nitrate-to-nitrite transforming ratio, NTR)高达80%; 为考察 NO_2^- 积累特性是否能长期稳定维持, 以这种污泥为接种物, 控制一定的进水 NO_3^- 浓度和 COD/NO_3^- -N, 启动反硝化SBR系统。结果表明在108 d的长期运行中, 高 NO_2^- 积累特性维持稳定, 从而证明了该过程为Anammox提供底物的可行性。与 NO_3^- 完全被还原为 NO_2^- 的传统反硝化过程相比, 这一过程可描述为仅以 NO_2^- 为终产物的“短程反硝化”(partial denitrification, PD)。

随后, 研究者考察了 NO_3^- 浓度、 COD/NO_3^- -N、碳源类型、pH和反应器类型等因素对短程反硝化过程的影响。Du等人^[47]研究表明, 进水 NO_3^- -N由50 mg/L逐渐提高到800 mg/L时, 短程反硝化过程NTR能够达到99%, 说明高浓度的 NO_3^- -N和COD并不会破坏 NO_2^- 积累效果。此外, 乙酸钠为碳源, 以培养成熟的短程反硝化污泥进行批次试验的结果表明, 在 COD/NO_3^- -N为0.8~8.0条件下NTR均能维持90%以上, 推测 COD/NO_3^- -N并不是导致 NO_2^- 积累的直接原因^[48]。以甲醇、乙酸盐、乙醇和丙醇等小分子有机碳源、污泥发酵液及生活污水等提供碳源时, 均能够实现稳定的短程反硝化^[49-51], 进一步说明其对于不同类型废水处理具有较大的实际应用价值。近期研究中, 短程反硝化系统菌群结构受到更多关注, 报道的不同环境条件下优势反硝化菌群结构存在差异, 而富集具有 NO_2^- 积累特性的反硝化菌群被认为是短程反硝化实现和稳定的关键^[48,52,53]。

短程反硝化过程对电子受体(NO_3^- 或 NO_2^-)具有选择性: NO_3^- 存在的条件下, 其优先选择 NO_3^- 作为电子受体, 产生 NO_2^- 积累; 当 NO_3^- 耗尽且有充足碳源时, 反硝化菌以 NO_2^- 为电子受体^[48]。研究还发现, 生物反应过程的 NO_3^- 还原速率比 NO_2^- 还原速率高约27倍, NO_3^- 与 NO_2^- 还原酶活性之间巨大差异是导致高 NO_2^- 积累的关键因素^[48]。因此, 通过关键参数调控, 诱导反硝化 NO_3^- 与 NO_2^- 还原酶活性差异被认为是实现短程反硝化过程的有效方法。在此基础上, Cao等人^[54]利用升流式污泥床(USB), 实现了连续流系统短程反硝化的稳定维持, 平均NTR达到81.4%, 产 NO_2^- 负荷达到7.59 kg N/(m³ d)。Du等人^[55]研究了序批式与连续流系统中短程反硝化 NO_2^- 产率和稳定性, NO_3^- 为30~400 mg N/L时二者均能够实现高效短程反硝化, NTR分别高达83.3%和71.3%。

短程反硝化过程为Anammox基质获取提供了新途径。该过程在长期运行中能够维持稳定、高效的产 NO_2^- 效率; 反应速率较快, 产 NO_2^- 负荷高; 控制简单, 无需复杂的控制手段; 处理城市污水时, 与传统反硝化脱氮相比, 基于短程反硝化的Anammox工艺能够节省80%有机碳源、50%曝气能耗(图2(b))、降低污泥产量和温室气体排放, 对污水脱氮技术发展具有重要意义和研究价值^[49]。

短程反硝化过程为Anammox基质获取提供了新途径。该过程在长期运行中能够维持稳定、高效的产 NO_2^- 效率; 反应速率较快, 产 NO_2^- 负荷高; 控制简单, 无需复杂的控制手段; 处理城市污水时, 与传统反硝化脱氮相比, 基于短程反硝化的Anammox工艺能够节省80%有机碳源、50%曝气能耗(图2(b))、降低污泥产量和温室气体排放, 对污水脱氮技术发展具有重要意义和研究价值^[49]。

4 短程反硝化的科学与工程意义

4.1 Anammox工艺稳定高效的 NO_2^- 获取途径

长期以来, Anammox工艺在城市污水处理中推广应用面临着 NO_2^- 稳定获取的难题。短程反硝化的提出为突破这一瓶颈提供了新方法。低氮素浓度和低温条件下, 短程反硝化过程仍能够维持较高的 NO_2^- 积累效率, 具有稳定、高效和易于调控的重要优势, 对Anammox在不同类型污水处理工程中应用提供新思路。

