

紫外、磁化和超声对超滤膜表面微生物污染的影响

张晓岚, 王卫军, 潘俊杰, 金其祥, 温颖, 杨旭, 尚风雷
(北京市自来水集团有限责任公司 北京市供水水质工程技术研究中心, 北京
100089)

摘要: 探讨了紫外、磁化和超声3种技术措施对超滤膜污染的影响,并对3个样品及对照样品(仅超滤)的膜表面微生物16S rRNA基因进行高通量测序,分析其微生物群落结构的组成、丰度及多样性,通过PCR图和热图对比3种技术对膜表面微生物的影响。结果表明,紫外—超滤的膜表面微生物群落总数和种类与其他样品相比有明显差异,其群落总数仅是对照样品的30%,群落种类个数也明显减少;4个样品的微生物在门水平上主要以 *Proteobacteria*、*Planctomycetes*、*Bacteroidetes*和 *Acidobacteria* 为优势类群,在属水平上则主要以 *SM1A02*、*Planctomyces*、*Pirellula* 和 *Amphiplicatus*为优势菌属。样品之间存在着共同的微生物类群,但也存在不同的微生物类群,其中紫外—超滤膜表面的生丝微菌(*Hyphomicrobium*)也是其优势菌属;从运行效果上看,紫外因其减少了超滤膜的微生物污染可有效降低TMP。

关键词: 超滤; 膜污染; 紫外; 磁化; 超声; 生物多样性

中图分类号: TU991 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-4602(2019)19-0082-06

Effects of UV, Magnetization and Ultrasonic on Microbial Contamination on Ultrafiltration Membrane Surface

ZHANG Xiao-lan, WANG Wei-jun, PAN Jun-jie, JIN Qi-xiang, WEN Ying, YANG Xu,
SHANG Feng-lei

(Beijing Engineering Research Center for Drinking Water Quality, Beijing Waterworks Group Co.
Ltd., Beijing 100089, China)

Abstract: The effects of UV, ultrasonic and magnetization techniques on ultrafiltration membrane fouling were investigated. High-throughput sequencing of microbial 16S rRNA gene on the surface of ultrafiltration membrane was carried out to analyze the composition, abundance and diversity of microbial community structure. PCR and heat plots were used to compare the effects of three techniques on microorganism of the membrane surface. The results showed that the total number and types of microbial colonies on the surface of the UV-ultrafiltration (UV-UF) membrane were significantly different from those of other samples. The total number of colonies of UV group was 30% of the ultrafiltration membrane, and the number of community species was also significantly reduced. *Proteobacteria*, *Planctomycetes*, *Bacteroidetes* and *Acidobacteria* were dominant groups at the phylum level, and *SM1A02*, *Planctomyces*, *Pirellula* and *Amphiplicatus* were dominant at the genus level. It was not only the same microbial groups among the samples, but also had the different microbial groups. Among them,

Hyphomicrobium on the surface of the UV - UF membrane also became the dominant genus. On the operational effect, UV could effectively reduce TMP because it reduced the microbial contamination of ultrafiltration membrane.

Key words: ultrafiltration; membrane fouling; UV; magnetization; ultrasound; biodiversity

超滤膜因出水水质稳定、占地面积小、能耗低等优点已逐步成为替代传统处理工艺的适宜选择。然而,膜污染问题一直是膜科研人员所面临的最大挑战。莫罹等人^[1]分析膜丝表面污染是由微生物、有机物、无机物相互作用而形成的;Kimura 等人^[2]认为类多糖类有机物具有很强的亲和力,可优先吸附在膜上,是造成不可逆膜污染的主要原因;朱建文等人^[3]发现铁、锰等金属离子容易在膜丝表面形成氧化物结垢,从而造成膜污染。

紫外技术可以有效灭活微生物,且具有高效、广谱性好、无消毒副产物等优点,在污水处理和给水处理中均有较广泛的应用,并逐渐成为具有推广前景的工艺。但在给水处理中目前多用于消毒,将其用于控制超滤膜污染在国内外均未见报道。

