

DOI:10.11918/202306095

重力流膜生物反应器处理农村污水效能与机制

马子欣¹, 文敬博^{1,2}, 蒋林巧¹, 柯政¹, 罗娇赢³, 黄天寅⁴, 梁恒^{1,2}, 李圭白¹, 唐小斌^{1,2}

(1. 城市水资源与水环境国家重点实验室(哈尔滨工业大学), 哈尔滨 150090; 2. 哈尔滨工业大学 污泥安全处置与资源化技术国家工程研究中心, 哈尔滨 150090; 3. 黑龙江建筑职业技术学院, 哈尔滨 150025; 4. 城市生活污水资源化利用技术国家地方联合工程实验室(苏州科技大学), 苏州 215009)

摘要: 重力流膜生物反应器(GDMBR)具有低能耗、低维护和出水稳定的工艺特点,然而,目前关于利用 GDMBR 直接处理农村污水的相关研究较少,为此,探究 GDMBR 处理生活污水的通量变化规律、污染物去除效能以及不同膜孔径对其的影响。结果表明,GDMBR 处理生活污水时可在无反冲洗条件下长期稳定运行,稳定通量为 $1.3 \sim 1.5 \text{ L}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$ 。这是由于膜表面生物滤饼层内形成了疏松多孔结构,且膜孔内污染物含量极低。GDMBR 工艺可在较低污泥质量浓度的前提下实现对 COD 和 UV_{254} 的高效去除,去除率分别为 78% 和 85%,并有效保留污水中的氮源和磷源。此外,不同膜孔径对 GDMBR 工艺除污染效能的影响甚微,但微滤膜构成的 GDMBR 系统的稳定通量略高于超滤膜系统。

关键词: 重力流膜生物反应器;膜污染;生物滤饼层;膜孔径;农村污水处理

中图分类号: TU992.3 文献标志码: A 文章编号: 0367-6234(2024)06-0016-09

Performance and mechanism of gravity-driven membrane bioreactor for rural wastewater treatment

MA Zixin¹, WEN Jingbo^{1,2}, JIANG Linqiao¹, KE Zheng¹, LUO Jiaoying³, HUANG Tianyin⁴, LIANG Heng^{1,2}, LI Guibai¹, TANG Xiaobin^{1,2}

(1. State Key Laboratory of Urban Water Resource and Environment(Harbin Institute of Technology), Harbin 150090, China; 2. National Engineering Research Center for Safe Sludge Disposal and Resource Recovery, Harbin Institute of Technology, Harbin 150090, China; 3. Heilongjiang Institute of Construction Technology, Harbin 150025, China; 4. National & Local Joint Engineering Laboratory for Municipal Sewage Resource Utilization Technology(Suzhou University of Science and Technology), Suzhou 215009, China)

Abstract: Gravity-driven membrane bioreactor (GDMBR) confers the process characteristics of low energy consumption, low maintenance and stable effluent. However, there is limited research on the direct treatment of rural domestic wastewater. This study investigates the pattern of flux variation and removal efficiency of pollutants using GDMBR process to treat domestic wastewater, as well as the influence of different membrane pore sizes on the treatment of domestic wastewater using GDMBR. The results indicate that the membrane flux of GDMBR process can be maintained at a steady state without any cleaning procedures during the long-term filtration in treating the domestic wastewater, with a steady flux of $1.3 \sim 1.5 \text{ L}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$. This is attributed to the formation of loose and porous structure within the bio-cake layer attached on the membrane surface, resulting in extremely low concentration of pollutants deposited within the membrane pores. With relatively low sludge concentration, the GDMBR process achieves high removal efficiency of COD and UV_{254} . The removal rates of 78% and 85%, respectively, while effectively retaining the nitrogen and phosphorus sources in the wastewater. Furthermore, different membrane pore sizes exhibits minimal effects on the removal efficiency of GDMBR process. However, the steady fluxes of the GDMBR system configured with microfiltration membranes are slightly higher than the GDMBR system integrated with ultrafiltration membranes.

Keywords: gravity-driven membrane bioreactor (GDMBR); membrane fouling; bio-cake layer; membrane pore sizes; rural wastewater treatment

收稿日期: 2023-06-30; 录用日期: 2023-08-18; 网络首发日期: 2023-11-22

网络首发地址: <https://link.cnki.net/urlid/23.1235.T.20231121.1019.002>

基金项目: 黑龙江省自然科学基金(YQ2022E034); 城市生活污水资源化利用技术国家地方联合工程实验室(苏州科技大学)开放课题(2019KF05)

作者简介: 马子欣(2000—),女,硕士研究生;唐小斌(1986—),男,教授,博士生导师

通信作者: 唐小斌, tang5462@163.com

当前,中国农村污水治理进度缓慢,大部分农村生活污水未经处理直接排放;部分地区虽建立了农村污水处理设施,但大多存在处理效能低下、稳定性差、运行维护成本高、能耗大等不足,且过分强调氮、磷等污染物的去除,而忽略了对农村现有灌溉条件的考虑,造成氮、磷资源的浪费^[1]。

膜生物反应器技术(MBR)有机地耦合了活性污泥法和膜过滤双重功能,可同步将水中的悬浮物、颗粒物、病原微生物、溶解性有机物等污染物高效去除,且具有占地面积小、出水效果好、长期运行稳定等优点,在水处理领域广泛应用^[2-3]。然而,常规的MBR工艺在应用过程中存在膜污染严重、需要频繁反冲洗、运维操作复杂等问题,制约了MBR工艺的推广应用^[4]。如何通过工艺创新,简化MBR工艺的操作运维方式,控制膜污染和降低运行成本,是“双碳”背景下MBR技术的重要发展方向。瑞士联邦水科技研究所(Eawag)率先提出了重力流超滤技术(简称GDM),即超滤工艺在较低的工作水头(6.5 kPa)下连续运行,不采用任何的水力反冲洗、错流或化学清洗控制膜污染,长期运行过程中GDM的膜通量可维持稳定状态,稳定通量为 $4 \sim 7 \text{ L}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$ ^[5]。这是由于在生物作用下,GDM膜表面生物滤饼层形成了疏松多孔结构,极大地缓解了其引起的膜污染。部分研究指出,GDM膜表面的生物作用(如捕食作用、分解作用等)越强,生物滤饼层越疏松、粗糙、多孔,稳定通量越高^[6-7]。此外,GDM膜表面生物滤饼层的形成有助于强化对水中溶解性污染物的去除,提升工艺的出水水质。目前,关于GDM技术的研究主要集中在地表水(江水、湖水、河水等)^[8]、地下水^[9]、雨水^[10]、建筑灰水^[11]和海水预处理^[12]等方面,尚无关于利用GDM工艺直接处理生活污水的相关报道。

