

DOI:10.19853/j.zgjsps.1000-4602.2023.05.002

# 不同挂膜启动方式对复合硫填料自养脱氮效果的影响

王鸿博<sup>1</sup>, 郑晓英<sup>1</sup>, 王 慰<sup>2,3</sup>, 李魁晓<sup>2,3</sup>

(1. 北京工业大学 北京市水质科学与水环境恢复工程重点实验室, 北京 100124; 2. 北京城市排水集团有限责任公司, 北京 100044; 3. 北京城市排水集团有限责任公司科技研发中心, 北京 100124)

**摘 要:** 为确定硫自养反硝化技术在工程应用中合适的启动方式,对比了变滤速接种挂膜、变滤速自然挂膜和固定滤速自然挂膜三种不同的挂膜方式对脱氮效果的影响。结果表明,接种挂膜在实际工程应用中没有显著优势,变滤速自然挂膜法的脱氮效果最好,其最大脱氮负荷为0.81 kg/(m<sup>3</sup>·d)。通过分析pH、DO和SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>等参数的变化情况发现,挂膜过程会使出水pH降低,进水DO过高会抑制脱氮过程,一些好氧菌可能会利用溶解氧将硫单质氧化为SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>,使SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>平均增加量高于理论值。采用高通量测序手段对系统内微生物群落结构特征进行了分析,在属水平上反应器中进行硫自养反硝化的优势菌群有硫杆菌属(*Thiobacillus*)和热单胞菌属(*Thermomonas*),相对丰度分别为6.38%和3.86%,与二沉池回流污泥的微生物群落结构相比存在明显的驯化过程。

**关键词:** 二级出水; 硫自养反硝化; 挂膜方式; 脱氮效果; 种群结构

**中图分类号:** TU992 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-4602(2023)05-0009-08

## Influence of Different Start-up Mode on the Effect of Autotrophic Denitrification of Composite Sulfur Fillers

WANG Hong-bo<sup>1</sup>, ZHENG Xiao-ying<sup>1</sup>, WANG Wei<sup>2,3</sup>, LI Kui-xiao<sup>2,3</sup>

(1. Key Laboratory of Beijing for Water Quality Science and Water Environment Recovery Engineering, Beijing University of Technology, Beijing 100124, China; 2. Beijing Drainage Group Co. Ltd., Beijing 100044, China; 3. Technology R&D Center of Beijing Urban Drainage Group Co. Ltd., Beijing 100124, China)

**Abstract:** In order to find a suitable start-up method for sulfur autotrophic denitrification technology in engineering applications, the effects of three different start-up mode on the denitrification effect were compared, which included variable filtration rate inoculated biofilm formation, variable filtration rate natural biofilm formation and fixed filtration rate natural biofilm formation. The results showed that the inoculated biofilm formation had no significant advantages in engineering applications. The variable filtration rate natural biofilm formation had the best denitrification effect, and its maximum denitrification load was 0.81 kg/(m<sup>3</sup>·d). By analyzing the changes of parameters such as pH, dissolved oxygen and SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, it was found that the process of biofilm formation would reduce the effluent pH, and high DO in the influent would inhibit the denitrification process. Some aerobic bacteria may use dissolved oxygen to oxidize elemental sulfur to SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, so that the average increase of SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> was higher than the

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(51778011)

通信作者: 李魁晓 E-mail: 13810987646@163.com

theoretical value. The characteristics of the microbial community structure in the system were analyzed by high-throughput sequencing. The dominant bacteria at the genus level for sulfur autotrophic denitrification in the reactor were *Thiobacillus* and *Thermomonas*, with relative abundances of 6.38% and 3.86%, respectively. Compared with the reflux sludge from secondary sedimentation tank, the microbial community structure in the reactor had an obvious domestication process.

**Key words:** secondary effluent; sulfur autotrophic denitrification; biofilm formation mode; denitrification effect; population structure

再生水回用是解决现代城市缺水问题的有效途径之一<sup>[1]</sup>。城市污水处理厂的二级出水中仍含有一定浓度的氮和磷,若直接用作城市景观水体补水极易引发水体富营养化。若再生水用于补充地下水,则可能造成地下水硝酸盐污染。过量的硝酸盐进入人体会导致输氧的血红蛋白变成高铁血红蛋白,丧失携氧能力,严重甚至会导致窒息。传统二级处理出水C/N极低,需要投加外部碳源以实现进一步脱氮,此过程不仅导致处理成本增加,同时还存在碳源过量的二次污染风险<sup>[2]</sup>。

硫自养反硝化生物滤池因为成本低,且反应过程中无需投加碳源等优点而被广泛关注<sup>[3-4]</sup>,其脱氮原理主要是生物膜上的微生物在缺氧环境下以还原态硫为电子供体对硝酸盐进行反硝化,因此滤池正常运行的前提是滤料表面生物膜的培养和形成<sup>[5-6]</sup>。目前,反硝化脱硫菌(NR-SOB)的应用研究主要集中于脱氮硫杆菌,但该菌生长缓慢,且对温度、盐度的耐受性不强,实际应用潜力有限<sup>[7]</sup>。可见,合适的挂膜启动方式对于硫自养反硝化技术的工程应用具有重要意义。