磁化技术已在家庭和工业用水系统中得到了广泛应用,取得了显著的经济效益。磁场可以影响水溶液的一些物理化学性质,如 pH 值、电导率、表面张力以及胶体颗粒的 ζ 电位等^[4]。磁场能影响成垢物质的结晶过程,即成核过程和晶体生长过程,从而改变结晶数量及晶粒大小。强磁场直接作用于细菌细胞内的水和酶,使酶钝化或失活,破坏了细胞的离子通道,使其丧失了原生存环境,从而达到杀灭细菌、藻类等微生物的目的。

超声波在媒质中传播时会产生空化泡共振效应、高温裂解效应、自由基氧化效应和微射流剪切效应,这4种物理化学效应使得超声波广泛应用于清洗领域。另外,它对微生物的生理活性和细胞结构也会产生影响^[5]。

研究显示上述3种技术措施对微生物都有不同程度的影响,但很少有人用来考察其对膜表面微生物污染的影响,笔者从这个角度出发将3种技术措施与超滤膜联用,通过高通量测序技术对膜表面微生物多样性进行了探讨。

1 材料与方法

1.1 原水水质

试验原水取自北京某水厂的活性炭滤池出水,

水质情况如下:浊度为0.16 ~ 0.32 NTU、耗氧量(COD_{Mn})为1.12 ~ 1.64 mg/L、pH 值为7.21 ~ 7.88、 UV_{254} 为0.01 ~ 0.019 cm^{-1} 、TOC 为2.35 ~ 2.92 mg/L。

1.2 试验装置

膜装置主要由膜组件及膜池、产水泵、空压机及电控箱等组成。超滤膜组件是中空浸没式膜组件,膜材质为PVDF,膜孔径为0.03 μm ,膜丝内径/外径为0.7/1.2 mm,膜面积为35 m^2 ,恒定膜通量为45 $\text{L}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$ 。超滤膜为筒式膜,上端出水,下端气洗。操作方式为抽吸过滤,曝气强度为18 m^3/h ,气洗时间为30 s,水洗流量为10 m^3/h ,气水洗时间为30 s。紫外设备由特洁安公司生产,型号为PRO10,主要包括紫外发生系统和紫外监视系统,紫外投加剂量为40 mJ/cm^2 ;磁化器由N、S两块磁铁构成磁场,过水铜管在磁场内盘成一定形状并穿过磁场,在过水铜管的上、下两侧可以放置隔板,通过调节隔板的数量来调整磁场的强度,磁场强度的可调范围为700 ~ 2 800 mT;超声波发生器由调节器和振动棒构成,频率为40 kHz,功率为900 W,振动棒由两个 $\varnothing 61 \text{ mm} \times 500 \text{ mm}$ 的不锈钢棒组成,超声波置于膜池内,在膜过滤时开启、膜反洗时停止。具体工艺流程见图1。

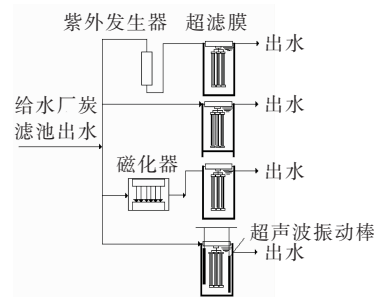


图1 工艺流程

Fig. 1 Flow chart of treatment process

1.3 膜表面生物群落结构分析方法

超滤膜正常运行20 d后取出膜丝,随机选取6根,每根10 ~ 20 cm。分别取500 mL 无菌水对膜表

面污泥反复冲洗,收集泥水混合液于干净无菌的离心管中,于4℃、12 000 r/min条件下离心10 min。弃上清液,混匀沉淀物后取1 g新鲜沉淀物立刻进行DNA的提取。

