



稻田土强化好氧颗粒污泥同步除污资源化的效果与机制

冯思琪¹, 郭媛^{1,✉}, 权晨妍¹, 李家科^{1,✉}, 张冰², 时文歆²

1. 西安理工大学西北旱区生态水利国家重点实验室, 西安 710048; 2. 重庆大学环境与生态学院, 重庆 400044

摘 要 好氧颗粒污泥 (aerobic granular sludge, AGS) 技术在同步实现污水处理与资源化利用方面显示出巨大潜力, 对其进行强化是推动该技术绿色发展的重要研究方向。该研究基于天然稻田土内含氧化还原微环境和有机胶体物质的优良特性, 提出将其作为新接种源引入 AGS 系统, 探究了投加稻田土对反应器去污效能、污泥颗粒化进程、类藻酸盐胞外多糖 (alginate-like exopolysaccharides, ALE) 分泌和微生物群落结构的影响, 解析了稻田土同步强化 AGS 除污资源化的作用机制。结果表明: 在稻田土与活性污泥接种比为 2:3 的条件下, 加入稻田土的反应器启动时间比对照组提前 30d 左右, 成熟颗粒污泥的 SVI_{30} 约为 $76 \text{ mL} \cdot \text{g}^{-1}$, MLSS 为 $1.5 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$ 左右, 平均粒径达到 $653.8 \mu\text{m}$, ALE 产量为 $21.75 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1} \text{VSS}$, 这些特性均显著优于对照组。此外, 稻田土的添加使 AGS 富集了优势菌 *OLB8*(17.6%)、*Thiothrix*(11.1%) 和 *Micavibrionales*(8.2%), 有助于污泥对总氮的去除, 以及对碳素的捕集并转化为 ALE。本研究可为 AGS 系统的快速启动、稳定运行及高附加值产物回收利用提供方法参考。

关键词 好氧颗粒污泥; 稻田土; 类藻酸盐胞外多糖; 高附加值产物

由于全球资源有限、市场需求和经济效益, 废水被认为是一种宝贵的资源, 而不仅仅是废物。因此, 将传统污水处理厂转变为资源回收厂开始成为人们关注的焦点^[1]。废水提供了能源回收、生物固体、可再生水和其他有价值营养物质 (如氮、磷和其他元素) 回收利用的机会^[2]。与传统的活性污泥法相比, 好氧颗粒污泥 (aerobic granular sludge, AGS) 技术不仅可以节省 23%~40% 的用电量、50%~75% 占地面积^[3], 而且在资源化方面也具有一定优势, 符合我国“循环经济”和“双碳”发展目标。这主要得益于 AGS 优良的特性: 沉降性能好^[4-6], 抗冲击负荷强^[6], 微生物丰富^[7]、能够降解有毒难降解化合物^[8-9]。此外, AGS 外表为黄色或浅黄色球体, 表面光滑致密, 直径大多在 $0.5 \sim 2.0 \text{ mm}$ ^[10-11], 因其独特的含孔球体形态, 使得污泥颗粒表层至核心溶解氧传质受阻, 由表及里形成了好氧区、缺氧区和厌氧区, 硝化菌、反硝化菌和聚磷菌等功能菌群沿着径向分布于不同层级, 赋予 AGS 同步脱氮除磷能力^[12-13]。

类藻酸盐胞外多糖 (alginate-like exopolysaccharides, ALE) 是 AGS 在处理城市废水时所产胞外聚合物 (extracellular polymeric substances, EPS) 中的一类主要有机组分^[14]。ALE 由糖、蛋白质和腐殖质类物质组成^[15], 是一种可用于造纸、医疗和建筑行业以及农业和园艺的生物材料。目前的市场条件有利于从废水中回收 ALE, 这应该与使用 AGS 技术的污水处理厂实际运行相结合^[16]。综合比较从废水处理的剩余污泥中回收沼气、纤维素、生物燃料、磷酸盐和 ALE 等, ALE 回收占污水处理厂可产生营业额的 50% 以上^[17]。例如, 在荷兰, 预计到 2030 年, 可以从 10 个不同的污水处理厂回收 $8\,500 \times 10^4 \text{ t}$ ALE, 产值 1.7×10^9 欧元^[17]。ALE 表现为水凝胶特性^[18], 为颗粒提供强度, 富有弹性、疏水性和保护微生物的紧凑结构。据报道, 与絮状活性污泥相比, 颗粒污泥提取的 ALE 含量是活性污泥的 2 倍^[18]。可见, 从 AGS 中提取 ALE 这一高附加值

收稿日期: 2024-04-06 录用日期: 2024-09-10

基金项目: 中国博士后科学基金资助项目 (2022M712561); 陕西省自然科学基金基础研究计划项目 (2023-JC-QN-0410); 陕西省秦创原“科学家+工程师”队伍建设 (2022KXJ-115)

第一作者: 冯思琪 (1998—), 女, 硕士研究生, 研究方向为好氧颗粒污泥强化形成及其资源化利用研究, 1594767480@qq.com

✉通信作者: 郭媛 (1994—), 女, 博士, 讲师, 研究方向为污水处理与资源化利用, guoyuan@xaut.edu.cn; 李家科 (1975—), 男, 博士, 教授, 研究方向为海绵城市及非点源污染控制, xaut_ljk@163.com

有机物已成为当下国内外的研究热点，如何在促进 AGS 快速形成的同时，还提高其 ALE 产量将具有重要的研究价值。

目前，国内外强化 AGS 形成所采取的方法手段主要包括 2 类：基于群体感应的生物强化作用^[19]，基于晶核说的外源物质添加^[20]。前者因需要纯化和扩大培养微生物，而难以大规模应用；后者主要通过外部投加载体或晶核作为诱导凝结核加速絮状污泥颗粒化，是目前强化 AGS 形成的常用方法之一。其中，被广泛使用的人为添加物质包括颗粒活性炭、厌氧颗粒污泥、 Ca^{2+} 、 Fe^{3+} 等^[21]。但是，引入化学药剂或人工合成材料存在二次污染、对环境有害、成本高等固有劣势。相比之下，天然土壤取材方便、天然绿色、无二次污染，其内部富含的无机矿物可作为诱导凝结核，且有助于改善污泥沉降性能。此外，天然土壤中广泛存在着能够参与物质氧化还原微观界面反应的多种类型微生物，影响着碳、氮、磷等营养元素以及重金属等污染物的生物地球化学循环过程^[22]。已有研究报道，将土壤接种到颗粒污泥系统可促进特定污染物的去除，并加速污泥颗粒化过程。比如，常笑丽等^[23]在 2 组实验中分别投加细土和厌氧颗粒，在较短时间内都促进了好氧颗粒的形成。SHI 等^[24]将从高盐环境中收集的潮间带湿地沉积物作为新接种源，成功实现了厌氧颗粒污泥的快速形成，并提高了其处理含盐制药废水的效能。但是，这些研究仅停留在利用土壤强化 AGS 形成的层面，并未考虑土壤添加对颗粒污泥产生 ALE 的影响。稻田土作为一种天然农作土壤，不仅具有一般土壤特性，而且对其施行周期性的淹水-落干管理措施，为营养元素的循环利用提供了更好条件^[25]，使其富集大量的兼性异养菌。此外，还富含有机胶体物质，可作为颗粒污泥合成 ALE 时的颗粒态碳源^[26]。由此推断，稻田土以上特性或许有助于促进 AGS 的快速形成、强化污染物去除和提升 ALE 产量，但目前尚未有相关研究报道。

