

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第12期

Vol.39 No.12

2018

中国科学院生态环境研究中心 主办

斜 学 出 版 社 出版



ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第12期 2018年12月15日

目 次(卷终)

中国燃煤电厂大气污染物排放的健康影响特征·········秦雨,张强,李鑫,赵红艳,同丹,郑逸璇,耿冠楠,贺克斌(5289)基于 LUR 模型的中国 PM,5时空变化分析 ····································
成都双流夏秋季环境空气中 VOCs 污染特征 ····································
四川省人为源大气污染物排放清单及特征 李霞,苏伟健,黎碧霞,龙森,黎丽莉,张洲,于跃刚,王云鹏,王新明(5334)四川省人为源大气污染物排放清单及特征 周子航,邓也,谭钦文,吴柯颖,杨欣悦,周小玲(5344)炼焦工序颗粒物排放特征
流域氮素主要输出途径及企化特征 李文超,雷秋良,翟丽梅,刘宏斌,胡万里,刘申,任天志(5375)生物炭配液理系建释肥对稻田田面水氮素动态变化及径流流失的影响 ——斯林林,周静杰,吴良欢,胡兆平(5381)
加域氮系主安制山速位及变化存证 字文度,面依良,崔丽傅、对宏赋,明万里,对中,任人忘 (55/3) 生物炭配施缓控释肥对稻田田面水氮素动态变化及径流流失的影响 斯林林,周静杰,吴良欢,胡兆平 (5383) 长江上游农业源溪流雨季中N,Q间接排放特征 田琳琳,王正,朱波 (5391) 不同氮污染特征河流N,Q浓度、释放通量与排放系数 王淼,李亚峰,雷坤,杨丽标 (5400) 多种同位素手段的硝酸盐污染源解析:以会仙湿地为例 彭聪,潘晓东,焦友军,任坤,曾洁 (5410) 典型岩溶槽谷区土壤水δD和δ ¹⁸ O时空分布特征:以重庆市中梁山岩溶槽谷为例
典型岩溶槽谷区土壤水δD和δ ¹⁸ O时空分布特征:以重庆市中梁山岩溶槽谷为例 吴韦,蒋勇军,贾亚男,彭学义,段世辉,刘九缠,王正雄(5418) 沁河冲洪积扇地下水水化学特征及成因分析 刘江涛,蔡五田,曹月婷,蔡月梅,边超,吕永高,陈远铭(5428) 2017 年最大降水对再生水受水河道径流组成的影响
2017 年最大降水对再生水受水河道径流组成的影响
周村水库主库区水体热分层形成过程中沉积物间隙水 DOM 的光谱演变特征
周利水库主库区水体热分层形成过程中机积物间隙水 DOM 的光谱演变特征
典型旅游城市河流水体及污水厂出水中全氟烷基酸类化合物的空间分布及其前体物的转化
典型旅游城市河流水体及75次)
所有水库机柱把架(Cylindrospermopsis ractionskii)的分布存征及影响因于分析
静压快速启动亚硝酸盐依赖型甲烷厌氧氧化反应 知颖男,陶华强,宋圆圆,张春青,逯彩彩,韩懿,李海波,郭建博(5558) 多级 AO 耦合流离生化工艺流量分配比优化及脱氮机制 王帆,李军,边德军,聂泽兵,张莉,孙艺齐(5572) 主流条件下两级式 PN-ANAMMOX 工艺的高效能脱氮过程
—————————————————————————————————————
主流厌氧氨氧化工艺的运行优化及其微生物的群落变迁 ··············· 付昆明, 付巢, 李慧, 姜姗, 仇付国, 曹秀芹 (5596) 厌氧氨氧化污泥恢复过程中的颗粒特性············ 陈方敏, 顾澄伟, 胡羽婷, 黄勇, 李祥, 陆明羽, 方文烨, 金润 (5605) 低温反硝化菌——施氏假单胞菌 N3 的筛选及脱氮性能 ····················· 路俊玲, 陈慧萍, 肖琳 (5612)
复垦工业场地土壤和周边河道沉积物重金属污染及潜在生态风险 ————————————————————————————————————
亚热带典型 岩溶水 医细菌主度和细菌生产力及耳与环境因子的关系
岩溶区典型灌丛植物根系丛枝菌根真菌群落结构解析
·····································
·····································
CO2. 旧星泉戶下不同至頁朔水相峽氮碎召重及其打重比特征.
《环境科学》第 59 卷(2018 年) 总自录 (5740) 《环境科学》征订启事(5343) 《环境科学》征稿简则(5439) 信息(5595, 5619, 5638)

静压快速启动亚硝酸盐依赖型甲烷厌氧氧化反应

王一囡, 胡振*, 茹东云, 姜丽萍, 刘华清

(山东大学环境科学与工程学院,济南 250100)

摘要: 在序批式反应器(SBR) 中接种污水厂厌氧池污泥和深层水稻土的 1: 1混合污泥,在阶段性提升基质NO $_2^-$ -N浓度的条件下,考察静压条件对亚硝酸盐依赖型甲烷厌氧氧化(nitrite-dependent anaerobic methane oxidation, N-DAMO) 反应快速启动过程的影响,并对 N-DAMO 反应的主导微生物的丰度变化进行分析. 结果表明运行 120 d 后,常压(R1)和 0. 3 MPa 静压(R2)条件下,都观测到了明显的 N-DAMO 现象,并且 R2 的NO $_2^-$ -N去除速率达到了 36. 90 mg·(L·d) $^{-1}$,较 R1 提高了 24%;其 4 h 内平均脱氮速率(以NO $_2^-$ -N计)达到 0. 10 mmol·(L·h) $^{-1}$,比 R1 提高了 186%。R2 中富集得到的污泥粒径约为 R1 的 2 倍,比表面积更大,优化了污泥中甲烷的传质情况,有助于 N-DAMO 反应的进行,且 R2 污泥的 N-DAMO 比活性(以 N/VSS 计)达到了 0. 29 mg·(g·h) $^{-1}$,是 R1 的 2 倍。此外,静压有助于 N-DAMO 功能微生物 Candidatus Methylomirabilish oxyfera (M. oxyfera)的生长,实验结束时 R2 中 M. oxyfera 细菌 16S rRNA 基因的丰度比接种初期提高了 22 倍,是同阶段 R1 中的 10 倍。可见,提高静压能够有效促进 N-DAMO 反应的启动。