基于上述关于MBR和GDM技术的研究现状,创新性地构建了重力流膜生物反应器技术(GDMBR),即在低压重力(5 kPa)驱动条件下,构建无清洗型膜生物反应器,用于农村生活污水处理。考察了GDMBR工艺长期运行的膜通量变化规律及稳定性,探究了其对于有机物(如COD、 UV_{254} 、荧光性污染物等)的去除以及氮、磷全程保留情况;此外,考察了不同膜孔径($0.45 \mu\text{m}$ 、 $0.22 \mu\text{m}$ 及 $1.5 \times 10^5 \text{ u}$)对GDMBR工艺长期运行的通量稳定性和除污染效能的影响规律。

1 实验

1.1 实验装置及操作方法

共设置了3个GDMBR实验组,分别采用孔径为 0.45 、 $0.22 \mu\text{m}$ 的微滤膜以及截留分子质量为

$1.5 \times 10^5 \text{ u}$ 的超滤膜,对应于GDMBR-0.45、GDMBR-0.22和GDMBR-U,均采用浸没式过滤方式,实验装置如图1所示。GDMBR池由有机玻璃制成,尺寸为 $420 \text{ mm} \times 15 \text{ mm} \times 62 \text{ mm}$,采用重力驱动的方式进行过滤(通过调节膜池和膜出水口的高度来控制),驱动压力为5 kPa。原水自进水箱进入GDMBR池中,在重力作用下进行过滤处理,出水进入集水瓶中。每组GDMBR装置内设有3个平板膜组件,膜组件底部采用微孔曝气盘曝气,曝气量为 $100 \text{ mL}/\text{min}$,反应器中溶解氧维持在 $5.0 \text{ mg}/\text{L}$ 左右。

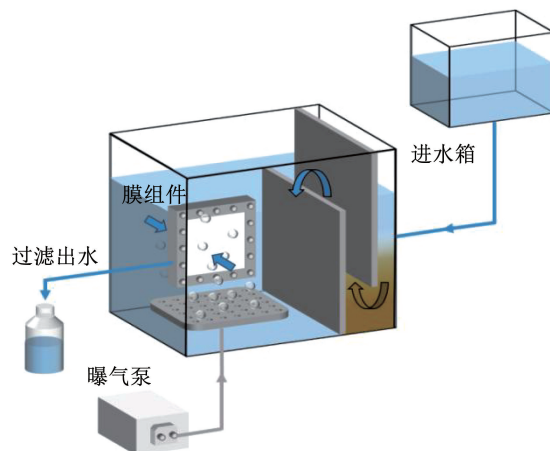


图1 GDMBR实验装置

Fig. 1 GDMBR experimental device

1.2 实验用水水质

实验采用人工配水模拟生活污水,配水水质为:COD(150 ± 10) mg/L ;氨氮(30 ± 5) mg/L ;TP(4 ± 0.5) mg/L 。详细配水成分包括常量物质与微量物质两类^[13],其中,常量物质中葡萄糖为 $125 \text{ mg}/\text{L}$, CH_3COONa 为 $25 \text{ mg}/\text{L}$,腐殖酸为 $2 \text{ mg}/\text{L}$, NH_4Cl 为 $115 \text{ mg}/\text{L}$, KH_2PO_4 为 $18 \text{ mg}/\text{L}$, CaCl_2 为 $55.5 \text{ mg}/\text{L}$;微量物质中 $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 为 $450 \mu\text{g}/\text{L}$, $\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ 为 $615 \mu\text{g}/\text{L}$, H_3BO_3 为 $45 \mu\text{g}/\text{L}$, $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ 为 $9 \mu\text{g}/\text{L}$,KI为 $54 \mu\text{g}/\text{L}$, $\text{MnCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 为 $36 \mu\text{g}/\text{L}$, $\text{Na}_2\text{MoO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 为 $18 \mu\text{g}/\text{L}$, $\text{ZnSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ 为 $36 \mu\text{g}/\text{L}$, $\text{CoCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 为 $45 \mu\text{g}/\text{L}$,EDTA-2Na为 $3000 \mu\text{g}/\text{L}$ 。此外,需采用 NaHCO_3 调节pH为 $7.0 \sim 7.5$ 。

1.3 实验用活性污泥

实验装置调节区接种污泥来自哈尔滨文昌污水处理厂二沉池,使用前进行间歇曝气处理(每天曝气 12 h +静置沉淀 12 h)以活化污泥,其间每天换一次水以补充污泥所需营养。驯化 7 d 后,将污泥接种至反应器内,反应器内污泥质量浓度为 $1700 \text{ mg}/\text{L}$ 。

1.4 实验用膜

采用的平板超滤膜(Microdyn-Nadir, Wiesbaden, Germany)材质为PES,截留分子质量为

1.5×10^5 u; 采用的同材质平板微滤膜(海盐新东方塑化科技有限公司, 嘉兴, 中国)的孔径分别为 0.45、0.22 μm 。每个 GDMBR 实验所用的滤膜有效过滤面积均为 0.027 9 m^2 。

1.5 生物滤饼层及膜孔内有机物分析

实验结束后, 分别提取生物滤饼层内的结合型胞外聚合物(EPS)、可溶性胞外聚合物(SMP)和沉积在膜孔内的胞外聚合物(In-EPS), 利用蒽酮-硫酸比色法和 BCA 蛋白浓度测定试剂盒, 通过紫外/可见分光光度法(T6, 普析光电科技有限公司, 中国)检测 EPS、SMP 和 In-EPS 中多糖和蛋白质的质量浓度。

1.6 生物滤饼层形貌表征

采用光学相干断层扫描仪(Model 930 nm Spectral Domain, Thorlabs GmbH, Germany)表征生物滤饼层的形貌特征。将膜组件固定于载物台上, 采用 10-20B 扫描模式(XZ 方向), 扫描面积为 1 mm $\times$ 1 mm。为保证结果真实可靠, 随机多次取点进行观测。