基于以上分析，本研究拟将稻田土作为一种新的接种源引入 AGS 系统，以期解决好氧污泥颗粒化进程慢、长期运行易失稳、脱氮除磷效能不稳定等问题，同时提升剩余颗粒污泥的 ALE 产量，推动该技术同步实现污水净化与资源回收利用的双重目标。

1 材料与方法

1.1 稻田土与活性污泥接种比例的确定

活性污泥取自西安市第四再生水厂的二沉池回流污泥，该厂采用倒置 A/A/O 工艺。稻田土取自广东省，将稻田土在室温下风干研磨，并用 100 目的筛子筛除粒径较大的颗粒及杂质，将研磨筛分后的稻田土含水率调到 33.3%(质量比)，再放到 25 °C 生化培养箱中活化 3 d，得到待用的活化后稻田土。

为了确定最优的活性污泥与稻田土的接种量，将活性污泥与稻田土的接种比例设置一系列梯度，开展活性污泥批次调理试验：取 1L 烧杯 6 个，分别接种不同比例的稻田土和活性污泥，使稻田土占比(按干质量计)分别为 0%、20%、40%、60%、80%、100%，再通入一定量模拟生活废水混匀，启动六联搅拌机，平行连续搅拌 4 h，观察污泥沉降过程。同时，将上清液使用 0.45 μm 滤膜过滤，检测上清液浊度、Zeta 电位和污泥沉降指数及其比耗氧速率等指标。

1.2 反应器装置和运行方式

本研究采用间歇式反应器(sequencing batch reactor, SBR)作为实验装置培养好氧颗粒污泥，反应器整体为有机玻璃柱形结构。在运行过程中，SBR 由可编辑逻辑控制器(PLC)自动精准控制。如图 1 所示，平行运行 2 组 SBR，分别为实验组 R1、对照组 R2，每个反应器内径 9 cm，进水高度 80 cm，有效体积为 3.5 L。由“1.1”预实验可得稻田土与活性污泥的最佳投配比为 2:3，按此比例将 2 者投加到 R1 中，并将 2 个反应器启动时的起始污泥浓度均调整为 5.3 g·L⁻¹。

反应器运行过程包括进水、缺氧、曝气、沉淀、出水 5 个阶段。设置反应器运行周期为 4 h，进水 5 min、缺氧 60 min、曝气 150~165 min、沉淀 20-5 min，排水 5 min。反应器底部采用砂滤曝气头供气，曝气强度由气体流量计控制为 2.0 L·min⁻¹。出水口设置在反应器中间部位，保证每个循环体积交换率为 50%。反应器在室温下运行。进水采用人工模拟生活污水，化学需氧量(COD)、氨氮($\text{NH}_4^+\text{-N}$)和总磷(TP)分别约为 600、60 和 10 mg·L⁻¹，微量元素的配方见参考文献[27]。

1.3 分析项目与方法

定期取进水和出水水样，过 0.45 μm 滤膜后进行常规水质指标检测，其中 COD 采用快速消解分光光度

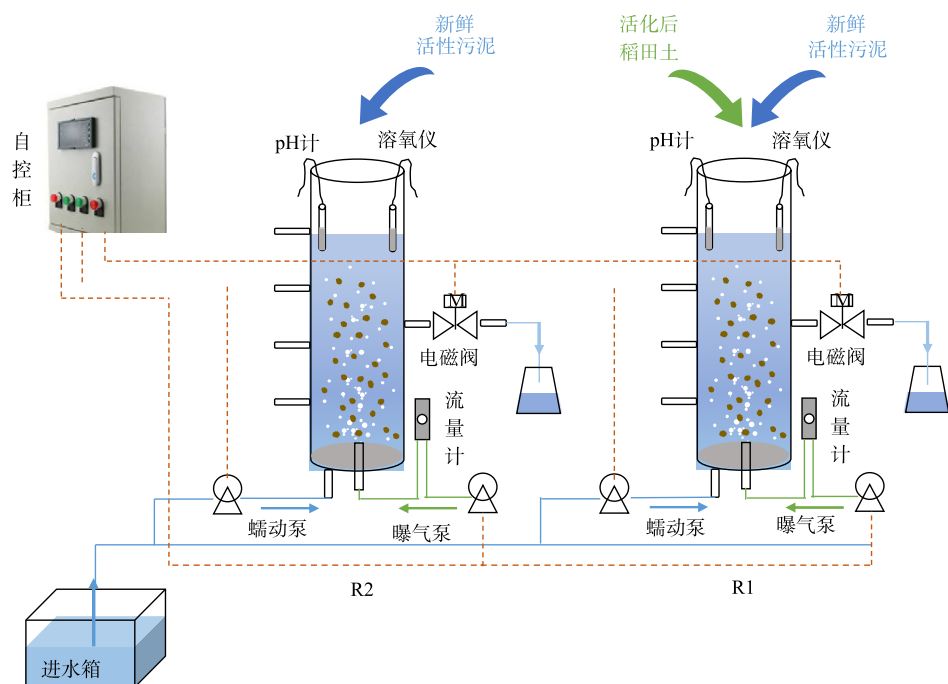


图1 实验装置示意图

Fig. 1 Schematic diagram of experiment reactor

法、总氮 (TN) 采用碱性过硫酸钾氧化-紫外分光光度法、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 采用纳氏试剂光度法、 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 采用 N-(1-萘基)-乙二胺光度法、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 采用紫外分光光度法。

定期取曝气末期混合均匀的污泥混合液, 按照标准方法测定混合液 (挥发性) 悬浮固体浓度 (MLVSS)、 SVI_{15} 、 SVI_{30} 等污泥指标。颗粒粒径采用 Mastersize2000 型激光粒度仪 (Mastersize2000, UK) 测定, 通过光学显微镜观察污泥的表现形态, 采用扫描电子显微镜 (SEM) 进一步观察颗粒污泥的微观结构。

胞外聚合物 (EPS) 的提取采用加热法, 对其中的蛋白 (PN) 和多糖 (PS) 含量进行测定^[28]。ALE 的提取、分级与定量依据 MENG 等报道的方法^[29]。组分分级主要将提取的 ALE 分为 MG、MM 和 GG 嵌段, 其中 M 为 $\beta\text{-D}$ -甘露糖醛酸、G 为 C-5 差向异构体 $\alpha\text{-L}$ -古洛糖醛酸。将 ALE 提取产物冻干后, 采用傅里叶红外光谱 (FTIR) 分析其富含的主要官能团, 并与市售的海藻酸钠对比。通过 16S rRNA 高通量测序技术分析 R2、R1 中污泥在初期 (I)、增长期 (M) 和稳定期 (S) 的微生物群落结构。本研究中的所有实验均平行重复 3 次, 结果以平均值和标准差表示。

2 结果与讨论

2.1 不同投配比下活性污泥性能的变化情况

本研究首先考察了不同稻田土与活性污泥的接种比例下, 活性污泥沉降性能、生物活性等性能的变化情况, 实验结果如图 2 所示。可以看出, 随着稻田土占比的增加, 污泥沉降性能增强, 这主要得益于 Zeta 电位绝对值再减小。Zeta 电位决定着污泥的聚集性能, Zeta 电位在一定范围内绝对值越小, 粒子间的静电引力就越大, 相反静电斥力也就越小^[30]。但是, 稻田土投加比例越高, 上清液浊度随之上升、比耗氧速率降低。其中, 占比为 40% 和 60% 时比耗氧速率接近, 分别为 $57.65 \text{ mg (g} \cdot \text{h)}^{-1}$ (以 MLSS 计) 和 $56.75 \text{ mg (g} \cdot \text{h)}^{-1}$ 。基于以上实验结果, 综合考虑污泥沉降比、出水浊度、Zeta 电位和比耗氧速率等指标, 确定稻田土投加比例为 40% 时对活性污泥的调理作用最佳, 这些特性的改善或许有利于促进好氧污泥颗粒化。