关键词:亚硝酸盐依赖型甲烷厌氧氧化(N-DAMO); 快速启动; 静压; *M. oxyfera*; 序批式活性污泥反应器(SBR)中图分类号: X703.1 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)12-5565-07 **DOI**: 10.13227/j. hjkx. 201805156

Rapid Start-up of a Nitrite-Dependent Methane Anaerobic Oxidation Reaction Under Static Pressure Conditions

WANG Yi-nan, HU Zhen*, RU Dong-yun, JIANG Li-ping, LIU Hua-qing (School of Environmental Science and Engineering, Shandong University, Ji'nan 250100, China)

Abstract: The present study explores the effect of static pressure on the rapid start-up of a nitrite-dependent anaerobic methane oxidation (N-DAMO) process in lab-scale sequencing batch reactors (SBR). A mixture of anaerobic sludge and deep paddy soil with a volume ratio of 1:4 was used as inoculum and the influent of the nitrite (NO_2^- -N) concentration was gradually increased to avoid a toxicity shock. The variation of the NO_2^- -N removal performance and corresponding microbial characteristics were analyzed to evaluate the development of the N-DAMO process. After 120 days of operation, significant N-DAMO phenomena were observed in both the control SBR (R1) with normal pressure and pressurized SBR (R2) with a static pressure of 0.3 MPa. The NO_2^- -N removal rate (measured by NO_2^- -N) of R2 (36.90 mg·(L·d) $^{-1}$) was 24% higher than that of R1, while the average NO_2^- -N removal rate in the first 4 h of the batch cycle in R2 (0.10 mmol·(L·h) $^{-1}$) was 186% higher than that of R1. The mean sludge size of R2 was ~2-fold larger than that of R1. Sludge in R2 also has a bigger specific surface area, which improves the mass transfer rate of methane and the N-DAMO performance. The specific activity of N-DAMO (measured by N/VSS) reached 0.29 mg·(g·h) $^{-1}$ in the study period, which is approximately 2 times higher than that of R1. Moreover, the abundance of N-DAMO functional microbes *Candidatus Methylomirabilish oxyfera* (*M. oxyfera*) in R2 was 10-fold higher than that of R1. These results indicate that static pressure effectively accelerates the start-up of the N-DAMO process.

Key words: nitrite-dependent anaerobic methane oxidation (N-DAMO); rapid start-up; static pressure; *M. oxyfera*; sequencing batch reactor (SBR)

氮素是我国水体污染物的主要控制指标之一,我国废水中氮元素严重危害环境安全和人体健康.目前,含氮废水处理的主要方法之一是传统的硝化-反硝化生物脱氮工艺,但是其引发的高能耗、高运行成本、高温室气体 N_2O 排放等问题受到广泛关注^[1]. 近年来出现了一系列污水生物脱氮革新工艺,如同步硝化反硝化(simultaneous nitrification and denitrification, SND)工艺^[2]、短程硝化-厌氧氨氧化(partial nitrification-anaerobic ammonium oxidation, PN-ANAMMOX)工艺^[3]等,不仅大大节约了运行成

本,还可减少 N_2O 的排放. 但是,现有的污水脱氮新技术大多将碳氮转化割裂开来,存在污水处理路线复杂、能量利用效率低等问题. 亚硝酸盐依赖型反硝化型甲烷厌氧氧化(nitrite-dependent anaerobic methane oxidation, N-DAMO)是近年来新发现的脱

收稿日期: 2018-05-18;修订日期: 2018-06-11

基金项目: 国家 水 体 污 染 控 制 与 治 理 科 技 重 大 专 项 (2017ZX07101003); 山 东 省 自 然 科 学 基 金 项 目 (ZR2018QEE006)

作者简介: 王一囡(1994~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为废水处理及其资源化利用, E-mail; wangyn_sdu@163. com

* 通信作者,E-mail:huzhen885@sdu.edu.cn

氮途径, 耦合了亚硝酸盐的还原和甲烷的厌氧氧化, 是环境科学和微生物学领域中最重要的发现之一, 引起了广泛的关注. Raghoebarsing 等^[4] 和 Ettwig 等^[5,6] 均对 N-DAMO 的反应机制进行了阐述, 其反应式见式(1).

$$3CH_4 + 8NO_2^- + 8H^+ \longrightarrow 3CO_2 + 4N_2 + 10H_2O$$
(1)

催化 N-DAMO 反应的主体为 Candidatus Methylomirabilish oxyfera (M. oxyfera)细菌,由于 其倍增时间长达1~2周,反应速率慢[7,8],是现 如今 N-DAMO 研究应用的最重要限制因素之 一^[9], 因此近年来关于 N-DAMO 过程的研究多集 中在其启动速率优化和反应条件的探索上. 蔡 琛[10]总结出水稻土壤和人工培养基是启动 N-DAMO 反应的较优条件; Hu 等[11]的研究发现了 磁力搅拌反应器中的 N-DAMO 反应最大体积除氮 速率(以 NO₂-N 计)可达 76.9 mg·(L·d)⁻¹; Bhattachariee 等[12]的研究发现甲烷鼓泡的膜生物 反应器能够促进 N-DAMO 反应的启动; 而赵荣 等[13] 在探究出最佳的 pH、温度和盐度综合的培 养条件下, 用时 13 个月后达到(7.350 ± 1.768) μmol·h⁻¹的 N-DAMO 反应速率(以 NO₂ 计),仍 离实际应用的要求有较大差距.