采用mp试剂盒进行DNA提取,将基因组DNA抽提后,用1%琼脂糖凝胶电泳检测DNA。采用引物515F_907R进行16S rRNA基因聚合酶链式反应(PCR)扩增。全部样品按照正式试验条件进行,每个样品重复3次,将同一样品的PCR产物混合后用2%琼脂糖凝胶电泳检测,使用AxyPrep DNA凝胶回收试剂盒切胶回收PCR产物,Tris-HCl洗脱。参照电泳初步定量结果将PCR产物用QuantiFluor™-ST蓝色荧光定量系统进行定量检测,之后按照每个样品的测序量要求,进行相应比例的混合后,再利用Illumina Miseq PE300平台进行后续高通量测序和分析。

2 结果与讨论

2.1 对TMP的影响

跨膜压差(TMP)升高会造成超滤膜运行能耗增加,运行成本也随之升高。采用压力传感器计量超滤膜的跨膜压差,即在超滤膜出水管处安装压力传感器的探头,测量膜组件出水压力瞬时值,其与超滤膜池液位(恒定值)之差即为TMP。TMP数据存储在压力传感器中,每60 min读取1次。图2描述了紫外—超滤、磁化—超滤、超声—超滤和超滤4种工艺的TMP变化。其中,紫外—超滤、磁化—超滤、超声—超滤和超滤的TMP均值分别为8.31、14.63、7.31和13.18 kPa。从运行效果上看超声效果最好,紫外次之,二者可以降低TMP,具有强化超滤的作用;而磁化降低TMP的作用并不明显。

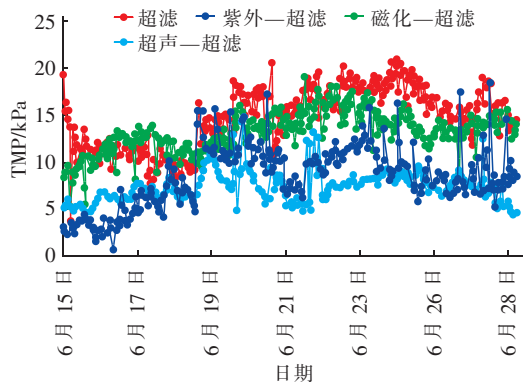


图2 不同工艺的TMP变化

Fig. 2 Changes of TMP in different processes

超声因其产生的空化效应在超滤过程中既促进了水流与颗粒的宏观运动,又有效地减缓了浓差极化现象的形成,而且对已形成的膜污染具有一定的清洗作用。紫外可以破坏微生物的DNA,阻断其复制过程,造成细胞代谢紊乱而死亡,因此它降低膜的TMP主要是降低了膜表面的微生物污染。

尽管运行效果上超声优于紫外,但是从运行成本上来看,超声运行电耗为19 kW·h/d,而紫外运行电耗为1.9 kW·h/d,超声是紫外的10倍。因此,综合考虑3种技术措施对超滤膜运行的强化作用,确定紫外技术最优。

2.2 对膜丝表面微生物污染的影响

2.2.1 微生物群落结构的组成

统计4个样品表面的物种数目,并以个体数与物种数来构建稀释曲线,如图3所示。

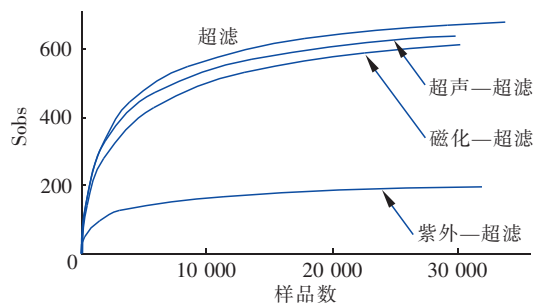


图3 样品稀释曲线

Fig. 3 Rarefaction curves of samples

稀释曲线描述了样品的测序数据量是否合理,当曲线趋向平坦时,说明测序数据量合理。由图3可以看出,随着样品检测数量的增加,饱和度曲线区域平缓,说明所检测到的生物多样性丰度可以代表样品实际情况,检测的生物多样性和微生物比例与实际情况相符。其中紫外—超滤检测900个样品就达到了饱和,而其他3种工艺的检测样品数量达到2 100时才趋于饱和。