短程反硝化过程仅将 NO_3^- 还原为 NO_2^- , 缩短了氮的转化途径, 反应速率比传统反硝化过程更快, 从而为Anammox工艺在较高氮负荷条件下应用提供保障。采用USB装置建立的短程反硝化系统, NO_2^- 产率达到7.59 kg N/(m³ d)^[54]; 进一步有研究报道了短程反硝化 NO_2^- 积累速率能够达到13.5~18.5 mg/(gVSS h)^[56]。因此, 短程反硝化为高负荷条件下Anammox脱氮系统的构建提供了高效和稳定的创新思路和可行方法。

4.2 减少 NO_3^- 过量积累, 提高Anammox脱氮效率

未来污水处理工艺需要满足严格的排放标准, 最大程度地降低出水TN浓度。然而, Anammox反应本身不仅不能直接将 NO_3^- 还原去除, 反而会以 NO_3^- 的形式产生11%氮素。因此, 无论在高氨氮或低氨氮浓度废水处理的Anammox系统中, 长期运行均面临出水 NO_3^- 过

量积累导致的脱氮效率低、难以达到高标准排放的实际问题. 短程反硝化的实现为解决这一问题提供了新思路. 通过与Anammox相结合, 能够实现进水中 NO_3^- 和 NH_4^+ 的同步去除, 同时将Anammox过程产生的 NO_3^- 原位还原, 理论上可实现100%总氮去除效率, 突破了Anammox过程本身89%的脱氮效率上限.

与传统硝化/反硝化工艺相比, 短程反硝化将 NO_3^- 仅还原为 NO_2^- , 污水中的 NH_4^+ 与产生的 NO_2^- 通过Anammox作用得到去除, 大大降低了 NH_4^+ 好氧硝化过程所需的曝气能耗, 节省60%有机碳源. 此外, 剩余污泥产量也将大大削减, 进而降低污泥处理处置带来的能耗和二次污染. 可见, 该技术为污水脱氮提供了低耗高效减排的新途径, 具有重要研究意义和应用价值.

4.3 避免有机物对Anammox菌的潜在抑制, 实现多途径碳氮协同去除

污水中存在的有机物可能会对Anammox菌产生不利影响^[57,58]. 通过短程反硝化过程, 微生物利用有机物作为电子供体被利用, 从而避免了Anammox菌受有机物的潜在抑制. 这也在试验中得到证实, 短程反硝化系统出水的COD/ NO_2^- -N远低于报道的Anammox抑制范围^[55]. 短程反硝化系统出水含有的少量有机物将有利于厌氧氨氧化脱氮效率的进一步提高^[59]. 同时, 短程反硝化过程利用有机物为电子供体, 在反硝化菌的作用下将 NO_3^- 还原为 NO_2^- , 为Anammox菌提供必要的反应基质. 基于这一理论, 构建短程反硝化与Anammox耦合脱氮系统, 能够使污水中碳、氮通过多途径生化反应协同去除.

4.4 推进Anammox工艺在更广阔领域实践应用

如前所述, 由于Anammox对基质 NH_4^+ 和 NO_2^- 比例要求严格, 短程硝化往往需要严格控制DO, pH等条件, 以满足Anammox脱氮需求^[22,60,61]. 然而, 对于低氮素浓度的城市污水, 特别是在常温和水质波动的环境下, 难以控制短程硝化过程实现100%的 NO_2^- 积累率, 长期稳定维持更为困难. 因此, 该工艺目前仅实现了在高氨氮废水处理中的工程应用. 对于水质水量波动较大的低氨氮浓度城市污水而言, 该工艺仍未实现真正意义上的规模化应用.

对于高氨氮废水处理, Anammox过程出水往往含高浓度的 NO_3^- . 若将其回流到主流区处理, 将增加15%

~25%的污水处理厂进水氮负荷, 加剧碳源不足导致脱氮效率低的问题, 出水总氮达标更为困难. 而投加外碳源的方法使处理成本大幅提高. 除此之外, 对于工业生产过程排放的含 NO_3^- 废水, 传统反硝化处理方法需要消耗大量有机碳源, 伴随产生大量剩余污泥, 且处理过程中可能会积累 NO_2^- , N_2O 等对微生物和环境造成不利影响的中间产物^[62,63].

短程反硝化为解决上述问题提供了新思路. 短程反硝化的长期稳定性能够保障Anammox在低基质浓度的城市污水脱氮系统中发挥关键作用. 短程反硝化与厌氧氨氧化结合, 不仅节省有机碳源, 降低污泥产量, 也提高了处理效率和稳定性. 对于高 NH_4^+ 或 NO_3^- 废水, 短程反硝化能够在一定程度上避免中间产物的过度积累及其对微生物的不利影响. 因此, 短程反硝化为Anammox在主流城市污水、高 NH_4^+ 废水和高 NO_3^- 废水的经济高效处理等领域应用开辟了更为广阔的新途径.