2.2 稻田土添加对好氧污泥颗粒化过程的影响

实验开始阶段, 2 组反应器起始污泥浓度均为 $5.3 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$ 左右。随后, 在不断缩短沉降时间的过程中, 沉降性能不好的污泥被排出, 沉降速度快的好氧颗粒逐渐占据主导地位, R1 污泥浓度最终稳定在 $1.5 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$,

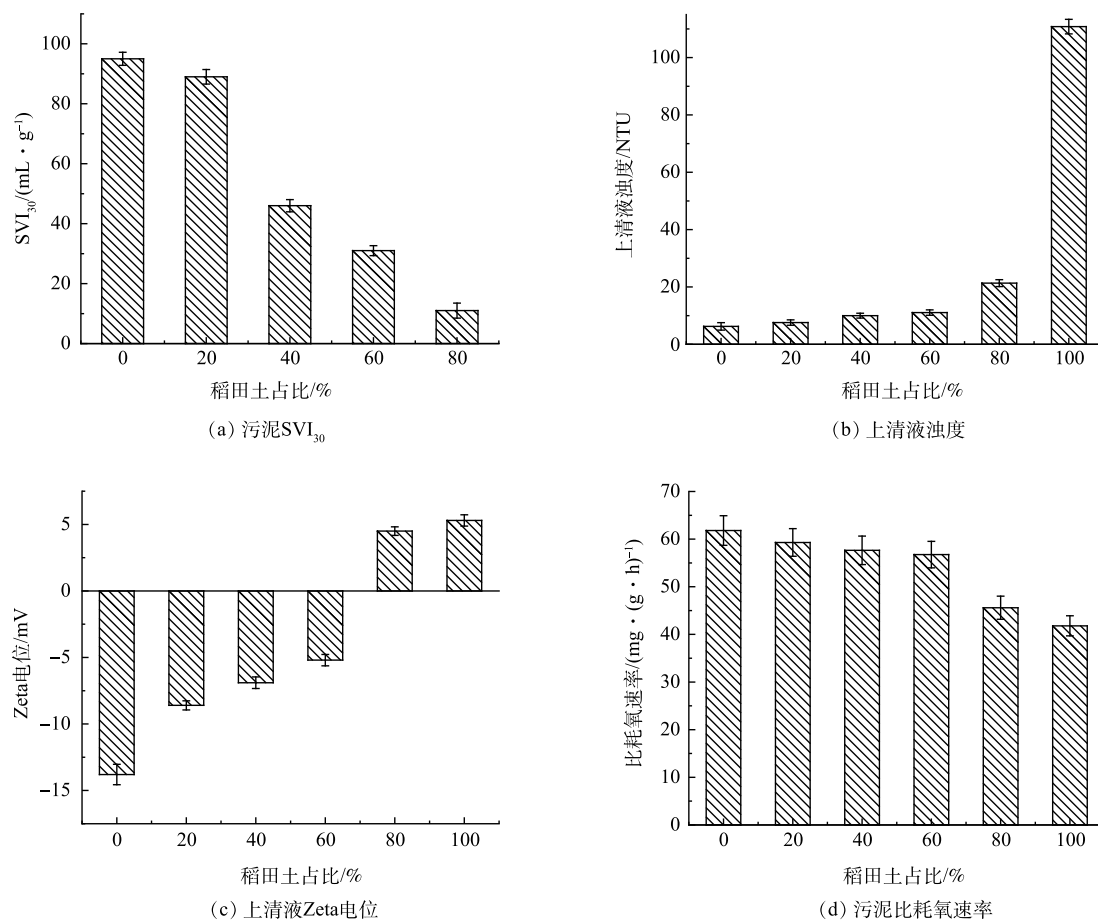


图 2 稻田土不同投配比下活性污泥性能的变化情况

Fig. 2 Variation of properties of activated sludge at different addition rates of paddy soil

R2 污泥浓度逐渐稳定在 $3.0 g \cdot L^{-1}$ 。2 个反应器中颗粒污泥的 SVI_{30} 均逐渐变小, R1 小于 R2, 2 者最终稳定在 $75 mL \cdot g^{-1}$ 左右, 而活性污泥 SVI_{30} 一般介于 $90 \sim 150 mL \cdot g^{-1}$ (图 3(b))。可见, 在反应器运行过程中, R1 污泥浓度低于 R2 污泥浓度, 且前者污泥沉降性能较好。由图 4(c) 可知, 运行了 120 d 的 R1 颗粒表层上附着大量的累枝虫和丝状菌, 累枝虫的柄和丝状菌相互缠绕, 累枝虫的大量存在增加颗粒污泥的浮力, 导致沉降性能降低的颗粒被冲出, 污泥浓度降低^[31]。同时, 累枝虫的存在也有利于颗粒结构的稳定, 并通过捕食作

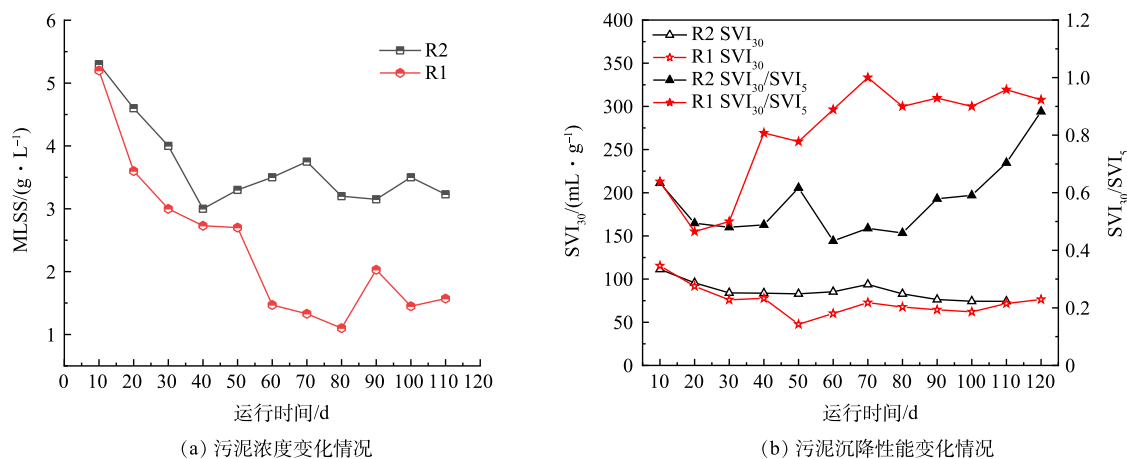


图 3 反应器运行期间污泥浓度及其沉降性能的变化

Fig. 3 Variations of sludge concentration and settling properties during reactor operation.