表1描述了4个样品的微生物群落丰度和多样性,其中Sobs指数和Ace指数反映微生物群落丰度,Coverage指数和Simpson指数反映微生物群落多样性,Shannon指数反映微生物群落均匀度。可以看出,4个样品的Coverage指数均较高,在99.7%以上,说明样品测得的基因序列能真实反映样品生物群落的特征。利用表征群落丰度的Sobs指数和Ace指数估计最大的OTU数目,发现超声—超滤与超滤样品的微生物群落总数处于同一水平,磁化—

超滤的略少,紫外—超滤的膜表面微生物群落总数则明显较少,其 Sobs 指数和 Ace 指数仅是超滤的

30% 左右。可见,紫外处理对超滤膜表面的微生物群落总数的影响较大。

表 1 不同样品的基本信息

Tab. 1 Basic information for different samples

项 目	Sobs	Ace	Coverage/%	Simpson	Shannon
紫外—超滤	194	205.477 239	99.932 0	0.052 119	0.679 016
磁化—超滤	613	662.550 527	99.714 3	0.022 516	0.733 248
超声—超滤	666	692.804 612	99.802 7	0.012 226	0.800 047
超滤	641	678.590 438	99.755 1	0.016 848	0.770 238

Simpson 指数越大说明微生物种类越少。从表 1 可知,紫外—超滤的 Simpson 指数最高,微生物种类最少,磁化—超滤次之,超声—超滤与超滤接近。

图 4 分别记录了不同样品微生物群落在门水平和属水平上的组成和相对丰度。

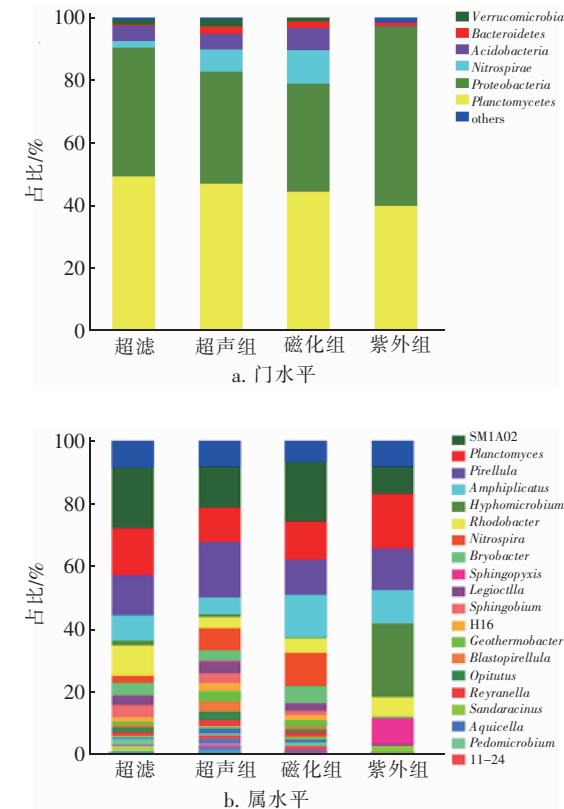


图 4 不同样品的微生物群落在门水平和属水平上的组成和相对丰度

Fig. 4 Bacteria composition and relative abundance of different samples at phylum level and genus level

图 4(a) 中,紫外—超滤、磁化—超滤、超声—超滤和超滤 4 个样品中微生物群落差别不大,主要有 *Proteobacteria* (变形菌门)、*Planctomycetes* (浮霉菌门)、*Bacteroidetes* (拟杆菌门)、*Acidobacteria* (酸杆菌门)和 *Nitrospirae*(硝化螺旋菌门)。其中,紫外—超