5 短程反硝化耦合厌氧氨氧化实现城市污水与硝酸盐废水脱氮的新途径

短程反硝化技术的提出和实现为自养/异养菌耦合脱氮提供了新途径. 围绕这一新工艺技术, 研究者开展了短程反硝化耦合厌氧氨氧化处理不同类型废水的可行性研究.

5.1 多途径协同耦合——从“可行”到“增效”

在同一反应体系接种培养成熟的短程反硝化污泥与厌氧氨氧化污泥, 以含 NH_4^+ 和 NO_3^- 废水为处理对象, 能够实现97%的TN去除率, 由此证明二者耦合脱氮的可行性^[64]. 即使温度由29.2°C降低至12.7°C, 平均TN去除率仍可达到93.6%^[65], 验证了该工艺在低温下具有高效稳定的重要优势. 处理实际生活污水的研究表明, 运行500 d的短程反硝化耦合厌氧氨氧化系统平均TN去除率高达95.8%^[66]. 说明低氮负荷的耦合系统中厌氧氨氧化菌与反硝化功能菌群能够稳定共存和协同脱氮.

对于高浓度含氮废水, 厌氧氨氧化与反硝化菌群对共同底物—— NO_2^- 的竞争是系统稳定运行的关键. 研究表明, 当进水 NH_4^+ 和 NO_3^- 浓度提高到800 mg N/L时, 优化碳源投加方式能够很好地避免过高底物浓度

带来的抑制作用, 厌氧氨氧化菌对底物竞争力与代谢活性均得到显著提高, Anammox过程对TN去除的贡献率在95%以上^[47]. 这也是该技术应用于高浓度废水处理的国内外首次报道. 因此, 短程反硝化耦合厌氧氨氧化不仅能够实现多菌群协同脱氮, 同时大大强化了厌氧氨氧化菌在复杂处理系统中的生长代谢优势.

针对实际的城市污水与含 NO_3^- 废水, 基于短程反硝化的Anammox组合工艺能够实现低碳氮比条件下

NO_3^- 与 NH_4^+ 的同步去除, 具有广泛的应用前景. 与传统硝化/反硝化工艺相比, 该工艺具有显著的节能降耗潜力, 理论上, 同时去除1 g NO_3^- -N与 NH_4^+ -N节省100%曝气能耗和80%有机碳源需求, 剩余污泥产量减少68%, CO_2 排放降低80%(图4)^[67]. 不仅如此, 前期研究表明, 短程反硝化与厌氧氨氧化处理后的出水中溶解 N_2O 浓度一直保持在较低水平, 其中短程反硝化出水 N_2O 浓度在0.031~0.053 mg N/L范围内, 厌氧氨氧化出水中

图 4 (网络版彩图)传统硝化-反硝化与短程反硝化-厌氧氨氧化工艺同时去除1 g NO_3^- -N与 NH_4^+ -N能耗分析
Figure 4 (Color online) Energy and cost consumption for removal of 1 g NO_3^- -N and NH_4^+ -N in traditional nitrification-denitrification and partial denitrification-anammox process.

N_2O 浓度在0.027~0.041 mg N/L^[67]. 因此, 构建新型短程反硝化耦合Anammox工艺为高效低碳和节能降耗的污水处理提供了新技术, 有望在城市污水处理领域取得重要突破.

5.2 功能菌群协同代谢——从“竞争”到“合作”

厌氧氨氧化菌与反硝化菌是否能够共存主要取决于二者对底物 NO_2^- 利用的活性差异. 反硝化菌的产率系数为0.3 g VSS/g NH_4^+-N , 而厌氧氨氧化菌产率系数仅为0.066 g VSS/g NH_4^+-N , 前者生长速率(0.35 h^{-1})远远高于报道的厌氧氨氧化菌生长速率(0.003 h^{-1})^[40]. 这也是大多研究中, 有机物存在条件下厌氧氨氧化菌活性受抑制的主要原因, 甚至导致厌氧氨氧化菌长期缺乏底物而被淘洗出系统.

相比之下, 在稳定运行的短程反硝化耦合Anammox系统中, 不同反应器类型和进水浓度的条件下, 厌氧氨氧化菌相对丰度往往不超过5%, 而反硝化优势菌最高达到67%, 但Anammox对TN去除的贡献率可达

到95%^[66], 进一步说明短程反硝化能够为Anammox提供稳定、充足的基质 NO_2^- , 是Anammox菌在污水处理系统中发挥关键脱氮功能的重要保障和前提.

6 短程反硝化耦合厌氧氨氧化技术在城市污水处理工程中的验证与实践

对于城市污水处理而言, 传统硝化-反硝化脱氮工艺(Type A)需要大量曝气能耗和外加碳源, 以实现高排放标准下的深度脱氮(图5(a)), 产生的剩余污泥需要稳定化处理与安全处置, 过程中还会产生 N_2O 等温室气体, 亟待开发新型Anammox技术以满足低碳高效的污水处理重要需求. Anammox的发现从根本上改变了传统脱氮技术路线. 基于短程硝化的厌氧氨氧化工艺(Type B)无需外加碳源, 节省曝气能耗(图5(b))^[35]. 然而, 该工艺在主流城市污水处理中难以长期维持稳定的关键问题仍有待解决.

