

DOI:10.19853/j.zgjsps.1000-4602.2022.23.002

不同上升流速提升对反硝化颗粒污泥反应器的影响

季飞¹, 边永欢¹, 赵峰², 王振毅¹, 赵大密¹, 李志燕¹,
廉静¹

(1. 河北科技大学环境科学与工程学院 河北省污染防治生物技术重点实验室, 河北 石家庄 050018; 2. 河北省地质环境监测院 河北省地质资源环境监测与保护重点实验室, 河北 石家庄 052460)

摘要: 为了探究上升流速的不同变化幅度对反硝化颗粒污泥反应器的影响,分别构建了快速提升反应器(以大幅度提升上升流速,记作 R_H)和慢速提升反应器(以小幅度提升上升流速,记作 R_L),考察不同上升流速提升策略对反应器性能、反硝化颗粒污泥特性及菌群的影响。结果表明,在 R_H 和 R_L 的上升流速由0.25 m/h提升至0.41 m/h的过程中, NO_3^- -N和COD平均去除率均在92%以上, NO_2^- -N平均积累量为1.5 mg/L左右;当两反应器上升流速进一步提升至0.49 m/h时, R_H 反应器污泥发生流失,COD去除率在运行的前5 d下降为73.1%左右, NO_2^- -N平均积累量达到16.3 mg/L,粒径<1.4 mm的颗粒占比从34%上升为51.8%;而 R_L 的 NO_3^- -N和COD平均去除率和 NO_2^- -N平均积累量均变化较小。同时,两反应器颗粒污泥的紧密结合型胞外聚合物(TB-EPS)在此阶段出现不同的变化趋势,其中 R_L 中污泥TB-EPS含量从(32.4±0.8) mg/g增加为(56.2±0.4) mg/g,而 R_H 从(47.1±0.8) mg/g下降为(28.9±0.9) mg/g,表明TB-EPS对于反硝化颗粒污泥维持较为稳定的结构起到了重要作用。高通量测序显示,门水平上利于反硝化的Firmicutes和Planctomycetes在 R_L 反应器中得到富集,而在 R_H 反应器中均出现下降;属水平上主要参与反硝化的Hyphomicrobium占比在 R_H 中明显下降,造成了两反应器反硝化性能稳定性的差异。因此,在所考察的上升流速范围内, R_L 的上升流速提升策略更有利于反硝化颗粒污泥承受较高的上升流速,并保持反应器的稳定运行。

关键词: 上升流速; 反硝化颗粒污泥; 胞外聚合物; 菌群结构

中图分类号: TU992 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-4602(2022)23-0007-10

Effect of Different Upflow Velocity Promotion Strategy on the Performance of Denitrifying Granular Sludge Reactor

Ji Fei¹, BIAN Yong-huan¹, ZHAO Feng², WANG Zhen-yi¹, ZHAO Da-mi¹,
LI Zhi-yan¹, LIAN Jing¹

(1. Key Laboratory of Pollution Prevention Biotechnology of Hebei Province, School of Environmental Science and Engineering, Hebei University of Science and Technology, Shijiazhuang 050018, China; 2. Key Laboratory of Geological Resources and Environment Monitoring and Protection of Hebei Province, Hebei Institute of Geological Environment Monitoring, Shijiazhuang 052460, China)

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(51678387); 河北省人才工程资助项目(A201902019)

通信作者: 廉静 E-mail: ningjingzhiyuan98@163.com

Abstract: In order to explore the influence of different upflow velocity amplitudes on the denitrification granular sludge (DGS) reactor, both rapid rise reactor (increasing the upflow velocity with a high rate, denoted as R_H) and slow rise reactor (increasing the upflow velocity with a low rate, denoted as R_L) was constructed. The impact of different upflow velocity promotion strategies on the performance of the reactor was investigated, and the characteristics of the DGS and the bacterial flora was analyzed. The results showed that when the upflow velocity of the R_H and R_L reactors was increased from 0.25 m/h to 0.41 m/h, the average removal rates of NO_3^- -N and COD were over 92%, the average accumulation of NO_2^- -N was about 1.5 mg/L; when the upflow velocity of the R_H and R_L reactors was further increased to 0.49 m/h, the sludge in R_H ran off, the COD removal rate dropped to about 73.1% in the first 5 days of operation, the average accumulation of NO_2^- -N reached 16.3 mg/L, and the diameter of particles less than 1.4 mm increased from 34% to 51.8%; the average removal rate of NO_3^- -N and COD and the average accumulation of NO_2^- -N in the R_L had little change. Meanwhile, the TB-EPS of granular sludge in the two reactors had different variation trend at this stage, the TB-EPS content of the sludge in the R_L reactor increased from (32.4±0.8) mg/g to (56.2±0.4) mg/g, while that in R_H decreased from (47.1±0.8) mg/g to (28.9±0.9) mg/g. TB-EPS played an important role in maintaining a relatively stable structure of DGS. High-throughput sequencing showed that *Firmicutes* and *Planctomycetes*, which were conducive to denitrification at the phylum level, were enriched in the R_L reactor, but decreased in the R_H reactor; the proportion of *Hyphomicrobium*, which was mainly involved in denitrification at the genus level, decreased significantly in the R_H . The different variation of the microbial community in the two reactors caused the difference in the stability of the denitrification performance. Therefore, within the range of upflow velocity investigated in this study, the upflow velocity increase strategy of the R_L is more conducive to the denitrification granular sludge withstanding higher upflow velocity and maintaining the stable operation of the reactor.

Key words: upflow velocity; denitrification granular sludge; extracellular polymeric substance; microbial community

颗粒污泥是微生物自凝聚而形成的颗粒状生物聚合物,与絮状污泥相比,颗粒污泥具有沉降性能好、占地面积小、微生物种群丰富等优点^[1-2]。颗粒污泥根据其自身菌群特性和功能可分为厌氧氨氧化、产氢和反硝化等一系列颗粒污泥^[3-5]。升流式污泥床(USB)反应器由于具有较好的气、固、液分离和抗冲击负荷能力,可以保留较高浓度的生物量,在颗粒污泥技术领域的应用较为广泛^[6]。USB反应器内颗粒污泥的稳定性受到温度、进水基质和水力条件等诸多因素的影响^[7-9],其中水力条件不仅影响颗粒污泥与基质的传质过程,也对颗粒污泥的胞外聚合物(EPS)和菌群等有重要影响^[5]。通过控制USB反应器内的上升流速在一定的范围内,可以有效提升其对污染物的去除能力,但当水力负荷超出颗粒污泥自身强度能承受的范围时,则会抑制颗粒