1.7 其他检测指标

UV_{254} 、 COD_{Cr} 、氨氮、硝态氮、亚硝态氮质量浓度采用分光光度法(T6, 普析光电科技有限公司, 中国); 荧光性有机物采用三维荧光分析法(F7000, Hitachi, Japan)检测; TP 采用电感耦合等离子体发射光谱仪(OPTIMA 8300, Waltham, USA)检测。

2 结果和讨论

2.1 通量稳定性及膜阻力特性分析

3 组 GDMBR 的膜通量和过滤阻力变化趋势如图 2 所示, 整体变化基本一致, 大致可分为 3 个阶段: 第 I 阶段(第 0 ~ 7 天), GDMBR-0.45、GDMBR-0.22、GDMBR-U 系统膜通量快速下降, 分别下降了 93.17%、93.16%、91.87%, 相应的膜过滤阻力也显著增加。这是由于 GDMBR 工艺采用无清洗过滤模式, 过滤过程中的污染物不断被截留在膜表面或沉积在膜孔中, 形成了滤饼层污染和膜孔堵塞污

染^[14]。相比 GDMBR-U, GDMBR-0.45 和 GDMBR-0.22 的膜孔径更大, 其过滤初期通量较大, 使得水中更多的污染物沉积在膜表面或膜孔中, 故其初期的通量下降更为迅速, 第 1 天时 GDMBR-0.45 和 GDMBR-0.22 的膜通量与 GDMBR-U 相差不大。

第 II 阶段(第 7 ~ 16 天), 随着运行时间增长, 膜表面滤饼层的形成可有效地阻隔污染物与滤膜直接接触, 故各组 GDMBR 的膜通量下降速率减缓。在此阶段, GDMBR-0.45、GDMBR-0.22 和 GDMBR-U 的膜通量分别下降了 22.16%、22.81% 和 30.73%, 远小于第 I 阶段膜的通量下降量。该阶段运行阻力增加趋势也放缓且存在小幅度波动, 3 组膜过滤阻力分别增长了 7.32%、2.42% 和 19.22%。可以看出, 该阶段超滤膜组的过滤阻力较微滤膜组增长快。

第 III 阶段(第 16 ~ 21 天), GDMBR 膜表面的生物滤饼层不断成熟并趋于稳定, 部分生物滤饼层在气体冲刷作用下开始脱落, 有助于膜通量上升和膜过滤阻力下降, 各组 GDMBR 膜通量及运行阻力都逐渐进入稳定状态(图 2(b))。GDMBR-0.45、GDMBR-0.22 和 GDMBR-U 的稳定通量分别为 (1.462 ± 0.021) 、 (1.493 ± 0.017) 、 $(1.282 \pm 0.009) \text{ L}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$, 其稳定渗透性分别为 0.29、0.30、0.26 $\text{L}/(\text{m}^2 \cdot \text{h} \cdot \text{kPa})$, 与传统膜生物反应器的渗透性(0.13 ~ 1.00 $\text{L}/(\text{m}^2 \cdot \text{h} \cdot \text{kPa})$)相当^[15], 表明 GDMBR 工艺在无反冲洗条件下仍具有较好的渗透性能。

此外, GDMBR-0.45 和 GDMBR-0.22 的稳定通量稍高, 是 GDMBR-U 的 1.14 倍和 1.16 倍。且图 2(c)显示, GDMBR-U 的稳定过滤膜阻力略高于 GDMBR-0.45 和 GDMBR-0.22, 表明膜孔径对 GDMBR 系统的稳定膜通量及膜过滤阻力有一定影响, 但显著低于传统过滤模式下膜孔径对超滤和微滤工艺膜通量的影响。

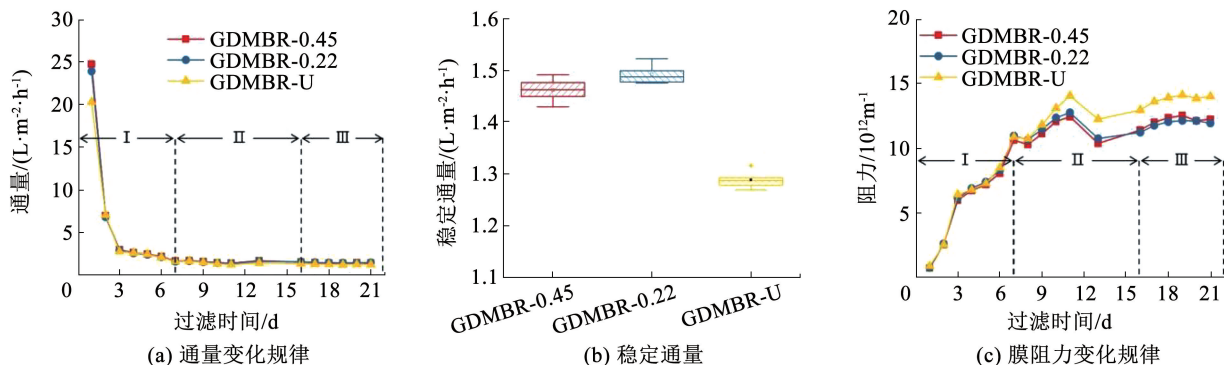


图 2 各 GDMBR 系统的通量及膜阻力变化规律

Fig. 2 Flux variation and filter membrane resistance variation of each GDMBR system

2.2 对有机物的去除效能

2.2.1 对 COD 和 UV₂₅₄^[16] 的去除效能

考察了 GDMBR 系统对 COD 和 UV₂₅₄ 的去除效能。如图 3(a) 所示,运行初期,GDMBR 系统就对水中的 COD 具有一定的去除作用,这一方面是水中的大分子/胶体型/颗粒型有机物可被滤膜高效截留,另一方面是 GDMBR 工艺采用的无反冲洗过滤模式使其膜表面快速形成了一层生物滤饼层,滤饼层内的微生物对水中的溶解性有机物进行分解利用,强化了 COD 的去除。运行初期(第 1~13 天),由于 GDMBR 膜表面的生物滤饼层尚未完全成熟,难以

实现有机物稳定去除,GDMBR 出水中 COD 波动较大(50~100 mg/L)。图 3(b)表明,实验后期(第 16~21 天),GDMBR 出水中的 COD 进一步下降,平均稳定在 30 mg/L,去除率为 80%。相比 COD 的去除,GDMBR 工艺对水中 UV₂₅₄ 的去除始终具有较好的效果,即使进水中 UV₂₅₄ 波动较大,出水 UV₂₅₄ 也几乎不发生变化且维持在较低水平,平均去除率为 85%。这表明 GDMBR 系统对水中 UV₂₅₄ 的去除与膜表面滤饼层的形成关联不大,UV₂₅₄ 主要来源于水中的大分子有机物(如腐殖质类大分子及一些芳香族化合物),这类物质极易被膜滤去除^[17]。

