

DOI: 10.11835/j.issn.2096-6717.2021.078

开放科学(资源服务)标识码(OSID):



膜曝气提升菌藻生物膜反应器效能及稳定性

张晗¹, 公维佳², 白朗明¹, 曾玮琛¹, 陈睿¹, 李圭白¹, 梁恒¹

(1. 哈尔滨工业大学 城市水资源与水环境国家重点实验室, 哈尔滨 150090;

2. 东北农业大学 工程学院, 哈尔滨 150038)

摘要:比较曝气头曝气以及膜曝气两种曝气方式支持的菌藻共生系统在不同的运行条件下对污染物的去除效能,探讨去除机理。结果表明,以膜曝气为基础的MABAR对氨氮、总氮、磷、化学需氧量(COD)的去除负荷相对于以曝气头曝气为基础的HABAR,最高分别提升1.44、21.22、3.08、52.09 kg/m²/m³。藻类积累方面,MABAR在5个阶段的积累量都高于HABAR,最高提升15.17 mg/cm²。这不但归因于膜曝气良好的无吹脱和高效的碳化能力为自养藻类提供了充足的无机碳,而且膜曝气为一些十分有利于藻类生长的细菌,例如*Acidovorax*、*Rhodobacter*和*Acinetobacter*,提供了良好的生存环境。MABAR不但能够提升去除效能,还能够促使光生物膜反应器抵抗冲击,维持稳定,这对未来光生物反应器的实际应用提供了一种新的运行方式。

关键词:菌藻共生;膜曝气;脱氮除磷;膜反应器

中图分类号:X703.1 **文献标志码:**A **文章编号:**2096-6717(2021)06-0145-10

Membrane aeration enhances the performance and stability of the bacterial-algae biofilm reactor

ZHANG Han¹, GONG Weijia², BAI Langming¹, ZENG Weichen¹,
CHEN Rui¹, LI Guibai¹, LIANG Heng¹

(1. State Key Laboratory of Urban Water Resources and Environment, Harbin Institute of Technology, Harbin 150090, P. R. China; 2. School of Engineering, Northeast Agricultural University, Harbin 150038, P. R. China)

Abstract: The pollutant removal efficiencies of the bacterial-algae symbiotic system supported by head aeration and membrane aeration under different operating conditions were compared to explore the removal mechanism. Results showed that, in the MABAR (based on membrane aeration), the removal rate of NH₄⁺-N, total nitrogen (TN), PO₄³⁻-P, and COD were soared by 1.44, 21.22, 3.08, 52.09 kg/m²/m³, respectively, compared to HABAR (based on aeration head aeration). In terms of algae accumulation, the algae accumulation concentration of MABAR in 5 stages are higher than that of HABAR, with a highest increased concentration by 15.17 mg/cm². These phenomena not only due to no-stripping and high carbonization ability of membrane aeration to provide sufficient inorganic carbon for autotrophic algae, but

收稿日期:2021-03-01

基金项目:城市水资源与水环境国家重点实验室开放基金(QA202012)

作者简介:张晗(1992-),男,博士生,主要从事膜法污水废水处理研究,E-mail:hitzhanghan@163.com。

梁恒(通信作者),男,教授,博士生导师,E-mail:hitliangheng@163.com。

Received:2021-03-01

Foundation item:State Key Laboratory of Urban Water Resource and Environment (No. QA202012)

Author brief:ZHANG Han (1992-), PhD candidate, main research interest: wastewater treatment through membrane technology, E-mail: hitzhanghan@163.com.

LIANG Heng (corresponding author), professor, doctoral supervisor, E-mail: hitliangheng@163.com.

membrane aeration also provides a good living environment for the bacteria which has the function to stimulate algae growth, such as *Acidovorax*, *Rhodobacter* and *Acinetobacter*. In summary, MABAR can not only promote the removal efficiency, but also help the photobioreactor to resist shock and maintain stability. This new reactor provides a new operating mode for the practical application of the photobioreactor in the future.

Keywords: algae-bacteria symbiosis (ABS); membrane aeration; nitrogen and phosphorus removal; biofilm reactor

利用菌藻共生系统处理污水已经引起广泛关注^[1-2]。在这个共生系统内,藻类在有光源的条件下进行光合作用,利用二氧化碳或无机碳维持自身生长并产生氧气。与此同时,好氧菌利用产生的氧气降解有机物,其完全降解产物又是藻类生长所必需的无机碳。在藻类细菌相互作用下,污水中的有机物及营养物质会吸附同化降解^[3-4]。然而,在实际运行中,菌藻共生体系存在水力停留时间长、藻类所产氧气不足以供给细菌生长以及系统不稳定等问题。比如,Xie 等^[5]利用光生物反应器处理污水时,设置的水力停留时间为 14 d。虽然处理效果显著,但如此长的水力停留时间将限制菌藻共生系统的实际应用。后续研究发现,如果为菌藻共生系统提供额外的氧气,不但可以解决系统本身产氧量不足的问题,还可以大大缩短水力停留时间^[6]。Tang 等^[7]就此进行了不同曝气强度对污染物去除效能及系统稳定性的研究,发现在 24 h 的水力停留时间下,随着曝气强度的增加,藻类的生长会逐步受到限制,甚至在高强度的曝气量下,系统接近崩溃。其原因归结于两方面,一是高曝气强度导致系统内溶解氧的浓度增高,高浓度的溶解氧会抑制藻类的光合作用^[8]。另外,也有研究发现,曝气会导致二氧化碳吹脱^[9],无机碳大量损失,藻类得不到生长所需的无机碳而生长受限。

膜曝气是一种新兴的曝气方式^[10]。其利用膜的微孔结构为污水提供肉眼不可见的氧气,规避了普通曝气所产生的吹脱效应。没有了吹脱,供给的气体可以近乎 100%地被微生物利用,避免一些有利于微生物生长的物质的损失^[11]。过去大多数关于膜曝气生物膜反应器(MABR)的研究都是着眼于以污泥为基础的生物膜,因其具有较强的有机物碳化能力,一直被应用于难降解有机物的去除。Mei 等^[12-13]采用膜曝气生物膜反应器处理乙腈和甲醛废水,利用膜曝气本身无吹脱和较强的氧化能力,完成了二者的去除。其中,乙腈和甲醛的去除率分别为 93.00%和 99.90%。Gong 等^[14]利用膜曝气生物膜