污泥中微生物新陈代谢。严峰^[10]研究了上升流速对反应器内厌氧氨氧化颗粒污泥的影响,当将上升流速从0.45 m/h提升为1.14 m/h时, NO_2^- -N的去除率达到98.5%;李文哲等^[11]则发现,当上升流速从0.15 m/h逐渐提升至0.6 m/h时,颗粒污泥的EPS含量从99.48 mg/g增加为214.51 mg/g,当上升流速进一步提升至1.2 m/h时,颗粒污泥的结构遭到破坏,导致产氢性能变差。然而,目前还未见不同上升流速提升策略对颗粒污泥反应器性能影响的报道。

以硝酸盐为模型污染物,通过调控USB反应器的外回流,在水力停留时间(HRT)、进水浓度和氮负荷均不变的条件下,分别快速和慢速提升反应器的上升流速,探究不同上升流速提升策略对除污性能、反硝化颗粒污泥脱氮性能、颗粒污泥特性(生物量、粒径和胞外聚合物)和菌群分布的影响,以期为

反硝化颗粒污泥USB反应器的稳定运行提供指导。

1 材料与方法

1.1 实验装置

实验装置如图1所示。USB反应器由有机玻璃制成,内径为80 mm,高为750 mm,有效容积为3.5 L;反应器上部设有三相分离器,利用蠕动泵向反应器内连续提供基质。在保持系统HRT为3.5 h条件下,通过回流泵调控反应器内循环,以改变反应器上升流速。其中,快速提升上升流速运行的反应器记为 R_H ,慢速提升上升流速运行的反应器记为 R_L 。反应器运行期间,温度保持在 (30 ± 2) °C。

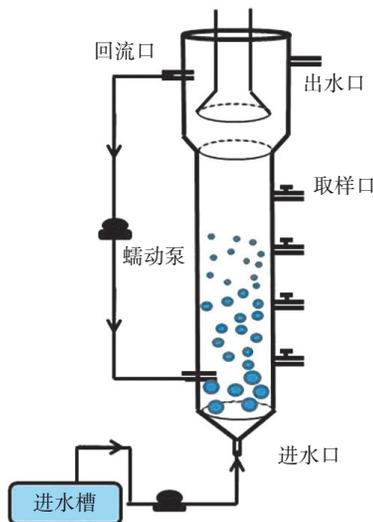


图1 实验装置示意

Fig.1 Schematic diagram of experimental equipment

1.2 接种污泥

实验污泥为USB反应器内已经培养成功的反硝化颗粒污泥,反应器上升流速和氮负荷分别为0.17 m/h和2 g/(L·d),MLSS为52.81 g/L,MLVSS为29.9 g/L,MLVSS/MLSS为0.57。

1.3 原水水质

实验用水以 CH_3OH 、 NaNO_3 和 $\text{K}_2\text{HPO}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ 分别作为碳源、氮源和磷源,其质量比为40:10:1。为保证反应器能够稳定运行,结合本实验室以往的运行经验,将进水COD浓度、硝酸盐氮浓度和氮负荷分别控制在1168 mg/L、292 mg/L和2 g/(L·d)。配水中微量元素投加量为0.10 mL/L,微量元素溶液组成: $\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ 为0.10 mg/L, CaCl_2 为0.10 mg/L, $\text{MnSO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 为0.50 mg/L, $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ 为0.10 mg/L, $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ 为0.01 mg/L, $\text{Na}_2\text{MoO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 为0.01 mg/L, $\text{Na}_2\text{WO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 为0.01 mg/L, $\text{NiCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 为

0.02 mg/L, $\text{C}_{10}\text{H}_{16}\text{N}_2\text{O}_8$ 为0.50 mg/L。

1.4 运行条件

实验以20 d为一个阶段,对反应器上升流速进行调控。两反应器初始上升流速均为0.25 m/h,其中 R_H 反应器上升流速每个阶段提升0.08 m/h, R_L 反应器上升流速每个阶段提升0.04 m/h,两反应器分别运行了120 d和140 d。在运行过程中反应器的HRT均为3.5 h。

1.5 常规分析和计算方法

硝酸盐氮(NO_3^--N)和亚硝酸盐氮(NO_2^--N)浓度采用紫外分光光度法测定;COD采用重铬酸钾法测定,实际COD浓度根据Liang等^[12]报道的公式进行折算以消除 NO_2^--N 的影响(NO_2^--N 与COD的折算系数取1.14);颗粒污泥的粒径采用湿式筛分法测定,平均粒径采用加权平均法计算;粒径分布跨度(span)根据Zhou等^[13]报道的方法计算,见式(1);MLSS和MLVSS采用重量法测定。

$$\text{span} = \frac{d_{90} - d_{10}}{d_{50}} \quad (1)$$

式中: d_{10} 为小于该粒径的颗粒占反应器中总颗粒的10%; d_{90} 为小于该粒径的颗粒占反应器中总颗粒的90%; d_{50} 为平均粒径。

1.6 EPS提取和测定

污泥的EPS主要由蛋白质(PN)和多糖(PS)组成,其中EPS根据剥离难易程度又可分为溶解型EPS(SMP-EPS)、松散结合型EPS(LB-EPS)和紧密结合型EPS(TB-EPS)三部分,各组分EPS提取参考Wei等^[14]的报道。EPS中蛋白质和多糖的含量分别采用考马斯亮蓝法和蒽酮-硫酸法测定,并以蛋白质和多糖含量之和记作EPS的总含量。由于在本实验中TB-EPS有较明显的变化,进一步使用三维荧光光谱仪扫描TB-EPS得到矩阵光谱,并采用平行因子法(PARAFAC)对荧光光谱进行解析。

1.7 高通量测序

为研究反硝化颗粒污泥形成及运行过程中的菌群结构特点,分析了其建库和高通量测序结果,建库和测序工作委托上海生工科技有限公司完成,高通量测序在MiSeq(Illumina)测序平台上完成。