滤样品中各类微生物群落相对丰度依次为 *Proteobacteria*(57.4%) > *Planctomycetes* (40.1%) > *Bacteroidetes* (1.1%);磁化—超滤样品中各类微生物群落相对丰度依次为 *Planctomycetes* (44.4%) > *Proteobacteria* (34.8%) > *Nitrospirae* (10.5%) > *Acidobacteria*(7.24%);超声—超滤样品中各类微生物群落相对丰度依次为 *Planctomycetes* (47.1%) > *Proteobacteria* (35.8%) > *Nitrospirae* (7.0%) > *Acidobacteria*(5.1%);而超滤样品中各类微生物群落相对丰度依次为 *Planctomycetes* (49.5%) > *Proteobacteria* (41.1%) > *Acidobacteria* (4.7%) > *Nitrospirae*(2.2%)。

在属水平上,紫外—超滤样品中微生物优势菌属排序为 *Hyphomicrobium* (23.4%) > *Planctomyces* (17.6%) > *Pirellula* (13.3%) > *Amphiplicatus* (10.7%);磁化—超滤样品的优势菌属排序为 SM1A02 (19.2%) > *Amphiplicatus* (13.5%) > *Planctomyces*(12.3%) > *Pirellula* (11.2%);超声—超滤样品的优势菌属排序为 *Pirellula* (17.8%) > SM1A02(13.1%) > *Planctomyces* (10.8%) > others (8.2%);而超滤样品的优势菌属排序为 SM1A02 (19.2%) > *Planctomyces* (15.3%) > *Pirellula* (12.7%) > *Amphiplicatus*(8.4%)。

在属水平上,样品中优势菌属主要为 SM1A02、*Planctomyces*(浮霉状菌属)、*Pirellula*(小梨形菌属)、*Amphiplicatus*,而且这些菌属基本在紫外、磁化和超声处理后的超滤膜表面仍旧是优势菌属。与其他 3 个样品不同的是,紫外—超滤样品的优势菌属还有 *Hyphomicrobium*(生丝微菌),它的尺寸为 0.4 ~ 1.2 μm,不形成芽孢,革兰氏染色不明,在固体培养基上生长缓慢,可形成微小微生物群落。生丝微菌是一类以甲醇为唯一碳源和能源、通过出芽过程繁殖的柄细菌,具有独特的形态学特征,可好氧生长或利用

硝酸盐进行厌氧生长,在水处理系统内有较强的亚硝化性能。生丝微菌在同水源水厂的活性炭滤料表面有检出,在超滤膜中也可检出,但是在紫外—超滤膜上丰度水平明显提高。

2.2.2 不同样品微生物群落的比较

对样品的整体变化进行了 PCA 分析,结果见图 5。可知,超滤与磁化—超滤、超声—超滤的膜表面微生物差异的特征值很相近,基本在一个区域内;而紫外—超滤的膜表面微生物数量 and 种类与其他 3 种相差甚远,说明紫外对超滤膜上微生物的影响很大。