新型短程反硝化耦合Anammox为城市污水脱氮

图 5 (网络版彩图)传统硝化-反硝化、短程硝化-厌氧氨氧化与短程反硝化-厌氧氨氧化工艺流程及氮素转化路径

Figure 5 (Color online) Technical flow diagrams and the nitrogen transforming pathways involved in the traditional nitrification-denitrification, partial nitrification-anammox and partial denitrification-anammox processes.

提供了高效、稳定、易于调控的新技术。原污水中 NH_4^+ 经过好氧硝化转化为 NO_3^- , 反硝化菌利用污水碳源将 NO_3^- 还原为 NO_2^- , 再通过Anammox过程同步去除未经硝化的 NH_4^+ 和产生的 NO_2^- (Type C)。在实际污水处理工程中, 针对处理对象水质特征, 通过灵活调控运行参数可以在不同工艺中实现这一过程。以目前应用较为普遍的A/O, A^2O 工艺为例, 若在缺氧或厌氧/缺氧区实现短程反硝化与Anammox过程, 进入好氧硝化单元的 NH_4^+ 减少, 能够节省曝气能耗; NO_2^- 无需有机物为电子供体的反硝化还原, 节省了本就有限的原污水碳源, 提高了处理效率。

这一过程在实际规模的城市污水处理工程中得到了验证。在规模为 $25 \times 10^4 \text{ m}^3/\text{d}$ 的城市污水处理厂发现, A^2O 工艺的缺氧池投加填料进行升级改造后(填充比约25%, 水力停留时间约10 h, 温度为 $10.7^\circ\text{C} \sim 25.2^\circ\text{C}$), 出水TN浓度($7.6 \pm 2.0 \text{ mg/L}$)远远低于改造前的出水TN($16.1 \pm 2.9 \text{ mg/L}$), TN去除率甚至高于仅靠硝化/反硝化脱氮的理论最高值^[68]。通过16S rRNA高通量测序和qPCR检测分析验证, Anammox菌在填料上以生物膜形式得到有效富集; 利用稳定同位素示踪对脱氮途径分析得出, 生物膜中Anammox脱氮贡献率占到32.4%, 这也是系统维持较高脱氮效率的关键因素。重要的是, 在缺氧区, NO_3^- 还原为 NO_2^- 的短程反硝化过程为Anammox菌生长提供了必需底物, 使其得到有效富集。可见, 厌氧氨氧化在主流城市污水处理系统中能够发挥重要作用, 而短程反硝化为这一过程的实现提供了更易实现和稳定的新途径。

此外, 通过在硝化单元后设置短程反硝化耦合厌氧氨氧化反应区(图5(c)), 一部分原水硝化后, 再与其余部分同时进入耦合反应区, NH_4^+ 在缺氧条件下被去除。与传统硝化/反硝化工艺相比, 理论上可节省50%曝气能耗, 降低80%有机碳源需求量, 对低碳氮比城市污水深度处理具有重要意义。Du等人^[69]利用两级SBR构建并验证了该工艺处理实际生活污水的可行性, 在进水 NH_4^+-N 平均为 57.87 mg/L , COD平均为 176.02 mg/L 条件下, 出水TN低于 5 mg/L ; 该研究还验证了短程反硝化耦合Anammox反应过程的 N_2O 产量极低, 进而说明该工艺具有温室气体减排的优势。

在实验室规模研究的基础上, 第一座中试规模的短程反硝化耦合Anammox新技术处理主流城市污水

的SBR试验基地在北京建成; 长期运行进一步证明了低基质、低温条件下短程反硝化为Anammox提供 NO_2^- 的稳定性和可行性^[70]。另一座短程反硝化耦合Anammox的城市污水处理中试采用 A^2O -曝气生物滤池(BAF)组合系统, 在连续流系统中成功实现了稳定高效脱氮。

当前, 基于短程反硝化的Anammox技术引起了国际上高度关注。美国哥伦比亚大学和DC Water水务公司等围绕该方向随后开展相关研究, 在美国Blue Plains污水厂建立了该技术的中试基地, 再次验证了主流条件下短程反硝化为Anammox提供基质相比于短程硝化更加稳定和容易实现; 中试在低碳氮比条件下(COD/TN仅为2.2), 实现了TN深度去除, 达到了该地区严格的污水处理排放标准^[71]; 并认为短程反硝化耦合厌氧氨氧化技术在实际规模污水处理厂中推广应用, 有望替代现有技术, 实现低浓度城市污水深度处理。