反应器处理牛粪厌氧发酵液,其中 COD 的去除效率最高也可以达到 90.00%以上。除了曝气,膜曝气生物膜反应器中的膜也能作为生物生长的载体,靠近膜表面的生物接触的氧气浓度最高,为好氧区域。氧气在生物膜中传递的过程中逐渐被消耗,到达生物膜外层,即污水区域时,氧气基本耗尽,为厌氧区域^[15]。而在光生物反应器中,生物膜外层是藻类聚集区域,以此来接触阳光进行光合作用。这样,在膜曝气系统内,藻类可以避免溶解氧过高导致的生长受限的问题。

膜曝气的这些优势可以在很大程度上解决菌藻共生系统当前存在的缺陷。笔者建立两类反应器:膜曝气菌藻生物膜光反应器(MABAR)和曝气头曝气生物膜光反应器(HABAR)。通过污染物去除效率、菌群演变以及生物积累几个方面研究两种反应器在不同水力条件下的污染物去除能力和系统稳定性,为菌藻共生系统的实际运行提供了新的方式。

1 材料与方法

1.1 反应器结构

反应器结构简图如图 1 所示,对于 MABAR 来说,整个体系包括 5 个系统(供气系统、进水系统、光源系统、混合系统和生化系统)。其中,供气系统用于向生物反应器供应纯氧气。氧气转移测试在 2 L 反应器中进行。通过纯氮气吹扫超纯水(PW),使其溶解氧至 0 mg/L。将膜组件浸入后开始曝气,在 5 kPa 压力下显示,低于 5 mg/L 的溶解氧(DO)浓度与压力之间呈现出线性关系,这代表曝气量高于 5 mg/L 时会产生气泡。在此基础上,采用相关的斜率来计算 PTFE 膜的 O₂ 传输速率。测得 MABR 在 5 kPa 压力下的供氧速率为 453.2 mg/h。4 个独立的 LED 灯代替日光(光源系统)。利用磁力搅拌装置使整个反应器处于完全混合状态(混合系统)。生化系统是核心,既充当膜曝气生物膜反应器又充当光生物反应器。生化系统的结构为:2.0 L 的矩形有机玻璃容器,0.2 L 的膜组件浸

没在反应器内,膜组件填充率为10%,因此,总工作容积为1.8 L。可以打开该反应器的盖子来监测反应器内溶解氧(DO)和pH值。膜组件参数示于表1。

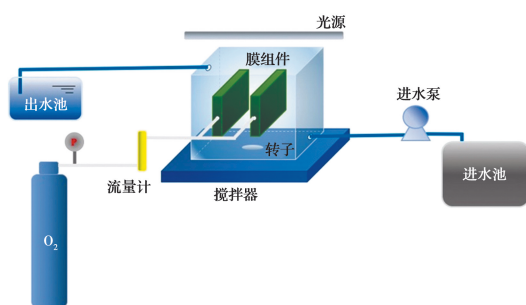


图1 反应器结构图

Fig. 1 The configuration of the reactor

表1 膜组件参数

Table 1 Membrane module parameters

膜材料	膜形式	有效面积/m ²	膜片数量	膜孔径/μm
PTFE (聚四氟乙烯)	平板膜	0.01	4	0.22

而对于 HABAR 来说,供气系统将不再由膜组件担当,而是外加曝气头曝气(曝气头为直径 2 cm、高度 3 cm 的圆柱体),其曝气气体为纯氧气。气体流量同为 5 mL/min。另外,膜组件只充当生物生长的载体。

1.2 菌藻共生污泥的培养

菌藻共生系统包括活性污泥和藻类。活性污泥取自哈尔滨太平污水厂的二次沉淀池。藻类是从淘宝购买的斜生栅藻,并在 BG11 培养液中增殖 10 d,至浓度为 1 500 mg/L (MLSS) 后作为藻类接种物。将活性污泥与藻类稀释至相同的浓度后,在人工废水中混合,此阶段的人工合成废水污染物浓度与实际运行第一阶段(S1)一致,运行时间为 15 d。将培养好的菌藻共生污泥接种到两类反应器内进行挂膜,接种混合悬浮液(MLSS)的浓度为 1 500 mg/L。生物膜挂膜 15 d 后,反应器中所有悬浮的固体均被排出,开始试验阶段。

1.3 实验设计

两类菌藻膜光生物反应器以续批式反应器的模式运行,包括进水 0.5 h,反应 22 h,沉淀 1 h,排水 0.5 h。运行温度与室温相同,为(26±2)℃,以此来节省能源。两个菌藻膜光生物反应器每天从 10:00 到 21:00 进行 11 h 的光照,这个过程是通过 4 个独立的 LED 灯代替日光来完成的,其光强度为 5 000 lx^[16]。另外,反应器体积交换效率保持在 80%,水力停留时间(HRT)为 30 h^[17]。每个进水条件持续时间为 45 d,总运行时间为 225 d。配水所需的化学成分分别为 NaHCO₃ 300~600 mg/L、MgSO₄·7H₂O 65 mg/L、CaCl₂ 7 mg/L。微量元素配比为: H₃BO₃ 2.86 mg/L、MnCl₂·4H₂O 1.86 mg/L、ZnSO₄·7H₂O 0.22 mg/L、Na₂MoO₄·2H₂O 0.39 mg/L、CuSO₄·5H₂O 0.08 mg/L 和 Co(NO₃)₂·6H₂O 0.05 mg/L。COD 的成分为 CH₃COONa, NH₄⁺-N 由 NH₄Cl 提供, PO₄³⁻-P 由 KH₂PO₄ 提供。处理过程中,进水水质的详细信息如表 2 所示。试验中的配水浓度是根据市政废水的各类污染物浓度进行配置的,各阶段的配置理由如下:阶段 1 为初始适应阶段,本阶段中,主要考虑的是低碳氮比废水中的反硝化过程受到限制时两反应器的处理效能。进入阶段 2 后,有机碳增加,这时系统进入正常生活污水的污染物浓度范围。阶段 3 考察高有机碳浓度对系统处理效能及稳定性的影响。阶段 4 考察氨氮骤增对系统处理效能及稳定性的影响。阶段 5 考察高浓度碳氮磷冲击对系统处理效能及稳定性的影响。试验的创新在于:首先,运行过程是长期的,共有 5 个阶段,包括低有机碳阶段(S1)、普通有机碳阶段(S2)、高有机碳阶段(S3)、高氨氮阶段(S4)、冲击阶段(S5);其次,不但有膜曝气支撑的菌藻生物膜系统(MABAR),还增加了对照组曝气头支撑的菌藻生物膜系统(HABAR);考察了广泛的污染物种类,弱化了对藻类生长的研究,着重考察出水水质和系统稳定性。