当前硫自养反硝化的脱氮负荷较低,一般在 $0.12\sim 0.60\text{ kg}/(\text{m}^3\cdot\text{d})$ 左右<sup>[8]</sup>。此外,硫自养反硝化微生物易受到进水水质等环境因素影响,造成出水水质波动。硫源对于反硝化脱氮效果也有较大影响,升华硫和硫代硫酸钠为硫源的脱氮效果优于生物硫<sup>[9]</sup>。但受制于成本及危险化学品规定限制,纯硫磺滤料无法在工程中直接应用。所以笔者采用新开发的含硫复合填料进行实验。

目前,针对硫自养反硝化生物滤池合适的挂膜启动方式还未见详细研究报道。以北京某再生水厂二沉池出水作为实验进水,对比了变滤速接种挂膜、固定滤速自然挂膜和变滤速自然挂膜三种启动方式对硫自养反硝化生物滤池脱氮效果稳定性的

影响,同时考察了反应过程中DO、pH和 $\text{SO}_4^{2-}$ 等参数的变化情况,从而确定适宜的挂膜方法。结合高通量测序技术和硝酸盐氮的去除机制,探讨不同挂膜条件下硫自养反硝化系统中的微生物群落结构,以期复合硫填料反硝化应用于工程的挂膜启动提供参考。

## 1 材料与方法

### 1.1 实验装置

反应器由4组相同的滤柱组成(如图1所示),滤柱直径为150 mm、总高为1 000 mm,其中,底部承托层为150 mm高的砾石(直径为30~50 mm),滤料层高为350 mm。滤料采用含硫复合滤料。滤料堆积密度为 $0.8\sim 1.1\text{ g}/\text{cm}^3$ ,粒径为5~15 mm,比表面积为 $30.1\text{ m}^2/\text{g}$ ,填充体积为 $6\,180\text{ cm}^3$ 。滤池采用上向流设计,二沉池出水通过蠕动泵从底部进水口进入,经过生物滤池填料净化后从上部的出水口排出。



图1 实验装置

Fig.1 Experimental setup

### 1.2 接种污泥和原水水质

接种污泥取自北京某再生水厂A<sup>2</sup>/O工艺的二沉池回流污泥,悬浮固体(MLSS)浓度为 $8\,000\text{ mg}/\text{L}$ 。所用原水为二沉池出水, $\text{NO}_3^--\text{N}$ 、 $\text{NO}_2^--\text{N}$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、DO分别为 $8.92\sim 16.27$ 、 $0\sim 0.5$ 、 $68.62\sim 136.51$ 、

1.91~7.97 mg/L, 浊度为 0.56~2.21 NTU, pH 为 6.74~8.07。

### 1.3 实验方法

反应器的启动分为三种方式:固定滤速自然挂膜、变滤速自然挂膜和变滤速接种挂膜,氮去除量达到 10 mg/L 时调整空床停留时间(EBCT),由 120 min 逐渐缩短至 20 min,1<sup>#</sup>、2<sup>#</sup>、3<sup>#</sup>不接种污泥,4<sup>#</sup>接种 1 L 二沉池回流污泥。其中,1<sup>#</sup>、2<sup>#</sup>采用固定滤速自然挂膜,EBCT 分别为 30、20 min,相应的进水氮负荷为 0.58、0.86 kg/(m<sup>3</sup>·d);3<sup>#</sup>采用变滤速自然挂膜,EBCT 依次为 120、60、45、40、30 min,对应的进水氮负荷为 0.14、0.29、0.38、0.43、0.58 kg/(m<sup>3</sup>·d);4<sup>#</sup>采用变滤速接种挂膜,EBCT 依次为 120、60、45、40、30、20 min,对应的进水氮负荷为 0.14、0.29、0.38、0.43、0.58、0.86 kg/(m<sup>3</sup>·d)。

### 1.4 分析方法

水样经 0.22 μm 滤膜过滤后进行水质分析,NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N、NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>:赛默飞 ICS-1100 离子色谱,温度、pH、DO:WTW/Multi3420 测定仪。

### 1.5 高通量测序分析

取北京市某再生水厂二沉池回流污泥和稳定运行阶段的挂膜滤料(变滤速接种挂膜和变滤速自然挂膜)送往上海美吉生物医药科技有限公司进行高通量测序分析。滤料取自滤料层的中部,对样品 16S rRNA 的 V3-V4 区进行扩增,所用引物为 338F 与 806R。

## 2 结果与讨论

### 2.1 固定滤速自然挂膜

分别以 EBCT 为 30、20 min 启动反应器,分析运行 25 d 的 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 去除情况和 NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N 的生成情况,结果见图 2。两种情况下的平均脱氮负荷分别为 0.37、0.35 kg/(m<sup>3</sup>·d),平均氮去除率分别仅为 65.59% 和 41.48%,无法达到相关研究 0.75 kg/(m<sup>3</sup>·d) 的脱氮负荷<sup>[10]</sup>。在 EBCT=30 min 的情况运行到第 8~15 天时,平均氮去除量为 10.1 mg/L,说明反硝化菌在挂膜初期也有脱氮效果。在 EBCT=20 min 下运行,系统仅在第 8 天和 15 天出现氮去除量大于 10 mg/L 的现象。两种情况下都存在出水水质不稳定和亚硝酸盐积累的现象,说明在自然挂膜初期反硝化菌的脱氮性能极易受到环境因素影响,需要合适的恒化培养环境。