2 结果与分析

2.1 反应器的运行特性

在不同上升流速提升策略下, R_H 和 R_L 反应器的处理效果如图2所示。

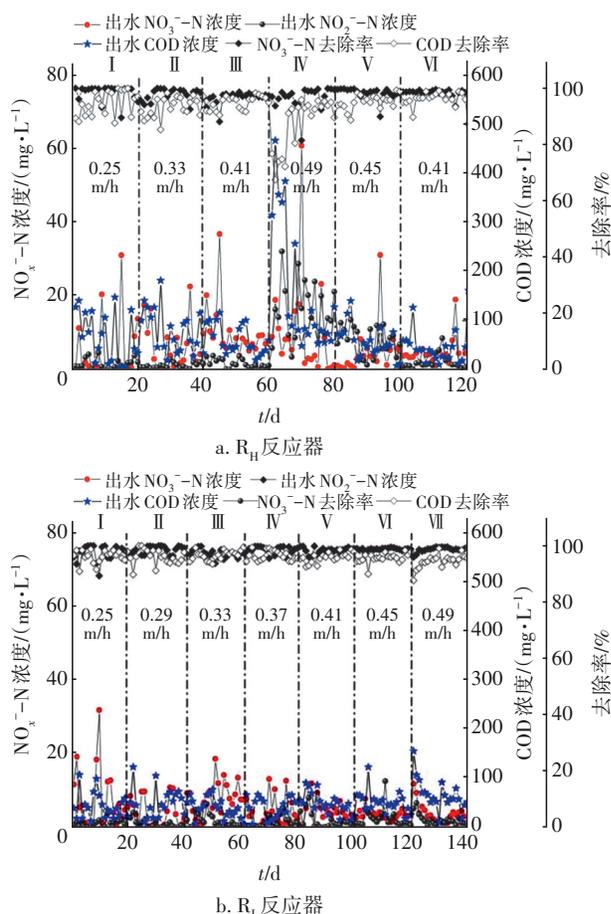


图2 R_H 和 R_L 反应器运行中脱氮效率和COD去除效果的变化
Fig.2 Change of nitrogen and COD removal efficiency in R_H and R_L reactors during operation

由图2可以看出,在 R_H 反应器的第I~III阶段(1~60 d)和 R_L 反应器的第I~V阶段(1~100 d),上升流速从0.25 m/h逐渐提升至0.41 m/h的过程中,除在提升初期去除率出现一定的波动外,两反应器对 NO_3^- -N的平均去除率分别为97.3%和98.2%,对COD的平均去除率分为92.6%和96.1%, NO_2^- -N平均积累量分别为1.5 mg/L和1.6 mg/L左右, R_H 和 R_L 反应器的去除性能与刘晓宇等^[15]的研究相似,去除性能均稳定在较高的水平。当 R_H 反应器运行至第IV阶段(61~80 d),上升流速提升至0.49 m/h, COD去除率在前5 d下降至73.1%左右,在第66天后又恢复到92.4%左右, NO_2^- -N积累较多,平均为16.3 mg/L。由于 R_H 反应器在上升流速为0.49 m/h下持续运行的20 d内没有明显恢复的迹象,将上升流速调低运行,其去除性能逐渐得到恢复。而在第VI~VII阶段(101~140 d) R_L 反应器的上升流速逐渐提升至0.49 m/h,但 NO_3^- -N和COD平均去除率仍保持在

98.7%和94.7%左右, NO_2^- -N积累量为2.1 mg/L,仍保持在较低水平。

2.2 污泥生物量的变化

在不同上升流速提升策略下, R_H 和 R_L 反应器中污泥MLSS、MLVSS、MLVSS/MLSS的变化如图3。

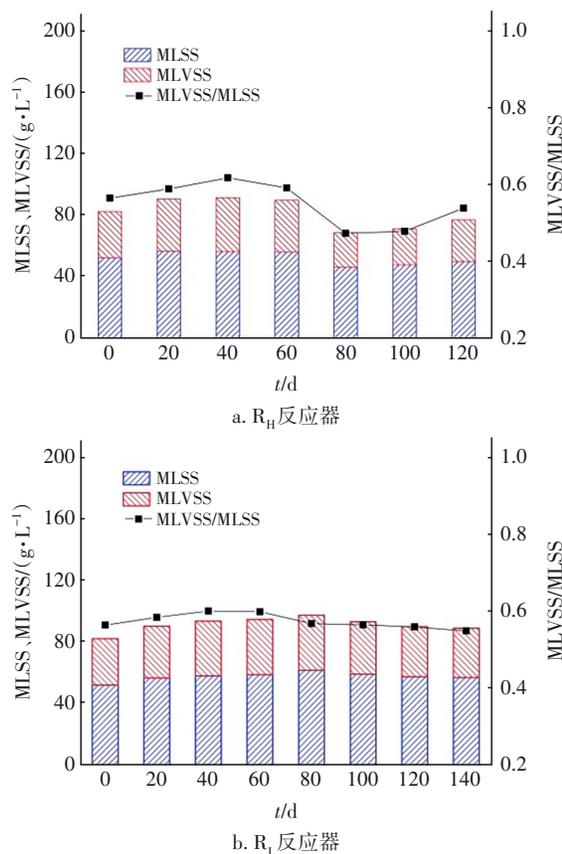


图3 R_H 和 R_L 反应器MLSS、MLVSS和MLVSS/MLSS的变化
Fig.3 Change of MLSS, MLVSS and MLVSS/MLSS in R_H and R_L reactors

由图3可以看出,在第I阶段(1~20 d), R_H 和 R_L 反应器的上升流速均为0.25 m/h,其MLSS和MLVSS浓度从接种污泥的52.8 g/L和29.9 g/L增长为57.1 g/L和33.6 g/L左右,MLVSS/MLSS从0.56增加为0.59左右; R_H 反应器在第II~III阶段(21~60 d)和 R_L 反应器在第II~V阶段(21~100 d),上升流速从0.25 m/h提升至0.41 m/h,两反应器内的MLSS、MLVSS和MLVSS/MLSS均变化较小,这表明 R_H 和 R_L 反应器内微生物的增加和消亡处于相对动态平衡的状态,上升流速的改变对于污泥生物量的影响较小。但当 R_H 反应器运行至第IV阶段(61~80 d),上升流速提升为0.49 m/h,由于污泥流失导致MLSS、MLVSS和MLVSS/MLSS分别下降为46.83 g/L、22.23 g/L和0.47;当 R_H 反应器运行至第V~VI阶

段(81~120 d),上升流速逐渐下降为 0.41 m/h, MLSS、MLVSS 和 MLVSS/MLSS 得到一定恢复。而在第 VI~VII 阶段(101~140 d),尽管 R_L 反应器的上升流速逐渐提升为 0.49 m/h,但其 MLSS、MLVSS 和 MLVSS/MLSS 变化较小。

