



MABR 对初期雨水中的污染物去除特征及微生物群落分析

曹方禹¹, 张浏^{2,✉}, 冯景伟¹, 夏绍凤³

1. 合肥工业大学土木与水利工程学院, 合肥 230009; 2. 安徽省生态环境科学研究院, 合肥 230031; 3. 合肥市市政设计研究总院有限公司, 合肥 230041

摘 要 针对初期雨水的污染负荷大和冲击性强等特征, 本研究利用致密无孔膜构建膜曝气生物膜反应器 (membrane aerated biofilm reactor, MABR), 考察 MABR 对初期雨水处理效果的同时, 分析了 MABR 系统中胞外聚合物 (extracellular polymeric substances, EPS) 和微生物群落特征。结果表明, MABR 系统对 COD、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 TN 的平均去除率分别达到 90.90%、79.75% 和 43.75%, 去除负荷分别为 1.99、0.30 和 0.21 $\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$, 该系统拥有较好的同步脱氮除碳效果。与未驯化接种污泥的 EPS 相比, 蛋白质 (protein, PN) 和多糖 (polysaccharide, PS) 分别增加了 19.37 $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 和 7.12 $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$, 这说明微生物在活动中释放出了更多的酶和营养物质, PN/PS 的增加有助于维持生物膜形态结构的稳定性。三维荧光光谱分析结果表明, 溶解型胞外聚合物 (S-EPS)、松散附着型胞外聚合物 (LB-EPS) 和紧密附着型胞外聚合物 (TB-EPS) 的主要成分均为酪氨酸, 这有利于生物膜的形成。微生物群落分析结果表明, 生物膜内含有丰富的厌氧氨氧化、硝化和反硝化细菌。功能基因预测结果表明, MABR 系统中的脱氮基因明显增加, 可加速硝化和反硝化过程。以上研究结果可为 MABR 在初期雨水的工程应用中提供参考。

关键词 膜曝气生物膜反应器; 初期雨水; 胞外聚合物; 微生物群落; 功能基因

近年来, 随着市政设施建设和污水排放监管的加强, 生活污水、工业污水等点源污染得到有效治理^[1]。而城市径流污染作为一种典型的面源污染, 逐渐成为城市水污染的主要来源^[2]。降雨径流形成过程中, 雨水持续冲刷道路、屋顶和管道等不透水表面, 导致径流携带大量污染物, 形成较大的污染物负荷^[3]。初期雨水通过雨水管道收集后直接排入江河, 短期内对受纳水体造成污染, 进而引发水质恶化^[4]。对初期雨水采取有效的截流和处理可以削减雨水径流中的大部分污染物^[5]。目前对截流后的初期雨水末端处理通常采用的工艺主要包括雨水调蓄池、人工湿地、生物滞留池和旋流分离器等^[6]。调蓄池和旋流分离器通常位于雨水管网末端, 调蓄池主要用于初期雨水的收集和储存, 旋流分离器可以去除 SS 及与 SS 相关性较高的 COD、TP, 通常作为末端治理的预处理单元^[7]。人工湿地和生物滞留池通过植物和填料的吸附过滤作用, 以及微生物的降解功能, 能够有效去除初期雨水中的大部分污染物^[8], 但这两种方法对于氮的去除稳定性较差^[9]。因此, 开展初期雨水稳定脱氮研究有重要的实际工程应用价值。

膜曝气生物膜反应器 (membrane aerated biofilm reactor, MABR) 是一种新兴的污水处理技术, 结合了无气泡曝气技术和生物膜工艺的优点^[10], 能够在低运行能耗的基础上实现高效脱氮^[11]。MABR 应用于初期雨水处理时, 一般位于雨水调蓄池和沉淀池之后作为初期雨水处理工艺中的生化处理单元。同时, MABR 膜表面的微生物可以高效利用中空膜中的氧气, 氧气利用率高达 100%^[12]。在 MABR 系统中, 生物膜附着在中空膜的外表面, 氧气从靠近中空膜一侧的生物膜扩散到最外层的生物膜, 生物膜剖面内的溶解氧逐渐降低, 形成了好氧、缺氧和厌氧的微环境, 有助于多种微生物的共存^[13], 使在 MABR 中实现同步硝化反硝化成为可能, 在设计初期雨水生化处理单元时可减少占地面积、缩短水力停留时间^[12]。此外, MABR 系统的外层生物

收稿日期: 2024-09-20 录用日期: 2025-02-17

基金项目: 安徽省住房城乡建设科学技术计划项目 (2023-YF116)

第一作者: 曹方禹 (2000—), 女, 硕士研究生, 研究方向为水污染控制理论与技术, 2544948594@qq.com ✉通信作者: 张浏 (1982—), 男, 博士, 正高级工程师, 研究方向为水污染控制理论与技术, zlbod5@163.com

膜接触的 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、TP、耗氧有机污染物等污染物浓度高于内层污染物浓度,与生物膜中氧气的扩散方向相反,可以强化污染物的去除^[14]。已有关于 MABR 的研究针对高浓度污水进行处理, TIAN 等^[15]考察了 MABR 在喹啉废水处理中的好氧反硝化能力,在不同的操作条件下,喹啉和硝酸盐的去除率比较稳定,分别为 $91.5\%\pm 5.2\%$ 和 $86.5\%\pm 9.3\%$ 。LAN 等^[16]设计了实验室规模的三级 MABR 系统处理煤化工废水反渗透处理工艺段的浓缩液,在最佳运行参数下, COD、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 TN 的去除率分别达到 81.01%、92.31% 和 70.72%。GONG 等^[17]采用 MABR 工艺对牛粪厌氧发酵废水进行处理,在不同的稀释倍数下, $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 COD 的去除率分别达到 90% 和 85% 以上,而目前对于 MABR 处理初期雨水处理效能和机理的研究还很有限。

MABR 技术的特性在初期雨水处理中具有潜能,不仅有良好的增氧效果还可直接在天然水体中布设,同时具有运行费用低的优点。在设计 MABR 处理单元时,需要根据《膜曝气生物膜反应器 (MABR) 中空纤维膜组件》GB/T 42281-2022 选取合适规格的 MABR 膜,并根据所选取膜组件的膜面积负荷、处理水量和进出水水质等对 MABR 进行设计计算。但 MABR 去除初期雨水中污染物的机理不明,因此本研究旨在探究 MABR 处理初期雨水的效果,并结合 MABR 生物膜的胞外聚合物 (extracellular polymeric substances, EPS)、三维荧光、微生物群落分析和脱氮功能基因解析阐明了污染物的去除机理,以期 MABR 在处理初期雨水的工程应用中提供数据参考。