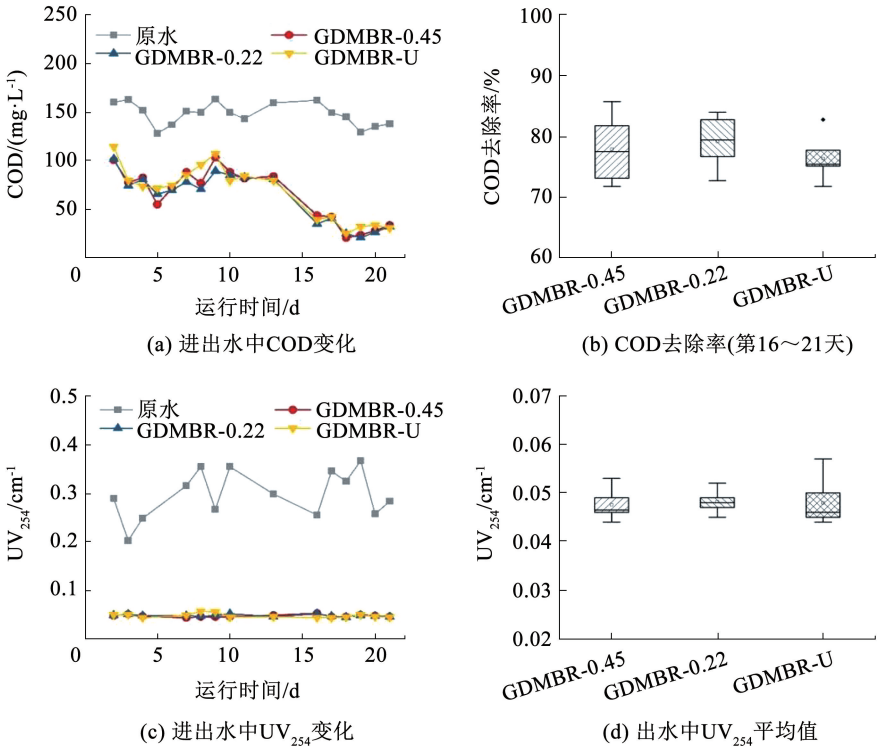


图3 COD及UV₂₅₄变化规律和去除效能

Fig.3 Variation and removal efficiency of COD and UV₂₅₄

此外,对比 GDMBR-0.45、GDMBR-0.22 和 GDMBR-U 出水中 COD 及 UV₂₅₄ 变化可知,在整个过滤过程中,3 组 GDMBR 系统出水 COD 变化趋势基本一致,且其出水中 UV₂₅₄ 分别为(0.047±0.002)、(0.048±0.002)、(0.048±0.004) cm⁻¹(图 3(d)),也差异不大,表明在 GDMBR 系统中,膜孔径对 COD 及 UV₂₅₄ 的去除效能无显著影响。

2.2.2 对荧光类有机污染物的去除效能

采用三维荧光光谱分析技术(3DEEM),对 GDMBR 系统出水中的荧光性污染物进行分析。原水的荧光峰主要分布于 4 个区域,1、2 区有两个明显的荧光峰,分别在 λ_{ex}/λ_{em}=280/340 nm 和 λ_{ex}/λ_{em}=225/340 nm 附近,主要为色氨酸类蛋白质

和络氨酸类蛋白质;而 3、4 区有两个荧光强度较弱的荧光带,分别位于 λ_{ex}/λ_{em}=(230~280)/(400~450) nm 和 λ_{ex}/λ_{em}=(320~350)/(360~430) nm,为类富里酸和类腐殖酸物质^[18]。通过对比 GDMBR 进出水中的荧光污染物种类和强度(图 4)发现,当 GDMBR 系统运行稳定后,出水中类蛋白物质的荧光强度变化高于类腐殖酸和类富里酸物质,表明膜表面生物滤饼层内蛋白质质量浓度居多;同时,GDMBR 出水中的荧光强度略高于进水,这是由于本实验采用配水,进水中的荧光类有机物含量相对较低,而 GDMBR 工艺长期运行过程中,膜表面滤饼层内附着滋生的微生物在其代谢过程中会不断分泌 EPS,具有较强的荧光特性,导致出水中的荧光有机

物含量增加。该现象也证明了滤饼层内的有机污染物并非完全是从水中截留的有机物,部分是由微生物

物分解被膜截留有机物而随之代谢产生的,二者的平衡是影响滤饼层有机组分的关键因素。

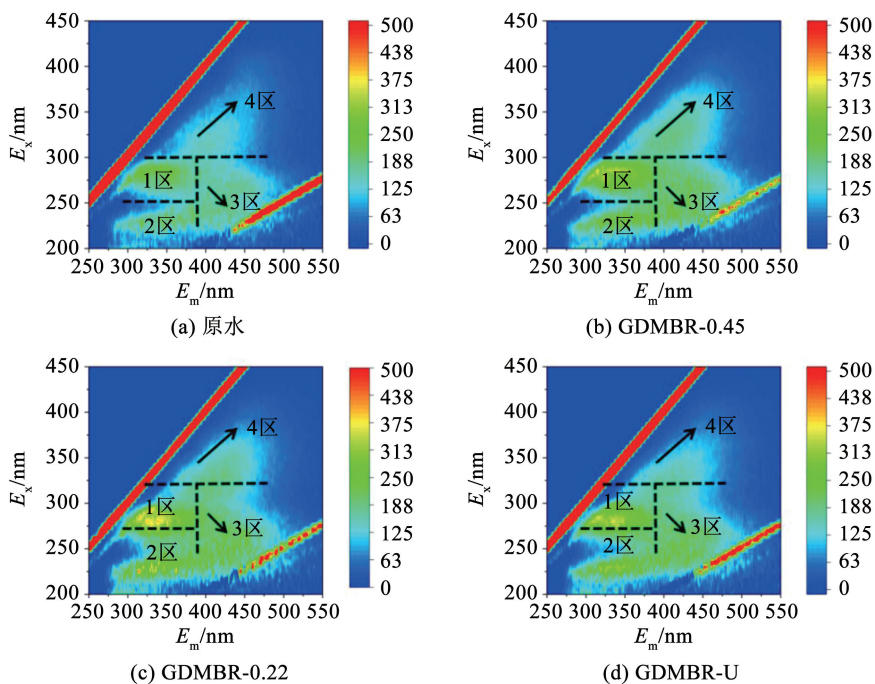


图 4 各 GDMBR 系统的进出水荧光分布 (流量稳定后)