2.3 污泥粒径和跨度的变化

在不同上升流速提升策略下, R_H 和 R_L 反应器运行过程中颗粒污泥粒径分布变化如图 4 所示。

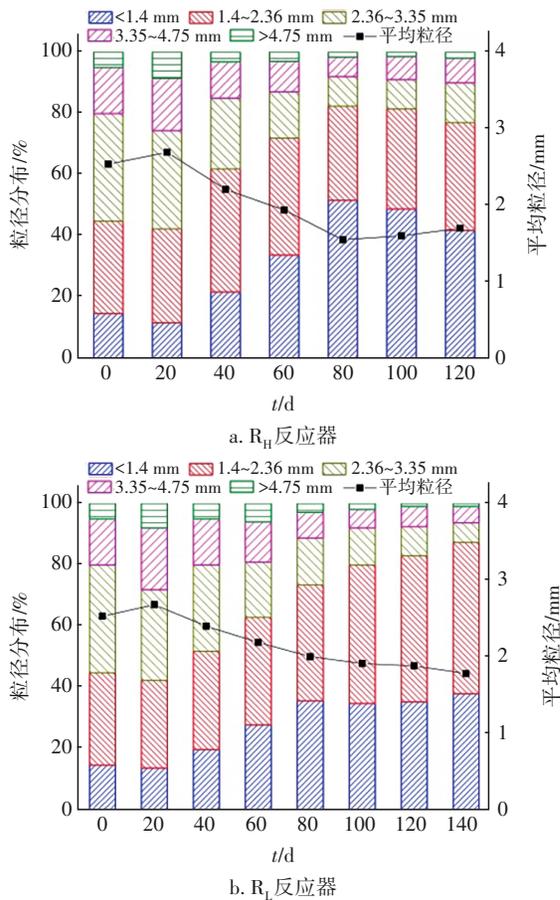


图 4 R_H 和 R_L 反应器颗粒污泥粒径分布的变化

Fig.4 Change of granular sludge diameter distribution in R_H and R_L reactors

在第 I 阶段(1~20 d),两反应器颗粒污泥粒径相较于接种污泥均稍有增大。在第 II~III 阶段(21~60 d), R_H 反应器颗粒污泥粒径 <1.4 mm 和 1.4~2.36 mm 的占比分别从 12% 和 30.5% 上升为 34% 和 38%,颗粒粒径为 2.36~3.35、3.35~4.75、>4.75 mm 占比分别从 32%、17%、8.5% 逐渐降低为 15%、10%、3%。在第 II~V 阶段(21~100 d), R_L 反应器颗粒污泥粒径 <1.4 mm 和 1.4~2.36 mm 占比分别从 14%、28.5% 上升为 35.9%、37.6%,颗粒粒径为

2.36~3.35、3.35~4.75、>4.75 mm 占比分别从 29.5%、20%、8% 逐渐降低为 15.3%、8.3%、2.9%。 R_H 和 R_L 反应器平均粒径从 2.69 mm 和 2.7 mm 分别下降为 1.95 mm 和 1.92 mm。 R_H 反应器运行至第 IV 阶段(61~80 d),颗粒污泥粒径 <1.4 mm 占比上升为 51.8%,占比最高,颗粒粒径为 1.4~2.36、2.36~3.35、3.35~4.75、>4.75 mm 占比降低为 30.6%、9.6%、6.4% 和 1.6%。在第 V~VI 阶段(81~120 d), R_H 反应器的上升流速逐渐降低为 0.41 m/h,颗粒粒径出现一定增大。而 R_L 反应器运行至第 VI~VII 阶段(101~140 d),上升流速提升为 0.49 m/h 时,颗粒污泥粒径为 1.4~2.36 mm 的占比上升为 49.2%,成为主要占比的颗粒粒径。 R_H 和 R_L 反应器平均粒径在上升流速提升过程中呈现下降趋势,上升流速为 0.49 m/h 时,两反应器污泥平均粒径从接种污泥的 2.54 mm 分别下降为 1.56 mm 和 1.79 mm。

在不同上升流速提升策略下, R_H 和 R_L 反应器运行过程中颗粒粒径跨度变化如图 5 所示。粒径的跨度可以表示粒径的分布情况,跨度值越小,表明粒径分布越均匀。

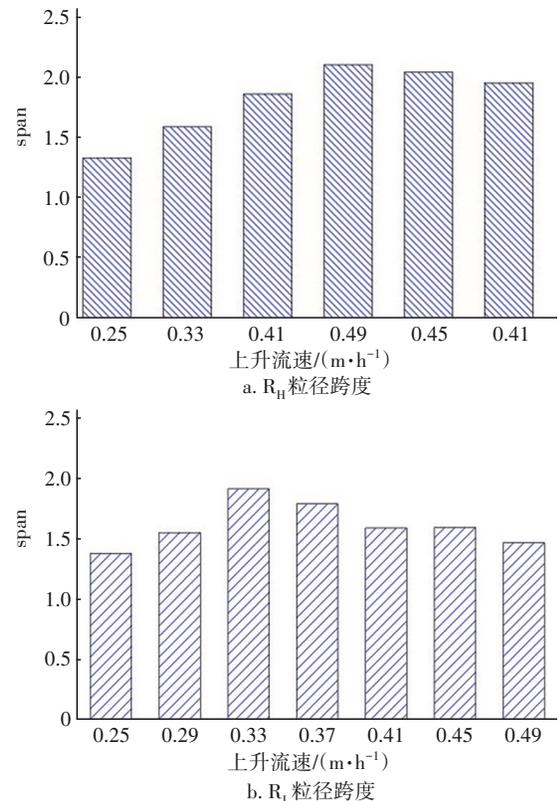


图 5 R_H 和 R_L 反应器颗粒污泥粒径跨度的变化

Fig.5 Change of granular sludge diameter span in R_H and R_L reactors

由图5可以看出, R_H 反应器在上升流速从0.25 m/h提升至0.49 m/h的过程中, 污泥粒径跨度值从1.34逐渐增加为2.11; 当上升流速逐渐下降至0.41 m/h时, 污泥粒径跨度值下降为1.96。而 R_L 反应器上升流速从0.25 m/h提升至0.33 m/h时, 污泥粒径跨度值从1.34增加为1.91; 当上升流速进一步提升至0.49 m/h时, 污泥粒径跨度值逐渐下降为1.47。由此可见, 慢速提升策略下的颗粒污泥粒径分布比快速提升策略下的更均匀。

2.4 污泥EPS的变化

EPS主要是由PN和PS构成的高分子聚合物, 其对于微生物团聚和维持颗粒的稳定性具有重要作用^[16-17]。在不同上升流速提升策略下, R_H 和 R_L 反应器污泥各EPS组分含量的变化如图6所示。