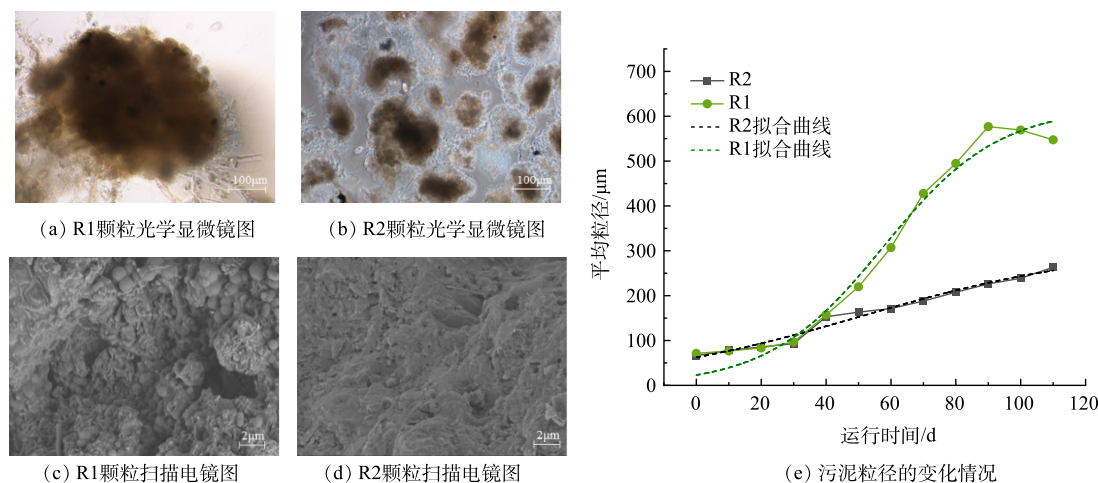


图 4 成熟颗粒污泥的形态以及粒径变化情况

Fig. 4 Morphology and variation of particle size of mature granular sludge during reactor operation

用捕食污水中细小絮体和游离细菌而减少出水悬浮物, 提高出水澄清度。

2 组反应器接种的活性污泥形态蓬松、不规则、呈黄色。据报道, 污泥粒径超过 $200\ \mu\text{m}$ 即可视为颗粒污泥^[32]。由图 4(e) 和表 1 可以看出, 相较于 R2, R1 的造粒时间提前了 30 d。随着沉淀时间的缩短, 沉降性能差的污泥随出水排出反应器外, 而反应器中沉降性较好的污泥被滞留, 逐渐从絮状演化为不规则的小颗粒, 进而继续增大, 最终形成结构致密、椭球形、边缘清晰的颗粒污泥。在反应器启动阶段, R2 中的污泥平均粒径为 $66.1\ \mu\text{m}$, R1 中的污泥平均粒径 $71.4\ \mu\text{m}$ 。随着反应器的运行, 颗粒粒径逐渐增大, 最终 R2 粒径稳定在 $263.5\ \mu\text{m}$, R1 粒径稳定在 $653.8\ \mu\text{m}$ 。高倍 SEM 图进一步揭示了成熟 AGS 的微观形貌, 成熟 R2 颗粒表面粗糙不平、呈现不规则的椭球状结构, 而成熟 R1 颗粒则是较为致密的球形颗粒; 前者聚集了大量杆菌, 而后者盛行短棒状和球状细菌 (图 4(c) 和图 4(d))。

2.3 反应器对污染物的去除效果

在反应器运行期间由于生物量的流失和再富集, 2 个系统对于 COD 和 TN 的去除效率均存在波动。最终, R1 对 COD 的去除负荷稳定在 $489\ \text{mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$ (以 MLSS 计), R2 的去除负荷稳定在 $234\ \text{mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$, 且在运行过程中 R1 的 COD 去除负荷始终大于 R2 (图 5(a))。R1 中 TN 的去除负荷在颗粒化的增长阶段 (第

表 1 反应器中污泥颗粒化过程的数学模型拟合结果

Table 1 Results of mathematical model fitting of sludge granulation process in two reactors

反应器	$D_{\max}/\text{mm}$	T_d/d	K/d^{-1}	R^2
R1	620.05 ± 37.86	57.78 ± 3.48	0.056 ± 0.008	0.97
R2	308.16 ± 34.60	50.81 ± 10.01	0.027 ± 0.004	0.97

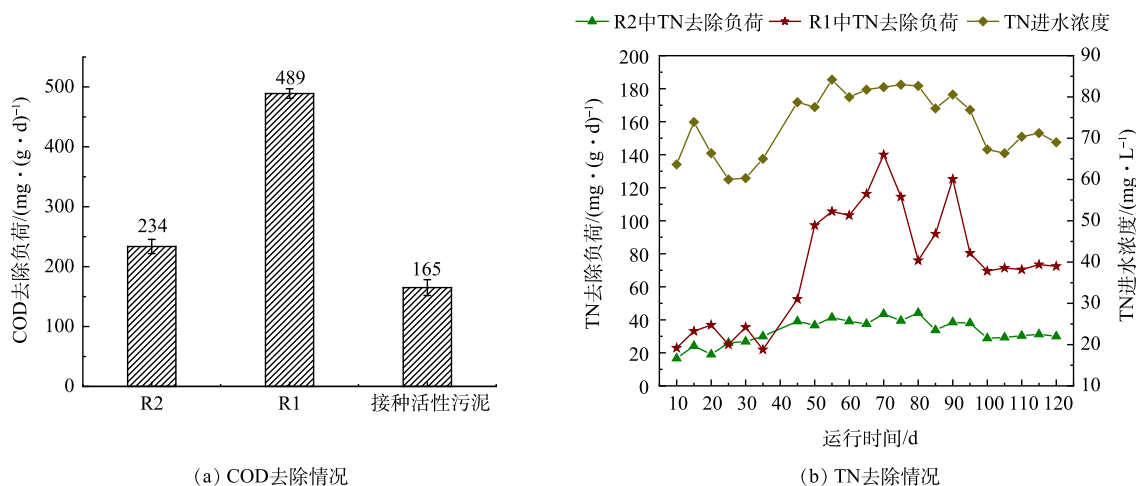


图 5 反应器运行期间对污染物的去除效果

Fig. 5 Changes in pollutant removal rates during reactor operation

80~120 天) 也得以明显提高, 最终 R1 的去除负荷为 $70 \text{ mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$ (以 MLSS 计), 远远优于 R2 的 $25 \text{ mg} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$ 。这一结果说明 COD 和 TN 的去除明显受到了污泥颗粒化程度的影响, 且投加稻田土的反应器除污效果更好。此外, 出水中其他氮组分 (NH_4^+ 、 NO_2^- 和 NO_3^-) 的浓度也被定期检测, 结果发现, NH_4^+ 、 NO_2^- 的浓度在 2 个反应器的出水中均小于 $0.5 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, NH_4^+ 的去除率高达 98% 左右, AGS 系统中氮污染物大多经过硝化和反硝化路径转化为 N_2 而被完全去除。由此可见, 本研究中 2 个反应器的硝化性能均较好, 但 R1 的反硝化性能更优, 稻田土添加提升了 AGS 系统对碳氮污染物的去除效果。

2.4 污泥中类藻酸盐胞外多糖的产量及组分

EPS 对颗粒污泥的形成和稳定起着至关重要的作用^[33]。图 6(a) 和 6(b) 揭示 R1 和 R2 污泥中 EPS 的主要成分均是 PS, 稳定期时 R2 中 PS 浓度约为 $121.1 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$ (以 MLVSS 计), R1 中 PS 浓度为 $324.8 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$, 约为前者的 2.7 倍。这表明稻田土的投加促进颗粒污泥分泌更多的胞外多糖。PS 具有多羟基碳链结构, 易与阳离子 (尤其是二价阳离子) 交联并形成三维凝胶网络。因此, SARMA 等综述了 PS 对 AGS 的机械稳定性具有重要的贡献。HE 等^[34-35] 也多次报道采用低负荷污水培养和运行的 AGS 系统中稳定性良好的实验组, PN/PS 值普遍小于 1。可见, R1 颗粒中更高的 PS 含量有助于提升其结构稳定性。