值得注意的是,目前涉及到 N-DAMO 反应的研究大多是在常压条件下进行的,而实际上 N-DAMO 微生物大多分布于存在静压的沟渠沉积物^[14]、河床沉积物或深层土壤中^[15].有研究表明,静压条件对微生物生长繁殖与代谢有重要的影响. He 等^[16]对湿地中 N-DAMO 菌的垂直分布进行了分析测试,发现深层土壤中 N-DAMO 菌的丰度明显大于浅层

土壤^[17]; Deusner 等^[18] 对与 N-DAMO 反应十分类似的硫酸盐型甲烷厌氧氧化(sulphate-dependent anaerobic methane oxidation, SAMO) 反应进行了静压实验,单位 SAMO 的反应速率较传统条件下提升了6倍; 乔长晟等^[19]的研究证明,适当的静压能够显著优化同样是厌氧细菌的蓝色型头霉菌的代谢情况; 因此,可以假设,适当提高静压能够强化 N-DAMO 反应的启动.

本研究采用静压 SBR 启动 N-DAMO 反应,通过对启动时间、脱氮性能、污泥性状、N-DAOM 反应相关菌的数量等进行对比分析,探究静压对 N-DAMO 反应启动过程的影响,以期为 N-DAMO 过程的工艺优化和实际应用提供依据和参考.

1 材料与方法

1.1 反应器设计与运行

实验过程中平行运行了两套圆柱 SBR, 有效容积均为 2.5 L, 结构如图 1 所示. 对照组(R1)采用有机玻璃制造, 在常压条件(0.1 MPa)下运行, 以 2 mL·min $^{-1}$ 的速率连续通入 99.9%的 CH₄ 作为碳源;实验组(R2)为不锈钢反应釜, 在每次进水后利用 99.9%的 CH₄ 加压至 0.3 MPa 进行反应. 尽管不同的静压可能导致不同的甲烷分压,但本研究中甲烷的分压均高于其限制阈值 25.33 kPa $^{[20]}$, 另外有研究表明, 在有水合物存在的情况下,压力不是影响甲烷溶解度的重要因素 $^{[21]}$. 因此在本研究中甲烷分压并不是 N-DAMO 反应的限制因素. 为了尽可能降低 NO_2^- 对 N-DAMO 微生物的毒害作用,采用阶段性提升 NO_2^- -N浓度的进水方式进行富集启动.

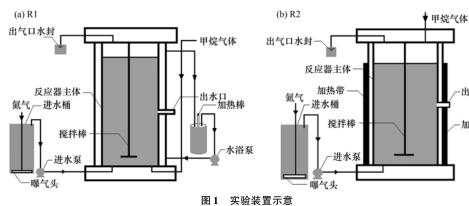


Fig. 1 Sketch of the experimental setup

本实验过程中,系统温度控制在 (31 ± 1) °C,每个运行周期均为48 h. 其中进水期为0.5 h,反应期为46 h,沉淀期为1 h,排水期为0.5 h. 排水比

为 0.5,每个周期结束后向反应器中加入 1.25 L 经 氩气充分曝气的脱氧模拟废水,水力停留时间为 96 h.

出水口

加热带

1.2 接种污泥和配水方案

反应器中的接种物是将山东省济南市光大水务 厌氧池污泥和济南市黄河南岸旱稻田深层土按照 1:1的比例混合得到的种泥,实验过程中,维持两个反应器内污泥浓度为 $10~g \cdot L^{-1}$.

模拟污水(用99% Ar 饱和,排除 O,)参考

Raghoebarsing 等^[4]的报道,组成成分为:KHCO₃,0.25 g·L⁻¹; KH₂PO₄,0.05 g·L⁻¹; CaCl₂,0.225 g·L⁻¹; MgSO₄·7H₂O,0.2 g·L⁻¹; pH 控制在 7.0 ~7.3,酸性微量元素母液 0.1 mL·L⁻¹,碱性微量元素母液 0.05 mL·L⁻¹,微量元素母液成分见表 1.

表 1 微量元素母液成分

Table 1 Composition of the microelement mother liquor

酸性微量元素			碱性微量元素		
组成	质量浓度/g·L ⁻¹	组成	质量浓度/g·L-1	组成	质量浓度/g·L ⁻¹
FeSO ₄ ·7H ₂ O	2. 085	ZnSO ₄ ·7H ₂ O	0.068	SeO_2	0. 067
$CoCl_2 \cdot 6H_2O$	0. 12	$MnCl_2 \cdot 4H_2O$	0.5	$\mathrm{Na_{2}MoO_{4}}$	0. 242
${ m CuSO_4}$	0. 32	$NiCl_2 \cdot 6H_2O$	0.095	$Na_2WO_4 \cdot 2H_2O$	0. 05
H_3BO_3	0. 014				

1.3 N-DAMO 活性测试

自R1、R2 中各取适量污泥,使用无氧水洗涤 3次. 取 0.6 g 洗涤后污泥转移至血清瓶,添加 NO_2^- -N浓度为 0.5 mmol·L⁻¹的模拟污水至瓶中,定 容至 300 mL. 每种污泥设置一个平行和一个对照,其中对照组的介质为纯水. 每个血清瓶用氩气吹脱氧气后加入适量 CH_4 ,控制 CH_4 浓度约为 9 mmol·L⁻¹. 将血清瓶置于 30℃水浴中并利用磁力搅拌器进行搅拌,与 R2 同步运行 48 h. 每隔 4 h 取血清瓶和反应器中水样分析其中 NO_2^- 浓度,取血清瓶中气样分析其中 CH_4 浓度.