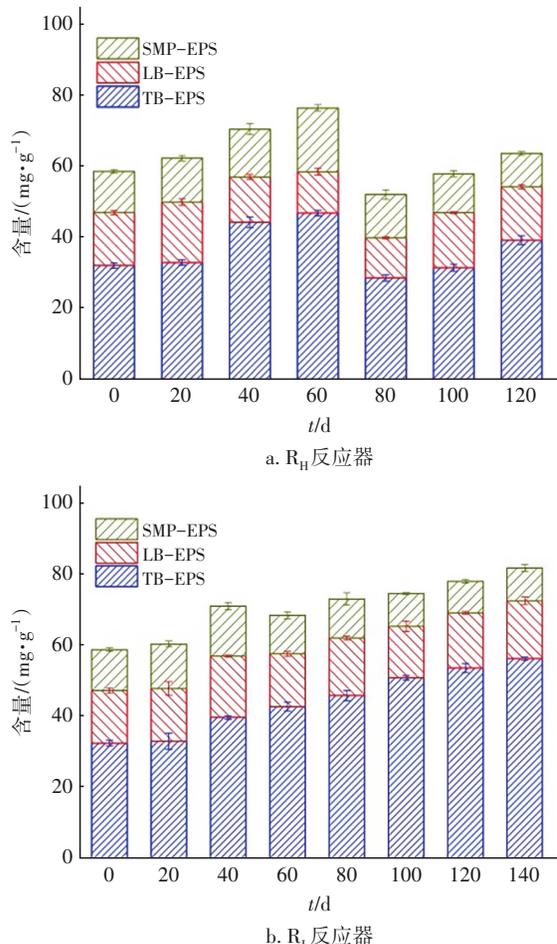


图6 R_H 和 R_L 反应器污泥EPS及其组分的变化

Fig.6 Change of EPS and its components during operation in R_H and R_L reactors

R_H 反应器在第I~III阶段(1~60 d)和 R_L 反应器在第I~V阶段(1~100 d), 上升流速从0.25 m/h提

升至0.41 m/h, EPS总量从(58.7±2.9) mg/g分别增加为(76.4±2.1)、(74.5±1.7) mg/g, 其中TB-EPS含量从(32.4±0.8) mg/g分别增加为(47.1±0.8)、(50.8±1.3) mg/g。运行至第IV阶段(61~80 d), R_H 反应器污泥EPS总量和TB-EPS含量分别降低为(52.27±3.1)、(28.9±0.9) mg/g; 在第V~VI阶段(81~120 d), 上升流速逐渐降低为0.41 m/h, EPS总量和TB-EPS含量逐渐恢复为(64.1±2.3)、(42±1.1) mg/g, 即上升流速的降低使得EPS含量呈现一定的恢复。而在第VI~VII阶段(101~140 d), R_L 反应器污泥EPS总量和TB-EPS含量分别进一步上升为(81.7±2.6)、(56.2±0.4) mg/g。上述结果说明, 除 R_H 反应器在第IV阶段(61~80 d)出现污泥崩解导致一定EPS流失外, 上升流速的提升能够促进污泥EPS含量的增加, 其中TB-EPS的占比为主, 这与李文哲等人^[11]的研究一致。

在不同上升流速提升策略下, R_H 和 R_L 反应器污泥TB-EPS含量有较明显变化, 在上升流速为0.49 m/h下, R_H 和 R_L 反应器污泥TB-EPS含量出现明显的不同, 为了进一步了解TB-EPS的具体组分, 对接种污泥、 R_H 反应器第80天污泥(命名为 R_{H-80d})和 R_L 反应器第140天污泥(命名为 R_{L-140d})的TB-EPS进行三维荧光测试, 并使用平行因子(PARAFAC)分析各污泥主要的3种荧光组分。结果表明, 接种污泥TB-EPS主要含有以下3种组分: 组分1(Em/Ex为340 nm/285 nm)、组分2(Em/Ex为470 nm/270 nm)、组分3(Em/Ex为440 nm/240 nm), 分别代表类色氨酸(2 352 a. u.)、类腐殖酸(1 057 a. u.)和类富里酸(726 a. u.); R_{H-80d} 污泥TB-EPS中主要含有以下3种组分^[18]: 组分1(Em/Ex为340 nm/285 nm)、组分2(Em/Ex为355 nm/280 nm)、组分3(Em/Ex为440 nm/240 nm), 分别代表类酪氨酸(3 922 a. u.)、类色氨酸(1 539 a. u.)和类富里酸(364 a. u.); R_{L-140d} 污泥TB-EPS主要含有以下3种组分: 组分1(Em/Ex为340 nm/285 nm)、组分2(Em/Ex为340 nm/280 nm)、组分3(Em/Ex为440 nm/240 nm), 分别代表类色氨酸(5 885 a. u.)、类色氨酸(1 600 a. u.)和类富里酸(863 a. u.)。实验发现, R_{L-140d} 颗粒中类蛋白质物质的荧光强度为7 485 a. u., 明显高于接种污泥和 R_{H-80d} 的2 352 a. u. 和5 461 a. u.。

2.5 污泥菌群的变化

采用高通量测序对接种污泥、 R_{H-80d} 和 R_{L-140d} 污

泥的微生物群落进行分析,不同颗粒污泥的 α 多样性分析结果如表1所示,Coverage表示样品被检测出序列的概率,Shannon、Simpson指数反映了微生物群落物种的多样性,ACE、Chao1指数用以评估物种的丰度,OTUs表示群落中丰度大于0的物种数之和。样品的Coverage均为99%,说明样品中未被检测出的序列的概率较低。由Shannon指数和Simpson指数的变化可知, R_{H-80d} 污泥的物种多样性降低,而 R_{L-140d} 污泥的物种多样性升高。 R_{H-80d} 的ACE指数和Chao1指数降低,而 R_{L-140d} 的ACE、Chao1指数相较于接种污泥变化较小,说明 R_{H-80d} 污泥物种丰度降低。以上结果表明,与接种污泥相比, R_H 反应器污泥的流失导致菌群的丰度和多样性均出现不同程度的降低,而 R_L 反应器污泥的丰度和多样性变化较小。

表1 不同颗粒污泥的 α 多样性Tab.1 α diversity of different granular sludges

样品	Shannon	Simpson	ACE	Chao1	OTUs
接种污泥	3.16	0.17	316.1	326.2	303
R_{H-80d}	3.44	0.07	301.9	311.6	286
R_{L-140d}	2.89	0.18	313.5	324.4	301