7 结论

综上所述, 厌氧氨氧化这一颠覆性脱氮技术在城市污水处理中应用具有经济高效的重要优势, 短程反硝化是实现这一过程的新方法和新途径。主要结论如下。

(1) 反应基质 NO_2^- 难以稳定获取是制约厌氧氨氧化在主流城市污水处理中推广应用的瓶颈问题, 传统短程硝化过程在处理低氨氮浓度污水时难以稳定维持的问题仍有待解决。

(2) 短程反硝化为Anammox过程稳定获取 NO_2^- 提供了新思路; 这一过程在长期运行中能够维持稳定的高效产 NO_2^- 特性, 受基质浓度、pH和温度等环境因素影响小, 在SBR和连续流系统中均能够实现80%以上的 NO_3^- 还原至 NO_2^- 转化率。

(3) 短程反硝化耦合Anammox新技术应用于城市污水处理, 能够节省曝气能耗和有机碳源, 减少污泥产量和温室气体排放; 实现城市污水和含 NO_3^- 废水的同步处理, 为厌氧氨氧化技术在更广阔领域的推广应用提供新方法。

(4) 短程反硝化耦合Anammox脱氮已在实际城市污水处理工程中得到验证, Anammox在主流城市污水处理系统中能够发挥重要作用。

参考文献

- 1 Abma W R, Schultz C E, Mulder J W, et al. Full-scale granular sludge Anammox process. *Water Sci Tech*, 2007, 55: 27–33
- 2 Ali M, Chai L Y, Tang C J, et al. The increasing interest of Anammox research in China: Bacteria, process development, and application. *Biomed Res Int*, 2013, 2013: 1–21
- 3 Agetsuma M, Matsuda T, Nagai T. Methods for monitoring signaling molecules in cellular compartments. *Cell Calcium*, 2017, 64: 12–19
- 4 Le C, Zha Y, Li Y, et al. Eutrophication of lake waters in China: Cost, causes, and control. *Environ Manage*, 2010, 45: 662–668
- 5 Shen Y L. Municipal wastewater treatment processes: Life cycle assessment (LCA) (in Chinese). *J Suzhou Univ Sci Tech (Eng Tech)*, 2019, 32: 1–9 [沈耀良. 城市污水处理工艺: 生命周期评价. 苏州科技大学学报(工程技术版), 2019, 32: 1–9]
- 6 Rahimi S, Modin O, Mijakovic I. Technologies for biological removal and recovery of nitrogen from wastewater. *Biotech Adv*, 2020, 43: 107570
- 7 Scherson Y D, Criddle C S. Recovery of freshwater from wastewater: Upgrading process configurations to maximize energy recovery and minimize residuals. *Environ Sci Technol*, 2014, 48: 8420–8432
- 8 Hao X D, Li T Y, Loosdrecht M, et al. Reform of water technologies under blue economy (in Chinese). *China Water Wastewater*, 2017, 33: 5–12 [郝晓地, 李天宇, Loosdrecht M, 等. 蓝色经济下的水技术变革. 中国给水排水, 2017, 33: 5–12]
- 9 Hao X, Batstone D, Guest J S. Carbon neutrality: An ultimate goal towards sustainable wastewater treatment plants. *Water Res*, 2015, 87: 413–415
- 10 van de Graaf A A, de Bruijn P, Robertson L A, et al. Autotrophic growth of anaerobic ammonium-oxidizing micro-organisms in a fluidized bed reactor. *Microbiology*, 1996, 142: 2187–2196
- 11 Kartal B, Maalcke W J, de Almeida N M, et al. Molecular mechanism of anaerobic ammonium oxidation. *Nature*, 2011, 479: 127–130
- 12 van Loosdrecht M C M, Brdjanovic D. Anticipating the next century of wastewater treatment. *Science*, 2014, 344: 1452–1453
- 13 Pennisi E. A better way to denitrify wastewater. *Science*, 2012, 337: 675
- 14 Tang C J, Zheng P, Wang C H, et al. Performance of high-loaded Anammox UASB reactors containing granular sludge. *Water Res*, 2011, 45: 135–144
- 15 Kuypers M M M, Marchant H K, Kartal B. The microbial nitrogen-cycling network. *Nat Rev Microbiol*, 2018, 16: 263–276
- 16 Kartal B, Kuenen J G, van Loosdrecht M C M. Sewage treatment with Anammox. *Science*, 2010, 328: 702–703
- 17 Arrigo K R. Marine microorganisms and global nutrient cycles. *Nature*, 2005, 437: 349–355
- 18 Lackner S, Gilbert E M, Vlaeminck S E, et al. Full-scale partial nitrification/Anammox experiences—An application survey. *Water Res*, 2014, 55: 292–303
- 19 Li M, Gu J D. Advances in methods for detection of anaerobic ammonium oxidizing (Anammox) bacteria. *Appl Microbiol Biotechnol*, 2011, 90: 1241–1252
- 20 Ni S Q, Zhang J. Anaerobic ammonium oxidation: From laboratory to full-scale application. *Biomed Res Int*, 2013, 2013: 1–10
- 21 Joss A, Derlon N, Cyprien C, et al. Combined nitrification-Anammox: Advances in understanding process stability. *Environ Sci Technol*, 2011, 45: 9735–9742
- 22 Agrawal S, Seuntjens D, Cocker P D, et al. Success of mainstream partial nitrification/Anammox demands integration of engineering, microbiome and modeling insights. *Curr Opin Biotech*, 2018, 50: 214–221
- 23 Hao X D, Cheng H Q, Hu R S. International pioneer of carbon-neutral operation of wastewater treatment: A case study at strass in Austria (in Chinese). *China Water Wastewater*, 2014, 30: 1–5 [郝晓地, 程慧芹, 胡沅胜. 碳中和运行的国际先驱奥地利Strass污水厂案例剖析. 中国给水排水, 2014, 30: 1–5]
- 24 Joss A, Salzgeber D, Eugster J, et al. Full-scale nitrogen removal from digester liquid with partial nitrification and Anammox in one SBR. *Environ Sci Technol*, 2009, 43: 5301–5306
- 25 Li J, Li J, Gao R, et al. A critical review of one-stage Anammox processes for treating industrial wastewater: Optimization strategies based on key functional microorganisms. *Bioresource Tech*, 2018, 265: 498–505
- 26 Lee P H, Kwak W, Bae J, et al. The effect of SRT on nitrate formation during autotrophic nitrogen removal of anaerobically treated wastewater. *Water Sci Tech*, 2013, 68: 1751–1756
- 27 Li J, Xu K, Liu T, et al. Achieving stable partial nitrification in an acidic nitrifying bioreactor. *Environ Sci Technol*, 2019, 54: 456–463
- 28 Li X, Klaus S, Bott C, et al. Status, challenges, and perspectives of mainstream nitrification-Anammox for wastewater treatment. *Water Environ*