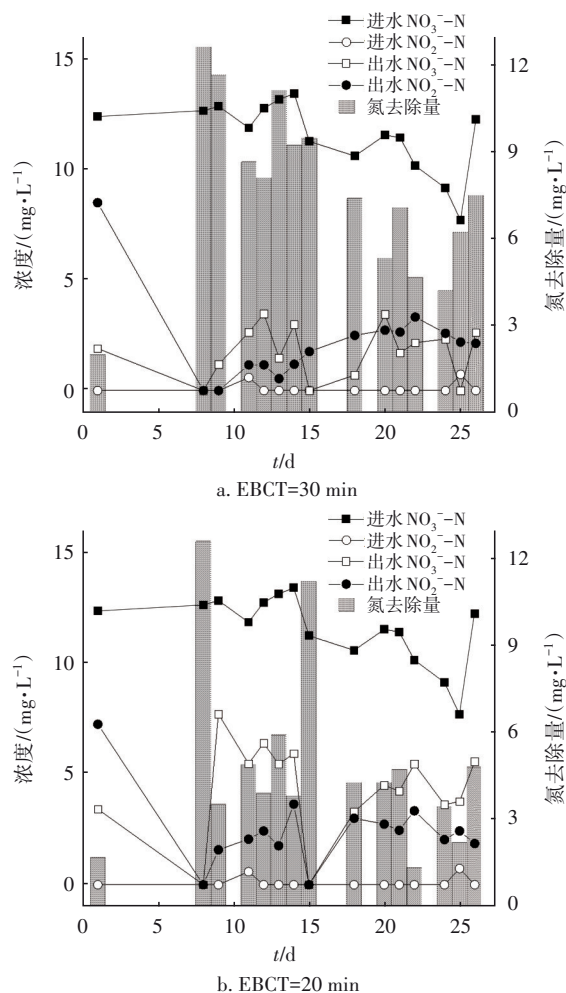


图2 不同固定滤速启动情况下的脱氮性能

Fig.2 Denitrification performance during start-up under different fixed filtration rate

### 2.2 变滤速自然挂膜

#### 2.2.1 变滤速自然挂膜启动分析

在整个变滤速自然挂膜阶段,在 1~16、17~22、23~51、52~65、66~104 和 105~120 d,调整 EBCT 分别为 120、60、45、40、30、20 min(即第一~六阶段),运行结果见图 3。在每个时间段,出水 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 浓度先升高后降低,出水 NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N 浓度在调整初期会出现部分积累,最大积累量为 5.92 mg/L。

在第一阶段,出水 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 从 12.70 mg/L 逐渐降低至 2.12 mg/L,但是在第 7 天升至 7.63 mg/L,说明在挂膜初期脱氮效果不稳定,易受环境影响。第二阶段的氮去除量有所增加,可稳定在 10 mg/L 以上且无 NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N 积累,平均氮去除率为 95.22%,表明硫杆菌等脱氮菌的生物量比上一阶段有所增加,氮去除量主要受制于底物浓度。



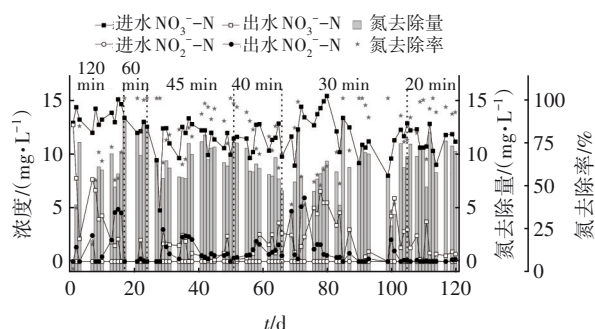


图3 变滤速自然挂膜情况下的脱氮性能

Fig.3 Denitrification performance in the case of natural biofilm formation

在第三和第四阶段,氮去除量随进水水质波动,挂膜培养时间分别需要29 d和14 d,EBCT为40 min情况下的微生物培养时间短于EBCT为45 min的,分析原因可能是EBCT降低,单位时间进水硝酸盐量增加。

在第五阶段,调整流速初期出现 $\text{NO}_2^-$ -N积累,7 d后达到最大值5.92 mg/L,随后逐渐降低,24 d后完全消失。运行25 d后,氮去除量连续3 d可达10 mg/L以上,随后有所降低。

在第六阶段,进水水质波动较小,进水 $\text{NO}_3^-$ -N最大变化量为3.8 mg/L,进水 $\text{NO}_2^-$ -N均小于0.01 mg/L,平均氮去除量为10.21 mg/L,氮去除率达到90%以上,其间达到最大脱氮负荷即0.81  $\text{kg}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$ 。