为进一步鉴定多糖成分, 实验中检测了运行 120 天后 R2、R1 颗粒中提取的 ALE 浓度, 结果见图 6(c)。R2 污泥的 ALE 含量约为 $10.8 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$ (以 MLVSS 计), R1 污泥的 ALE 含量约为 $27.2 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$ 。ALE 产物分级结果表明, R1 和 R2 颗粒中 3 种组分的含量排序均为: $\text{MG} > \text{GG} > \text{MM}$, 但 R1 相对含量均大于 R2。藻酸盐构建块是由 2 种糖醛酸组成的非支链多糖, β -D-甘露糖醛酸 (M) 和 C-5 差向异构体 α -L-古洛糖醛酸 (G)。在 ALE 中, 甘露糖醛酸 (M) 和古洛糖醛酸 (G) 的 2 个糖醛酸残基可以排列在 3 种均聚嵌段

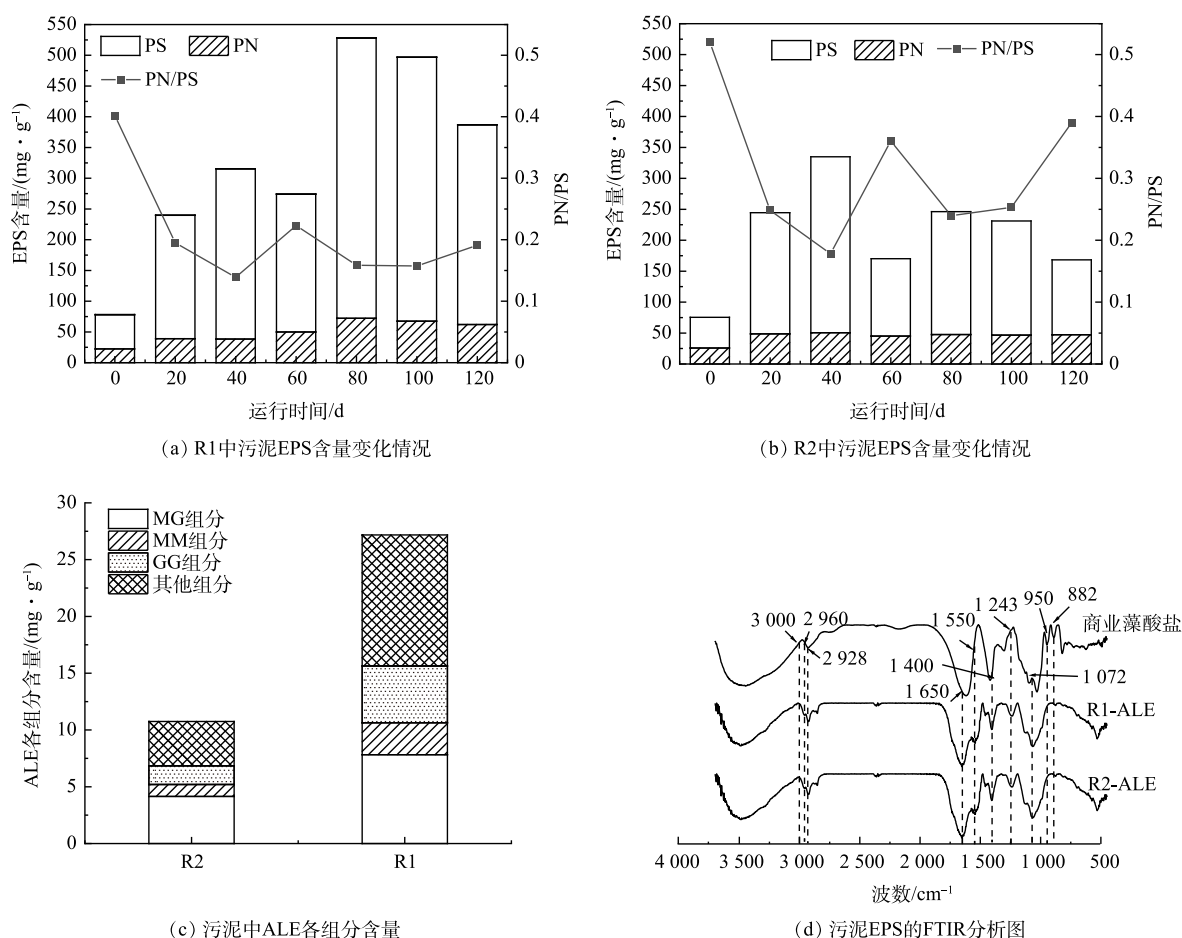


图 6 2 组反应器中颗粒污泥的 EPS 含量及组分分析

Fig. 6 EPS content and components analysis of granular sludge in two reactors

(MG、MM 和 GG 嵌段) 中。其中, GG 嵌段提供凝胶形成能力, 而 MM 和 MG 嵌段为链提供灵活性^[36]。说明 R1 中颗粒的凝胶形成能力和链柔性相较于 R2 更好。

对提取的 ALE 和商业藻酸盐进行 FTIR 分析, 结果见图 6(d)。可以看出, R2、R1 中提取的 ALE 与商业藻酸盐图谱结构较为相似。其中, $2\,928\text{ cm}^{-1}$ 和 $2\,960\text{ cm}^{-1}$ 波数处分别代表碳水化合物和脂质类物质中 C-H 伸缩基团中的 CH_3 和 CH_2 结构, R2、R1 在此处振动强度高于商业藻酸盐。在波数 $1\,650\text{ cm}^{-1}$ 、 $1\,243\text{ cm}^{-1}$ 处代表蛋白氨基基团中酰胺 I ($\text{C}=\text{O}$ 伸缩振动)、和酰胺 III (C-H 伸缩振动) 结构, R2 和 R1 存在明显的振动, 与商业藻酸盐在此处的振动相似, 表明 ALE 和商业藻酸盐均存在较强的蛋白氨基性质。在 $1\,072\text{ cm}^{-1}$ 处显示的峰值证实了碳水化合物的存在, 并且特定于 C-O-C 和 C-O 振动, R2 和 R1 振动强度略低于商业藻酸盐。波数 950 cm^{-1} 处主要代表了物质内核酸物质 O-P-O 基团振动, 2 个样品间差异较小, 商业藻酸盐振动较为明显, 此处主要为藻酸盐中糖醛酸的特征峰之一^[37]。

在商业藻酸盐的光谱中, 分别在 $3\,000\text{ cm}^{-1}$ 和 $2\,928\text{ cm}^{-1}$ 波数处出现 O-H 拉伸振动带和甲基较弱的 C—H 拉伸峰, 这是多糖的典型特征^[37]。对于本研究使用的商业藻酸盐, 分别在 950 和 882 cm^{-1} 处检测到 2 种褐藻酸单体, 即古鲁醛酸和甘露醛酸的特征峰。此外, 检测到 O—C—O 基团的峰, 特别是波数略高于 $1\,400\text{ cm}^{-1}$ 的峰, 表明在商业海藻酸盐和 ALE 提取物中存在明显的对称拉伸振动, 这是不同来源 (褐藻和颗粒污泥) 聚合物结构相似性的进一步印证。总之, 从 AGS 中提取的 ALE 在化学结构和成胶性能方面类似于商业海藻酸盐, 与他人报道相一致^[38-39], 且稻田土添加有助于提升颗粒污泥的 ALE 产量。