1 材料与方法

1.1 MABR 膜材料与实验装置

本研究选择的 MABR 膜由聚二甲基硅氧烷 (polydimethylsiloxane, PDMS) 制成,膜表面致密无孔,无孔膜结构可以保证无泡高效分子氧传输,膜丝数为 50,长度为 1 m,膜组件的表面积为 0.314 m^2 ,其在装置内的填充密度为 16.37%,比表面积为 $80.65\text{ m}^2\cdot\text{m}^{-3}$ 。

如图 1 所示,装置材质为有机玻璃,高 45 cm,内径为 12 cm,有效容积为 3.89 L。将膜组件浸没在反应器中,通过空压机 (海利 V30, 中国) 为膜丝腔体提供空气,操作压力为 25 kPa。模拟废水从进水箱通过蠕动泵 (雷弗, 中国) 从下端进水口流入 MABR 装置内,实验采用连续流进水模式,即处理后的废水出水量和进水流量等同,通过装置上端溢流口排出。装置配备了内循环系统,循环入口位于装置下端,出口则设置在另一侧的上端。这个内循环系统能够促进污水与生物膜表面相互接触,有效增强装置内部污染物的均匀混合,并施加一定的剪切力。这样不仅有助于生物膜的生长,同时也防止了生物膜过度增厚。回流比设为 100%,HRT 控制在 12 h,反应器内水温通过温控仪 (得力, 中国) 保持在 $(26.7\pm 2)\text{ }^\circ\text{C}$,维持 pH 为 7.0~7.5。

在实验正式开始前, MABR 装置经历了 30 d 的挂膜启动和 17 d 的溶解氧调节。在挂膜启动期,可以观察到生物膜逐渐附着在膜丝表面。30 d 后,膜丝表面生物膜呈现黄褐色,再通过调节气体流量计使装置内溶解氧维持在 $0.5\sim 2\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。

1.2 进水水质

实验进水为模拟初期雨水,其水质参照安徽省合肥市某初期雨水处理设施设置,进水 COD 为 $79.95\sim 98.20\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,平均值为 $88.92\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$; $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 为 $13.46\sim 18.24\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,平均值为 $15.36\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$; $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 为 $3.82\sim 4.40\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,平均值为 $4.12\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$; TN 为 $17.28\sim 22.46\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,平均值为 $19.48\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。

1.3 检测项目及方法

主要测试指标包括: COD、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2^-\text{-N}$, 采用国家标准方法 (HJ/T 399-2007、HJ 535-

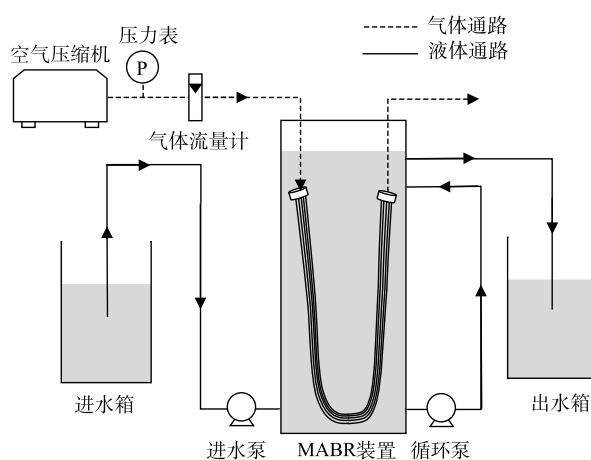


图1 膜曝气生物反应器装置图

Fig. 1 Installation diagram of the MABR

2009、HJ/T 346-2007、GB 7493-87) 进行测定, 采用溶解氧仪 (雷磁 JPB-607A, 中国) 和 pH 计 (雷磁 PHB-4, 中国) 分析废水中的溶解氧浓度和 pH 变化。

EPS 的主要成分是蛋白质 (protein, PN) 和多糖 (polysaccharide, PS)^[18], 占 EPS 的 70%~80%。在本实验中, 将 PN 和 PS 这两者的浓度之和作为对 EPS 浓度的近似替代。PN 和 PS 分别采用 Lowry 蛋白试剂法和苯酚-硫酸法测定^[19]。微生物群落结构由上海生工生物工程股份有限公司测定。功能基因采用基于 KEGG 数据库的 PICRUST2 预测。

2 结果与讨论

2.1 MABR 对初期雨水的处理效果

MABR 对初期雨水中 COD、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、TN 的去除效果如图 2(a)、图 2(b) 和图 2(c) 所示。在实验的 40 d 内, 进水 COD 值维持在 $79.95\sim 98.20\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 出水水质稳定, 维持在 $2.03\sim 17.20\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 去除负荷为 $1.99\text{ g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$, 去除率最高可达 97.68%。这说明经过驯化的 MABR 系统富集了大量异养菌, 已经具备了对 COD 的良好去除能力, 出水 COD 值可以稳定达到《地表水环境质量标准》(GB 3838—2002) III 类水标准。