表2 进水水质

Table 2 The influent quality

运行阶段	持续时间/d	氨氮/(mg·L ⁻¹)	总氮/(mg·L ⁻¹)	磷酸盐/(mg·L ⁻¹)	COD/(mg·L ⁻¹)
S1	45	53.3±2.10	53.3±2.10	5.10±0.07	107.5±1.91
S2	45	51.4±1.82	51.4±1.82	5.33±0.28	267.4±3.09
S3	45	54.1±0.82	54.1±0.82	5.07±0.19	425.9±6.29
S4	45	106.32±2.19	106.32±2.19	5.13±0.53	259.34±4.11
S5	45	103.16±3.51	103.16±3.51	10.13±0.21	823.94±3.83

1.4 分析方法

为了评估反应器内 pH 值和 DO 对污染物去除的影响,采用 pH 计(德国 PB-21)和 DO 计(德国 WTW 的 Oxi3210)来监测 pH 值和 DO。此外,利用纳氏试剂分光光度法(T6, Puxi, 中国)检测 NH_4^+-N , 利用离子色谱(Integerion HPIC, TheromFisher, 美国)监测 $\text{PO}_4^{3-}-\text{P}$, 利用快速消解分光光度计(T6, Puxi, 中国)测定进出水 COD 值,利用 TOC/TN 仪(TOC-TN, Shimadzu, 日本)测量 TN 和 IC。以上监测的污染物(除 $\text{PO}_4^{3-}-\text{P}$)在测量之前都通过 $0.45 \mu\text{m}$ 滤膜过滤去除悬浮物质。利用离子色谱测量 $\text{PO}_4^{3-}-\text{P}$ 浓度前,水样要使用 $0.22 \mu\text{m}$ 滤膜过滤。

使用丙酮溶液萃取法^[18]测量生物膜上叶绿素 a (Chl-a)含量,评估藻类生长水平。与此同时,还考察了反应器内的生物量,利用叶绿素浓度与生物量的比值 Chl-a/Biomass 来考察叶绿素的相对含量。其中,Biomass 代表生物膜干重,而 Chl-a 代表藻类的积累量,并不是藻类的干重。利用高通量测序分析每个反应阶段的生物组成^[19-20]。从 5 个阶段生物反应器中共收集 10 个样品(0.5 g 生物膜),在 5 000 r/min(4 °C)离心 10 min。使用 PowerSoil DNA 分离试剂盒(Mo Bio Laboratories, Inc., Carlsbad, CA),根据制造商的说明提取总 DNA。然后,将上述提取的 DNA 用于 PCR 扩增,扩增引物为 338F (5'-ACTCCTACGGGAGGCAGCAG-3') 和 806R: (5'-GGACTACHVGGGTWTCTAAT-3')。使用 Miseq 对获得的 PCR 产物进行测序,使用 Uparse 软件(版本 7.0.1001)确定操作分类单位(OTU),分析的相似度为 97%。此外,采用 t 检验来评估各组之间污染物去除效能与统计学上的显著性差异 ($r < 0.05$)之间的可能联系。

2 结果与讨论

2.1 系统内有机碳的去除和无机碳的保留

通过分析系统内 DO 以及有机碳的去除和无机碳的保留度来考察两种曝气方式在 5 个阶段对碳元素去除效能及系统稳定性的影响。其中的结果见图 2 和表 3。

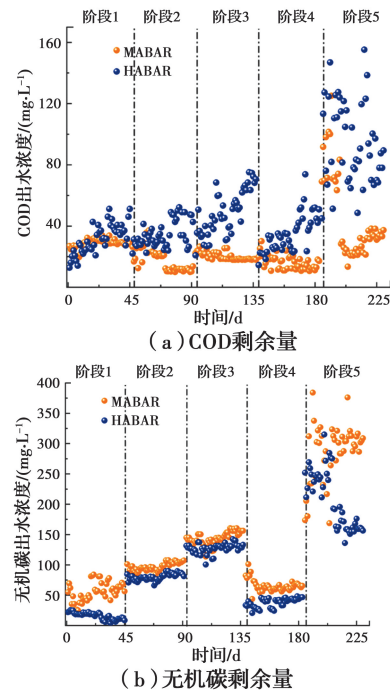


图 2 两种曝气方式下不同阶段内的 COD 剩余量和无机碳剩余量

Fig. 2 Effluent concentration of COD and IC with two aeration modes in different stages

表 3 两反应器中 5 个阶段的 DO 和 pH 值

Table 3 The DO and pH in five stages of two system

阶段	DO/(mg · L ⁻¹)		pH 值	
	MABAR	HABAR	MABAR	HABAR
S1	2.34±0.11	8.23±0.82	7.54±0.04	6.81±0.01
S2	1.13±0.02	5.34±1.10	7.83±0.05	7.32±0.03
S3	0.42±0.01	1.01±0.03	8.11±0.01	7.83±0.02
S4	0.88±0.10	2.34±0.31	7.68±0.09	7.38±0.06
S5	0.13±0.00	0.23±0.03	8.42±0.03	8.33±0.04

S1 属于低有机碳阶段,两类反应器中的 COD 出水浓度相似,都低于 30 mg/L,这会导致两系统所供给的溶解氧远远高于微生物碳化有机碳所需要的溶解氧。因此,在这一阶段里,两种曝气模式下反应器内溶解氧的含量都大于 2 mg/L,在 HABAR 中甚至达到 8.23 mg/L。但在这个阶段内,出水无机碳的浓度却相差甚远。第 1 阶段结束时,HABAR 和 MABAR 中无机碳含量分别为 8.4、56.2 mg/L。这是因为膜曝气系统具有的无吹脱特点避免了运行过程中无机碳以二氧化碳的形式被不断吹脱。相关报道认为,污水中无机碳浓度低于 50 mg/L 时,藻类的生长会受到限制^[21]。因此,HABAR 中所剩余的无机碳不能支持藻类的大量积累。