Fig. 4 Fluorescence distribution of each GDMBR system

此外,对比 GDMBR-0.45、GDMBR-0.22 和 GDMBR-U 出水中 4 个特征区域的荧光强度可知,GDMBR-0.45 出水各区的荧光强度分别增加了 53.97%、5.81%、20.24% 和 33.65%,GDMBR-0.22 出水中各区的荧光强度分别增加了 69.04%、21.16%、22.02% 和 34.62%,而 GDMBR-U 出水中各区的荧光强度分别增加了 37.66%、7.88%、19.05% 和 22.12%,表明不同膜孔径对 GDMBR 系统出水中荧光类有机物含量具有一定影响。

2.3 对营养元素的保留

结合农村污水处理现状和灌溉需求,在对农村污水进行无害化处理过程中,尽量保留氮、磷元素符合污水资源化回用要求^[19-20]。

2.3.1 氮的转化与保留

为考察 GDMBR 系统中氮元素的迁移和转化规律,探究了 GDMBR 系统进出水中氨氮、亚硝酸盐和硝酸盐的质量浓度变化(图 5(a)~(c))。长期过滤过程中,3 个 GDMBR 系统中氨氮的流失率均较低(约 21%),出水中氨氮质量浓度略低于原水,亚硝酸盐质量浓度基本维持恒定,硝酸盐质量浓度略有上升。对比 3 组 GDMBR 系统发现,其出水中氨氮、亚硝酸盐、硝酸盐质量浓度变化规律基本一致,表明不同膜孔径对于 GDMBR 运行中三氮的转化基本没有影响。实验结束时(第 22 天),GDMBR 出水

中硝酸盐平均质量浓度仅为 2.3 mg/L,这是由于硝化细菌代时较长,在运行周期内 GDMBR 系统中硝化细菌含量较少,尚未形成优势菌种,氨氮硝化能力有限。同时,图 5(d) 显示,GDMBR-0.45、GDMBR-0.22 和 GDMBR-U 出水中的总氮平均质量浓度分别为 (25.31 ± 1.91) 、 (25.14 ± 2.06) 、 (25.24 ± 1.95) mg/L,基本相当,表明不同膜孔径对 GDMBR 系统中总氮的保留率影响不大,且相比进水总氮质量浓度 (31.84 ± 2.21) mg/L,各组 GDMBR 系统中氮保留率高达 80%。因此,GDMBR 工艺处理农村生活污水可实现污染物去除与氮元素保留相统一。

2.3.2 总磷的保留

由图 6 可知,进水总磷质量浓度为 (3.68 ± 0.40) mg/L, GDMBR-0.45、GDMBR-0.22 和 GDMBR-U 出水中总磷平均质量浓度分别为 (2.34 ± 0.39) 、 (2.34 ± 0.37) 、 (2.38 ± 0.35) mg/L,均有所降低,即产生了一定的总磷流失。这是由于 GDMBR 体系内接种的污泥中含有聚磷菌,其在好氧条件下将水中的磷摄取到体内,导致出水中磷元素质量浓度下降^[21]。在整个运行周期中,本实验并未采取任何排泥措施,但 GDMBR 系统中始终存在一定程度的总磷流失问题,这是由于本实验过程中每日取样进行监测,系统中聚磷菌随之排放,导致总磷流失。此外, GDMBR-0.45、GDMBR-0.22 和

GDMBR-U 对总磷的保留率分别为 $(63.78 \pm 8.44)\%$ 、 $(63.58 \pm 7.92)\%$ 和 $(64.78 \pm 6.49)\%$, 相差不大, 表明不同膜孔径对 GDMBR 系统中总磷的

保留没有明显影响。综上可知, GDMBR 体系能实现磷元素的有效保留, 符合农村污水资源化处理及农业灌溉需求。

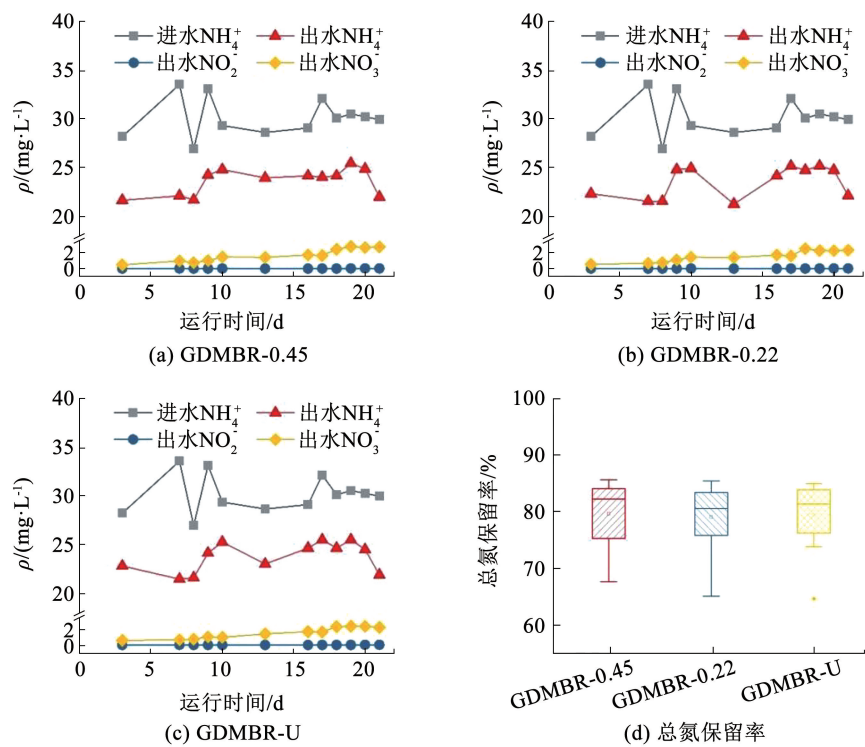


图 5 各 GDMBR 系统中氮的转化与保留情况
Fig.5 Nitrogen conversion and retention of each GDMBR system