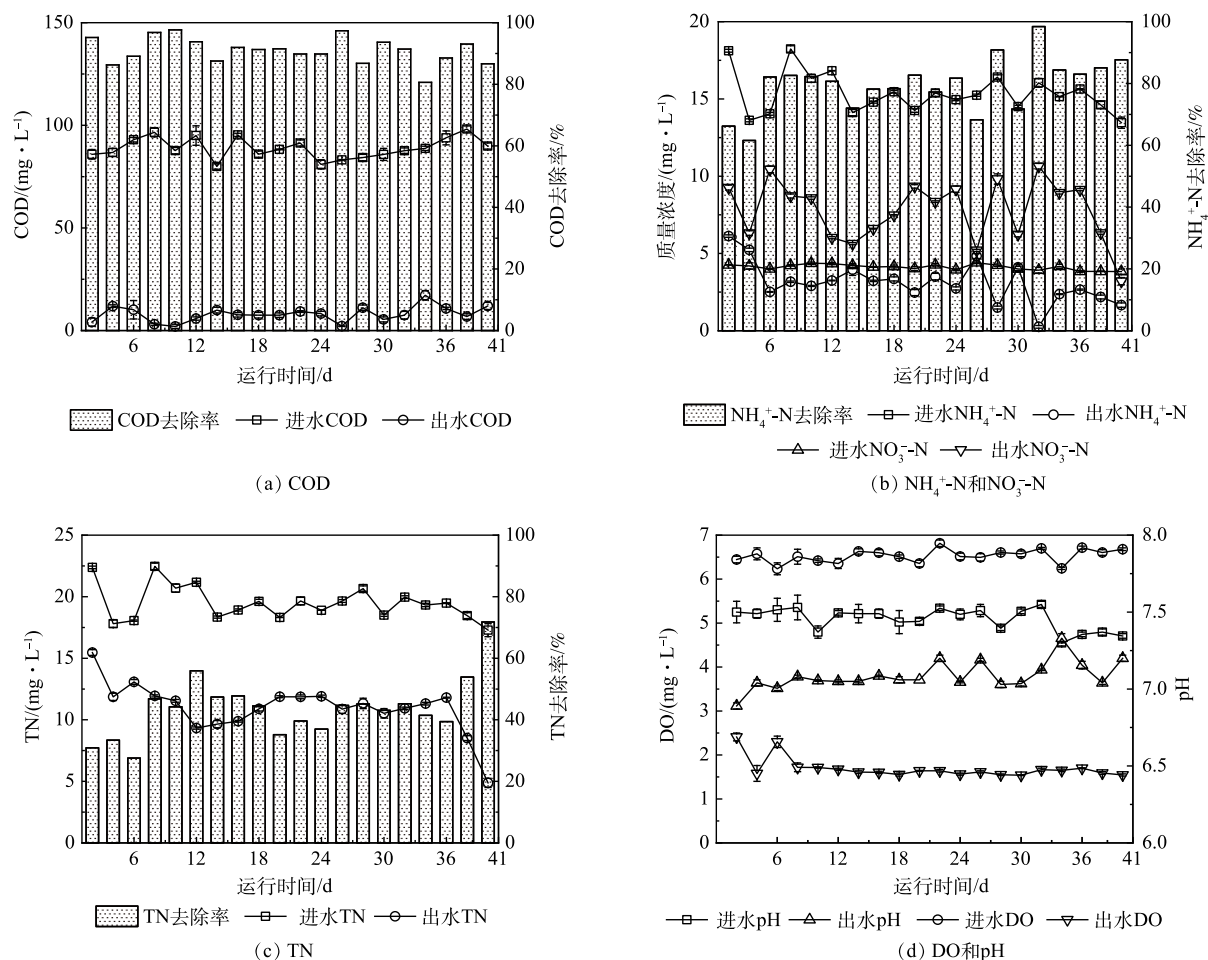


图2 进出水污染物质量浓度及 DO 和 pH 的变化

Fig. 2 Changes in pollutant contents, DO and pH in the influent and effluent of MABR

进水 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 为 $13.46\sim 18.24\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 平均出水质量浓度为 $3.10\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 平均去除率为 79.75%。从开始测试出水污染物质量浓度 4 d 后, MABR 系统的 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 平均出水质量浓度为 $2.81\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 稳定达到《城镇污水处理厂污染物排放标准》(GB 18918—2002) 一级 A 标准, 去除负荷为 $0.30\text{ g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$, 去除效果明

显,说明该 MABR 系统已完成驯化。氨氮随模拟初期雨水进入 MABR 装置,并与装置中的生物膜接触,由于 MABR 膜内的氧气由内扩散至生物膜导致靠近 MABR 膜一侧的生物膜形成好氧环境,进水中的 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 在好氧菌作用下转化为 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 和 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 。在气流的作用下,这些 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 和 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 与靠近液体环境一侧的生物膜中的缺氧和厌氧菌结合,利用碳源将 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 和 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 还原为 N_2 ,最终实现氨氮的去除^[20]。

进水 TN 为 $17.28\sim 22.46\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,平均去除率为 43.75%,TN 的去除效果较稳定。 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 产生量与 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除量比值 ($\Delta\text{NO}_3^-\text{-N}/\Delta\text{NH}_4^+\text{-N}$) 约为 0.29,高于其理论化学计量值 0.11^[21],这表明系统中存在一定的亚硝酸盐氧化菌 (NOB),它们将 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 氧化为 $\text{NO}_3^-\text{-N}$,如图 2 (d) 所示,这种现象主要是反应器内的 DO ($1.69\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$) 较高造成的。在处理初期雨水时,由于 NOB 难以有效抑制或淘汰,这种情况导致了 TN 的去除效果受到影响^[22]。通常情况下,在 C/N 为 5.00~10.00 时大部分异养反硝化细菌具有较好的脱氮性能,当 C/N 在 4.00 以下时,脱氮性能明显降低^[23]。由于实际的初期雨水有污染物负荷变化大的特点,不能保证进水 C/N 能够保持在 4 以上,因此在此系统处理实际初期雨水时应根据进水 C/N 调整碳源投加量以满足排放标准。

2.2 生物膜 EPS 组成及结构特征

在生物膜形成过程中,微生物数量显著增加,胞外聚合物 (EPS) 在膜内逐渐形成^[24]。EPS 是使活性污泥紧密聚集的主要原因,其存在于细胞外,通过将细菌紧密包裹起来,保护细菌免受复杂的外部环境以及有害和有毒的影响^[25]。在缺乏营养物质的情况下,EPS 还能够被细菌分解,提供重要的碳源^[17],废水中的一些有机物也可以通过静电力吸附到 EPS 上。根据 EPS 与细胞的关联特性,将其分为溶解型胞外聚合物 (S-EPS)、松散附着型胞外聚合物 (LB-EPS) 和紧密附着型胞外聚合物 (TB-EPS)^[26]。

根据 AN^[27] 等的研究表明,TB-EPS 对微生物的聚集有促进作用,而 S-EPS 和 LB-EPS 对微生物的聚集有抑制作用。如图 3 所示,MABR 装置内的生物膜和接种污泥的 TB-EPS 含量最高,其次是 LB-EPS 和 S-EPS,这说明生物膜和接种污泥中微生物的凝聚效果均较好。PN 和 PS 含量在 S-EPS、LB-EPS 和 TB-EPS 中呈递增趋势,由于 TB-EPS 组分变化的原因是微生物细胞自身产生的变化,所以 PN 和 PS 在 TB-EPS 中含量最高,表明从生物膜中释放出更多的营养物质和酶来支持微生物活动,TB-EPS 是促进微生物生长的主要力量^[28]。LB-EPS 是微生物与液相间进行物质交换的场所^[29],因此,LB-EPS 中的 PN 和 PS 含量也较高。从 PN 和 PS 的总量来看 PN 总量由接种污泥初期的 $12.15\text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 增加到生物膜成熟时的 $31.52\text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$,PS 总量由 $11.13\text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 增加到 $18.25\text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 。有研究^[30]表明,EPS 是生物膜结构的主导成分,可以支持和保护生物膜结构。PN/PS 由接种污泥的 1.09 提高到生物膜的 1.73。考虑到疏水性和生物絮凝作用与 PN/PS 呈正相关,这说明生物膜表面表现出增强的疏水性^[31],而细胞表面高疏水性有利于生物膜在 MABR 膜材料表面的粘附^[32]。生物膜成熟时 EPS 中 PN 和 PS 含量的增加以及 PN/PS 的变化说明生物膜比接种污泥具有更稳定的微观结构^[33]。