- [Res](#), 2018, 90: 634–649
- 29 Peeters S H, van Niftrik L. Trending topics and open questions in anaerobic ammonium oxidation. [Curr Opin Chem Biol](#), 2018, 49: 45–52
- 30 Qing Y, Yang Y B, Yang Z Q, et al. Effect of dissolved oxygen on the stability and functional microbial communities of the partial nitrification (in Chinese). *China Environ Sci*, 2018, 38: 3328–3334 [庆杨, 杨玉兵, 杨忠启, 等. 溶解氧对短程硝化稳定性及功能菌群的影响. *中国环境科学*, 2018, 38: 3328–3334]
- 31 Jin P, Li B, Mu D, et al. High-efficient nitrogen removal from municipal wastewater via two-stage nitrification/Anammox process: Long-term stability assessment and mechanism analysis. [Bioresource Tech](#), 2019, 271: 150–158
- 32 Fu K M, Zhou H T, Su X Y, et al. Short-cut nitrification recovery and its transformation into CANON process in a biofilm reactor (in Chinese). *Environ Sci*, 2017, 38: 1536–1543 [付昆明, 周厚田, 苏雪莹, 等. 生物膜短程硝化系统的恢复及其转化为CANON工艺的过程. *环境科学*, 2017, 38: 1536–1543]
- 33 Hellinga C, Schellen A A J C, Mulder J W, et al. The Sharon process: An innovative method for nitrogen removal from ammonium-rich waste water. [Water Sci Tech](#), 1998, 37: 135–142
- 34 Lackner S, Welker S, Gilbert E M, et al. Influence of seasonal temperature fluctuations on two different partial nitrification-Anammox reactors treating mainstream municipal wastewater. [Water Sci Tech](#), 2015, 72: 1358–1363
- 35 Laurenzi M, Falås P, Robin O, et al. Mainstream partial nitrification and Anammox: Long-term process stability and effluent quality at low temperatures. [Water Res](#), 2016, 101: 628–639
- 36 Han M, De Clippeleir H, Al-Omari A, et al. Impact of carbon to nitrogen ratio and aeration regime on mainstream deammonification. [Water Sci Tech](#), 2016, 74: 375–384
- 37 Chen H, Liu S, Yang F, et al. The development of simultaneous partial nitrification, Anammox and denitrification (SNAD) process in a single reactor for nitrogen removal. [Bioresource Tech](#), 2009, 100: 1548–1554
- 38 Gu J, Yang Q, Liu Y. Mainstream Anammox in a novel A-2B process for energy-efficient municipal wastewater treatment with minimized sludge production. [Water Res](#), 2018, 138: 1–6
- 39 Zumft W G. Cell biology and molecular basis of denitrification. [MicroBiol Mol Biol Rev-MMBR](#), 1997, 61: 533–616
- 40 Kumar M, Lin J G. Co-existence of Anammox and denitrification for simultaneous nitrogen and carbon removal—Strategies and issues. [J Hazard Mater](#), 2010, 178: 1–9
- 41 Krishna Mohan T V, Nanchaiah Y V, Venugopalan V P, et al. Effect of C/N ratio on denitrification of high-strength nitrate wastewater in anoxic granular sludge sequencing batch reactors. [Ecol Eng](#), 2016, 91: 441–448
- 42 Glass C, Silverstein J A. Denitrification kinetics of high nitrate concentration water: pH effect on inhibition and nitrite accumulation. [Water Res](#), 1998, 32: 831–839
- 43 Bilanovic D, Battistoni P, Cecchi F, et al. Denitrification under high nitrate concentration and alternating anoxic conditions. [Water Res](#), 1999, 33: 3311–3320
- 44 Ge S, Peng Y, Wang S, et al. Nitrite accumulation under constant temperature in anoxic denitrification process: The effects of carbon sources and COD/NO₃-N. [Bioresource Tech](#), 2012, 114: 137–143
- 45 Gong L, Huo M, Yang Q, et al. Performance of heterotrophic partial denitrification under feast-famine condition of electron donor: A case study using acetate as external carbon source. [Bioresource Tech](#), 2013, 133: 263–269
- 46 Cao S, Wang S, Peng Y, et al. Achieving partial denitrification with sludge fermentation liquid as carbon source: The effect of seeding sludge. [Bioresource Tech](#), 2013, 149: 570–574
- 47 Du R, Cao S, Li B, et al. Step-feeding organic carbon enhances high-strength nitrate and ammonia removal via Deamox process. [Chem Eng J](#), 2019, 360: 501–510
- 48 Du R, Peng Y, Cao S, et al. Mechanisms and microbial structure of partial denitrification with high nitrite accumulation. [Appl Microbiol Biotechnol](#), 2016, 100: 2011–2021
- 49 Du R, Peng Y, Ji J, et al. Partial denitrification providing nitrite: Opportunities of extending application for Anammox. [Environ Int](#), 2019, 131: 105001
- 50 Cao S, Oehmen A, Zhou Y. Denitrifiers in mainstream Anammox processes: Competitors or supporters? [Environ Sci Technol](#), 2019, 53: 11063–11065
- 51 Shi L, Du R, Peng Y. Achieving partial denitrification using carbon sources in domestic wastewater with waste-activated sludge as inoculum.