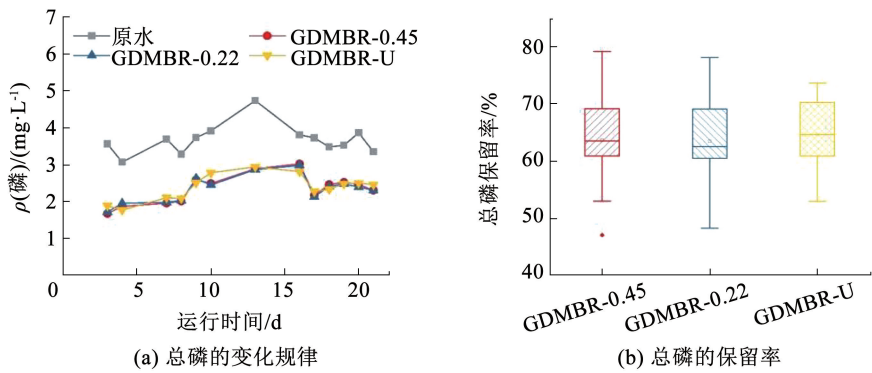


图 6 各 GDMBR 系统总磷的变化规律和保留情况
Fig.6 Phosphorus variation and retention of each GDMBR system

2.4 生物滤饼层特性分析

2.4.1 滤饼层形貌特征

利用光学相干断层扫描仪 (OCT) 探究了各 GDMBR 系统中生物滤饼层的微观结构。图 7(a) ~ (c) 表明, 3 组 GDMBR 系统的滤饼层均较为匀实平整, 凸起不多, 且生物滤饼层内部孔隙结构较少, 差异不大, 这也是导致 3 组 GDMBR 系统稳定通量 $(1.3 \sim 1.5 \text{ L}/(\text{m}^2 \cdot \text{h}))$ 基本一致的重要原因。图 7(d) ~ (f) 为各组 GDMBR 膜表面生物滤饼层的形貌特征, 发现 GDMBR-0.45、GDMBR-0.22 和

GDMBR-U 系统膜表面的生物滤饼层均较为平坦, 表面存在较小的“凸起”和“团簇”结构, 但各组间无明显差异。表明不同膜孔径对生物滤饼层的微观结构及表面形貌影响甚微, 而 GDMBR 系统的透水性能与其膜表面生物滤饼层的结构特性关系密切, 生物滤饼层越粗糙、孔隙结构越发达, 其透水性能越好, GDMBR 的稳定通量越高^[10]。图 2(c) 表明, 在整过实验过程中, 3 组 GDMBR 的膜过滤阻力变化趋势基本一致; 通量稳定后, 3 组 GDMBR 系统的膜过滤阻力 $(12 \times 10^{12} \sim 14 \times 10^{12} \text{ m}^{-1})$ 也相差不大, 这

与3组GDMBR膜表面生物滤饼层微观结构和表面形貌相似相对应。此外,部分研究表明,无机颗粒物在生物滤饼层的形成与稳定过程中起到骨架和桥接作用^[22-23],是促使生物滤饼层形成粗糙多孔结构的重要因素。而本实验主要采用实验室配水,进水中无机物含量较低,缺乏“支撑骨架”效应,且生物滤饼层较为黏稠,这也是导致各组GDMBR系统膜表面生物滤饼层结构较为匀实致密的重要原因。

2.4.2 生物滤饼层组分特性分析

胞外聚合物是微生物分泌的高分子聚合物,主要成分为多糖、蛋白质等,其具有黏性高、易在膜表面或膜孔中吸附沉积等特点,是导致膜通量下降及膜过滤阻力上升的重要因素^[24]。因此,在实验结束后,分别提取和分析膜表面生物滤饼层内的结合型胞外聚合物(EPS)、溶解型胞外聚合物(SMP)以及膜孔内胞外聚合物(In-EPS)。图8(a)表明,GDMBR-0.45、GDMBR-0.22和GDMBR-U3组系统内SMP中蛋白质质量浓度均高于EPS;3组系统中

生物滤饼层内蛋白质总质量浓度(SMP+EPS)分别为559.19、570.70、560.89 mg/m²,远高于In-EPS中的蛋白质质量浓度。表明在GDMBR长期过滤过程中,有机污染物主要是在生物滤饼层内沉积而非是膜孔中,这也是GDMBR工艺长期运行过程中膜通量及过滤阻力保持稳定状态的重要原因。由图8(b)可知,3组GDMBR系统中生物滤饼层内多糖的分布规律与蛋白质类似,都是SMP最高,EPS略低,In-EPS最低,但多糖总质量浓度低于蛋白质质量浓度,降低了约50%。相比GDMBR-0.45及GDMBR-U,GDMBR-0.22的In-EPS中多糖质量浓度相对较高,这是由于GDMBR-0.22的稳定通量较高(图2(b)),相同运行时间内透过水量更多,在更强、更多的水传输作用下,多糖类污染物与GDMBR-0.22膜孔的接触/沉积几率更大。此外,3组GDMBR系统生物滤饼层内的蛋白质和多糖质量浓度差异不大,表明不同膜孔径对生物滤饼层的生化组分特性影响甚微。

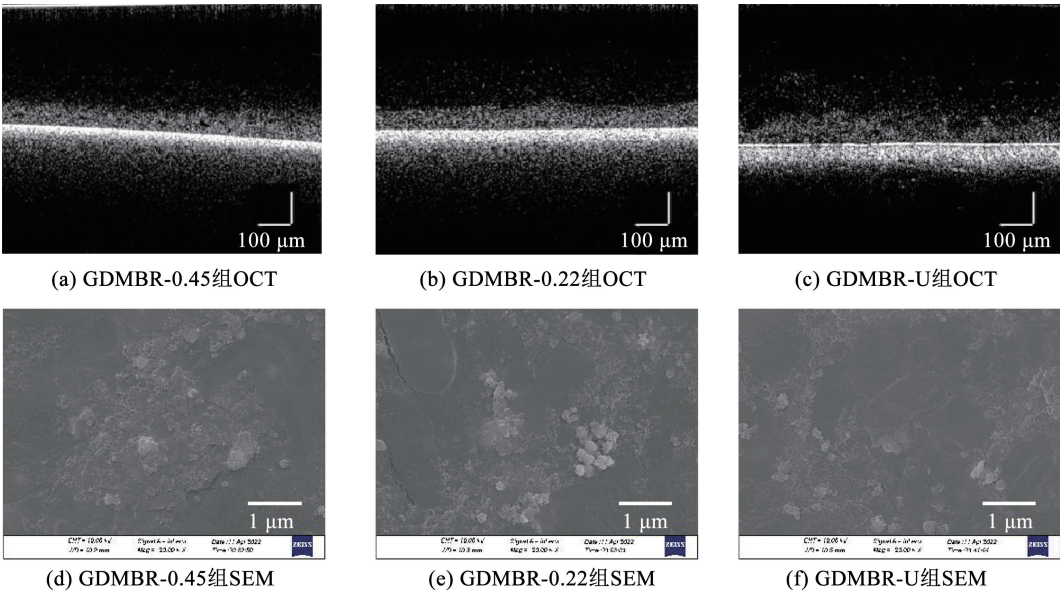


图 7 各 GDMBR 系统生物滤饼层微观结构 (OCT 图) 及形貌特征 (SEM 图, 2×10^4 倍)