三维荧光技术也被用于分析 EPS 的荧光成分,本研究采用荧光区域积分法对三维荧光光谱进行解析 (图中已经去除瑞利散射)。如图 4 所示,从 3 种 EPS 中均鉴定出 5 种荧光成分,包括以酪氨酸为代表的芳香蛋白类物质 I、以色氨酸为代表的芳香蛋白类物质 II、类富里酸、可溶性微生物副产物和类腐殖酸^[34],其中荧光强度积分值最高的荧光成分为酪氨酸,说明其为 EPS 中的主要成分,在生物膜的形成中发挥重要作用^[35]。类腐殖酸在 S-EPS 中占比较高,仅低于酪氨酸,这说明 S-EPS 中可能存在大分子有机物的分解^[36]。LB-EPS 中色氨酸的荧光强度积分值也较高,体现了生物膜具有优异的蛋白质合成能力^[37],这有利于生物膜的形成和脱氮^[38]。而 TB-EPS 中占比较高的是微生物代谢产物,说明 TB-EPS 中微生物的代谢较旺盛^[39]。由表 1 可以看出,3 种类型的 EPS 荧光区域积分值依次增大,这点与图 3 EPS 的组成结果一致。

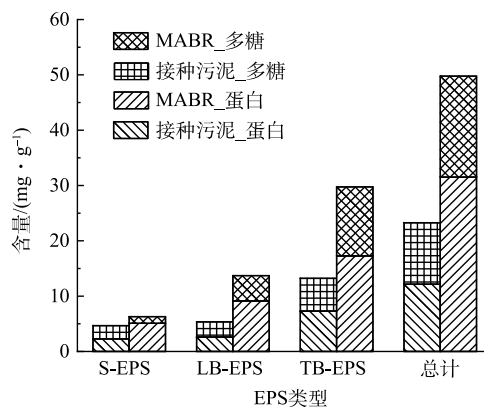


图3 接种污泥和生物膜 EPS 组成

Fig. 3 Inoculated sludge and EPS compositions of biofilm

2.3 微生物群落结构与功能

1) 微生物 α 多样性指数分析。研究通常使用微生物 α 多样性来探索微生物群落的结构和功能之间的关系^[40-41]。在本实验中, 2 个样本的覆盖率均达到 0.99, 说明测序结果能够很好地反映样本的真实状态^[42]。如表 2 所示, Shannon 多样性指数显示 MABR 样本物种多样性较低, 但 Chao 指数和 Ace 指数在 MABR 样本中均远高于接种污泥样本。这表明 MABR 样本中的物种组成相对单一, 这可能是因为进水仅含有配水污染物, 导致细菌逐渐被冲刷和驯化, 从而降低了菌群的多样性^[22]。然而, 这种单一的菌群结构可能有助于增强优势菌属的生态功能^[43]。MABR 样本的 Chao 指数和 Ace 均高于接种污泥样本, 表明物种丰富度有所提高。这是因为随着絮体污泥的接种, 外源碳源为异养微生物创造了有利条件, 使其在竞争中处于优势地位^[42], 适应装置内环境的异养细菌得以繁殖, 菌群丰富度增加。

2) 微生物群落分析。接种污泥和 MABR 中菌群结构分析结果如图 5 所示。在门的分类水平上, 变形菌门 (Proteobacteria) 在接种污泥和 MABR 中所占比例最高, 分别为 49.54% 和 55.57%, 其次为浮霉菌门 (Planctomycetota)、拟杆菌门 (Bacteroidota)。其中 Proteobacteria 和 Bacteroidota 中的大多数细菌在许多有机化合物的反硝化和降解中起着重要作用^[44], 是废水处理系统中分布最广泛的硝化和反硝化菌门。属于 Proteobacteria 的纲分类水平上的细菌有 Alphaproteobacteria 和 Gammaproteobacteria, 在接种污泥和 MABR 样本中分别占 19.99%、25.81% 和 14.61%、40.91%。大多数属于 Alphaproteobacteria 细菌是需氧的, 因此最有可能位于 MABR 的需氧层。在厌氧层中, 异养反硝化作用由 Gammaproteobacteria 实现, 在厌氧条件下 Gammaproteobacteria 占优势^[45]。Planctomycetota 是厌氧氨氧化细菌的一个门, 在 MABR 样本中的丰度高于在接种污泥中的丰度, 这表明 MABR 可能存在厌氧氨氧化和反硝化过程^[44]。Verrucomicrobiota 在 MABR 样品中占比 4.71%, 它们的基因编码的酶和酶系统能够使它们有效分解木质纤维素聚合物, 并将其降解产物发酵为短链挥发性脂肪酸; 因此, 它们的主要功能可能是为反硝化提供电子受体^[44]。Chloroflexi 在碳水化合物和细胞物质的生物降解中发挥重要作用, 能够有效地分解复杂的有机物质, 促进其转化为更简单的化合物。同时, 其在硝化和反硝化过程中也具