2.5 污泥中微生物群落结构演替

对 2 个反应器处于不同时期的 AGS 采用 16S rRNA 测序技术进行微生物群落结构分析。首先, 计算出了每个污泥样品中的 Chao1、Ace、Shannon 和 Simpson 四个指数的具体数值。前 2 个指数 (Chao1 和 Ace) 通常被用来表征微生物群落的丰富度, 后 2 个指数 (Shannon 和 Simpson) 被用来反映微生物群落的多样性和均匀性。Chao1 和 Ace 数值越大, 微生物种类更丰富; 较高的 Shannon 和较低的 Simpson 表明样品具有更高的多样性和均匀性。与 R1 相比, R2 的 Chao1 和 Ace 数值更大, 同时具有较高的 Shannon 和较低的 Simpson。表明 R2 具有更高的微生物群落多样性、均匀性以及丰富度, 且总体呈现下降的趋势。这表明好氧污泥在颗粒化过程中微生物群落结构发生了演替, 污泥中的优势种群被保留而劣势菌被淘汰, 投加稻田土的反应器可能由于土壤里土著微生物不适应高曝气的环境有更为明显的演替现象。其次, 对获得的 OTU 聚类数与反应器运行效能之间进行了 CCA 分析, 并在前 2 个主成分 CCA1(解释度为 44.99%) 和 CCA2(解释度为 16.47%) 的坐标系下绘制了图 7(b), 直观显示 R2 和 R1 污泥颗粒化过程中微生物群落演替导致的生态位分离状况, 以及主要的环境驱动因子。即样本间的相对距离越小, 样本的物种组成越相似。可见, R2_I、R1_I、R2_M 相对距离较近, 表明稻田土中的菌群并没有在与活性污泥初始混合系统 R1_I 中占优势, 但与对照组颗粒增长期 R2_M 具有相似的菌群分布, 这为 R1 更快地完成反应器启动提供了良好的微生物条件。此外, R2_S 已经完全远离 R2_I、R2_M, 而 R1_S、R1_M 也完全远离 R1_I, 且稳定期的 R2 和 R1 污泥内部的微生物群落朝不同的方向发生了演替, 说明稳定期的颗粒污泥物种组成有很大的差异, 且投加稻田土的反应器内污泥在不同时期群落结构都发生了较强烈地演替。

图 7(a) 显示下水道球菌属 (*Amaricoccus*)、独岛菌属 (*Dokdonella*)、鞘氨醇单胞菌 (*Sphingomonas*) 是污泥样品中的优势菌属, 其在颗粒化过程中显著增加。这 3 类细菌经常被报道存在于 AGS 系统中, 下水道球菌属 (*Amaricoccus*) 是革兰氏阴性菌, 通常以规则的球状和四分体出现, 不利于生物除磷过程^[40]。独岛菌属 (*Dokdonella*) 和鞘氨醇单胞菌 (*Sphingomonas*) 有利于 EPS 的形成, 促进污泥颗粒化并维持颗粒结构的稳定性^[41, 42]。在 R1 颗粒污泥中显著富集了 *OLB8*、*Thiothrix* 和 *Micavibrionales*, 其相对丰度分别为 17.6%、11.1%、8.2%。*OLB8* 是一种反硝化细菌, 该菌能将 NO_3^- 还原为 NO_2^- 。*Micavibrionales* 与 TN 和 TIN 的去除有关, 具有反硝化功能^[43]。它们发生反硝化作用而使 R1 反应器出水中具有较低的 NO_3^- 浓度, 达到较高的 TN 去除率。相比之下, R2 反应器中与氮元素代谢的功能菌属富集较少, 主要优势菌属及其相对丰度为 *Dokdonella*(6.7%)、*Amaricoccus*(19.8%)、*Saprospiraceae*(4.6%), 没有 *OLB8* 的大量富集。这与前文所述添加了稻田土的 AGS 系统 R1 中 TN 去除率高相一致。在属分类水平上可以看出, R2 和 R1 微生物群落结构在演替过程中具有明显的差异, 随着污泥的颗粒化原来某些丰度较高的种群并没有存活下来, 反而随着运行时间的增长, 逐渐适应环境的菌种得到了繁殖富集, 尤其在成熟颗粒 R2 和 R1 中微生物群落结构有明显差

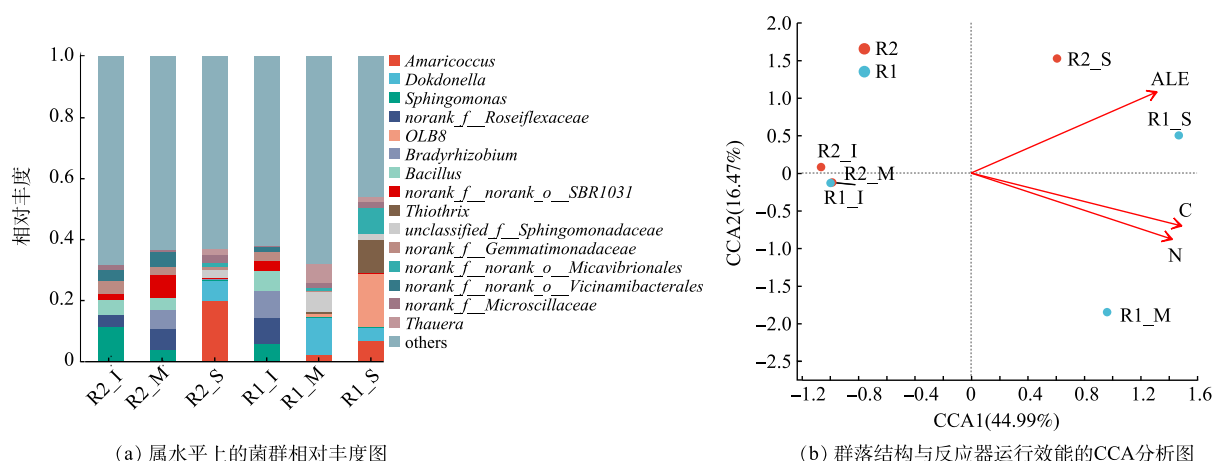


图 7 2 个反应器中不同时期颗粒污泥的微生物群落结构分析

Fig. 7 Microbial community structure analysis of granular sludge from two reactors during different periods

异。代表物种丰富度的 Chao 指数在 R1 中较低，这主要是由于实验期间 R1 反应器中的生物质快速造粒而经历了严重冲刷，最终保留了与降碳脱氮、EPS 和 ALE 合成相关的功能菌 (图 7(b))。

2.6 稻田土对 AGS 除污与资源化潜能的强化机制

前文研究发现，投加稻田土不仅可以使 R1 比 R2 提前 30d 形成 AGS，R1 的造粒速度是 R2 造粒速度的 2 倍 (R2 为 0.056 d^{-1} ，R1 为 0.027 d^{-1})，而且培养的成熟 AGS 沉降性能好、结构稳定性强，除污性能也显著优于 R2。同时，R1 颗粒在稻田土作用下将污水中的碳素更多转化为高附加值有机物 ALE，这些强化作用的潜在机制分析如下。