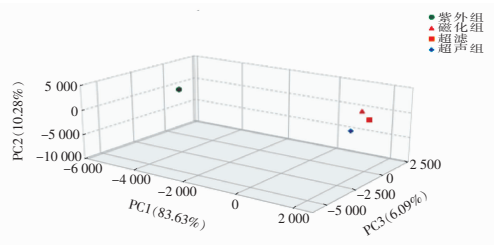


图 5 PCA 分析结果

Fig. 5 PCA analysis results

图 6 是 4 个样品按属分类的微生物群落热图,记录了分类水平总丰度排名前 50 的物种,颜色由绿到红代表丰度水平由低到高。

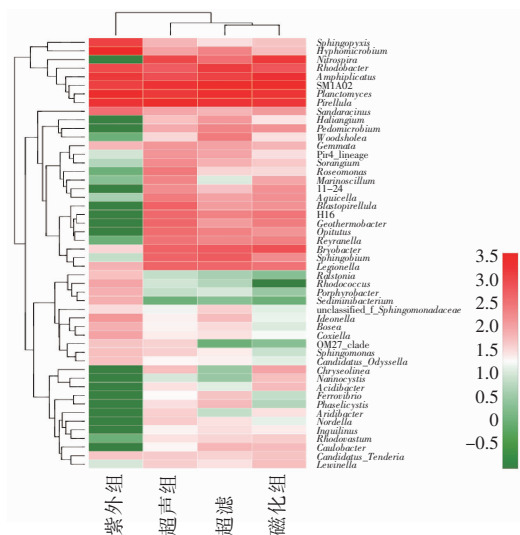


图 6 群落热图(以属计)

Fig. 6 Heat map(at genus level)

图上端显示出样品层级聚类树,可见超声与对样品相似性较高,磁化次之,紫外处理差别较大。在总丰度排名前 50 的物种中,紫外与其他样品的差别较大,多数物种丰度都低于超滤、磁化和超声,比如 *Haliangium*、*Pedomicrobium*、*Blastopirellula*、

Geothermobacter 等。紫外只有少量的物种高于另外 3 个样品,比如 *Hyphomicrobium* 和 *Sphingopyxis*。

紫外的杀菌原理是破坏微生物的 DNA,阻断其复制过程,造成细胞代谢紊乱从而死亡。从上述对膜表面微生物的分析结果看,紫外使膜表面的微生物发生了很大改变,减少了超滤膜表面的微生物污染,这也是其降低超滤膜 TMP 的主要原因;另外,微生物的胞外多聚物是形成膜有机污染的重要部分,这部分污染物质也会随着微生物量的降低而减少。

虽然超声波对超滤膜表面微生物污染的影响不明显,但是其特殊的作用会扰动膜池内水体,降低浓差极化现象,减缓膜前滤饼层的形成,达到降低超滤膜 TMP 的目的。

试验还同期对比了 3 种技术处理后超滤膜出水水质,发现它们对膜出水水质并无明显影响。原因主要有以下两方面:一是原水水质较好,装置进水取自给水厂炭滤池出水,无机和有机指标浓度已较低(浊度 ≤ 0.32 NTU, $UV_{254} \leq 0.019$ cm^{-1});另一方面,3 种技术的参数均强度不大,比如紫外选择 40 mJ/cm^2 的低压灯,这个剂量的紫外线对水中微量有机物的直接光解或间接氧化降解作用并不明显。

3 结论

① 磁化—超滤和超声—超滤的膜表面微生物群落总数和种类均与超滤膜差别不大,而紫外—超滤的膜表面微生物群落总数约为超滤膜的 30%,微生物种类明显减少。

② 4 个样品的微生物群落在门水平上主要以 *Proteobacteria*、*Planctomycetes*、*Bacteroidetes* 以及 *Acidobacteria* 为优势类群,在属水平上主要以 SM1A02、*Planctomycetes*、*Pirellula* 和 *Amphiplicatus* 为优势菌属。样品之间存在着共同的微生物类群,但也存在不同的微生物类群,其中紫外—超滤膜表面 *Hyphomicrobium*(生丝微菌)丰度水平明显提高,也为优势菌属。

③ 从运行效果上,超声效果最好,紫外次之,二者均有降低 TMP 的作用,但是超声的运行成本是紫外的 10 倍。因此,相比超声和磁化技术,紫外应是减少超滤膜污染的首选措施。紫外和超声波降低超滤膜 TMP 的原理不同,紫外因其对微生物的杀灭作用而降低超滤膜表面的微生物污染,而超声波主要通过扰动水体减缓浓差极化。

(下转第 92 页)