1.4 测定项目和方法

每个周期结束后,分别取一定量上清液,分别采用 pH 计(pH3210, WTW)和溶解氧(dissolved oxygen, DO)仪(Multi3420, WTW)测定 pH 和 DO; 另取一定量上清液,采用文献[22]中的方法分析

 NO_3^- 、 NO_2^- 的浓度.

在每次提升 NO_2^- -N负荷前(即两个反应器的 NO_2^- -N去除率均稳定高于95%后)和实验末期,自两个反应器中分别取适量悬浊液,离心弃去上清液,固体保存至 -20° C用于后续 DNA 提取和微生物分析. 采用实时定量基因扩增荧光监测系统(qPCR)实验进行 M. oxyfera 菌 16S rRNA 的基因扩增. 使用装有序列检测软件(Applied Biosystems, USA)的 qPCR 扩增仪 LightCycler@480 II (Roche,瑞士),通过 SYBR 染料法(SYBR® Premix Ex TaqTM,TaKaRa,日本)对 NC10 门细菌的 16S rRNA 基因定量分析. 选用引物为 qP1F/qP1R $^{[23]}$,引物序列及扩增程序见表 2.

在本实验末期,于 R1、R2 中各取出 10 mL 的 污泥,采用激光粒度分布仪(BT-9300H, 百特仪器 有限公司)进行分析.另外于 R1、R2 中各取出适量

表 2 本实验中用到的引物以及相关的程序[23]

Table 2 Primers and related thermals used in the present experiment

引物	序列(5′-3′)	靶基因	位置	温控程序
qp1F	GGGCTTGACATC CCACGAACCTG	M. oxyfera 16S rRNA	1001	95℃预变性 10 min. 95℃变性 60s, 50℃ 退火 60 s, 72℃延伸 45 s, 循环 32 次. (pcr, qp1F, -qp2R)
${\rm qp}1{\rm R}$	CGCCTTCCTCCA GCTTGACGC	M. oxyfera 16S rRNA	1201	95℃预变性 3 min. 95℃变性 60 s, 72℃下退火 60 s, 59℃延伸 60 s, 循环 40 次. (qpcr, qp1F, -qp1R)

的污泥,利用扫描电镜进行观察、拍照.

2 结果与讨论

2.1 N-DAMO 反应的启动

本实验过程中, R1 的NO₂ -N负荷由 15 mg·L⁻¹ 提升至 120 mg·L⁻¹, R2 由 15 mg·L⁻¹提升至 150 mg·L⁻¹, NO₂ -N去除率随时间的变化情况见图 2. 在进水浓度提升至 30 mg·L⁻¹及以上后,R1 在每次 NO_2^- -N浓度提升后, NO_2^- -N去除率均出现较为明显的先下降后上升波动,且去除率达到稳定的耗时随 NO_2^- -N浓度的提升而延长;R2 除启动前期(0~40 d)去除率轻微波动外,启动中后期,浓度提升过程中其去除率均稳定在 95% 左右,即在较高的 NO_2^- -N浓度条件下,R2 更能显示出其优越性,启动过程快

速稳定. 在富集启动期结束后,在 R1、R2 中的 NO_2^- -N浓度最终分别稳定于 120 $mg \cdot L^{-1}$ 和 150 $mg \cdot L^{-1}$, R2 在 48 h 的运行周期内处理效率比 R1 高 25%. R1 的 亚 硝 氮 去 除 速 率 达 到 29.8 $mg \cdot (L \cdot d)^{-1}$,与 文 献 [24]中报道的 28.2 $mg \cdot (L \cdot d)^{-1}$ 相近. 然而,在静压条件下的 R2,其平均 NO_2^- -N去除速率达到了 36.9 $mg \cdot (L \cdot d)^{-1}$,是常压条件下的 1.2 倍,同时也大幅高于目前文献报道的 28.2 $mg \cdot (L \cdot d)^{-1}$ 的最大速率 [24]. 这一结果表明,在 0.3 mg 的静压作用下,R2 有良好的 $mg \cdot (L \cdot d)^{-1}$ 的最大速率 明,在 0.3 mg 的静压作用下,R2 有良好的 $mg \cdot (L \cdot d)^{-1}$ 的最大速率 , 在 0.4 $mg \cdot (L \cdot d)^{-1}$ 的最大速率 [24].

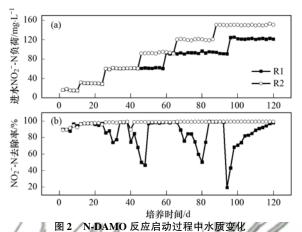


Fig. 2 Variation of the NO₂⁻-N concentration during the start-up of the N-DAMO process

在培养启动期结束后进行的活性测试,结果如表 3 中所示,其中分别为 R1 污泥和 R2 污泥在常压条件下活性测试得到的脱氮速率和同步运行 R2 得到的脱氮速率.对比 R1 污泥和 R2 污泥在常压下的平均脱氮速率可知,后者对 NO_2^- -N的处理效果优于前者,即 R2 污泥对于 NO_2^- -N的处理速度更快;通过对比 R2 污泥在常压和 0. 3 MPa 下的脱氮速率可知,在利用同样的污泥进行处理的情况下,静压环境下的微生物处理 NO_2^- -N的效率更高,符合快速启动的要求.活性批次实验运行 24 h 后 R2 污泥在常压和 0. 3 MPa 的平均脱氮速率相等,均为 0.021

表 3 N-DAMO 活性测试平均脱氮速率

Table 3 Average nitrogen removal rate of the N-DAMO activity test

	平均脱氮速率/mmol·(L·h) ⁻¹		
时间/h	R1 污泥 (常压条件)	R2 污泥 (常压条件)	R2 污泥 (0.3 MPa)
4	0. 036	0.063	0. 103
8	0. 029	0. 048	0. 062
12	0. 024	0.036	0. 042
24	0.018	0. 021	0. 021
48	0.010	0.010	0.010

 $mmol \cdot (L \cdot h)^{-1}$,说明此时两个反应系统中的 NO_2^- -N都已经消耗尽;同理可知,48 h 时 3 个系统中的 NO_2^- -N均已经反应完毕.