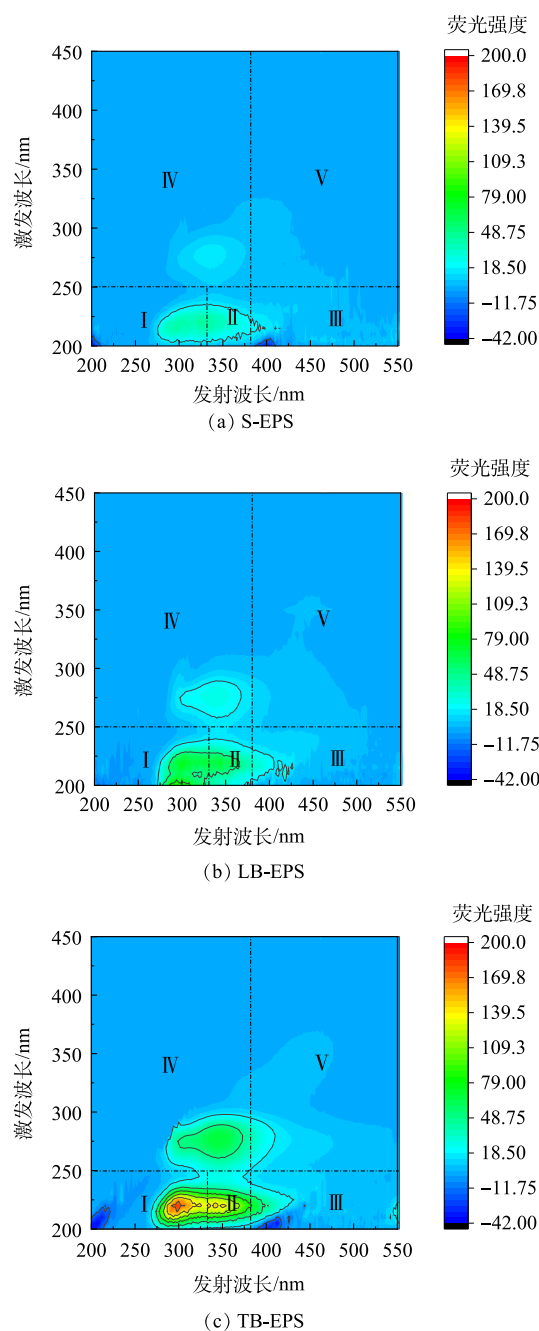


图 4 从 MABR 生物膜样品中提取的 EPS 三维荧光光谱图

Fig. 4 3D-EEM spectra of EPS extracted from biofilm samples

表 1 各样品中不同分区的荧光光谱参数

Table 1 Fluorescence spectral parameters of different regions in each sample

EPS类型	荧光区域积分值				
	区域 I	区域 II	区域 III	区域 IV	区域 V
S-EPS	52 108	48 551	47 990	48 597	48 815
LB-EPS	99 330	82 732	62 591	79 585	73 506
TB-EPS	185 870	153 920	84 995	182 560	115 010

表 2 接种污泥和 MABR 中微生物 α 多样性指数						
Table 2 Microbial α diversity index in inoculated sludge and MABR						
样品	OTUs	Shannon 指数	Chao 指数	Ace 指数	Simpson 指数	覆盖率/%
接种污泥	2 485	5.48	2 567.77	2 703.77	0.017	99.32
MABR	3 094	5.42	3 196.19	3 344.23	0.026	99.55

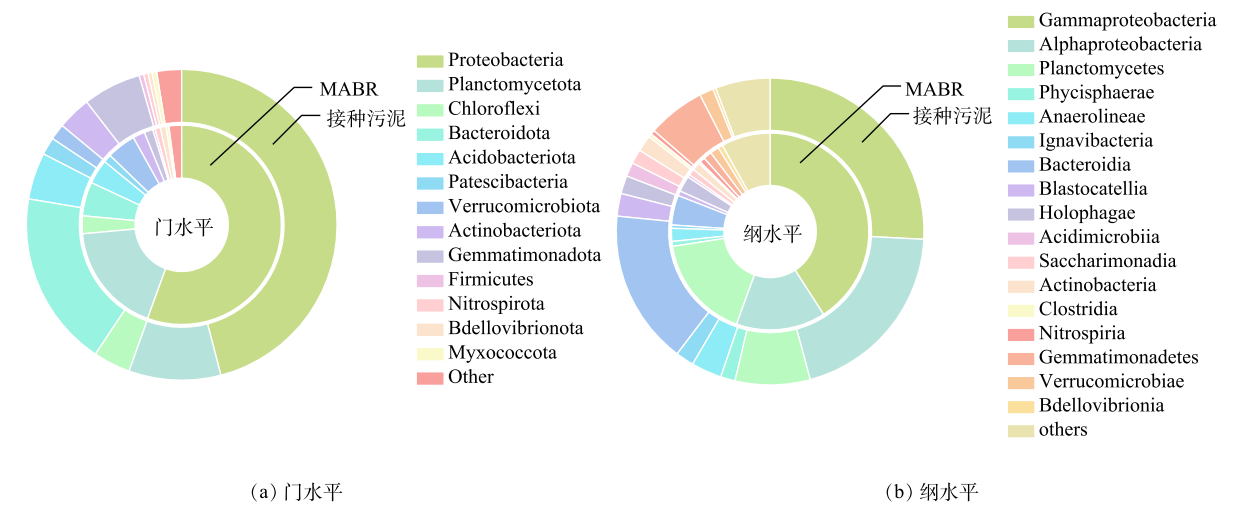


图 5 生物膜和接种污泥中微生物在门水平和纲水平上的分布

Fig. 5 Distribution of microorganisms in biofilm and inoculated sludge at phyla and class levels

有关键作用，参与氮的转化过程^[46]并且可促进 EPS 的产生，并增强膜表面的凝聚力^[47]。此外，Firmicutes 具有抵抗极端条件的功能，并可用于 MABR 系统的稳定运行^[32]。综上所述，接种污泥和 MABR 生物膜中 Proteobacteria 占主导地位，参与硝化和反硝化过程。MABR 生物膜中的 Planctomycetota、Bacteroidota 和 Verrucomicrobiota 可能与反硝化反应相关，Chloroflexi 和 Firmicutes 对有机物降解和系统稳定性起重要作用，在它们共同作用下实现 MABR 的脱氮除碳功能。

3) 功能基因分析。MABR 和接种污泥 2 种样品中 14 个功能基因的表达情况如图 6 所示。MABR 和接种污泥中主要的氮转化途径和相应的功能基因包括：硝化过程 (*amoCAB*, *hao*) 和反硝化过程 (*narGHI* 和 *napAB*, *nirKS*, *norBC*, *nosZ*)^[48]。MABR 中与硝化过程相关的氨单加氧酶基因 (*amoCBA*) 和羟胺氧化酶基因 (*hao*) 的总丰度是接种污泥的 1.87 倍，与反硝化过程相关的基因总丰度是接种污泥的 2.48 倍，这说明 MABR 相比于接种污泥的硝化和反硝化性能有所提高。

AMO 和 HAO 将 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 转化为 NH_2OH 并氧化为 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ ^[49]。 NH_2OH 氧化能够产生 4 个电子，氨氧化过程释放的电子增加，导致电子传输系统活性增强^[50]。具体来说，MABR 中 *amoCAB* 的增加可能加快了电子传递速率，为相关酶 (例如细胞色素氧化酶) 的合成提供了足够的电子并增强了 AOB 活性。