进入 S2 后,有机碳浓度上升至 250 mg/L,由于变化并不大,两反应器并未受到明显的冲击,出水 COD 浓度分别为 13.6 mg/L(MABAR)、42.7 mg/L(HABAR)。有机碳的增加,也为无机碳的产生提供了原始物质。因此,在 S2 中,HABAR 中所剩余的无机碳浓度虽然仍没有 MABAR 中多,但已经可以满足藻类的生长需求(81.2 mg/L)。与此同时,由于有机碳的增加,所消耗的溶解氧也在增加,在此阶段,两反应器内溶解氧的浓度开始下降,分别为 1.13 mg/L(MABAR)、5.34 mg/L(HABAR)。

S3 进一步增加 COD 至约 400 mg/L。HABAR 在本阶段后期出现了有机碳氧化不足的现象,出水浓度开始大幅度提高。而 MABAR 中却规避了这个现象。这是膜曝气有能力碳化高浓度有机物的证据。在这个阶段,有机碳的再次上升,加速了溶解氧的消耗,两反应器中的溶解氧分别下降至 0.42 mg/L(MABAR)和 1.41 mg/L(HABAR)。

S4 阶段降低了进水 COD 的浓度。有机碳的降低促使溶解氧浓度的上升。两类反应器内的溶解氧浓度分别保持在 0.88 mg/L(MABAR)和 2.34 mg/L(HABAR)。在低有机碳的条件下出水,两反应器的出水 COD 浓度明显降低,分别为 21.83 mg/L(MABAR)和 48.88 mg/L(HABAR)。无机碳方面,HABAR 的吹脱效应仍然存在,出水无机碳浓度为 58.67 mg/L,比 MABAR 少 19.59 mg/L。

进入 S5 后,进水 COD 浓度达到约 800 mg/L,对整个系统都产生冲击。两反应器中溶解氧都下降至 0.3 mg/L 以下。尽管溶解氧如此低,但膜曝气条件下 COD 的去除并未受到明显影响,并且出水浓度很快达到较低水平,本阶段结束时维持在 37.3 mg/L。但 HABAR 中已经呈现 COD 出水超标的现象,出水 COD 最高可以到达 160 mg/L 左右。由于充足的进水有机碳,反应器的 pH 值出现大幅上升,甚至超过 8.0 的现象。就本节来看,除了 HABAR 在 S1 中无法为藻类提供足够的无机碳,其余的运行条件都能满足藻类生长的基本条件。另外,MABAR 系统在有机碳脱除方面有着极大的优势,并有足够的能力抵抗外来冲击。

2.2 营养元素的去除效能

营养元素,包括氨氮,总氮和磷酸盐,是评价出水水质的重要指标。结合有机碳去除和无机碳保留来讨论两类反应器内营养元素的去除效能和机理。其结果展示在图 3 中。

第 1 阶段内,两类反应器中的氨氮都得到了较好的去除,出水含量皆低于 0.50 mg/L。其去除机理如下:因为进水有机碳浓度未干扰到体系内硝化环境,溶解氧充足(表 3),所以,在此阶段内,硝化过程成为 HABAR 反应器中氨氮去除的主要方式。对于藻类同化而言,此阶段 HABAR 反应器中藻类积累量过于低(图 4),所以相对于硝化过程,藻类对氨氮的摄取贡献不大。相对于 HABAR,MABAR 在 S1 中对氨氮的去除方式不仅有硝化,还有藻类同化。这一点不但可以从藻类积累量看出,也可以从总氮和磷酸盐去除中看出(图 3(b)、(c))。在有机碳相同的条件下,两反应器中硝化反硝化的效能相似,但两反应器的总氮去除相差较大,MABAR 的出水总氮比 HABAR 低 21.22 mg/L。该结果表明,在较低有机碳、反硝化过程受限的条件下,膜曝气支持

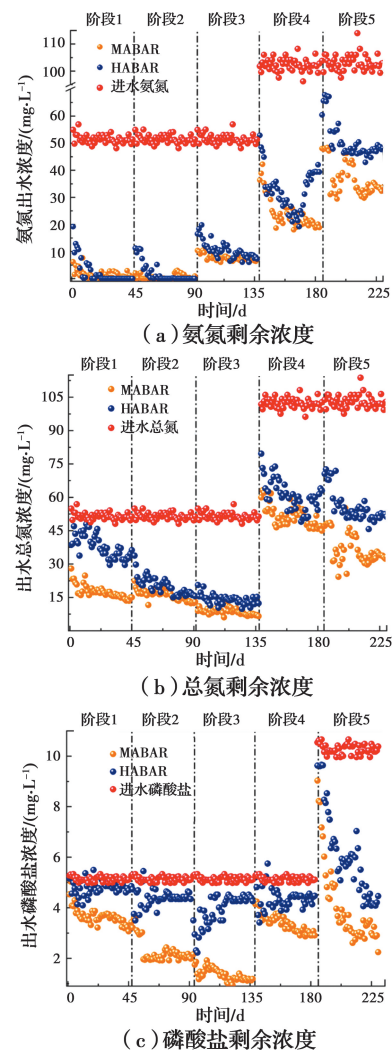


图 3 两种曝气方式下不同阶段内氨氮剩余浓度、总氮剩余浓度和磷酸盐剩余浓度

Fig. 3 Effluent concentration of NH_4^+-N , TN, and $\text{PO}_4^{3--}\text{P}$ with two aeration modes in different stages

的菌藻生物膜反应器相对于普通曝气方式具有更好的总氮去除效能,而这个过程更多地依赖于藻类的同化。另外,在膜曝气系统内,没有排泥过程,导致磷的去除只能依靠藻类的同化作用,因此可以认为磷酸盐的去除与藻类生长呈正相关。本阶段,磷酸盐的去除在两类反应器中有明显差距,最高相差 1.62 mg/L,从侧面证明 MABAR 中积累了更多的藻同化磷酸盐。