通过活性测试进行到 12 h 得到的数据, 计算得到 R1 污泥在常压条件下反应的 N-DANO 比活性 (以 N/VSS 计, 下同)为 0. 17 mg·(g·h)⁻¹, 与之前 文献报道中的数值接近^[10], 而 R2 污泥在常压和静压条件下的 N-DAMO 比活性分别为 0. 25 mg·(g·h)⁻¹和 0. 29 mg·(g·h)⁻¹,R2 污泥的 N-DAMO 活性远高于 R1 污泥,即相比较而言,R2 启动得到的污泥可以在高压条件下实现最佳的NO₂⁻-N去除率监测的结果具有一致性. 因此静压条件对于 N-DAMO 相关微生物的富集和代谢均具有促进作用,进而有助于 N-DAMO 反应的快速启动.

2.2 静压对污泥性能的影响

为了研究静压条件对污泥性能的影响,进行了粒径分布实验,结果如图 3 所示. R1 中污泥的中位粒径为 18.31 μm,体积平均粒径为 20.88 μm; R2污泥的中位粒径为 32.83 μm,体积平均粒径为34.16 μm,这表明在静压条件的作用下,R2 的污泥粒径更大,接近 R1 中污泥粒径的 2 倍,因此 R2的污泥具有更好的成团性,进而有利于污泥内部厌氧环境的形成和维持,促进目标反应发生和整个 N-DAMO 反应过程的启动.

图 3 中区间质量分数的数据表明,R2 中污泥的粒径分布更集中,90%的污泥粒径集中在11.11~68.58 μm 之间.R1 和R2 污泥的比表面积分别为216.08 m²·kg⁻¹和110.19 m²·kg⁻¹,R2 污泥的比表面积小于R1,这是由于污泥颗粒成团导致的.较小的比表面积进一步优化了污泥内部的厌氧情况.由于厌氧条件是促进 N-DAMO 微生物富集和N-DAMO 反应发生的关键因素,因此静压条件下得到的污泥具有更好的甲烷厌氧氧化耦合反硝化效果,能够快速启动 N-DAMO 反应,与图 2 得到的结论一致.

在培养启动期结束后,对污泥进行扫描电镜观察,结果如图 4 所示. R1 污泥中细菌表面比较光滑,而 R2 的污泥中细菌表面更粗糙,与目标反应物 NO_2^- -N和甲烷的接触面积更大,在静压条件下具有更快的传质速率;有研究指出,甲烷的传质速率是影响 *M. oxyfera* 细菌所属 NC10 门细菌培养的重要因素 [25],因此在 R2 中,表面粗糙的目标菌可以获得更快的传质速率,进而促进了整个反应的快速启动.

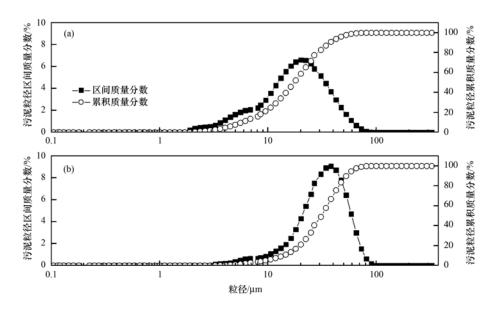
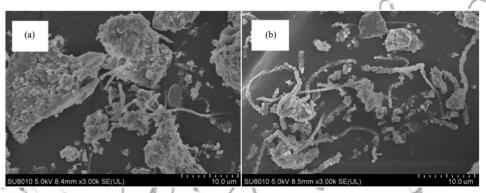


图 3 不同反应器的污泥粒径分布

Fig. 3 Particle size distribution of sludge in different reactors



(a) 对照反应器(R1); (b) 静压反应器(R2)

图 4 实验末期污泥扫描电镜图

Fig. 4 SEM images of both SBRs at the end of the study period

2.3 微生物群落结果分析

通过对各个阶段 R1、R2 的污泥进行 qPCR 实验,得到表 4 中的结果. 在进水NO $_2^-$ -N浓度较低的前 3 个阶段(\leq 60 mg·L $^{-1}$),R1 和 R2 中 M. oxyfera 细菌的丰度随进水浓度的提高而提升,且 R1 污泥中 M. oxyfera 细菌的丰度略高于 R2,这是由于 R2 中 M. oxyfera 细菌对静压环境尚未完全适应,这也解释了启动阶段 0~40 d R2 出水水质的波动情况. 当进水浓度提升至 60 mg·L $^{-1}$ 时,R2 污泥 M. oxyfera 细菌的丰度略高于 R1,表明这一阶段,M. oxyfera 细菌已经适应了反应器中的静压环境,并且 R2 初步显现了在静压条件下对 M. oxyfera 细菌富集作用的优越性. 当进水浓度达到 90 mg·L $^{-1}$ 时,R1 污泥中 M. oxyfera 细菌的丰度较 60 mg·L $^{-1}$ 的浓度时有一定的增长,但是和文献中报道的结果类似,生长速率较慢 $^{[5,26]}$,仅为同样浓度时 R2 中 M.

oxyfera 细菌丰度的一半左右,这也进一步表明静压可以促进目的菌的富集生长.