细菌的好氧和厌氧生长直接影响 NAR 和 NAP 的活性^[51]。NAR 的表达在缺氧条件下占主导地位。因此，编码 NAR 的关键基因 *narG* 经常被用作 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 向 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 厌氧转化的标志。而 NAP 则相反，编码 NAP 的关键基因 *napA* 经常被用作 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 向 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 有氧转化的标志^[52]。本研究中的 *narGHI* 丰度大于 *napAB* 丰度，说明 MABR 更倾向于异养反硝化脱氮。编码亚硝酸盐还原酶 (NIR) 的 *nirKS* 基因是 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 转化为 NO 的关键基因，这一转化过程也是反硝化的限速步骤^[53]。MABR 中的 *nirKS* 丰度是接种污泥中的 2.57 倍，这说明 MABR 的反硝化速率大大增加。*norBC* 和 *nosZ* 分别是转化 NO 为 N_2O 和 N_2O 进一步还原生成 N_2 的关键酶基因^[54]。携带 *nirKS* 的细菌可以在不产生大量 N_2O 和 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 的情况下实现反硝化，这是 MABR 中共同存在的 *nirK*、*nirS* 和 *nosZ* 导致的^[55]。

由图 6 可知，MABR 系统生物膜中氮转化功能基因的表达丰度高于接种污泥，表明前者的硝化和反硝化性能更强。具体来说，MABR 生物膜中 *amoCAB* 的增加可能加快了电子传递速率，增强了 AOB 活性，

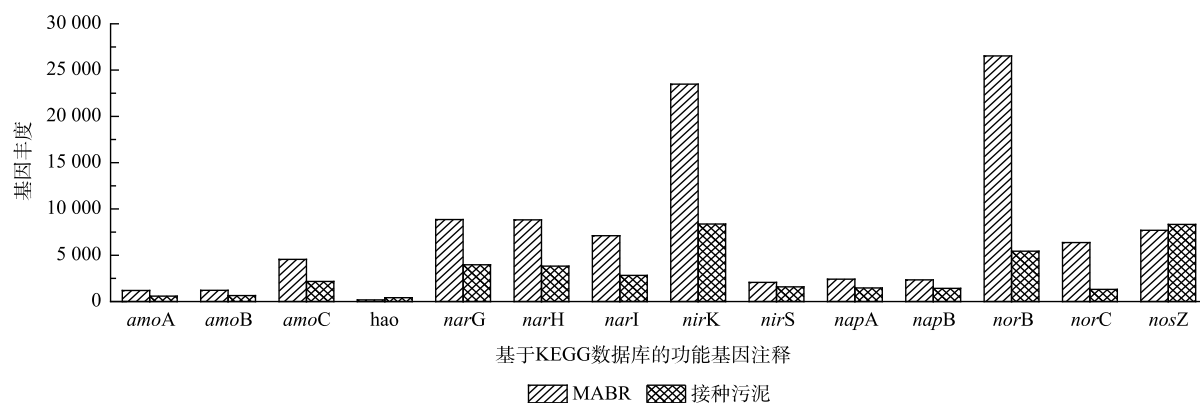


图6 生物膜和接种污泥关于脱氮途径的功能基因丰度

Fig. 6 Abundance of functional gene for denitrification pathway in biofilm and inoculated sludge

而 *nirKS* 的增加则显著提高了反硝化速率, 且 MABR 系统更倾向于异养反硝化脱氮。

3 结论

1) 本研究通过建立的 MABR 处理初期雨水, 在操作压力为 25 kPa, 回流比设为 100%, HRT 控制在 12 h 的情况下, 系统的 COD、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 TN 的平均去除率分别可达 90.90%、79.75%、43.75%, 实现了同步脱氮除碳。其中 COD 出水值可以稳定达到《地表水环境质量标准》(GB 3838—2002) III 类水标准。

2) 稳定运行的 MABR 系统中的 EPS 总量相比于接种污泥 EPS 总量增加了 $26.49 \text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$ (113.8%), PN/PS 增加了 0.64, 说明 MABR 系统中生物膜的微观结构比接种污泥更稳定。三维荧光光谱分析结果表明, MABR 系统中生物膜 EPS 的主要成分为酪氨酸。

3) 高通量测序分析结果表明, MABR 系统中具有丰富的生物相。其中 Proteobacteria、Planctomycetota 和 Bacteroidota 是 MABR 系统的优势菌门, 在 MABR 系统的厌氧氨氧化、硝化和反硝化过程中发挥重要作用。相比于接种污泥, MABR 中的硝化和反硝化基因丰度明显增加, 从而可强化系统的脱氮性能。

参考文献

- [1] WANG X, TANG Y, ZHANG F, et al. Optimum urban runoff pollution control based on dynamic load calculation and effective control units identification: A case study in a highly urbanized basin in China[J]. Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C, 2024, 135: 103629.
- [2] 张勤, 王哲晓, 李灿. 超磁分离水体净化技术在黑臭水体治理中的应用案例[J]. 环境工程学报, 2021, 15(9): 3128-3135.
- [3] 杨伟伟, 孟颖, 袁庆科, 等. 岛屿硬化集水面雨水弃流方案与分质收集策略研究[J]. 环境科学学报, 2021, 41(11): 4585-4595.
- [4] LIN Z, DAI J. S, OH J. -M. Optimal discharge protocol for urban stormwater settling tank across different scenarios under limited data aided with Monte-Carlo simulation incorporated mathematical model[J]. Journal of Water Process Engineering, 2023, 52: 103538.
- [5] 郑云丽, 段淑璇, 卢林, 等. 我国初期雨水污染特性及其控制技术研究进展[J]. 水利水电技术 (中英文), 2024, 55(S2): 1-14.
- [6] 高雅弘, 林炳权, 刘宇轩, 等. 城镇分流制排水系统初期雨水污染特征与控制对策[J]. 环境工程技术学报, 2024, 14(3): 973-985.
- [7] 赵晨, 李晨, 胡潜, 等. 城镇面源污染控制技术及其优化策略综述[J]. 环境工程, 2023, 41(12): 11-20.
- [8] 刘月雷, 张俊杰, 郑小林, 等. 城市初期雨水控制技术研究进展[J]. 环境污染与防治, 2023, 45(7): 1007-1012.
- [9] MAHMOUD A, ALAM T, YEASIR A, et al. Evaluation of field-scale stormwater bioretention structure flow and pollutant load reductions in a semi-arid coastal climate[J]. Ecological Engineering, 2019, 142: 100007.
- [10] LI J, FENG M, ZHENG S, et al. The membrane aerated biofilm reactor for nitrogen removal of wastewater treatment: Principles, performances, and nitrous oxide emissions[J]. Chemical Engineering Journal, 2023, 460: 141693.
- [11] 康晓峰, 王黎声, 刘春, 等. 膜曝气生物膜反应器生物脱氮研究进展[J]. 环境工程, 2021, 39(7): 38-45.
- [12] 陈阳漫, 秦庆东, 谢迎龙, 等. 膜曝气生物膜反应器处理生活污水的脱氮性能研究进展[J]. 环境污染与防治, 2023, 45(12): 1716-1723.
- [13] LI M, CAO C, LI Y, et al. In-situ treatment of an end of rivers by autotrophic/heterotrophic nitrification and aerobic denitrification (HN-AD) membrane aerated biofilm reactors (MABRs)[J]. Journal of Environmental Chemical Engineering, 2023, 11(2): 109303.
- [14] TIAN J Y, LIANG H, YANG Y L, et al. Membrane adsorption bioreactor (MABR) for treating slightly polluted surface water supplies: As compared to membrane bioreactor (MBR)[J]. Journal of Membrane Science, 2008, 325(1): 262-270.
- [15] TIAN H, LI Y, CHEN H, et al. Aerobic biodegradation of quinoline under denitrifying conditions in membrane-aerated biofilm reactor[J]. Environmental Pollution, 2023, 326: 121507.
- [16] LAN M, LI M, LIU J, et al. Coal chemical reverse osmosis concentrate treatment by membrane-aerated biofilm reactor system[J]. Bioresource Technology, 2018, 270: 120-128.