### 2.2.2 不同EBCT的脱氮效果比较

根据挂膜后稳定运行7 d的进出水水质数据,计算不同空床停留时间下的平均氮去除量和脱氮负荷,结果见图4。

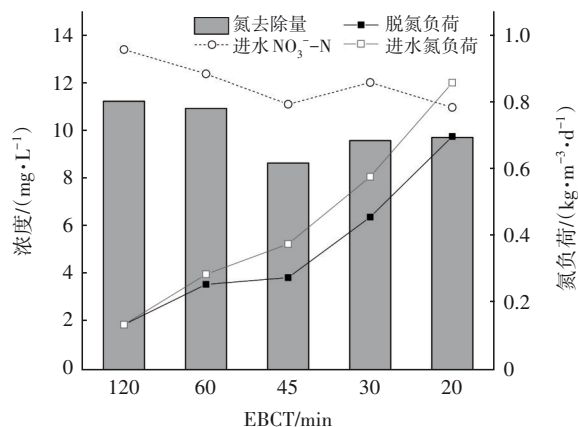


图4 不同停留时间下的脱氮负荷

Fig.4 Denitrification load under different residence time

在EBCT为120、60、45、30、20 min的条件下,对

应的平均氮去除量分别为11.27、10.97、8.69、9.63、9.76 mg/L,在空床停留时间缩短并培养稳定后,氮去除量的变化不明显。在EBCT=45 min时,脱氮负荷增加量不大,这可能是由于实验期间水温变化使氮去除量降低导致的。各空床停留时间下的脱氮负荷分别为0.14、0.26、0.28、0.46、0.71  $\text{kg}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$ ,脱氮负荷随空床停留时间缩短、流速增大而逐渐增加。

### 2.3 变滤速下两种挂膜方式的脱氮效果比较

在变滤速接种挂膜的情况下(见图5),分别在第9、26和66天调整空床停留时间,最终在EBCT=30 min时平均氮去除量为7.88 mg/L,最大脱氮负荷为0.52  $\text{kg}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$ ,平均氮去除率为66.86%。

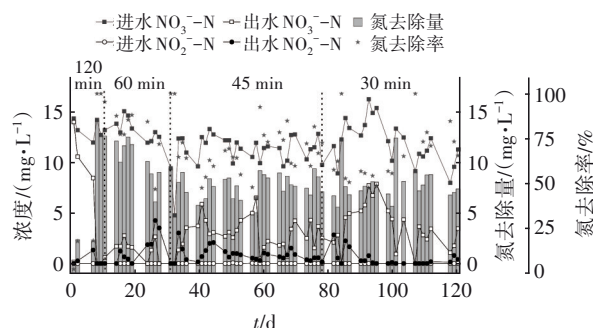


图5 变滤速接种挂膜情况下的脱氮性能

Fig.5 Denitrification performance under the condition of inoculated biofilm formation

对比接种挂膜(见图5)和自然挂膜(见图3)的脱氮效果,接种挂膜在初期可以较早地达到10 mg/L的氮去除量,比自然挂膜早9 d,说明污泥中存在好氧菌,能更快地消耗进水溶解氧,为上层滤料微生物提供缺氧条件。后续调整EBCT的时间接近,表明是否接种污泥对后期生物膜的生长速率没有影响。在EBCT为30 min的运行工况下,接种挂膜的氮去除量低于自然挂膜,且在进水水质相对稳定的条件下,脱氮效果也不如自然挂膜稳定。

对比不同空床停留时间下亚硝酸盐积累情况,改变空床停留时间后接种挂膜和自然挂膜均会出现亚硝酸盐积累的现象,说明在提高进水负荷以后微生物的生长随着底物浓度的增加产生变化。硝酸盐还原酶Nar的合成速率可能高于亚硝酸盐还原酶Nir,导致Nar对电子的竞争能力高于Nir<sup>[11]</sup>,在有限的空床停留时间内亚硝酸盐还原不彻底,故出现出水亚硝酸盐积累。随着微生物和酶逐渐培养成熟,完成亚硝酸盐还原过程,亚硝酸盐含量逐渐降

低。在EBCT为45 min时,两种挂膜方式的亚硝酸盐消失时间相同,亚硝酸盐积累量小于1 mg/L所需的时间均为10 d;在EBCT为30 min时,自然挂膜的亚硝酸盐消失时间比接种挂膜晚3 d。

刘玲花等<sup>[12]</sup>接种纯脱氮硫杆菌株去除地下水中的硝酸盐,发现当滤料中同时存在脱氮硫杆菌和异养反硝化菌时,接种纯脱氮硫杆菌株意义不大,控制合适的pH、温度和停留时间即可,本实验结果进一步证明了此结论。

## 2.4 运行参数对脱氮效果的影响

### 2.4.1 DO对脱氮效率的影响

DO对反硝化有很大影响,主要是由于DO和 $\text{NO}_3^-$ -N竞争电子供体。在氧分压较低的情况下,反硝化作用为微生物的生长提供替代产能途径;氧分压过高会抑制硝酸盐还原酶的合成及活性<sup>[13]</sup>。相关研究认为脱氮硫杆菌是一类兼性厌氧菌,在好氧条件下其优先利用氧为电子受体,反硝化过程受到抑制;在缺氧或厌氧条件下,脱氮硫杆菌利用硝酸盐作为电子受体,完成生物反硝化过程。

自然挂膜反应器出水口的平均DO为0.19 mg/L(见图6),仅在启动初期出现较高的DO,挂膜阶段的进水DO平均为5.25 mg/L,挂膜初期的氮去除量较低,出水DO剩余3.24 mg/L,说明部分硫杆菌在好氧情况下利用氧为电子受体抑制了反硝化过程。在挂膜后期,虽然进水DO均大于6 mg/L,但依然具有明显的脱氮效果,表明反应器下层填料生物膜中存在好氧菌,先消耗了进水中的DO,为上层的生物膜创造了缺氧环境。