- Bioresource Tech, 2019, 283: 18–27
- 52 Li W, Lin X Y, Chen J J, et al. Enrichment of denitrating bacteria from a methylotrophic denitrifying culture. *Appl Microbiol Biotechnol*, 2016, 100: 10203–10213
- 53 Si Z, Peng Y, Yang A, et al. Rapid nitrite production via partial denitrification: Pilot-scale operation and microbial community analysis. *Environ Sci-Water Res Technol*, 2018, 4: 80–86
- 54 Cao S, Li B, Du R, et al. Nitrite production in a partial denitrifying upflow sludge bed (USB) reactor equipped with gas automatic circulation (GAC). *Water Res*, 2016, 90: 309–316
- 55 Du R, Cao S, Niu M, et al. Performance of partial-denitrification process providing nitrite for Anammox in sequencing batch reactor (SBR) and upflow sludge blanket (USB) reactor. *Int Biodeteriora Biodegrada*, 2017, 122: 38–46
- 56 Li W, Liu S, Zhang M, et al. Oxidation of organic electron donor by denitrification: Performance, pathway and key microorganism. *Chem Eng J*, 2018, 343: 554–560
- 57 Feng H, Liang L, Ge J, et al. Delicate manipulation of cobalt oxide nanodot clusterization on binder-free TiO_2 -nanorod photoanodes for efficient photoelectrochemical catalysis. *J Alloys Compd*, 2020, 820: 153139
- 58 Pijuan M, Ribera-Guardia A, Balcázar J L, et al. Effect of COD on mainstream Anammox: Evaluation of process performance, granule morphology and nitrous oxide production. *Sci Total Environ*, 2020, 712: 136372
- 59 Du R, Cao S, Peng Y, et al. Combined partial denitrification (PD)-Anammox: A method for high nitrate wastewater treatment. *Environ Int*, 2019, 126: 707–716
- 60 Choi D, Cho K, Jung J. Optimization of nitrogen removal performance in a single-stage SBR based on partial nitrification and Anammox. *Water Res*, 2019, 162: 105–114
- 61 Isanta E, Reino C, Carrera J, et al. Stable partial nitrification for low-strength wastewater at low temperature in an aerobic granular reactor. *Water Res*, 2015, 80: 149–158
- 62 McCarty P L, Bae J, Kim J. Domestic wastewater treatment as a net energy producer—Can this be achieved? *Environ Sci Technol*, 2011, 45: 7100–7106
- 63 Kampschreur M J, Temmink H, Kleerebezem R, et al. Nitrous oxide emission during wastewater treatment. *Water Res*, 2009, 43: 4093–4103
- 64 Cao S, Peng Y, Du R, et al. Feasibility of enhancing the denitrifying Ammonium oxidation (DEAMOX) process for nitrogen removal by seeding partial denitrification sludge. *Chemosphere*, 2016, 148: 403–407
- 65 Du R, Cao S, Li B, et al. Performance and microbial community analysis of a novel Deamox based on partial-denitrification and Anammox treating ammonia and nitrate wastewaters. *Water Res*, 2017, 108: 46–56
- 66 Du R, Cao S, Li B, et al. Simultaneous domestic wastewater and nitrate sewage treatment by denitrifying ammonium oxidation (DEAMOX) in sequencing batch reactor. *Chemosphere*, 2017, 174: 399–407
- 67 Cao S, Du R, Peng Y, et al. Novel two stage partial denitrification (PD)-Anammox process for tertiary nitrogen removal from low carbon/nitrogen (C/N) municipal sewage. *Chem Eng J*, 2019, 362: 107–115
- 68 Li J, Peng Y, Zhang L, et al. Quantify the contribution of Anammox for enhanced nitrogen removal through metagenomic analysis and mass balance in an anoxic moving bed biofilm reactor. *Water Res*, 2019, 160: 178–187
- 69 Du R, Cao S, Zhang H, et al. Flexible nitrite supply alternative for mainstream Anammox: Advances in enhancing process stability. *Environ Sci Technol*, 2020, 54: 6353–6364
- 70 Peng Y Z, Fan Z L, Du R, et al. Pilot-scale study on producing NO_2^- for anammox with municipal wastewater (in Chinese). *J Beijing Univ Tech*, 2020, 46: 330–337 [彭永臻, 范泽里, 杜睿, 等. 为耦合厌氧氨氧化产生 NO_2^- 的城市污水中试研究. 北京工业大学学报, 2020, 46: 330–337]
- 71 Le T, Peng B, Su C, et al. Nitrate residual as a key parameter to efficiently control partial denitrification coupling with Anammox. *Water Environ Res*, 2019, 91: 1455–1465