- [17] GONG W, FAN A, ZHANG H, et al. Cow manure anaerobic fermentation effluent treatment by oxygen-based membrane aerated biofilm reactor[J]. Chemical Engineering Journal, 2020, 395: 125116.
- [18] MIELCAREK A, RODZIEWICZ J, JANCZUKOWICZ W, et al. The impact of biodegradable carbon sources on nutrients removal in post-denitrification biofilm reactors[J]. Science of The Total Environment, 2020, 720: 137377.
- [19] 毕晓敏, 程方, 毕飞, 等. 诺氟沙星对 MABR 处理生活污水的影响[J]. 水处理技术, 2023, 49(8): 110-114.
- [20] 陈芬梅, 董永全, 徐洁, 等. 膜曝气/膜生物反应器耦合工艺处理模拟生活污水的研究[J]. 水处理技术, 2022, 48(10): 131-135.
- [21] SLIEKERS A O, DERWORT N, GOMEZ J L C, et al. Completely autotrophic nitrogen removal over nitrite in one single reactor[J]. Water Research, 2002, 36(10): 2475-2482.
- [22] 高超龙, 狄斐, 宋舒兴, 等. 一体式膜曝气生物膜反应器实现部分亚硝化-厌氧氨氧化耦合生物除磷[J]. 环境科学学报, 2022, 42(9): 18-29.
- [23] 郭祥, 郭新超, 熊家晴, 等. DO 和 C/N 对低温运行 A2/O-MBR 脱氮除磷效能的影响研究[J]. 环境工程, 2024, 43(1): 1-8.
- [24] WEI Z, NIU S, WEI Y, et al. The role of extracellular polymeric substances (EPS) in chemical-degradation of persistent organic pollutants in soil: A review[J]. Science of the Total Environment, 2024, 912: 168877.
- [25] 徐萍, 占晓建, 李凤祥. 好氧颗粒污泥中的胞外聚合物及其应用的研究进展[J]. 工业水处理, 2023, 43(12): 36-45.
- [26] KOU L, HUANG T, ZHANG H, et al. Aerobic denitrifying bacterial community with low C/N ratio remove nitrate from micro-polluted water: Metagenomics unravels denitrification pathways[J]. Science of the Total Environment, 2024, 951: 175457.
- [27] AN Q, CHEN Y, TANG M, et al. The mechanism of extracellular polymeric substances in the formation of activated sludge flocs[J]. Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, 2023, 663: 131009.
- [28] 叶丽慧, 刘欣灵, 林思慧, 等. 原水生物膜预处理工艺对有机碳源的响应特征——以脱氮性能与菌群结构为例[J]. 中国环境科学, 2024, 44(7): 3800-3809.
- [29] 徐芝芬, 周姣, 马宏瑞, 等. 制革废水处理过程中微生物代谢产物特征及铬分布的解析[J]. 环境工程学报, 2020, 14(7): 1771-1778.
- [30] 黄紫萱, 庄国强, 高捷. 微生物生物膜影响水环境中微塑料环境过程的研究进展[J]. 环境保护科学, 2024, 50(6): 1-14.
- [31] 高靖雨, 蔡武, 梁晃, 等. 催化剂填料表面微生物对微污染物胁迫的响应[J]. 环境工程学报, 2024, 18(6): 1510-1519.
- [32] SUN Z, LI Y, LI M, et al. Steel pickling rinse wastewater treatment by two-stage MABR system: Reactor performance, extracellular polymeric substances (EPS) and microbial community[J]. Chemosphere, 2022, 299: 134402.
- [33] LAN M, KANG Y, WANG J, et al. In-situ enrichment and application of heterotrophic nitrification-aerobic denitrification bacteria in membrane aerated biofilm reactor[J]. Chemosphere, 2022, 309: 136643.
- [34] 宋舒兴, 隋倩雯, 高超龙, 等. 膜曝气生物膜反应器耦合厌氧氨氧化工艺处理低 C/N 比生活污水[J]. 环境科学学报, 2023, 43(4): 208-216.
- [35] 陈宁, 刘崇, 李玉光, 等. 硝化颗粒污泥胞外聚合物及信号分子功能分析[J]. 中国环境科学, 2023, 43(9): 4666-4675.
- [36] NI L, LI D, RONG S, et al. Characterization of extracellular polymeric substance (EPS) fractions produced by *Microcystis aeruginosa* under the stress of linoleic acid sustained-release microspheres[J]. Environmental Science and Pollution Research, 2017, 24(26): 21091-21102.
- [37] ZHANG W, ZHOU X, CAO X, et al. Accelerating anammox nitrogen removal in low intensity ultrasound-assisted ASBBR: Performance optimization, EPS characterization and microbial community analysis[J]. Science of the Total Environment, 2022, 817: 152989.
- [38] SUN Z, LI Y, YUE J, et al. Metagenomic analysis revealed the mechanism of extracellular polymeric substances on enhanced nitrogen removal in coupled MABR systems with low C/N ratio containing salinity[J]. Journal of Environmental Chemical Engineering, 2023, 11(2): 109599.
- [39] 刘崇, 李玉光, 陈宁, 等. 自养硝化颗粒污泥培养过程及微观特征[J]. 中国环境科学, 2023, 43(9): 4688-4696.
- [40] LI M, CAO X, WU Z, et al. Insights on nitrogen and phosphorus removal mechanism in a single-stage Membrane Aeration Biofilm Reactor (MABR) dominated by denitrifying phosphorus removal coupled with anaerobic/aerobic denitrification[J]. Journal of Water Process Engineering, 2023, 52: 103583.
- [41] FLORES-RENTERÍA D, RINCÓN A, VALLADARES F, et al. Agricultural matrix affects differently the alpha and beta structural and functional diversity of soil microbial communities in a fragmented Mediterranean holm oak forest[J]. Soil Biology and Biochemistry, 2016, 92: 79-90.
- [42] WANG Q, SHI P, SUN Z, et al. Advanced treatment of municipal reverse osmosis concentrate by a hybrid ozone-membrane aerated biofilm reactor system[J]. Journal of Water Process Engineering, 2023, 53: 103923.
- [43] 康宝文, 肖芃颖, 周靖, 等. 生物膜层 DO 浓度对 MABR 中异养硝化-好氧反硝化的影响[J]. 环境科学研究, 2021, 34(10): 2397-2404.
- [44] LIU H, LI L, YE W, et al. Nitrogen removal from low COD/N interflow using a hybrid activated sludge membrane-aerated biofilm reactor (H-MABR)[J]. Bioresource Technology, 2022, 362: 127855.
- [45] MEI X, WANG Y, YANG Y, et al. Enhanced treatment of nitroaniline-containing wastewater by a membrane-aerated biofilm reactor: Simultaneous nitroaniline degradation and nitrogen removal[J]. Separation and Purification Technology, 2020, 248: 117078.
- [46] ZHOU Z, QIAO W, XING C, et al. Microbial community structure of anoxic-oxic-settling-anaerobic sludge reduction process revealed by 454-pyrosequencing[J]. Chemical Engineering Journal, 2015, 266: 249-257.
- [47] LI J, MA J, LIAO H, et al. Hot-pressed membrane assemblies enhancing the biofilm formation and nitrogen removal in a membrane-aerated biofilm reactor[J]. Science of the Total Environment, 2022, 833: 155003.
- [48] LAN M, YIN Q, WANG J, et al. Heterotrophic nitrification-aerobic denitrification performance of a novel strain, *Pseudomonas* sp. B-1, isolated from membrane aerated biofilm reactor[J]. Environmental Research, 2023, 220: 115199.
- [49] 李亦舒, 刘亚雷, 赵一淳, 等. 低溶解氧胁迫下生物膜-颗粒污泥 anammox 工艺生物富集特性及脱氮功能菌群和基因的演变研究[J]. 环境科学学报, 2022, 42(6): 35-43.
- [50] SONG Z, HAO S, ZHANG L, et al. High-rate nitrogen removal by partial nitrification/anammox with a single-stage membrane-aerated biofilm reactor[J]. Journal of Environmental Management, 2024, 349: 119581.
- [51] JI G, HE C, TAN Y. The spatial distribution of nitrogen removal functional genes in multimedia biofilters for sewage treatment[J]. Ecological Engineering, 2013, 55: 35-42.
- [52] GALLOWAY J. N, TOWNSEND A. R, ERISMAN J. W, et al. Transformation of the nitrogen cycle: recent trends, questions, and potential solutions[J]. Science, 2008, 320(5878): 889-892.