表 4 M. oxyfera 细菌 16S rRNA 基因的丰度×10⁹/copies·g⁻¹
Table 4 Abundance of 16S rRNA genes in M. oxyfera

bacteria ×10 ⁹ /copies·g ⁻¹				
进水NO ₂ N浓度/mg·L ⁻¹	R1	R2		
0	1. 41	1. 26		
30	7. 69	7. 22		
60	8. 01	8. 57		
90	9. 69	15. 4		
120	2. 91	27. 1		
150	_	29. 1		

在进水浓度达到 120 mg·L^{-1} 时,R1 中 M. oxyfera 细菌丰度较之前出现了大幅的下降,是由于模拟污水中浓度为 120 mg·L^{-1} 的 NO_2^- -N具有一定的毒性^[27],且其浓度超过了文献所报道的抑制常数^[25],因此对 N-DAMO 微生物起到了一定的抑制

作用. 而 R2 中 M. oxyfera 细菌的丰度在达到 120 $mg \cdot L^{-1}$ 后出现了大幅度的提升, 是同期 R1 中 M. oxyfera 细菌丰度的 9.31 倍; 当提升至 150 mg·L⁻¹ 后,与R1中情况不同,R2中 M. oxyfera 细菌的丰 度较接种初期提高了22.04倍,即高浓度的NO₂-N 并未对 R2 中的 M. oxyfera 细菌的丰度和活性产生 抑制,反而使得 M. oxyfera 菌进一步增殖;也正是 由于 M. oxyfera 细菌的富集, R2 在这一阶段的亚硝 氮处理效率稳定保持在95%左右.这一结果证实, 静压显著提高了 M. oxyfera 细菌对 NO_{5}^{-} -N毒性的耐 受性, 进一步优化了反应器中 N-DAMO 的活性和反 应效率. 在实验结束时, 静压反应器中 M. oxyfera 细菌丰度达到 2.91 × 10¹⁰ copies·g⁻¹, 是蔡琛^[10] 在 现有研究最优条件下富集得到 M. oxyfera 细菌丰度 的 2. 31 倍, 富集增殖效果显著, 且实现了对 N-DAMO 反应的快速启动.

3 结论

- (1) 静压条件有利于 N-DAMO 反应的快速启动,培养得到的污泥对 NO_2^- -N具有良好去除效果. 经过 120 d 阶段性 NO_2^- -N浓度提升的培养启动后, 0.3 MPa 静压条件下污泥的 N-DAMO 反应的氮去除速率(以 NO_2^- -N计)达到了 36.90 mg·(L·d) $^{-1}$, 是常压条件下的 1.24 倍.
- (2)在静压 SBR 中富集得到了较大粒径的污泥,中位粒径和体积平均粒径约为常压条件下污泥的 2 倍. 静压反应器中富集得到的污泥在具有良好成团性和厌氧情况的同时,粒径更均匀,有助于 N-DAMO 反应的进行.
- (3) qPCR 实验结果表明,静压条件下 M. oxyfera 细菌 16S rRNA 基因的丰度最终达到了 2. 91 × 10^{10} copies·g⁻¹,较接种初期提高了 22. 04 倍, N-DAMO 微生物的大幅增殖提高了反应器对于 NO_2^- -N的耐受性.

参考文献:

- [1] Zhang F Z, Peng Y Z, Miao L, et al. A novel simultaneous partial nitrification Anammox and denitrification (SNAD) with intermittent aeration for cost-effective nitrogen removal from mature landfill leachate [J]. Chemical Engineering Journal, 2017, 313: 619-628.
- [2] Ma W W, Han Y X, Ma W C, et al. Enhanced nitrogen removal from coal gasification wastewater by simultaneous nitrification and denitrification (SND) in an oxygen-limited aeration sequencing batch biofilm reactor [J]. Bioresource Technology, 2017, 244: 84-91
- [3] Miao Y Y, Zhang L, Yang Y D, et al. Start-up of single-stage