首先，基于“晶核说”理论，天然土壤中的无机矿物可充当污泥附着生长的惰性载体^[44]，且其有助于改善活性污泥的聚集性能 (图 2)，因此 R1 的造粒速度远快于 R2。其次，形成的 R1 颗粒中微生物群落的多样性和均匀性低于 R2，微生物群落丰富度也较低。表明投加稻田土的反应器中土壤内部土著微生物可能不适应曝气的环境被逐渐淘汰，微生物多样性降低。培养过程中系统遭受外部环境变化的压力，适应能力强的细菌才得以存活下来，富集了与碳氮代谢相关的优势菌群，比如反硝化细菌 (OLB8 和 *Micavibrionales*)，导致 R1 中 COD 和 TN 去除负荷均高于未添加稻田土的实验组 R2。最后，对成熟颗粒中 EPS 和 ALE 进行含量和成分鉴定，发现稻田土添加下形成的 AGS 内部富含大量 ALE，且与商业藻酸盐结构相似 (图 6(c))。回收颗粒污泥内部 EPS 等高附加值有机物将会推动污水/污泥资源化发展^[45]，EPS 组分胞外多糖中典型成分是类藻酸盐物质 (ALE)，为一种主要由多糖以及蛋白构成的高聚物，它与从大型海藻提取的藻酸盐具有高度相似结构和性质^[36]，具有商业化前景。图 7(b) 进一步揭示，R1_S 颗粒中的群落结构与 ALE 含量呈正相关，且趋势强于 R2_S。可见，添加稻田土可促进颗粒中富集与 EPS 和 ALE 合成相关的优势菌属，比如独岛菌属 (*Dokdonella*) 和鞘氨醇单胞菌 (*Sphingomonas*)。稻田土作为一种广泛存在的农作土壤，其取材方便、绿色无污染，本研究证实将其投加到 AGS 系统中有同步提升污水处理效能和从污泥中回收 ALE 的潜能。

3 结论

1) 在稻田土与活性污泥接种比为 2:3 的条件下，投加了稻田土的 AGS 系统启动时间短、去污效果强，培养出的成熟颗粒结构致密、孔隙率高，稳定时粒径达到 $653.8 \mu\text{m}$ ，颗粒外存在大量累枝虫发挥捕食作用而有助于剩余污泥减量。

2) 稻田土添加下所培养的成熟颗粒富含更多的高附加值产物 ALE，平均含量为 $27.2 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1} \text{VSS}$ ，且其化学结构和成胶性能类似于商业海藻酸盐。

3) 好氧污泥颗粒化过程中由于稻田土的加入，AGS 系统内部微生物群落结构发生了明显演替，优势菌属为 OLB8 (17.6%)、*Thiobacillus* (11.1%) 和 *Micavibrionales* (8.2%)，有利于同步实现污水高效降碳脱氮和资源化利用。

参考文献

- [1] VAN LOOSDRECHT M, BRDJANOVIC D. Anticipating the next century of wastewater treatment[J]. *Science*, 2014, 344(6191): 1452-1453.
- [2] HAO X D, WANG X Y, LIU R B, et al. Environmental impacts of resource recovery from wastewater treatment plants[J]. *Water Research*, 2019, 160: 268-277.
- [3] DE SOUSA R S, MENDES B A, MILEN F P, et al. Aerobic granular sludge: Cultivation parameters and removal mechanisms[J]. *Bioresource Technology*, 2018, 270: 678-688.
- [4] 俞晟, 钟旭东, 胡涛, 等. 好氧颗粒污泥工艺在市政污水处理中的应用[J]. *净水技术*, 2018, 37(1): 40-46.
- [5] 明捷, 黄子萌, 董清林, 等. 好氧颗粒污泥的性质及形成机制[J]. *水处理技术*, 2019, 45(7): 1-5.
- [6] JEONG K, KIM D G, KO S O. Adsorption characteristics of effluent organic matter and natural organic matter by carbon based nanomaterials[J]. *KSCE Journal of Civil Engineering*, 2017, 21(1): 119-126.
- [7] SARMA S J, TAY J H, CHU A. Finding knowledge gaps in aerobic granulation technology[J]. *Trends in biotechnology*, 2017, 35(1): 66-78.
- [8] 赵彬, 丁雪松, 吴丹青, 等. 高负荷条件下好氧颗粒污泥同步脱氮除碳特性及微生物群落结构分析[J]. *环境工程学报*, 2020, 14(2): 295-304.
- [9] YI S, ZHUANG W, WU B, et al. Biodegradation of p-nitrophenol by aerobic granules in a sequencing batch reactor[J]. *Environmental Science & Technology*, 2006, 40(7): 2396-2401.
- [10] 杨淑芳, 张健君, 邹高龙, 等. 实际污水培养好氧颗粒污泥及其特性研究[J]. *环境科学*, 2014, 35(5): 1850-1856.
- [11] PRONK M, ABBAS B, AL-ZUHAIRY S H K, et al. Effect and behaviour of different substrates in relation to the formation of aerobic granular sludge[J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2015, 99(12): 5257-5268.
- [12] NANCHARAIH Y V, KIRAN KUMAR REDDY G. Aerobic granular sludge technology: mechanisms of granulation and biotechnological applications[J]. *Bioresource Technology*, 2018, 247: 1128-1143.
- [13] WANG J, WANG X, ZHAO Z, et al. Organics and nitrogen removal and sludge stability in aerobic granular sludge membrane bioreactor[J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2008, 79(4): 679-685.
- [14] FELZ S, AL-ZUHAIRY S, AARSTAD O A, et al. Extraction of structural extracellular polymeric substances from aerobic granular sludge[J]. *Jove-Journal of Visualized Experiments*, 2016(115).
- [15] FELZ S, VERMEULEN P, VAN LOOSDRECHT M, et al. Chemical characterization methods for the analysis of structural extracellular polymeric substances (EPS)[J]. *Water Research*, 2019, 157: 201-208.
- [16] VAN DER HOEK J P, DE FOUIJ H, STRUKER A. Wastewater as a resource: Strategies to recover resources from Amsterdam's wastewater[J]. *Resources Conservation and Recycling*, 2016, 113: 53-64.
- [17] VAN LEEUWEN K, DE VRIES E, KOOP S, et al. The energy & raw materials factory: Role and potential contribution to the circular economy of the netherlands[J]. *Environmental Management*, 2018, 61(5): 786-795.
- [18] LIN Y M, SHARMA P K, VAN Loosdrecht M C M. The chemical and mechanical differences between alginate-like exopolysaccharides isolated from aerobic flocculent sludge and aerobic granular sludge[J]. *Water Research*, 2013, 47(1): 57-65.
- [19] ZHANG B, LI W, GUO Y, et al. A sustainable strategy for effective regulation of aerobic granulation: Augmentation of the signaling molecule content by cultivating AHL-producing strains[J]. *Water Research*, 2020, 169: 115193.
- [20] GUO Y, ZHANG Z, SHI W, et al. Evolution of the sludge mineral composition enhances operation performance of the aerobic granular sludge reactor coupled with iron electrolysis[J]. *Journal of Cleaner Production*, 2021, 295: 126394.
- [21] DA COSTA N P A V, LIBARDI N, SCHAMBECK C M, et al. Impact of additive application on the establishment of fast and stable aerobic granulation[J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2020, 104(13): 5697-5709.
- [22] HAN R, WANG Z, LV J, et al. Multiple effects of humic components on microbially mediated iron redox processes and production of hydroxyl radicals[J]. *Environmental Science & Technology*, 2022, 56(22): 16419-16427.
- [23] 常笑丽, 何士龙, 刘浩. 好氧颗粒污泥快速培养的方法研究[J]. *环境工程*, 2015, 33(8): 27-31.
- [24] SHI X, NG K K, LI X, et al. Investigation of intertidal wetland sediment as a novel inoculation source for anaerobic saline wastewater treatment[J]. *Environmental Science & Technology*, 2015, 49(10): 6231-6239.
- [25] KÖGEL-KNABNER I, AMELUNG W, CAO Z, et al. Biogeochemistry of paddy soils[J]. *Geoderma*, 2010, 157(1): 1-14.
- [26] LIU Y, FANG H H P. Influences of extracellular polymeric substances (eps) on flocculation, settling, and dewatering of activated sludge[J]. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology*, 2003, 33(3): 237-273.
- [27] KISHIDA N, KIM J, TSUNEDA S, et al. Anaerobic/oxic/anoxic granular sludge process as an effective nutrient removal process utilizing denitrifying polyphosphate-accumulating organisms[J]. *Water Research*, 2006, 40(12): 2303-2310.
- [28] NOUHA K, KUMAR R S, BALASUBRAMANIAN S, et al. Critical review of EPS production, synthesis and composition for sludge flocculation[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2018, 66: 225-245.
- [29] MENG F, LIU D, PAN Y, et al. Enhanced amount and quality of alginate-like exopolysaccharides in aerobic granular sludge for the treatment of salty wastewater[J]. *BioResources*, 2019, 14(1): 139-165.
- [30] 王浩宇, 苏本生, 黄丹, 等. 好氧污泥颗粒化过程中 Zeta 电位与 EPS 的变化特性[J]. *环境科学*, 2012, 33(5): 1614-1620.
- [31] LI J, MA L, WEI S, et al. Aerobic granules dwelling vorticella and rotifers in an SBR fed with domestic wastewater[J]. *Separation and Purification Technology*, 2013, 110: 127-131.
- [32] FRANCA R, PINHEIRO H M, VAN LOOSDRECHT M, et al. Stability of aerobic granules during long-term bioreactor operation[J]. *Biotechnology Advances*, 2018, 36(1): 228-246.
- [33] TANG C J, ZHENG P, WANG C H, et al. Performance of high-loaded anammox UASB reactors containing granular sludge[J]. *Water Research*, 2011, 45(1): 135-144.
- [34] HE Q, ZHANG W, ZHANG S, et al. Enhanced nitrogen removal in an aerobic granular sequencing batch reactor performing simultaneous nitrification,