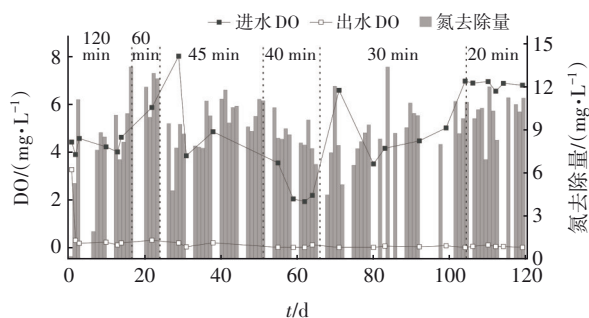


图6 变滤速自然挂膜运行周期内的溶解氧变化情况

Fig.6 Variation of dissolved oxygen in the operation cycle of variable filtration rate natural biofilm formation

### 2.4.2 pH变化

考察了变滤速自然挂膜运行周期内 $\text{NO}_3^-$ -N去除量与pH变化量的关系,结果见图7。pH变化量随

$\text{NO}_3^-$ -N去除量的增大而增加。pH会改变底物和菌体酶蛋白的带电状态,从而影响细菌对营养物质的吸收以及代谢过程中酶的活性。合适的进水pH可保证生物自养反硝化所需要的还原性环境,根据其反应方程式<sup>[14]</sup>,自养反硝化1 mg  $\text{NO}_3^-$ -N需要消耗4.57 mg 碱度(以 $\text{CaCO}_3$ 计)。

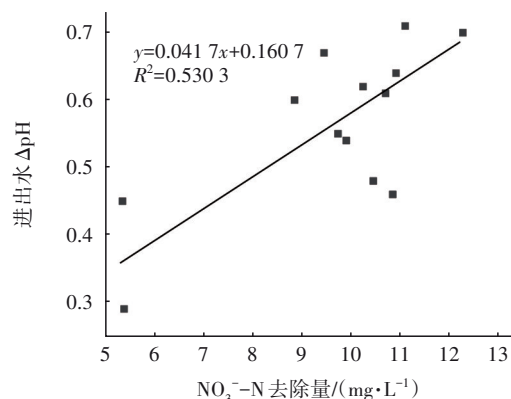


图7  $\text{NO}_3^-$ -N去除量与pH变化量关系曲线

Fig.7 Relationship between  $\text{NO}_3^-$ -N removal and pH change

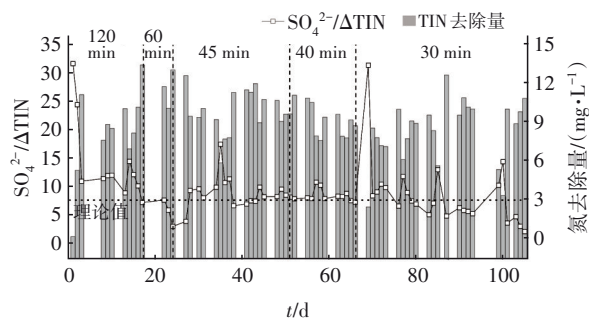
pH变化量不能完全反映碱度变化,但有学者发现当pH为6.5~8.0时, $\text{NO}_3^-$ -N去除速率均在3.1 mg/(L·h)以上,硫杆菌能取得较为满意的反硝化效果<sup>[15]</sup>。本实验进水pH范围为6.74~8.07,平均 $\text{NO}_3^-$ -N去除速率为28.92 mg/(L·h),表明该再生水厂二沉池出水满足自养反硝化过程中的碱度消耗,无需控制进水pH。

### 2.4.3 氮去除量对硫酸盐浓度的影响

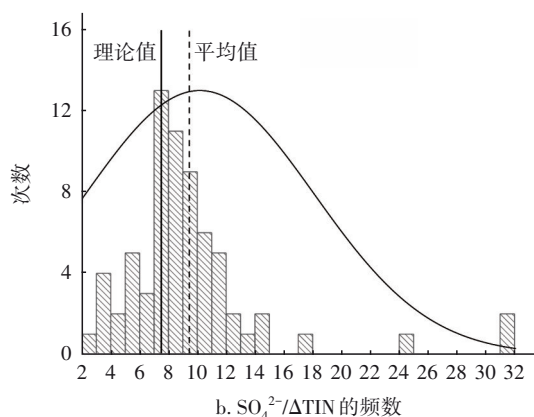
硫自养反硝化过程中硫单质提供电子供体被氧化成 $\text{SO}_4^{2-}$ ,由于市政污水排放标准对硫酸盐浓度没有具体要求,《生活饮用水卫生标准》(GB 5749—2022)要求 $\text{SO}_4^{2-}$ 不超过250 mg/L,该装置出水 $\text{SO}_4^{2-}$ 最大值为224.78 mg/L,平均值为157.3 mg/L,克服了一般硫自养反硝化出水 $\text{SO}_4^{2-}$ 过高的问题。图8(a)反映了挂膜过程中去除单位无机氮产生 $\text{SO}_4^{2-}$ 量( $\text{SO}_4^{2-}/\Delta\text{TIN}$ )的变化情况。参照硫自养反硝化反应方程式<sup>[14]</sup>, $\text{SO}_4^{2-}/\Delta\text{TIN}$ 的理论值为7.54,实际平均值为9.42,说明反应器中主要进行的是硫自养反硝化过程。