- partial nitrification-anammox process treating low-strength swage and its restoration from nitrate accumulation [J]. Bioresource Technology, 2016, 218: 771-779.
- [4] Raghoebarsing A A, Pol A, Van De Pas-Schoonen K T, et al. A microbial consortium couples anaerobic methane oxidation to denitrification [J]. Nature, 2006, 440 (7086): 918-921.
- [5] Ettwig K F, Shima S, Van De Pas-Schoonen K T, et al. Denitrifying bacteria anaerobically oxidize methane in the absence of Archaea [J]. Environmental Microbiology, 2008, 10 (11): 3164-3173.
- [6] Ettwig K F, Butler M K, Le Paslier D, et al. Nitrite-driven anaerobic methane oxidation by oxygenic bacteria [J]. Nature, 2010, 464(7288): 543-548.
- [7] Rappé M S, Giovannoni S J. The uncultured microbial majority [J]. Annual Review of Microbiology, 2003, 57: 369-394.
- [8] Shen L D, He Z F, Wu H S, et al. Nitrite-dependent anaerobic methane-oxidising bacteria: unique microorganisms with special properties [J]. Current Microbiology, 2015, 70(4): 562-570.
- [9] 范秋香. 反硝化型甲烷厌氧氧化微生物富集研究[D]. 徐州:中国矿业大学, 2015.
 Fan Q X. Study on the enrichment of denitrifying anaerobic methane oxidation microorganisms [D]. Xuzhon: China University of Mining and Technology, 2015.
- [10] 蔡琛. 反硝化型甲烷厌氧氧化微生物的富集培养研究[D]. 杭州: 浙江大学, 2013. Cai C. Research on enrichment of denitrifying anaerobic methane oxidizing microorganisms[D]. Hangzhou: Zhejiang University, 2013.
- [11] Hu S H, Zeng R J, Burow L C, et al. Enrichment of denitrifying anaerobic methane oxidizing microorganisms [J]. Environmental Microbiology Reports, 2009, 1(5): 377-384.
- [12] Bhattacharjee A S, Motlagh A M, Jetten M S M, et al. Methane dependent denitrification-from ecosystem to laboratory-scale enrichment for engineering applications [J]. Water Research, 2016, 99: 244-252.
- [13] 赵荣,朱雷,吴箐,等. 亚硝酸盐型甲烷厌氧氧化过程影响 因素研究[J]. 环境科学学报, 2017, 37(1): 178-184. Zhao R, Zhu L, Wu J, et al. Effect of environmental factors on nitrite-dependent denitrifying anaerobic methane oxidation[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2017, 37(1): 178-184.
- [14] Reeburgh W S. Methane consumption in Cariaco Trench waters and sediments[J]. Earth and Planetary Science Letters, 1976, 28(3): 337-344.
- [15] Islas-Lima S, Thalasso F, Gómez-Hernandez J. Evidence of anoxic methane oxidation coupled to denitrification [J]. Water Research, 2004, 38(1): 13-16.
- [16] He Z F, Geng S, Wang L Q, et al. Improvement of mineral nutrient concentrations and pH control for the nitrite-dependent anaerobic methane oxidation process [J]. Separation and Purification Technology, 2016, 162: 148-153.
- [17] Shen L D, Huang Q, He Z F, et al. Vertical distribution of nitrite-dependent anaerobic methane-oxidising bacteria in natural freshwater wetland soils [J]. Applied Microbiology and Biotechnology, 2015, 99(1): 349-357.
- [18] Deusner C, Meyer V, Ferdelman T G. High-pressure systems for gas-phase free continuous incubation of enriched marine microbial communities performing anaerobic oxidation of methane [J].

- Biotechnology and Bioengineering, 2010, 105(3): 524-533.
- [19] 乔长晟,徐旭,贾士儒.加压介质对蓝色犁头霉孢子存活率及甾体转化的影响[J].天津科技大学学报,2006,21(1):1-3,14.
 - Qiao C S, Xu X, Jia S R. Influences of different compressed gases on viable of spore of *Absidia coerulea*[J]. Journal of Tianjin University of Science & Technology, 2006, 21(1): 1-3, 14.
- [20] He Z F, Cai C, Shen L D, et al. Effect of inoculum sources on the enrichment of nitrite-dependent anaerobic methane-oxidizing bacteria [J]. Applied Microbiology and Biotechnology, 2015, 99 (2): 939-946.
- [21] Servio P, Englezos P. Measurement of dissolved methane in water in equilibrium with its hydrate [J]. Journal of Chemical & Engineering Data, 2002, 47(1): 87-90.
- [22] 国家环境保护总局. 水和废水分析监测方法[M]. (第四版). 北京: 中国环境科学出版社, 2002. 836.
- [23] Chen J, Dick R, Lin J G, et al. Current advances in molecular methods for detection of nitrite-dependent anaerobic methane

- oxidizing bacteria in natural environments [J]. Applied Microbiology and Biotechnology, 2016, 100(23): 9845-9860.
- [24] Ma R, Hu Z, Zhang J, et al. Reduction of greenhouse gases emissions during anoxic wastewater treatment by strengthening nitrite-dependent anaerobic methane oxidation process [J]. Bioresource Technology, 2017, 235: 211-218.
- [25] He Z F, Cai C, Geng S, et al. Mdodeling a nitrite-dependent anaerobic methane oxidation process: parameters identification and model evaluation [J]. Bioresource Technology, 2013, 147: 315-320.
- [26] Luesken F A, Van Alen T A, Van Der Biezen E, et al. Diversity and enrichment of nitrite-dependent anaerobic methane oxidizing bacteria from wastewater sludge [J]. Applied Microbiology and Biotechnology, 2011, 92(4): 845-854.
- [27] Hu B L, Rush D, Van Der Biezen E, et al. New anaerobic, ammonium-oxidizing community enriched from peat soil [J]. Applied and Environmental Microbiology, 2011, 77 (3): 966-971.



HUANJING KEXUE

Environmental Science (monthly)