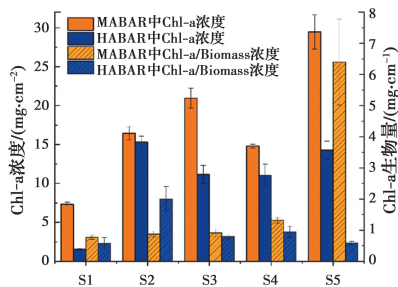


图 4 不同阶段两种反应器中藻类相对生物量积累量

Fig. 4 Algae accumulation concentration related to biomass in two reactors at different stages

进入 S2 后,尽管进水有机碳有所增加,但未对氨氮去除产生明显干扰,在 90 d 的运行过程中,HABAR 中氨氮的出水浓度一直保持在 1.00 mg/L 以下。但随着有机碳的增加,总氮去除受到显著影响,HABAR 中出水总氮迅速下降,并在本阶段结束时达到总氮的去除效果与 MABAR 持平,两反应器出水总氮分别保持在 13.00、14.57 mg/L。同时,由于反硝化明显,产碱量上升,pH 值开始增高,分别为 7.83(MABAR)和 7.32(HABAR)。这说明 C/N 为 5 的条件下,普通曝气支持的菌藻共生系统可以将出水总氮保持在 15 mg/L 以下,进入最优的运行状态。另外,对于磷酸盐来说,更多的有机碳为 PHB 的合成提供了基础底物。因此,S2 阶段的磷酸盐去除较 S1 阶段有明显上升。另外,随着有机碳的增加,藻类积累量也在增加(图 4),加速了磷酸盐的同化过程。本阶段结束时,HABAR 和 MABAR 出水磷酸盐浓度分别为 1.98、4.35 mg/L。

进入 S3 后,有机碳大幅度上升,有机物对硝化细菌的影响开始加剧,随着溶解氧的降低,氨氮通过硝化过程的去除效能也随之降低。因此,在此阶段内,藻类的同化作用在氮元素去除方面起主要作用。本阶段内,MABAR 出水总氮浓度达到本实验中最低,为 6.56 mg/L。这是由于硝化反硝化与藻类同化共同作用的结果。从前 3 个阶段来看,MABAR 出水总氮总是保持在较低的水平,相对于 HABAR

来说,受到有机碳的影响较低,尤其是在有机物不足的情况下。这 3 个阶段证明了膜曝气系统有着较强的维持系统稳定的功能,这一现象归结于两个方面:第一,膜曝气本身具有的短程硝化优势,在低有机碳条件下依然可以维持较好的总氮去除;第二,膜曝气为藻类的生长提供了稳定的环境,藻类的大量积累可以同化更多的氨氮,而这个过程不受到有机物的限制^[8]。

S4 增加了进水氨氮和总氮的浓度,并降低了进水 COD 的浓度。这个过程是为了进一步比较外来冲击对两种反应器中氮元素去除的影响。显然,在开始阶段,两种反应器都受到了较明显的冲击,出水营养元素浓度骤升。但在一定时间后,MABAR 中无论是氨氮还是总氮,都开始呈现明显的下降趋势。而 HABAR 系统中的氨氮和总氮仅在本阶段的后 20 d 里出水浓度有明显的上升趋势。这归因于两点:第一,在长期的曝气过程中,二氧化碳的不断吹脱,无机碳的不断损失,系统内已经出现硝化菌生长受限的状况,这一点从无机碳剩余量(43.22 mg/L)和硝化菌占比(1.08%)两方面可以得到证明。与此同时,随着无机碳的损失,藻类积累也呈现下降趋势,同化过程也在一定程度上开始减弱;第二,较高浓度的氨氮进入系统内,抑制了硝化过程,造成大量氨氮剩余。本阶段中的有机碳量处于较低状态,在普通曝气条件下,很快被异养菌分解,导致反硝化过程的有机物缺失。而膜曝气支撑的生物膜系统因为异向传质的存在,能够避免在反应一开始就大量消耗有机物,为反硝化保存碳源^[22]。尽管如此,由于 C/N 只有 2.5,反硝化依然受限,总氮的去除也未达到良好状态,仅维持在 50%左右。磷酸盐方面,有机碳的不足导致 PHB 合成受限、藻类积累受限,两系统对磷酸盐的吸收受到严重抑制^[23]。在本阶段结束时,HABAR 和 MABAR 出水磷酸盐浓度分别为 2.91、4.47 mg/L。

进入冲击阶段(S5)后,无论是氮元素还是磷元素,都因受到冲击而产生出水恶化现象。但 MABAR 所受冲击要远小于 HABAR,尤其是氨氮和总氮的去除。另外,MABAR 恢复速度也远远高于 HABAR。与 S4 比,两反应器的氨氮去除效能都有所下降,这是因为有机物的浓度大幅度提升已经干扰到了正常硝化过程,出水氨氮浓度维持在 48.13 mg/L。而对于 MABAR 来说,硝化作用仍然存在,但作用已经很微弱,此阶段内的氨氮去除也主

要依赖于藻类的同化,出水浓度维持在 33.73 mg/L。这一点也可以从磷酸盐方面看出,尽管进水磷酸盐浓度已经达到 10 mg/L 左右,但 MABAR 中磷酸盐的出水浓度与前一阶段的出水浓度保持一致,这说明有机碳的增加十分有利于磷酸盐的去除。总氮部分,由于少量的硝化产物存留,HABAR 和 MABAR 出水总氮浓度与氨氮浓度接近,分别为 51.28、34.19 mg/L。在本阶段,MABAR 有着良好的抵抗冲击能力,并且在受到冲击后会迅速恢复到平稳状态。这不仅仅是因为膜曝气本身无吹脱,也是因为藻类生长与氧扩散的不同方向为藻类提供了良好的生存环境,进一步完成系统内的脱氮除磷。