将微生物相对丰度 $>1\%$ 的菌门作为主要菌门,其相对丰度分布如图7(a)所示。共检测出7个主要菌门,分别为Proteobacteria(变形菌门)、Bacteroidetes(拟杆菌门)、Chloroflexi(绿弯菌门)、Firmicutes(厚壁菌门)、Ignavibacteriae(伊格氏杆菌门)、Planctomycetes(浮霉菌门)、Acidobacteria(酸杆菌门)。在所检测的样品中,Proteobacteria的占比均超过了70%,Zhang等^[19]研究发现,大部分反硝化菌为Proteobacteria;在 R_{L-140d} 中,Firmicutes的占比从接种污泥的5.9%上升至6.7%,而在 R_{H-80d} 中降为1.9%,研究表明,Firmicutes可以在厌氧条件下利用 NO_2^- -N进行脱氮^[20];此外, R_{L-140d} 中Planctomycetes占比由接种污泥的1.1%上升为7.1%,而在 R_{H-80d} 中降为0.29%,Planctomycetes被报道是一种与反硝化速率呈正相关的菌门^[21]。

由图7(b)可知,在颗粒污泥中检测出的主要的反硝化菌是Hyphomicrobium^[22](生丝微菌属)和Paracoccus^[23](副球菌属)。其中Hyphomicrobium被报道是一种能以甲醇为碳源的反硝化菌属^[22],其在 R_{H-80d} 中的占比从接种污泥的40.8%下降为20.3%,而在 R_{L-140d} 中变化较小。Paracoccus在 R_{H-80d} 和

R_{L-140d} 污泥中的占比分别从接种污泥的0.61%上升为6.3%和9.92%。此外,Acetoanaerobium在 R_{L-140d} 污泥中的占比从接种污泥的3.33%上升为5.95%,而在 R_{H-80d} 污泥中下降为0.97%,据报道该菌是一种产乙酸菌^[24]。

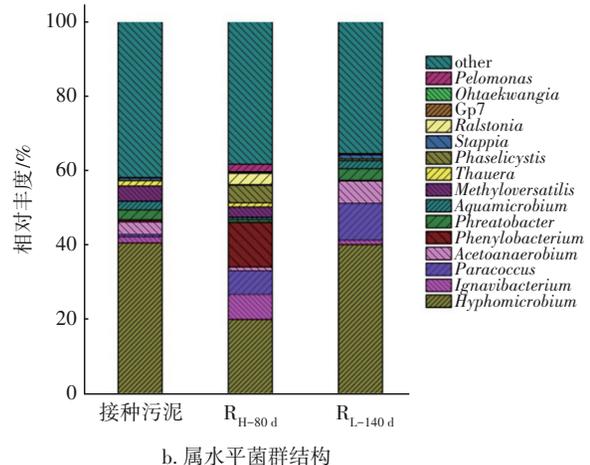
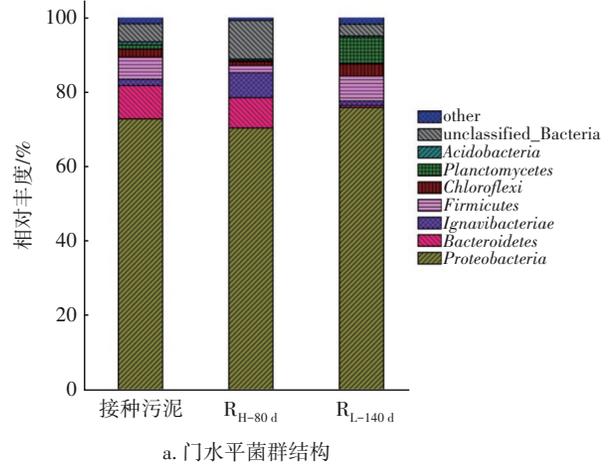


图7 不同颗粒污泥在门水平和属水平的菌群结构

Fig.7 Microbial community structure of different granular sludges at the level of phylum and genus

3 讨论

反应器内颗粒污泥性能的稳定由污泥本身和环境因素共同决定,其中反应器内部的水力条件是重要环境影响因素之一。通过调控反应器内部的上升流速,改变反应器内微生物生存环境和物料能量传递,进而影响了颗粒污泥的微生物代谢、粒径分布、EPS分泌和微生物菌群的变化。本研究在控制HRT、进水浓度和氮负荷不变的条件下,在反硝化颗粒污泥USB反应器内分别采用快速提升(R_H)和慢速提升(R_L)两种不同上升流速提升策略,当上升流速提升至0.49 m/h时, R_H 反应器的COD平均去

除率在运行前5 d下降至73.1%左右, NO_2^- -N平均积累量达到16.3 mg/L(见图2), 结合反应器污泥生物量(见图3)和EPS含量的变化(见图6), 在该阶段由于污泥和EPS产生一定流失, 使得反应器的反硝化性能受到限制, 导致 R_{II} 反应器的COD去除率出现短暂下降和 NO_2^- -N积累的现象。

值得注意的是, R_{II} 和 R_I 反应器颗粒污泥粒径分布在不同提升策略下同样出现明显不同(见图4), R_I 反应器粒径为1.4~2.36 mm的颗粒占比逐渐增加, 没有出现 R_{II} 反应器明显下降的现象。 R_I 反应器通过降低上升流速提升的幅度, 给予污泥更多时间去调节适应, 提升了颗粒污泥的强度和适应能力, 来应对上升流速提升带来的剪切力影响造成的粒径下降。同时, 从颗粒污泥粒径跨度分布来看, R_{II} 反应器颗粒粒径跨度从1.34逐渐增加为2.11, 而 R_I 反应器污泥粒径分布跨度从1.34先增加至1.91再逐渐减小为1.47, R_I 反应器内颗粒污泥在上升流速提升过程中, 其粒径分布趋向均匀, 推测粒径分布情况是影响 R_I 反应器颗粒污泥稳定性因素之一, 后续可能需要进一步的研究验证。