Fig. 7 Microstructure (OCT) and morphological characterization (SEM, 2×10^4 times) of the filter cake layer for each GDMBR system

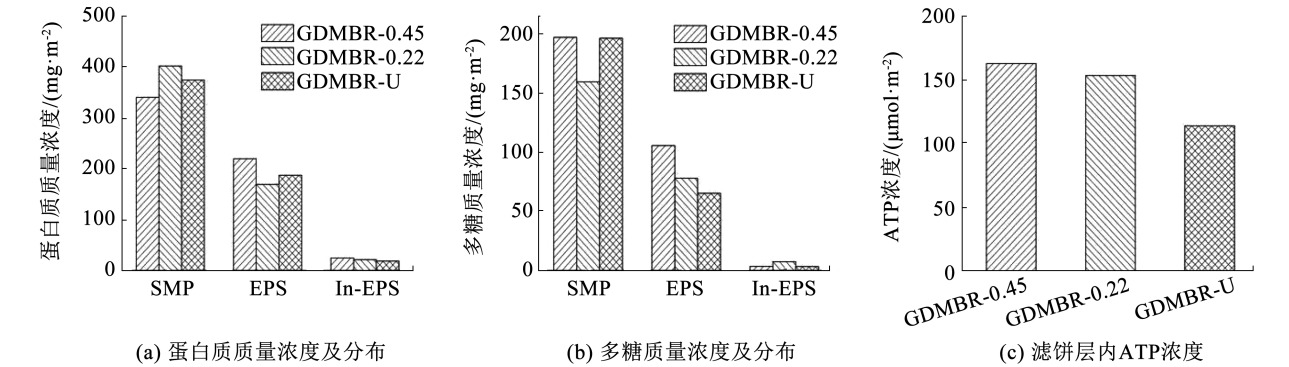


图 8 膜表面胞外聚合物组分及 ATP 分析

Fig. 8 Extracellular polymeric substance composition and ATP content

ATP 是细胞中能量的载体,常用来表征微生物的活性^[25],通过分析 ATP 浓度探究各 GDMBR 系统生物滤饼层的生物活性。图 8(c)中 GDMBR-0.45、GDMBR-0.22 和 GDMBR-U 生物滤饼层的 ATP 浓度分别为 162.28、152.95、113.871 $\mu\text{mol}/\text{m}^2$,其中, GDMBR-0.45 和 GDMBR-0.22 滤饼层内 ATP 浓度均高于 GDMBR-U,即前者滤饼层内的生物活性高于后者。表明 GDMBR-0.45 和 GDMBR-0.22 的滤饼层内检测出更多的生物活性成分,更有利于有机物降解和膜污染的缓解,这也是第Ⅱ阶段后期至运行稳定后,GDMBR-0.45 和 GDMBR-0.22 的膜过滤阻力始终高于 GDMBR-U 的另一重要原因(图 2(c))。

3 结 论

1) GDMBR 直接处理生活污水,可在无清洗条件下长期稳定运行,稳定通量为 1.3~1.5 $\text{L}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$, GDMBR-0.45 和 GDMBR-0.22 的稳定通量较 GDMBR-U 略有增加,涨幅分别为 14% 和 16%。在实际应用过程中,可根据不同的处理水质和水量要求,灵活选择采用以超滤膜或微滤膜为核心的 GDMBR 过滤系统。

2) GDMBR 工艺有机地耦合了生物滤饼层和膜滤双重功能,可有效强化对水中污染物的截留,其对 COD 和 UV_{254} 的去除率分别为 78% 和 85%;此外, GDMBR 工艺可实现在去除污染物的同时保留水中的氮、磷等营养元素,氮、磷保留率高达 80% 和 64%,可满足农业灌溉要求。

3) 各组 GDMBR 系统膜表面生物滤饼层均较为匀实平整,凸起较少,孔隙结构较少,EPS、SMP 和 In-EPS 质量浓度和分布相差不大,表明不同孔径对 GDMBR 膜表面生物滤饼层的微观结构和组分特性影响甚微;但生物滤饼层中 ATP 浓度与膜孔径及稳定通量水平呈正相关性,是影响 GDMBR 通量稳定性的关键因素。

4) GDMBR 工艺采用无清洗过滤模式,可在极低的重力驱动下实现对生活污水的净化处理,具有操作简单、低能耗、低维护、净水效果好等特点,可有效解决当前农村污水处理技术存在的能耗高、成本高、运维管理难等问题,具有很好的应用前景。

参考文献

[1]董丽伟, 张伟, 白璐, 等. 我国农村生活污水资源化利用现状及模式分析[J]. 环境工程技术学报, 2022, 12(6): 2089

DONG Liwei, ZHANG Wei, BAI Lu, et al. Analysis on current situation and model of resource utilization of rural sewage in China [J]. Journal of Environmental Engineering Technology, 2022, 12(6): 2089. DOI: 10.12153/j.issn.1674-991X.20210829

[2]KRAUME M, SCHEUMANN R, BABAN A, et al. Performance of a compact submerged membrane sequencing batch reactor (SM-SBR) for greywater treatment[J]. Desalination, 2010, 250(3): 1011. DOI: 10.1016/j.desal.2009.09.093

[3]NEOH C H, NOOR Z Z, MUTAMIM N S A, et al. Green technology in wastewater treatment technologies: integration of membrane bioreactor with various wastewater treatment systems[J]. Chemical Engineering Journal, 2016, 283: 582. DOI: 10.1016/j.cej.2015.07.060