2.3 藻类及生物量积累

观察每个阶段生物膜中藻类积累量是评估藻类生长的重要指标。与此同时,我们还考察了相对于生物量来说的叶绿素积累量,用 Chl-a/Biomass 表示(图 4)。S1 中,由于 HABAR 无法为藻类提供足够的无机碳,藻类的积累量只有 1.54 mg/cm²,为同时段 MABAR 的 1/5。由于有机碳浓度较低,异养菌积累不明显,Chl-a/Biomass 的值在两种反应器内也处于较低状态,分别为 0.77 (MABAR)和 0.57 (HABAR)。进入 S2 后,整个体系无机碳在增加,HABAR 中的藻类开始大幅度积累至 15.31 mg/cm²,与 MABAR 中藻类的积累水平(16.44 mg/cm²)相接近。由此可见,污染物去除方面,两反应器内总氮去除水平相持平归因于藻类的积累量相似。此时 HABAR 中的 Chl-a/Biomass 值也大幅上升,增至 1.99。这说明此时的环境因素为 HABAR 中藻类生长提供了最佳生活环境。进入 S3 后,MABAR 中藻类的积累量依然保持上升,在本阶段结束时,稳定在 20.95 mg/cm²。而 HABAR 生物膜中的藻类浓度开始下降。这可能是因为 HABAR 不能快速地碳化有机物,造成反应器中浊度增加,减弱了光照强度。这也可以从 Chl-a/Biomass 中看出,此阶段继续增加的有机碳导致异养菌的快速繁殖,从而产生较高的生物量,导致 Chl-a/Biomass 迅速下降至 0.79。当 S4 中降低了有机物的浓度,增加了氨氮的进水浓度时,在 MABAR 中,藻类的积累受到限制。原因通过比较 S2 和 S4 两阶段可以得出:这两个阶段的有机碳浓度一致,而 S4 中氨氮的浓度是 S2 的一倍。有报道称高浓度的氨氮可以抑制藻类的增殖,导致了 S2 中藻类的积累量比 S4 多 1.83 mg/cm²。而在此阶段,MABAR 中 Chl-a/Biomass 值仍

处于上升阶段。同样,由于有机碳的下降,HABAR 中 Chl-a/Biomass 也开始上升。综合 S2、S3 和 S4 来看,HABAR 中 Chl-a/Biomass 值受到进水有机碳的影响十分显著。有机物的增长为异养微生物提供了充足的底物,生物膜中生物量开始增大,需要消耗更多的氧气。而 MABAR 却一直保持平稳状态,更能适应外界的冲击。S5 中碳氮磷的浓度都大幅上升,为藻类提供了充足的营养成分。MABAR 中藻类的积累量也有显著增加,达到 29.46 mg/cm²,是 HABAR 中的两倍。这表明当营养物质和无机碳不再成为藻类生长的限制时,MABAR 可以为藻类的生长提供更加稳定的场所。整体上看,MABAR 中藻类的积累量随着有机碳的增加而增加,这在以前的研究中得到过证明^[24];膜曝气系统中有机碳可以促进藻类的生长和积累。但 HABAR 中,藻类的生长与有机物的含量并未出现明显的相关关系,并且相比于膜曝气来说,普通曝气模式不能为菌藻共生体系提供较为稳定的环境来促使藻类积累。

2.4 生物群落分析

为了解两反应器中微生物群落的多样性,深入分析污染物去除的微观机理,检测了门、纲和属 3 个水平下的细菌分布并展示在图 5。在门水平下,MABAR 生物膜上的主要功能细菌分别是变形菌门(Proteobacteria)、拟杆菌门(Bacteroidetes)、绿弯菌门(Chloroflexi)和放线菌门(Actinobacteria)。其中变形菌门和拟杆菌门在 MABAR 中呈现随有机碳的增加丰度先增后降的趋势,而绿弯菌门呈现先降后升的趋势。据报道,拟杆菌门可以在蓝细菌(Cyanobacteria)的裂解中起作用,并且蓝细菌的生长可以被放线菌抑制^[25]。而 MABAR 中两大菌门,拟杆菌门和放线菌门的含量都较高,5 个阶段内拟杆菌门的含量分别为 22.17%、12.68%、5.13%、9.98%和 18.37%,放线菌门的含量为 12.51%、18.17%、33.49%、34.90%和 20.46%。而 HABAR 中放线菌门相对于 MABAR 呈现较低的含量。与此同时,细胞破裂后产生毒性的蓝藻菌门(Cyanobacteria)产生大程度积累。在前 4 个阶段内 HABAR 比 MABAR 在蓝藻菌门丰度上多 1.90%、29.70%、16.61%和 14.58%。进入第 5 阶段后,由于 HABAR 中放线菌门的提升,蓝藻门受到抑制,只有 0.57%。这几种菌门的含量说明 MABAR 可以抑制有毒的蓝藻菌门的积累。其次,作为硝化过

程的重要菌门 Nitrospirae (硝化菌门)^[26] 在 MABAR 中总保持着较低的积累量, 5 个阶段内分别为 1.07%、0.30%、0.15%、3.01% 和 0.56%。很明显, 随着有机物的升高, 硝化菌积累量开始下降。这是因为有机碳的提升为异养菌提供了充足的底物, 异养菌开始大量增殖。这也可以从生物量积累部分看出。异养生物量的增加, 开始与硝化菌争夺氧气, 硝化细菌积累量开始下降。与此同时, 氨氮的提升也会刺激硝化菌门的不断增加^[27], 在第 4 阶段, 硝化细菌的增长量开始大幅上升, 也是归功于氨氮的增加和有机物的减少。相对于 MABAR, HABAR 中硝化菌门不但受到有机物的抑制, 还受到不断的曝气吹脱造成的无机碳损失的影响。5 个阶段内, HABAR 中硝化菌门积累量分别为

15.00%、1.06%、0.37%、1.08% 和 0.00%。相对于 MABAR 来说, 除了第 1 阶段有机碳含量低, 其余阶段硝化菌门的数量都有显著降低。尤其是 S4, 氨氮的去除效果受到了硝化菌的限制, 这是因为膜曝气中硝化菌门积累在生物膜内部, 藻类对其影响较低。而普通曝气模式下, 硝化菌门聚集在氧气含量高的生物膜外表面, 相较于膜曝气来说, 自养的微藻会与自养的硝化菌相互竞争生长物质。从藻类积累量也可以看出, HABAR 中的藻类积累量受到硝化菌限制, 造成在各个阶段都不如 MABAR 的现象。这个结果也证明了膜曝气有利于硝化菌门的稳定生长。另外, 从门水平上看, 两种不同的曝气方式中, 菌群的结构有着显著差异。