由图8(b)可知,挂膜过程中去除单位TIN产生的 $\text{SO}_4^{2-}$ 量并非完全与理论值相同,在第17~23、38~44、78~83、88~94、100~105天出现实际值低于理论值的现象,推测可能的原因有:反应器中存

在异养反硝化;硫酸化不完全生成了副产物,比如 $\text{SO}_3^{2-}$ 、 $\text{S}_2\text{O}_3^{2-}$ 等;硫酸盐还原菌(SRB)利用水中的有机物将 $\text{SO}_4^{2-}$ 还原为 $\text{S}^{2-}$ 。在运行过程中也出现了高于理论值的现象,其主要出现在启动初期和调整滤速后,分析原因可能为:进行不完全的反硝化,TIN去除量没有增加,但该过程中消耗电子供体;一些好氧菌利用水中微量溶解氧将硫单质氧化为 $\text{SO}_4^{2-}$ 。



a. 变滤速自然挂膜运行周期内 $\text{SO}_4^{2-}/\Delta\text{TIN}$ 的变化



b.  $\text{SO}_4^{2-}/\Delta\text{TIN}$ 的频数

图8 TIN去除量与 $\text{SO}_4^{2-}$ 变化量的关系

Fig.8 Relationship between TIN removal and  $\text{SO}_4^{2-}$  change

## 2.5 微生物群落结构解析

### 2.5.1 变滤速接种和自然挂膜的微生物群落

变滤速接种挂膜和自然挂膜两种方式培养的生物膜中,在门水平上占比较多的为变形菌门(*Proteobacteria*)、拟杆菌门(*Bacteroidota*)、绿弯菌门(*Chloroflexi*)、浮霉菌门(*Planctomycete*),丰度分别为58.12%、9.98%、15.49%、3.41%和71.66%、14.64%、5.44%、2.51%,与前人研究的硫自养反硝化系统微生物群落一致<sup>[18]</sup>。

变形菌门中大部分微生物可以利用氢、氨、甲烷和挥发性脂肪酸等进行反硝化作用。绿弯菌门的某些菌属被发现具有异养特性,可利用系统中溶解

性微生物产物作为碳源将 $\text{NO}_3^-$ -N转化为 $\text{NO}_2^-$ -N,反映了 $\text{NO}_3^-$ -N在反应器中的去除过程。拟杆菌门的部分微生物具有降解高分子化合物(纤维素、蛋白质和脂类等)为简单有机物并还原 $\text{NO}_3^-$ -N的能力,说明反应器中可能存在异养反硝化菌利用污泥中的内碳源进行协同反硝化,一定程度上解释了 $\text{SO}_4^{2-}$ 的产生量低于理论值的现象。此外,酸杆菌门(*Acidobacteriota*)也被证明有脱氮基因(两种方式下的丰度分别为2.24%和1.06%),具有相应的反硝化能力<sup>[19]</sup>。

另外,在属水平上,*Dokdonella*、*Thiobacillus*、*Comamonadaceae*、*Terrimonas*、SBR1031、*Thermomonas*、*Ferritrophicum*、*Ferruginibacter*、*Xanthomonadaceae*、A4b、others(丰度<1.0%都归为others)的相对丰度分别为21.13%、10.94%、2.45%、2.82%、5.41%、2.66%、2.67%、1.26%、2.62%、2.57%、48.04%和31.49%、6.38%、6.82%、4.04%、1.43%、3.86%、3.66%、3.82%、2.48%、1.52%、34.49%。硫杆菌属(*Thiobacillus*)是以还原态硫为电子供体还原 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NO}_2^-$ 的专性能自养菌,其相对丰度较大,说明系统内进行硫自养反硝化过程,和TIN去除量与 $\text{SO}_4^{2-}$ 产生量关系的分析结果一致。接种挂膜(10.94%)的硫杆菌属占比高于自然挂膜(6.38%)。

孤岛杆菌(*Dokdonella*)中部分微生物为严格异养和好氧菌,有学者曾在需要曝气的同步硝化反硝化工艺中检出<sup>[20]</sup>,孤岛杆菌的检出验证了滤池底部存在好氧菌消耗进水DO的猜想,自然挂膜中的孤岛杆菌丰度高于接种挂膜,说明自然挂膜方式更易去除进水中的溶解氧,为硫杆菌创造缺氧环境,解释了自然挂膜滤池的脱氮负荷高于接种挂膜的现象。

此外在生物膜中也检测到了具有硫自养反硝化功能<sup>[16-17]</sup>的热单胞菌属(*Thermomonas*)细菌,其在接种挂膜法和自然挂膜法系统中的相对丰度分别为2.66%和3.86%。

### 2.5.2 二沉池回流污泥的微生物群落

二沉池回流污泥中主要优势菌属不动杆菌属(*Acinetobacter*)和*Tetrasphaera*菌属的相对丰度分别为16.22%和10.46%(见图9)。*Acinetobacter*是活性污泥中常见的好氧菌,解释了接种挂膜初期较早达到10 mg/L氮去除量负荷的现象。*Tetrasphaera*菌属可以进行反硝化,将硝酸盐还原至亚硝酸盐但不