[4]ASLAM M, CHARFI A, LESAGE G, et al. Membrane bioreactors for wastewater treatment: a review of mechanical cleaning by scouring agents to control membrane fouling [J]. Chemical Engineering Journal, 2017, 307: 897. DOI: 10.1016/j.cej.2016.08.144

[5]PETER-VARBANETS M, HAMMES F, VITAL M, et al. Stabilization of flux during dead-end ultra-low pressure ultrafiltration [J]. Water Research, 2010, 44(12): 3607. DOI: 10.1016/j.watres.2010.04.020

[6]KLEIN T, ZIHLMANN D, DERLON N, et al. Biological control of biofilms on membranes by metazoans [J]. Water Research, 2016, 88: 20. DOI: 10.1016/j.watres.2015.09.050

[7]唐小斌. 生物滤饼层/超滤耦合工艺净化水源水机理及优化研究[D]. 哈尔滨:哈尔滨工业大学, 2018

TANG Xiaobin. Integrated bio-cake layer and ultrafiltration process treating source water: mechanisms and optimization [D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 2018. DOI: 10.27061/d.cnki.ghgdu.2018.000229

[8]孙唯伟. 有机物对重力流超滤处理含铁锰地表水的影响机制及应对突发污染研究[D]. 哈尔滨:哈尔滨工业大学, 2021

SUN Weiyi. Mechanism of organics affecting treatment of surface water containing iron and manganese by gravity-driven membrane and its efficacy in sudden pollution [D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 2021. DOI:10.27061/d.cnki.ghgdu.2021.003343

[9]黄凯杰. 重力流超滤处理含铁含锰地下水研究[D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2020

HUANG Kaijie. Gravity-driven membrane system treating iron and manganese containing groundwater [D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 2020. DOI: 10.27061/d.cnki.ghgdu.2020.000259

[10]DING An, WANG Jinlong, LIN Dachao, et al. A low pressure gravity-driven membrane filtration (GDM) system for rainwater recycling: flux stabilization and removal performance [J]. Chemosphere, 2017, 172: 21. DOI: 10.1016/j.chemosphere.2016.12.111

[11]DING An, LIANG Heng, LI Guibai, et al. Impact of aeration shear stress on permeate flux and fouling layer properties in a low pressure membrane bioreactor for the treatment of grey water [J]. Journal of Membrane Science, 2016, 510: 382. DOI: 10.1016/j.memsci.2016.03.025

[12]LEE S, NÖTZLI P A, BURKHARDT M, et al. Effect of hydraulic

- retention time on performances of gravity-driven membrane (GDM) reactor for seawater pretreatment [J]. *Journal of Water Process Engineering*, 2023, 53: 103599. DOI: 10.1016/j.jpwe.2023.103599
- [13] DING An, WANG Jinlong, LIN Dachao, et al. In situ coagulation versus pre-coagulation for gravity-driven membrane bioreactor during decentralized sewage treatment: permeability stabilization, fouling layer formation and biological activity[J]. *Water Research*, 2017, 126: 197. DOI: 10.1016/j.watres.2017.09.027
- [14] AKHONDI E, WU Bing, SUN Shuyang, et al. Gravity-driven membrane filtration as pretreatment for seawater reverse osmosis: linking biofouling layer morphology with flux stabilization [J]. *Water Research*, 2015, 70: 158. DOI: 10.1016/j.watres.2014.12.001
- [15] MUTAMIM N S A, NOOR Z Z, HASSAN M A A, et al. Membrane bioreactor: applications and limitations in treating high strength industrial wastewater [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2013, 225: 109. DOI: 10.1016/j.cej.2013.02.131
- [16] 公维佳, 王嘉硕, 刘宪武, 等. GAC/GDM 组合工艺用于村镇饮用水净化机制及调控 [J]. *哈尔滨工业大学学报*, 2022, 54(8): 34
- GONG Weijia, WANG Jiashuo, LIU Xianwu, et al. Mechanisms and regulations of GAC/GDM hybrid process for rural drinking water treatment [J]. *Journal of Harbin Institute of Technology*, 2022, 54(8): 34. DOI: 10.11918/202110099
- [17] KULOVAARA M, CORIN N, BACKLUND P, et al. Impact of UV_{254} -radiation on aquatic humic substances [J]. *Chemosphere*, 1996, 33(5): 783. DOI: 10.1016/0045-6535(96)00233-0
- [18] CHEN Wen, WESTERHOFF P, LEENHEER J A, et al. Fluorescence excitation-emission matrix regional integration to quantify spectra for dissolved organic matter [J]. *Environmental Science & Technology*, 2003, 37(24): 5701. DOI: 10.1021/es034354c
- [19] YAAKOB M A, MOHAMED R, AL-GHEETHI A, et al. Influence of nitrogen and phosphorus on microalgal growth, biomass, lipid, and fatty acid production: an overview [J]. *Cells*, 2021, 10(2): 393. DOI: 10.3390/cells10020393
- [20] KELLY P T, HE Z. Nutrients removal and recovery in bioelectrochemical systems: a review [J]. *Bioresource Technology*, 2014, 153: 351. DOI: 10.1016/j.biortech.2013.12.046
- [21] SUN Haohao, WU Qiang, YU Ping, et al. Denitrification using excess activated sludge as carbon source: performance and the microbial community dynamics [J]. *Bioresource Technology*, 2017, 238: 624. DOI: 10.1016/j.biortech.2017.04.105
- [22] CHOMIAK A, SINNET B, DERLON N, et al. Inorganic particles increase biofilm heterogeneity and enhance permeate flux [J]. *Water Research*, 2014, 64: 177. DOI: 10.1016/j.watres.2014.06.045
- [23] TANG Xiaobin, PRONK W, DING An, et al. Coupling GAC to ultra-low-pressure filtration to modify the biofouling layer and bio-community: flux enhancement and water quality improvement [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2018, 333: 289. DOI: 10.1016/j.cej.2017.09.111
- [24] MENG Fangang, ZHANG Shaoqing, OH Y, et al. Fouling in membrane bioreactors: an updated review [J]. *Water Research*, 2017, 114: 151. DOI: 10.1016/j.watres.2017.02.006
- [25] VELTEN S, HAMMES F, BOLLER M, et al. Rapid and direct estimation of active biomass on granular activated carbon through adenosine tri-phosphate (ATP) determination [J]. *Water Research*, 2007, 41(9): 1973. DOI: 10.1016/j.watres.2007.01.021

(编辑 刘 彤)