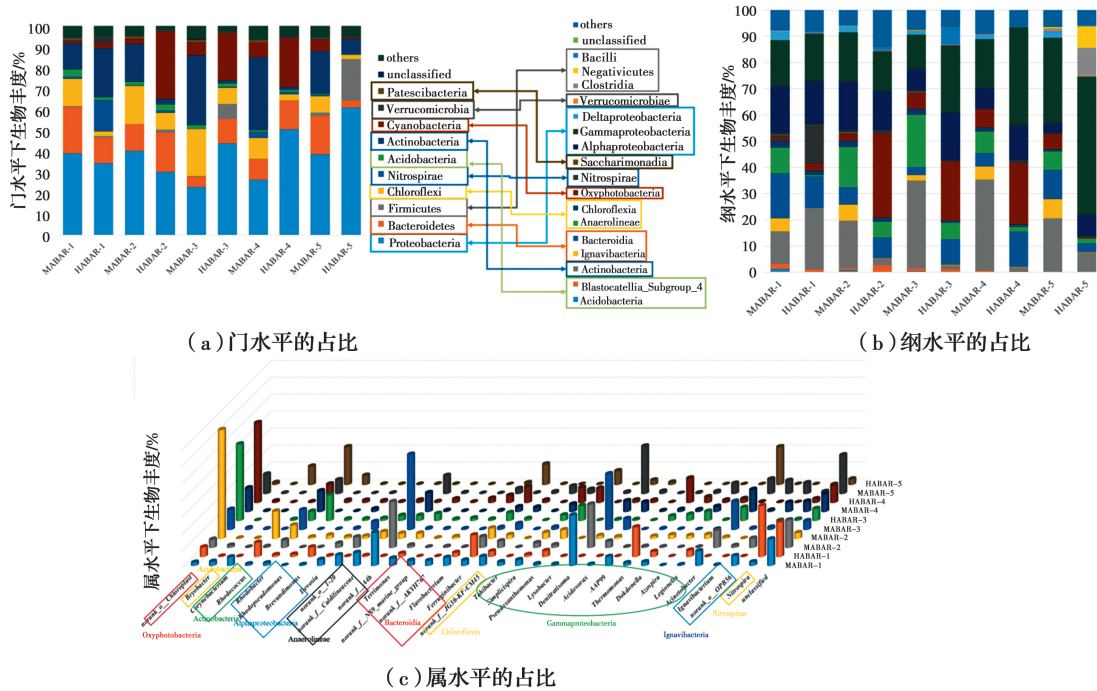


图 5 两种曝气方式下微生物在不同水平中的占比

Fig. 5 The proportion of microorganisms in different levels under two aeration modes

与此同时, 调查了纲水平下的生物群落组成(图 5(b))。放线菌纲 (Actinobacteria)、氧合菌纲 (Oxyphtobacteria) 和硝化菌纲 (Nitrospirae) 的趋势与其所在的菌门一致。变形菌门下属的菌纲中, γ -变形杆菌 (Gammaproteobacteria) 具有产生胶状 EPS 和将细胞结合在一起的能力。此外, γ -变形杆菌也是重要的反硝化细菌^[28]。因此, 随着有机碳的不断增长, γ -变形杆菌的积累量也在增加, 在 S5 中 MABAR 和 HABAR 分别达到了 32.48% 和 52.44%。

为了进一步了解菌群的分布情况, 属水平下的菌群分布如图 5(c) 所示。属水平下有几种利于藻类生长的菌属, 分别是 *Acidovorax*、*Rhodobacter* 和 *Acinetobacter*。据报道, *Acidovorax* 和 *Rhodobacter* 可以与微藻共存, 且 *Acidovorax* 包含许多促进藻类生长的菌种, 可与微藻形成共生关系^[29]。而不动杆菌属 (*Acinetobacter*) 被证实是在某些藻类细菌培养物中促进藻类生长的细菌, 并且它们通过产生糖化酶来去除氮和水解碳水化合物^[19,30], 加速有机碳的碳化过程。在前 5 个阶段, 相对于 HABAR,

Acidovorax 提升量分别为 0.30%、1.29%、2.89%、2.07% 和 0.03%。*Acinetobacter* 上升量分别为 4.30%、4.71%、4.43%、6.34% 和 -6.82%。*Rhodobacter* 增加了 0.23%、-1.74%、3.08%、0.67% 和 -7.08%。从数据上来看,相对于 HABAR,这 3 种菌属在 MABAR 中有着较为明显的提升。但在 S5 时,HABAR 开始反超 MABAR。尽管如此,在藻类积累方面,HABAR 积累量仍然不如 MABAR。

3 结论

通过比较在不同进水条件下,普通曝气(HABAR)和膜曝气(MABAR)支撑下的菌藻生物膜反应器的处理效能和稳定性,提出以膜曝气为核心的菌藻生物膜反应器。结果显示,MABAR 对氨氮、总氮、磷、COD 的处理效能相对于 HABAR 有较明显的提升,最高分别提升 1.44、21.22、3.08、52.09 kg/m²/m³。而在外来冲击下,MABAR 可以更快地适应冲击,迅速恢复到较良好的出水水质。藻类积累方面,MABAR 的无吹脱和强大的有机碳碳化能力保留了更多的无机碳,为藻类的生长提供了充足的底物。一些有利于藻类生长的细菌,例如 *Acidovorax*、*Rhodobacter* 和 *Acinetobacter*,也在 MABAR 中明显积累,促使 MABAR 长期处于高去除效能和强稳定性状态。

参考文献:

- [1] LIU J Z, WU Y H, WU C X, et al. Advanced nutrient removal from surface water by a consortium of attached microalgae and bacteria: A review [J]. *Bioresource Technology*, 2017, 241: 1127-1137.
- [2] 陈涛静. 菌藻共生与生物强化技术在废水处理中的应用及机理研究[D]. 上海: 上海大学, 2017.
CHEN T J. The study on application and mechanism of bacteria-algae symbiosis and bioaugmentation technology in wastewater treatment [D]. Shanghai: Shanghai University, 2017. (in Chinese)
- [3] LI Y C, CHEN Y F, CHEN P, et al. Characterization of a microalga *Chlorella* sp. well adapted to highly concentrated municipal wastewater for nutrient removal and biodiesel production [J]. *Bioresource Technology*, 2011, 102(8): 5138-5144.
- [4] POSADAS E, GARCÍA-ENCINA P A, SOLTAU A, et al. Carbon and nutrient removal from centrates and domestic wastewater using algal-bacterial biofilm bioreactors [J]. *Bioresource Technology*, 2013, 139: 50-58.
- [5] XIE B H, GONG W J, YU H R, et al. Immobilized microalgae for anaerobic digestion effluent treatment in a photobioreactor-ultrafiltration system: Algal harvest and membrane fouling control [J]. *Bioresource Technology*, 2018, 268: 139-148.
- [6] TANG C C, TIAN Y, HE Z W, et al. Performance and mechanism of a novel algal-bacterial symbiosis system based on sequencing batch suspended biofilm reactor treating domestic wastewater [J]. *Bioresource Technology*, 2018, 265: 422-431.
- [7] TANG C C, ZUO W, TIAN Y, et al. Effect of aeration rate on performance and stability of algal-bacterial symbiosis system to treat domestic wastewater in sequencing batch reactors [J]. *Bioresource Technology*, 2016, 222: 156-164.
- [8] KESAANO M, SIMS R C. Algalbiofilm based technology for wastewater treatment [J]. *Algal Research*, 2014, 5: 231-240.
- [9] ZHANG H, GONG W J, BAI L M, et al. Aeration-induced CO₂ stripping, instead of high dissolved oxygen, have a negative impact on algae-bacteria symbiosis (ABS) system stability and wastewater treatment efficiency [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2020, 382: 122957.
- [10] RITTMANN B E. Biofilms, active substrata, and me [J]. *Water Research*, 2018, 132: 135-145.
- [11] CASTRILLO M, DÍEZ-MONTERO R, ESTEBAN-GARCÍA A L, et al. Mass transfer enhancement and improved nitrification in MABR through specific membrane configuration [J]. *Water Research*, 2019, 152: 1-11.
- [12] MEI X, GUO Z W, LIU J, et al. Treatment of formaldehyde wastewater by a membrane-aerated biofilm reactor (MABR): The degradation of formaldehyde in the presence of the cosubstrate methanol [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2019, 372: 673-683.
- [13] MEI X, CHEN Y, FANG C H, et al. Acetonitrile wastewater treatment enhanced by a hybrid membrane-aerated bioreactor containing aerated and non-aerated zones [J]. *Bioresource Technology*, 2019, 289: 121754.
- [14] GONG W J, FAN A L, ZHANG H, et al. Cow manure anaerobic fermentation effluent treatment by

- oxygen-based membrane aerated biofilm reactor [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2020, 395: 125116.
- [15] ACEVEDO ALONSO V, LACKNER S. Membrane aerated biofilm reactors-How longitudinal gradients influence nitrogen removal - A conceptual study [J]. *Water Research*, 2019, 166: 115060.
- [16] MENG F S, XI L M, LIU D F, et al. Effects of light intensity on oxygen distribution, lipid production and biological community of algal-bacterial granules in photo-sequencing batch reactors [J]. *Bioresource Technology*, 2019, 272: 473-481.
- [17] 王振威. 固定化菌藻共生 SBR 系统处理生活污水的效能研究[D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2017.
WANG Z W. Research on the treatment effects towards sanitary sewage using the novel SBR based on the immobilized algae-bacterial symbionts system [D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 2017. (in Chinese)
- [18] TANG C C, TIAN Y, LIANG H, et al. Enhanced nitrogen and phosphorus removal from domestic wastewater via algae-assisted sequencing batch biofilm reactor [J]. *Bioresource Technology*, 2018, 250: 185-190.
- [19] SUN L, TIAN Y, ZHANG J, et al. A novel membrane bioreactor inoculated with symbiotic sludge bacteria and algae: Performance and microbial community analysis [J]. *Bioresource Technology*, 2018, 251: 311-319.
- [20] ZHANG H, GONG W J, JIA B H, et al. Nighttime aeration mode enhanced the microalgae-bacteria symbiosis (ABS) system stability and pollutants removal efficiencies [J]. *Science of the Total Environment*, 2020, 743: 140607.
- [21] LI T, STROUS M, MELKONIAN M. Biofilm-based photobioreactors: Their design and improving productivity through efficient supply of dissolved inorganic carbon [J]. *FEMS Microbiology Letters*, 2017, 364(24): fnx218.
- [22] 张晗. 鸟粪石结晶膜曝气生物膜反应器处理牛粪厌氧发酵液[D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2018.
ZHANG H. Treatment of anaerobically digested cattle manure wastewater with combination of struvite crystallization and membrane aerated biofilm reactor [D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 2018. (in Chinese)
- [23] 范爱伦. 膜曝气生物膜反应器法处理牛粪厌氧发酵液研究[D]. 哈尔滨: 东北农业大学, 2019.
FAN A L. Treatment of anaerobic digestate from cattle manure by membrane aeration biofilm reactor [D]. Harbin: Northeast Agricultural University, 2019. (in Chinese)
- [24] ZHANG H, GONG W J, ZENG W C, et al. Organic carbon promotes algae proliferation in membrane-aeration based bacteria-algae symbiosis system (MA-BA) [J]. *Water Research*, 2020, 176: 115736.
- [25] UNNITHAN V V, UNC A, SMITH G B. Mini-review: A priori considerations for bacteria-algae interactions in algal biofuel systems receiving municipal wastewaters [J]. *Algal Research*, 2014, 4: 35-40.
- [26] NISOLA G M, ORATA-FLOR J, OH S, et al. Partial nitrification in a membrane-aerated biofilm reactor with composite PEBA/PVDF hollow fibers [J]. *Desalination and Water Treatment*, 2013, 51 (25/26/27): 5275-5282.
- [27] RIBOT M, SCHILLER D, SABATER F, et al. Biofilm growth and nitrogen uptake responses to increases in nitrate and ammonium availability [J]. *Aquatic Sciences*, 2015, 77(4): 695-707.
- [28] LIM Y W, LEE S A, KIM S B, et al. Diversity of denitrifying bacteria isolated from Daejeon sewage treatment plant [J]. *Journal of Microbiology*, 2005, 43 (5): 383-390.
- [29] CHEN X Y, HU Z, QI Y, et al. The interactions of algae-activated sludge symbiotic system and its effects on wastewater treatment and lipid accumulation [J]. *Bioresource Technology*, 2019, 292: 122017.
- [30] GAO D W, WEN Z D, LI B, et al. Microbial community structure characteristics associated membrane fouling in A/O-MBR system [J]. *Bioresource Technology*, 2014, 154: 87-93.

(编辑 王秀玲)