能完全反硝化至氮气。硫杆菌属和热单胞菌属在二沉池回流污泥中含量较低,均未检出,说明在两种挂膜方法的反应器中均存在明显的菌种驯化过程。从另一个角度看,由于都需要重新驯化硫自养反硝化相关菌属,那么采用二沉池回流污泥的接种挂膜法和自然挂膜法相比,在操作上多了运输污泥的步骤,故此方法在实际工程中没有显著优势。

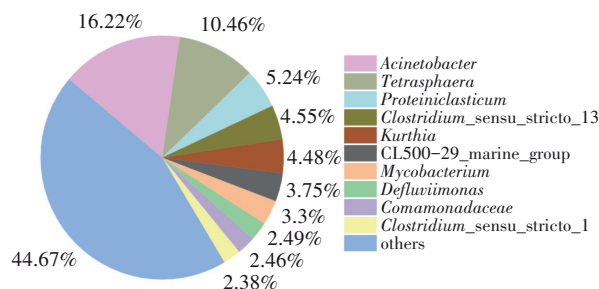


图9 二沉池回流污泥在属水平上的丰度

Fig.9 Abundance of return sludge from secondary sedimentation tank at the genus level

### 3 结论

① 固定滤速挂膜会出现亚硝酸盐积累和脱氮效果不稳定的问题,硫自养反硝化工艺用于实际工程时,在保证出水水质的前提下,建议采用变滤速自然挂膜。

② 变滤速自然挂膜的脱氮负荷最高可达  $0.81 \text{ kg}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$ ,高于变滤速接种挂膜的  $0.52 \text{ kg}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$ 。在改变水力停留时间后接种挂膜和自然挂膜均会出现亚硝酸盐积累的现象,在稳定运行期间,自然挂膜的脱氮负荷优于接种挂膜。

③ 针对实际二沉池出水,进水溶解氧过高会抑制脱氮过程,对于pH无需额外控制, $\text{SO}_4^{2-}$ 实际产生量略高于理论值。

④ 反应器中进行硫自养反硝化的细菌在属水平上主要有 *Thiobacillus* 和 *Thermomonas* 属,相对丰度分别为6.38%和3.86%,其与二沉池回流污泥相比存在明显的驯化过程。接种挂膜和自然挂膜过程都需要重新驯化硫自养反硝化相关菌属,接种挂膜在实际工程应用中没有显著优势。

### 参考文献:

[1] 陈卓,郝姝然,高强,等.《再生水利用效益评价指南》标准解读[J]. 中国给水排水,2021,37(18):1-7.  
CHEN Zhuo, HAO Shuran, GAO Qiang, et al. Interpretation of an association standard of *Guideline for*

*Benefit Evaluation of Reclaimed Water Use* [J]. China Water & Wastewater, 2021, 37(18):1-7(in Chinese).

[2] 吕小梅,吴毅聪,陈桂连,等. 硫自养反硝化颗粒表面与间隙微生物群落特征和基因分布[J]. 中国环境科学,2022,42(6):2764-2770.

LÜ Xiaomei, WU Yicong, CHEN Guilian, et al. Characteristics and gene distribution of microbial communities on the surface and interstitial spaces of sulfur autotrophic denitrification particles [J]. China Environmental Science, 2022, 42 (6) : 2764-2770 (in Chinese).

[3] ZHOU W L, LIU X, DONG X J, et al. Sulfur-based autotrophic denitrification from the micro-polluted water [J]. Journal of Environmental Sciences, 2016, 44: 180-188.

[4] 张尧,徐晓晨,王叶鑫,等. 硫自养反硝化深度处理污水厂生化出水中的  $\text{NO}_3^-$ -N[J]. 中国给水排水,2022,38(15):21-28.

ZHANG Rao, XU Xiaochen, WANG Yexin, et al. Sulfur autotrophic denitrification for advanced treatment of  $\text{NO}_3^-$ -N in effluent from biochemical treatment process of wastewater treatment plant [J]. China Water & Wastewater, 2022, 38(15):21-28(in Chinese).

[5] 朱良.  $\text{FeS}_2$ 驱动硫自养反硝化深度脱氮除磷技术研究[D]. 哈尔滨:哈尔滨工业大学,2021.

ZHU Liang. Study on the Deep Nitrogen and Phosphorus Removal Technology of Sulfur Autotrophic Denitrification Driven by  $\text{FeS}_2$  [D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 2021(in Chinese).

[6] 胡小兵,陈红伟,聂勇,等. 挂膜方法对生物膜特性及生化尾水深度处理的影响[J]. 中国环境科学,2021,41(12):5710-5717.

HU Xiaobing, CHEN Hongwei, NIE Yong, et al. Effects of film-forming method on biofilm characteristics and advanced treatment of biochemical tail water [J]. China Environmental Science, 2021, 41 (12) : 5710-5717 (in Chinese).

[7] 徐金兰,陈紫薇,张少枫,等. 信号分子联合脱氮硫杆菌对同步脱氮除硫的影响[J]. 环境科学,2019,40(9):4177-4783.