本研究表明, EPS含量的变化可能是造成 R_{II} 和 R_I 反应器出现不同现象的重要原因之一。Wu等^[25]研究发现, 反应器内部剪切力的增加, 加大了颗粒污泥之间摩擦, 会导致颗粒污泥EPS含量出现部分脱落减少, 这与 R_{II} 和 R_I 反应器流速提升初期出水COD出现不同程度升高的现象相吻合。也有研究发现, 当污泥EPS出现流失时会给微生物传递信号, 迫使微生物去分泌更多的EPS以维持原有稳定的状态^[26], 其中 R_{II} 反应器的上升流速提升策略破坏了这个平衡, 造成污泥性能的变化。其中, TB-EPS是黏附在微生物细胞表面荚膜的聚合物, 刘晓猛^[26]采用DLVO理论分析颗粒微生物相互作用的机理, 证明了TB-EPS对于微生物维持稳定絮凝的贡献高于SMP-EPS和LB-EPS, 且EPS内蛋白质类物质起到主要作用。在上升流速为0.49 m/h下, R_I 反应器污泥TB-EPS达到(56.2±0.4) mg/g, 明显高于 R_{II} 反应器的(28.9±0.9) mg/g。同时, R_I 反应器污泥中类蛋白质物质的荧光强度明显高于 R_{II} 反应器污泥和接种污泥。因此, 慢速提升策略使得TB-EPS在 R_I 反应器内逐渐富集是其维持污泥稳定性的原因, 而 R_{II} 反应器中TB-EPS含量的迅速下降是造成其稳定性变差的原因。此外, Zhang等^[27]研究表明 NO_2^- -N长

期积累会对EPS产生破坏, 抑制微生物的活性, R_{II} 反应器在反硝化活性下降后产生的 NO_2^- -N长期积累进一步加快了颗粒污泥的裂解。

从生物多样性的角度, 在不同的运行策略下, 相较于接种污泥, R_{II} 反应器污泥的破碎流失导致了生物菌群和丰度的降低, 而 R_I 反应器污泥的变化较小。在门水平上, 相较于接种污泥, 在厌氧条件下利用 NO_2^- -N进行脱氮的*Firmicutes*和利于反硝化的*Planctomycetes*在 R_I 反应器出现不同程度的增加, 而在 R_{II} 反应器出现不同程度的下降。说明 R_I 反应器的慢速提升策略有利于*Firmicutes*和*Planctomycetes*的富集, 促进了反应器反硝化性能的稳定。在属水平上, 相较于接种污泥, 以甲醇为碳源的反硝化菌属*Hyphomicrobium*的丰度在 R_{II} 反应器中出现明显降低, 而在 R_I 反应器中变化较小, R_{II} 反应器的快速提升策略对*Hyphomicrobium*产生较大的冲击破坏作用, 使得反硝化性能和污泥性能恶化。*Paracoccus*丰度在两个反应器均出现增加, 其中 R_I 反应器增加更明显, *Paracoccus*是一种环境适应能力较强的反硝化菌属^[23], 推测*Paracoccus*的富集对反硝化颗粒污泥在高上升流速环境下维持稳定性具有重要意义。此外, *Acetoanaerobium*的丰度在 R_I 反应器污泥中上升为5.95%, 而在 R_{II} 反应器中下降至0.97%, 该菌属在缺氧条件下可以将 CO_2 合成乙酸^[24], 一方面它合成的乙酸可以作为一些反硝化菌属的电子供体, 同时还可以中和一部分反硝化产生的碱度, 有利于维持反硝化颗粒污泥反应器的稳定性。

在一定的上升流速范围内, 反硝化颗粒污泥USB反应器内适宜幅度的上升流速提升, 对于反应器性能和颗粒污泥特性均有着积极的影响, 但当上升流速超出反应器承受范围则会导致反应器性能和颗粒污泥的恶化。在本研究中所采取的慢速提升上升流速策略可使反硝化颗粒污泥USB反应器承受更高上升流速。

4 结论

① 以成熟的反硝化颗粒污泥为接种污泥, 在USB反应器内分别采取不同的上升流速提升方式, 当上升流速提升至0.49 m/h时, 快速提升策略反应器的COD去除率在运行初期出现下降和 NO_2^- -N平均积累量升高, 而慢速提升策略反应器则能保持稳定的 NO_3^- -N和COD去除率和较低的 NO_2^- -N积

累量。

② 相较于快速提升策略,慢速提升策略对颗粒的破坏更小,颗粒粒径主要分布在 1.4~2.36 mm,粒径分布更均匀。同时慢速提升策略还促进了以 TB-EPS 为主的 EPS 含量的增加,其中类蛋白质物质增加明显。

③ 慢速提升流速策略能够促进有利于反硝化的 *Firmicutes* 和 *Planctomycetes* 门以及 *Paracoccus* 和 *Acetoanaerobium* 属的富集,有利于反硝化颗粒污泥 USB 反应器在较高上升流速下保持运行的稳定性。

参考文献:

- [1] NIU W, GUO J, LIAN J, *et al.* Rapid start-up of denitrifying granular sludge by dosing with semi-starvation fluctuation C/N ratio strategy [J]. *Bioresource Technology*, 2017, 241: 945-950.
- [2] 唐朝春, 刘名, 陈惠民, 等. 好氧颗粒污泥的形成及其应用的研究进展[J]. *工业水处理*, 2015, 35(12): 5-9.
TANG Chaochun, LIU Ming, CHEN Huimin, *et al.* Research progress in the formation of aerobic granular sludge and its application [J]. *Industrial Water Treatment*, 2015, 35(12): 5-9(in Chinese).
- [3] 张文静, 刘彤宙, 董文艺, 等. 好氧颗粒污泥与膜生物反应器组合工艺处理城市生活污水[J]. *环境工程*, 2019, 37(3): 55-60.
ZHANG Wenjing, LIU Tongzhou, DONG Wenyi, *et al.* Combined process of aerobic granular sludge and membrane bioreactor for municipal sewage treatment [J]. *Environmental Engineering*, 2019, 37(3): 55-60 (in Chinese).
- [4] 王淑静, 裴同英, 王文琴, 等. 葡萄糖对厌氧颗粒污泥产氢发酵产氢特性的影响[J]. *中国给水排水*, 2017, 33(13):108-112.
WANG Shujing, PEI Tongying, WANG Wenqin, *et al.* Effect of glucose concentration on fermentative hydrogen production from anaerobic granular sludge [J]. *China Water & Wastewater*, 2017, 33 (13) : 108-112 (in Chinese).
- [5] LIU W, LIAN J, GUO J, *et al.* Perchlorate reduction by anaerobic granular microbial community [J]. *Bioresource Technology Reports*, 2019, 8:100312.
- [6] CHEN C, YAO X, LI Q, *et al.* Turf soil enhances treatment efficiency and performance of phenolic wastewater in an up-flow anaerobic sludge blanket reactor [J]. *Chemosphere*, 2018, 204: 227-234.
- [7] 马海玲, 郑明月, 龚淑芬, 等. 不同乙酸钠浓度对 UASB 中颗粒污泥形成的影响[J]. *环境工程学报*, 2016, 10(3): 1065-1069.
MA Hailing, ZHENG Mingyue, GONG Shufen, *et al.* Effects of different concentrations of sodium acetate on granulation of sludge in UASB reactor [J]. *Chinese Journal of Environmental Engineering*, 2016, 10 (3) : 1065-1069(in Chinese).
- [8] CHENG Y, ZHANG Q, LI G, *et al.* Long-term effects of copper nanoparticles on granule-based denitrification systems: performance, microbial communities, functional genes and sludge properties [J]. *Bioresource Technology*, 2019, 289: 121707.
- [9] NIU W, GUO J, LIAN J, *et al.* Effect of fluctuating hydraulic retention time (HRT) on denitrification in the UASB reactors [J]. *Biochemical Engineering Journal*, 2018, 132: 29-37.
- [10] 严峰. 上升流速及基质供给对 Anammox 反应器脱氮的影响研究[D]. 西安: 西安建筑科技大学, 2017.
YAN Feng. Effect of Upward-flow Velocity and Substrate Supplying in an Anammox-UASB[D]. Xi'an: Xi'an University of Architecture and Technology, 2017 (in Chinese).
- [11] 李文哲, 鞠文聪, 刘爽, 等. 料液上升流速对厌氧产氢颗粒污泥的影响[J]. *东北农业大学学报*, 2019, 50(8): 78-86.
LI Wenzhe, JU Wencong, LIU Shuang, *et al.* Effect of liquid upflow velocity on the anaerobic hydrogen-producing granular sludge [J]. *Journal of Northeast Agricultural University*, 2019, 50(8): 78-86 (in Chinese).
- [12] LIANG Z, LIU J. Control factors of partial nitrification for landfill leachate treatment[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2007, 19(5): 523-529.
- [13] ZHOU J, ZHANG Z, ZHAO H, *et al.* Optimizing granules size distribution for aerobic granular sludge stability: effect of a novel funnel-shaped internals on hydraulic shear stress [J]. *Bioresource Technology*, 2016, 216: 562-570.
- [14] WEI L, WANG K, ZHAO Q, *et al.* Fractional, biodegradable and spectral characteristics of extracted and fractionated sludge extracellular polymeric substances[J]. *Water Research*, 2012, 46(14): 4387-

- 4396.
- [15] 刘晓宇, 郭延凯, 马志远. 等. 硝酸盐反硝化颗粒污泥的快速培养与理化特性[J]. 环境工程学报, 2016, 10(3):1300-1304.
LIU Xiaoyu, GUO Yankai, MA Zhiyuan, *et al.* Rapid cultivation and physicochemical characteristic of nitrate denitrification granular sludge [J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2016, 10 (3) : 1300-1304 (in Chinese).
- [16] 王朝朝, 马骏, 殷春雨, 等. 反硝化颗粒污泥培养及工艺快速启动[J]. 中国给水排水, 2021, 37(23):1-8.
WANG Zhaozhao, MA Jun, YIN Chunyu, *et al.* Cultivation and fast start-up of denitrifying granular sludge [J]. China Water & Wastewater, 2021, 37 (23) : 1-8(in Chinese).
- [17] SHI Y, LIU Y. Evolution of extracellular polymeric substances (EPS) in aerobic sludge granulation: composition, adherence and viscoelastic properties [J]. Chemosphere, 2021, 262: 128003.
- [18] 窦川川, 刘玉玲, 赵鹏鹤, 等. 碱预处理对剩余污泥DOM的溶出特征及平行因子分析[J]. 中国给水排水, 2021, 37(19): 14-21.
DOU Chuanchuan, LIU Yuling, ZHAO Penghe, *et al.* Effect of alkaline pretreatment on DOM dissolution characteristics of excess sludge and parallel factor analysis [J]. China Water & Wastewater, 2021, 37 (19): 14-21(in Chinese).
- [19] ZHANG F F, MA C J, HUANG X F, *et al.* Research progress in solid carbon source-based denitrification technologies for different target water bodies [J]. Science of the Total Environment, 2021, 782: 146669.
- [20] KONDAVEETI S, LEE S H, PARK H D, *et al.* Bacterial communities in a bioelectrochemical denitrification system: the effects of supplemental electron acceptors [J]. Water Research, 2014, 51: 25-36.
- [21] KELUSKAR R, NERURKAR A, DESAI A. Development of a simultaneous partial nitrification, anaerobic ammonia oxidation and denitrification (SNAD) bench scale process for removal of ammonia from effluent of a fertilizer industry [J]. Bioresource Technology, 2013, 130: 390-397.
- [22] WANG H, CHEN N, FENG C, *et al.* Insights into heterotrophic denitrification diversity in wastewater treatment systems: progress and future prospects based on different carbon sources [J]. Science of the Total Environment, 2021, 780: 146521.
- [23] QU Z, LARS R B, LARS M, *et al.* Transcriptional and metabolic regulation of denitrification in *Paracoccus denitrificans* allows low but significant activity of nitrous oxide reductase under oxic conditions [J]. Environmental Microbiology, 2016, 18 (9) : 2951-2963.
- [24] HUA T, LI S, LI F, *et al.* Degradation performance and microbial community analysis of microbial electrolysis cells for erythromycin wastewater treatment [J]. Biochemical Engineering Journal, 2019, 146: 1-9.
- [25] WU J, BI L, ZHANG J, *et al.* Effects of increase modes of shear force on granule disruption in upflow anaerobic reactors [J]. Water Research, 2012, 46 (10) : 3189-3196.
- [26] 刘晓猛. 微生物聚集体的相互作用及形成机制[D]. 合肥: 中国科学技术大学, 2008.
LIU Xiaomeng. Interactions and Formation Mechanisms of Microbial Aggregates [D]. Hefei: University of Science and Technology of China, 2008(in Chinese).
- [27] ZHANG T, WANG Q, KHAN J, *et al.* Free nitrous acid breaks down extracellular polymeric substances in waste activated sludge [J]. RSC Advances, 2015, 54 (5): 43312-43318.

作者简介:季飞(1997-),男,安徽芜湖人,硕士,主要从事水污染控制研究。

E-mail:jifeiqwer@163.com

收稿日期:2022-06-16

修回日期:2022-07-04

(编辑:李德强)