Technical revolution of biological nitrogen removal from municipal wastewater: Recent advances in Anammox research and application

DU Rui^{1,2} & PENG YongZhen^{1,2}

¹ National Engineering Laboratory for Advanced Municipal Wastewater Treatment and Reuse Technology, Beijing 100124, China;

² Department of Environment and Life Sciences, Beijing University of Technology, Beijing 100124, China

The eutrophication of a body of water is a globally serious water-polluting problem caused by the excess discharge of nutrients. Nitrogen and phosphorus removal from wastewater is extremely necessary. The biological method is the major technology used for nitrogen removal. With the increasingly strict discharging standard worldwide, the problems of insufficient efficiency, considerable energy consumption, and secondary pollution involved in the traditional nitrogen removal process have become increasingly apparent, resulting in an urgent need for an economic, efficient, and sustainable technology. The widely investigated anaerobic ammonium oxidation (Anammox) process discovered in the 1990s is regarded as the most energy-efficient technology for nitrogen removal without aeration and organic carbon demand. However, it has not been widely adopted because for a long time now, it has faced bottlenecks in stable substrate nitrite (NO_2^-) acquisition. Recent studies have demonstrated that the NO_2^- -produced partial denitrification (PD) process provides a completely novel concept for solving this problem. China takes the lead in the investigation and practice of the discovery, development, and microbial mechanism of this process. A novel technology combining PD and Anammox is opening a new window for the low-carbon and high-efficiency treatment of municipal wastewater, which has been regarded as a hot and cutting-edge topic in this field. Compared with the conventional nitrification/denitrification process, it could save aeration energy by 100% and organic carbon source by 80% and reduce the sludge production and greenhouse gas (CO_2 , N_2O) emission in the simultaneous treatment of municipal wastewater and nitrate (NO_3^-) contained in wastewater. In comparison with the present Anammox process, it is little affected by the substrate concentrate, temperature, and other environmental factors, could break the top limit of nitrogen removal efficiency by Anammox (89%), and reach up to 100% of the total nitrogen removal efficiency, thereby exhibiting great significance and applicable value. In the future, the separation, purification, and molecular metabolic mechanism of the PD and Anammox bacteria should be focused on. Furthermore, the engineering application of the novel technology should also be promoted.

municipal wastewater treatment, biological nitrogen removal, eutrophication, anaerobic ammonium oxidation (Anammox), partial denitrification, partial nitrification

doi: [10.1360/SST-2020-0407](https://doi.org/10.1360/SST-2020-0407)