XU Jinlan, CHEN Ziwei, ZHANG Shaofeng, et al. Effects of signal molecule combined with *Thiobacillus denitrificans* on simultaneous removal of nitrogen and sulfur [J]. Environmental Science, 2019, 40(9) : 4177-4783(in Chinese).

[8] 张丽丽. 硫自养厌氧流化床膜生物反应器去除硝酸盐

- 运行性能及分子生态学研究[D]. 北京:中国科学院大学,2013.
- ZHANG Lili. Study on the Performance and Molecular Ecology of Nitrate Removal by Sulfur Autotrophic Anaerobic Fluidized Bed Membrane Bioreactor [D]. Beijing: University of Chinese Academy of Sciences, 2013(in Chinese).
- [9] 田家宇,刘哲颖,古振澳,等. 硫自养反硝化饮用水脱氮:悬浮填料与硫源作用效果评估[J/OL]. 环境科学学报. (2022-08-25)[2022-09-13]. <https://kns.cnki.net/kcms/detail>.
- TIAN Jiayu, LIU Zheyang, GU Zhen'ao, *et al.* Sulphur autotrophic denitrification for drinking water denitrification: evaluation of the effect of suspended fillers and sulfur sources [J/OL]. Acta Scientiae Circumstantiae. (2022-08-25)[2022-09-13]. <https://kns.cnki.net/kcms/detail>(in Chinese).
- [10] ZHOU Y, CHEN F, CHEN N, *et al.* Denitrification performance and mechanism of biofilter constructed with sulfur autotrophic denitrification composite filler in engineering application [J]. Bioresource Technology, 2021,340:125699.
- [11] LU H J, CHANDRAN K, STENSEL D. Microbial ecology of denitrification in biological wastewater treatment[J]. Water Research, 2014,64:237-254.
- [12] 刘玲花,王占生,王志石. 硫/石灰石滤柱去除地下水中硝酸盐的研究[J]. 环境工程, 1995,13(3):11-16.
- LIU Linghua, WANG Zhansheng, WANG Zhishi. Removal of nitrate in groundwater by sulfur/limestone filter column [J]. Environmental Engineering, 1995, 13 (3):11-16(in Chinese).
- [13] 孙迎雪,胡银翠,孙云祥,等. 反硝化生物滤池深度脱氮机理[J]. 环境工程学报,2012,6(6):1857-1862.
- SUN Yingxue, HU Yincui, SUN Yunxiang, *et al.* Deep nitrogen removal mechanism of denitrification biological filter [J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2012, 6(6):1857-1862(in Chinese).
- [14] KOENIG A, LIU L H. Kinetic model of autotrophic denitrification in sulphur packed-bed reactors[J]. Water Research, 2001,35(8):1969-1978.
- [15] 牛建敏,李睿华. 理化因素对脱氮硫杆菌自养反硝化的影响[J]. 中国环境科学, 2010, 30(1):76-81.
- NIU Jianmin, LI Ruihua. Effects of physical and chemical factors on autotrophic denitrification by *Thiobacillus* denitrification [J]. China Environmental Science, 2010,30(1):76-81(in Chinese).
- [16] 徐康康,闫慧娟,崔有为. A<sup>2</sup>/O 硫自养反硝化处理低碳氮比废水计量学研究[J]. 水处理技术, 2021,47(7): 118-123.
- XU Kangkang, YAN Huijuan, CUI Youwei. A<sup>2</sup>/O sulfur autotrophic denitrification treatment of low carbon and nitrogen ratio wastewater [J]. Water Treatment Technology, 2021,47(7):118-123(in Chinese).
- [17] SAKURAI H, OGAWAT, SHIGA M, *et al.* Inorganic sulfur oxidizing system in green sulfur bacteria [J]. Photosynthesis Research, 2010,104(2):163-176.
- [18] 赵晴,杨伟明,王瑶,等. 硫化物自养反硝化细菌颗粒污泥及其物化特征[J]. 环境工程学报, 2017,11(6): 3884-3889.
- ZHAO Qing, YANG Weiming, WANG Yao, *et al.* Granular sludge of sulfide autotrophic denitrifying bacteria and its physicochemical characteristics [J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2017,11 (6):3884-3889(in Chinese).
- [19] LIAO R H, LI Y, YU X M, *et al.* Performance and microbial diversity of an expanded granular sludge bed reactor for high sulfate and nitrate waste brine treatment [J]. Journal of Environmental Sciences, 2014, 26 (4): 717-725.
- [20] 陈翠忠,李俊峰,刘生宝,等. 间歇式活性污泥法(SBR)系统碳氮比对同步硝化反硝化微生物群落分布及脱氮效能的影响[J]. 环境化学, 2021,40(11): 3598-3607.
- CHEN Cuizhong, LI Junfeng, LIU Shengbao, *et al.* Effect of C/N ratio on the microbial community of simultaneous nitrification and denitrification (SND) and the biological nitrogen removal in sequencing batch reactor (SBR) [J]. Environmental Chemistry, 2021, 40 (11):3598-3607(in Chinese).
- 
- 作者简介:王鸿博(1997- ),男,河南洛阳人,硕士研究生,主要研究方向为污水资源化利用。  
E-mail:Wang\_Hongbo11@163.com  
收稿日期:2022-09-13  
修回日期:2022-10-24

(编辑:李德强)