- endogenous denitrification and phosphorus removal with low superficial gas velocity[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2017, 326: 1223-1231.
- [35] HE Q, CHEN L, ZHANG S, et al. Simultaneous nitrification, denitrification and phosphorus removal in aerobic granular sequencing batch reactors with high aeration intensity: Impact of aeration time[J]. *Bioresource Technology*, 2018, 263: 214-222.
- [36] LIN Y, DE KREUK M, VAN LOOSDRECHT M C M, et al. Characterization of alginate-like exopolysaccharides isolated from aerobic granular sludge in pilot-plant[J]. *Water Research*, 2010, 44(11): 3355-3364.
- [37] SAM S B, DULEKGURGEN E. Characterization of exopolysaccharides from floccular and aerobic granular activated sludge as alginate-like-exoPS[J]. *Desalination and Water Treatment*, 2016, 57(6): 2534-2545.
- [38] LI J, HAO X D, GAN W, et al. Recovery of extracellular biopolymers from conventional activated sludge: Potential, characteristics and limitation[J]. *Water Research*, 2021, 205.
- [39] LI J, HAO X D, GAN W, et al. Controlling factors and involved mechanisms on forming alginate like extracellular polymers in flocculent sludge[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2022, 439.
- [40] MORENO-ANDRADE I, VALDEZ-VAZQUEZ I, LÓPEZ-RODRÍGUEZ A. Effect of transient pH variation on microbial activity and physical characteristics of aerobic granules treating 4-chlorophenol[J]. *Journal of Environmental Science and Health, Part A*, 2020, 55(7): 878-885.
- [41] JACHIMOWICZ P, CYDZIK-KWIATKOWSKA A, SZKLARZ P. Effect of aeration mode on microbial structure and efficiency of treatment of TSS-rich wastewater from meat processing[J]. *Applied Sciences*, 2020, 10(21): 7414.
- [42] WAN C, SHEN Y, CHEN S, et al. Microstructural strength deterioration of aerobic granule sludge under organic loading swap[J]. *Bioresource Technology*, 2016, 221: 671-676.
- [43] 江肖良. 双层填料 SBBR 深度处理二级出水净化机制研究[D]. 武汉: 武汉理工大学, 2020.
- [44] 车鉴, 徐牧, 阳桂菊, 等. 硅藻土固定化颗粒污泥对海水养殖废水除氨性能[J]. *环境工程学报*, 2014, 8(12): 5318-5322.
- [45] 郝晓地, 甘微, 李季, 等. 污泥 EPS 高值、高效提取与回收技术发展趋势[J]. *环境科学学报*, 2021, 41(6): 2063-2078.

(责任编辑: 曲娜)

Effect and mechanism of paddy soil-enhanced simultaneous decontamination and resource recovery by aerobic granular sludge

FENG Siqi¹, GUO Yuan^{1,*}, Quan Chenyan¹, LI Jiakel^{1,*}, ZHANG Bing², SHI Wenxin²

1. State Key Laboratory of Eco-hydraulics in Northwest Arid Region of China, Xi'an University of Technology, Xi'an 710048, China; 2. College of Environmental and Ecology, Chongqing University, Chongqing 400044, China

*Corresponding author, E-mail: guoyuan@xaut.edu.cn; xaut_ljk@163.com

Abstract Aerobic granular sludge (AGS) technology shows a great potential in simultaneous wastewater treatment and resource utilization, and how to enhance AGS technology is one of important research topics to promote its green development. Based on the excellent properties of the natural paddy soil which has the redox micro-environment and organic colloidal substances, it was proposed to introduce paddy soil into AGS system as a new inoculation source. Then the effects of adding paddy soil on the decontamination efficiency of the reactor, sludge granulation process, alginate-like exopolysaccharides (ALE) secretion, and microbial community structure were studied. The mechanism of simultaneous enhancement of AGS decontamination and reclamation through adding paddy soil was analyzed. The results indicated that when the inoculation ratio of paddy soil to activated sludge was 2:3, the start-up time of the reactor with paddy soil was about 30 days earlier than that of the control group. The SVI_{30} of mature granular sludge was about $76 \text{ mL} \cdot \text{g}^{-1}$, the MLSS was about $1.5 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$, the average particle size reached $653.8 \mu\text{m}$, and the ALE yield was $21.75 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1} \text{VSS}$. These characteristics were significantly better than those of the control group. In addition, the addition of paddy soil enriched the dominant bacteria *OLB8* (17.6%), *Thiothrix* (11.1%) and *Micavibrionales* (8.2%) in AGS, which contributed to the removal of total nitrogen from wastewater, and carbon capture as well as conversion to ALE. This study can provide method guidance for rapid start-up, stable operation and recovery of high value-added products of AGS system.

Keywords aerobic granular sludge; paddy soil; alginate-like exopolysaccharides; high value-added products