Vol. 39 No. 12 Dec. 15, 2018

CONTENTS

Patterns of Mortality from Air Pollutant Emissions in China's Coal-fired Power Plants	QIN Yu, ZHANG Qiang, LI Xin, et al. (5289)
Analysis of the Temporal and Spatial Variation of PM _{2.5} in China Based on the LUR Model ·····	······ LIU Bing-jie, PENG Xiao-min, LI Ji-hong (5296)
Physiochemical Properties of the Aerosol Particles and Their Impacts on Secondary Aerosol Formation at the Background Site of the Yangt	ze River Delta ·····
Н	UANG Dan-dan, ZHOU Min, YU Chuan-guan, et al. (5308)
Analysis of Different Particle Sizes, Pollution Characteristics, and Sources of Atmospheric Aerosols During the Spring Dust Period in Beij	
Characteristics of Ambient VOCs at the Shuangliu Site in Chengdu, China, During Summer and Autumn	
Source Profiles and Chemical Reactivity of Volatile Organic Compounds from Surface Coating of Aluminum Products in Foshan, China \cdot	
Emission Inventory and Characteristics of Anthropogenic Air Pollutant Sources in the Sichuan Province	
Characteristics of Particulate Matter Emissions from the Coking Process ······· W	
Dry and Wet Deposition of Atmospheric Nitrogen in Small Catchments	
Seasonal Changes of the Pathways of Nitrogen Export from an Agricultural Watershed in China	
Dynamics and Runoff Losses of Nitrogen in Paddy Field Surface Water Under Combined Application of Biochar and Slow/Controlled-Rele	ase Fertilizer ·····
2)	
Indirect Nitrous Oxide Emissions from an Agricultural Headwater Stream During the Rainy Season in the Upper Reach of the Yangtze Riv	
Concentration, Flux, and Emission Factor of N_20 in Rivers with Different Nitrogen Pollution Features	
Identification of Nitrate Pollution Sources Through Various Isotopic Methods: A Case Study of the Huixian Wetland	
Temporal and Spatial Distribution of the Soil Water δD and $\delta^{18}O$ in a Typical Karst Valley: A Case Study of the Zhongliang Mountains,	Chongqing City
Hydrochemical Characteristics of Groundwater and the Origin in Alluvial-proluvial Fan of Qinhe River	
Impact of Maximum Precipitation in 2017 on the Runoff Component of Reclaimed Water-Intaking River	
Spectral Evolution Characteristics of DOM in Sediment Interstitial Water During the Formation Stage of Thermal Stratification in the Main	Reservoir Area of the Zhoucun Reservoir
ZH	OU Shi-lei, ZHANG Yi-ran, HUANG Ting-lin, et al. (5451)
Pollution Characteristic of Ni in Sediments in the Three Gorges Reservoir	
Migration and Transformation of Mercury at Sediment-Water Interface of the Dahong Lake Reservoir in the Simian Mountains	
Effects of Wetland Types on Distribution of Soil Methylmercury Based on the Region of Nanweng River in the Greater Xing'an Mountains	
Simulation of the Migration and Release Characteristics of Organophosphate Esters in Fluctuation Zone Soil of the Three Gorges Reservoir	During Flooding
Spatial Distribution of Perfluoroalkyl Acids and Transformation of Their Precursors in River Water Samples and Effluents of Wastewater To	reatment Plans in a Typical Tourism City · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
Purification Efficiency and Microbial Characteristics of Four Biofilters Operated Under Different Conditions	
Effects of Manganese on the Growth and Fluorescence Induction Kinetics of Conticribra weissflogii	
Distribution and Factors Affecting Cylindrospermopsis raciborskii in Guangdong Reservoirs	
Removal of Humic Acid from Water by Magnetic Chitosan-Grafted Polyacrylamide	
Ozone-Biological Activated Carbon for Advanced Removal of Typical Persistent Organic Pollutants from Micro-Polluted Source Water in the	e Yangtze Delta Region
Color and Nitrogen Removal from Synthetic Dye Wastewater in an Integrated Hydrolysis/Acidification and Anoxic/Aerobic Process	
Removal Characteristics of High Concentrations of Perchlorate Using a "Heterotrophic Sulfur Autotrophic" Combination Process LIU	
Rapid Start-up of a Nitrite-Dependent Methane Anaerobic Oxidation Reaction Under Static Pressure Conditions	
Optimization of the Flow Distribution Ratio and Mechanism of Nitrogen Removal in a Multi-level AO Coupled Flow Biochemical Process	
High-rate Nitrogen Removal in a Two-stage Partial Nitritation-ANAMMOX Process Under Mainstream Conditions L	
Effects of Different Substrate Concentrations on the Short-term Storage of ANAMMOX Bacteria	
Optimization of the Mainstream Anaerobic Ammonia Oxidation Process and Its Changes of the Microbial Community	
Granular Characteristics of Anaerobic Ammonia Oxidation Sludge During the Recovery Process	
Characterization of a Newly Isolated Strain Pseudomonas sp. N3 for Denitrification at Low Temperature	LU Jun-ling, CHEN Hui-ping, XIAO Lin (5612)
Heavy Metal Pollution and Potential Ecological Risk of Soil from Reclaimed Industrial Sites and Surrounding River Sediments	···· WU Jian, WANG Min, ZHANG Hui-peng, et al. (5620)
Ecological Risk Assessment of Soil Heavy Metals for Different Types of Land Use and Evaluation of Human Health	
Soil Pollution Characteristics and Ecological Risk Assessment of As at a Large-scale Arsenic Slag-contaminated Site	LIU Geng, SHI Ying, TIAN Hai-jin, et al. (5639)
Relationship Between the Bacterial Abundance and Production with Environmental Factors in a Subtropical Karst Reservoir XIN	
Structure Analysis of Arbuscular Mycorrhizal in Roots from Different Shrubs in Karst Regions	LIANG Yue-ming, SU Yi-rong, HE Xun-yang, $\mathit{et\ al.}\ (5657)$
Effects of Stimulated Nitrogen Deposition on the Bacterial Community Structure of Semiarid Temperate Grassland	
$Effect \ of \ Phosphorus \ Addition \ on \ the \ Abundance \ of \ Autotrophic \ CO_2\mbox{-}Fixation \ Microorganisms \ in \ Rhizospheric \ Soil \ from \ a \ Phosphorus\mbox{-}Limbo$	ited Paddy Field ·····
Effects of Varying Long-term Fertilization on Organic Carbon Mineralization and Priming Effect of Paddy Soil	, , ,
Relationship Between the Vegetation Community and Soil Nutrient and Enzyme Activity During the Restoration of Abandoned Land in the	Loess Hilly Region · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
Degradation of Pentachlorophenol by Fulvic Acid in a Municipal Solid Waste Landfill	
$ \textit{Effect of CO}_2 \ \textit{Doubling and Different Plant Growth Stages on Rice Carbon, Nitrogen, and Phosphorus and Their Stoichiometric Ratios } \cdot \\$	
TANG	
Assessment of Medical Waste Disposal Technologies Based on the AHP	
Livestock and Poultry Faeces Nitrogen Loading Rate and Its Potential Return to Farmland in China	······ LIU Xiao-yong, WANG Xiu-bin, LI Shu-tian (5723)