- [53] XU Y, ZHANG D, XUE Q, et al. Long-term nitrogen and phosphorus removal, shifts of functional bacteria and fate of resistance genes in bioretention systems under sulfamethoxazole stress[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2023, 126: 1-16.
- [54] 郭雷, 肖凡颖, 袁港, 等. 外源性海藻糖强化好氧脱氮菌处理高盐废水的菌群特性[J]. *环境工程学报*, 2022, 16(10): 3448-3459.
- [55] CHEN X, ZHANG Q, ZHU Y, et al. Response of rotating biological contactor started up by heterotrophic nitrification-aerobic denitrification bacteria to various C/N ratios[J]. *Chemosphere*, 2022, 291: 133048.

(责任编辑: 曲娜)

Pollutant removal characteristics from initial rainwater treated by MABR and its microbial community analysis

CAO Fangyu¹, ZHANG Liu^{2,*}, FENG Jingwei¹, XIA Shaofeng³

1. Hefei University of Technology, College of Civil Engineering, Hefei 230009, China; 2. Department of Ecology and Environment of Anhui Province, Hefei 230031, China; 3. Hefei Municipal Engineering Design & Research Institute Co. Ltd., Hefei 230041, China

*Corresponding author, E-mail: zlbod5@163.com

Abstract In view of the characteristics of large pollution load, strong impact of initial rainwater, a type of dense non-porous membrane was used to build the membrane aerated biofilm reactor (MABR), the treatment effect of initial rainwater by it was investigated, and the characteristics of extracellular polymer substances (EPS) and microbial community in the MABR system were analyzed. The results demonstrated that the average removal rates of COD, $\text{NH}_4^+\text{-N}$, and TN were 90.90%, 79.75%, and 43.75%, respectively, and the corresponding removal loads were $1.99 \text{ g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$, $0.30 \text{ g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$, and $0.21 \text{ g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$. These findings indicated that MABR had a good performance on the simultaneous removal of nitrogen and carbon. Compared with the inoculated sludge, the content of protein and polysaccharide in EPS increased by $19.37 \text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$ and $7.12 \text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$, respectively, indicating that more enzymes and nutrients were released during the activity of microorganisms. The increase of PN/PS contributed to maintain the stability of biofilm morphology. The three-dimensional excitation-emission matrix spectroscopy spectra of EPS revealed that the primary components of soluble-EPS (S-EPS), loosely bound-EPS (LB-EPS) and tightly bound-EPS (TB-EPS) were tyrosine, which was beneficial to the formation of biofilms. The microbial community analysis revealed that the biofilm harbored a diverse range of bacteria, including those involved in anaerobic ammonia oxidation, nitrification, and denitrification. The results of functional gene prediction showed that a significant increase in nitrogen removal genes within the MABR, which could accelerate both nitrification and denitrification processes. This research provides valuable insights for the engineering application of MABR in treating initial rainwater.

Keywords membrane aerated biofilm reactor; initial rainwater; extracellular polymer substances; microbial community; functional genes