

DOI: 10.11918/j.issn.0367-6234.201606038

碳源对反硝化脱硫工艺碳氮硫同步脱除效果的影响

许健¹, 王天保¹, 张秀霞¹, 刘春爽¹, 王爱杰²

(1. 中国石油大学(华东)化学工程学院, 山东 青岛 266580; 2. 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)

摘要: 针对碳源对反硝化脱硫工艺运行效能影响不明问题, 实验采用 UASB 反应器, 考查两种不同碳源(乙酸钠和苯酚)条件下反硝化脱硫工艺碳氮硫去除效果及单质硫累积率, 在此基础上, 通过批次试验进一步探究碳氮硫降解及转化规律。结果表明: 乙酸钠为碳源, HRT 为 2.5~10 h, $\text{NO}_3^- - \text{N}$, S^{2-} 和 $\text{Ac}^- - \text{C}$ 去除率分别保持在 93%、90% 和 99% 以上, 单质硫累积率稳定在 41% 以上; 而苯酚为碳源, HRT 为 10 h, $\text{NO}_3^- - \text{N}$, S^{2-} 和 $\text{C}_6\text{H}_5\text{O}^- - \text{C}$ 去除率分别达 67%、85% 和 50%, 但硫化物均转化为硫酸盐, 无单质硫累积。批次试验表明, 乙酸钠为碳源时, S^{2-} 氧化速率($q_{\text{S}^{2-}}$) > 乙酸盐氧化速率(q_{Acetate}) > S^0 的氧化速率(q_{S^0}); 而苯酚为碳源时, S^{2-} 氧化速率($q_{\text{S}^{2-}}$) > S^0 的氧化速率(q_{S^0}) > 苯酚氧化速率(q_{Phenol}), 从而使得硫化物的氧化产物有所差异。

关键词: 反硝化脱硫; 碳源; 单质硫; 氧化速率

中图分类号: X52

文献标志码: A

文章编号: 0367-6234(2017)08-0037-05

Effect of carbon resource on the operational performance of denitrifying sulfide removal process

XU Jian¹, WANG Tianbao¹, ZHANG Xiuxia¹, LIU Chunshuang¹, WANG Aijie²

(1. College of Chemical Engineering, China University of Petroleum, Qingdao 266580, Shandong, China; 2. State Key Laboratory of Urban Water Resource and Environment (Harbin Institute of Technology), Harbin 150090, China)

Abstract: In order to study the effect of carbon resources on the operational performance of denitrifying sulfide removal process, the removal efficiency of sulfide, nitrate and organic carbon was investigated in UASB reactor, using sodium acetate and phenol as the carbon resources respectively. Meanwhile batch cultivation experiment was applied to study the degradation and conversion of carbon, nitrate and sulfide. The results showed that the removal efficiency of $\text{NO}_3^- - \text{N}$, S^{2-} and $\text{Ac}^- - \text{C}$ would reach 93%, 90% and 99% under a 2.5–10 h HRT, respectively, using sodium acetate as carbon source. Under such condition the accumulation rate of elemental sulfur remained stable at about 41%. For a comparison, the removal efficiency of $\text{NO}_3^- - \text{N}$, S^{2-} and $\text{C}_6\text{H}_5\text{O}^- - \text{C}$ was 67%, 85% and 50% respectively using phenol as carbon resource (10 h HRT), however the sulfide was converted to sulfate completely and no elemental sulfur accumulated. The results of batch cultivation experiment showed that the oxidation rates of S^{2-} , acetates and S^0 displayed in such order: $q_{\text{S}^{2-}} > q_{\text{Acetate}} > q_{\text{S}^0}$ when the sodium acetate was used as carbon resource; however, the oxidation rates of S^{2-} , phenol and S^0 using the phenol as carbon resource distributed in the trend of $q_{\text{S}^{2-}} > q_{\text{S}^0} > q_{\text{Phenol}}$.

Keywords: denitrifying sulfide removal; carbon resource; elemental sulfur; oxidation rate

近年来, 由于石油炼制、农药、化工等行业的迅速发展, 导致每年产生大量的含硫含氮有机废水^[1]。其中, 石油行业产生的废水中所含有机物多为酚类化合物, 由于其具有毒性、致癌性和难降解性等特点^[2], 导致此类废水的处理更加棘手, 对周围环境和人体健康均造成很大的危害^[3-5]。反硝化脱硫(denitrifying sulfide removal, DSR)工艺能够在自养、异养菌的协同作用下, 以废水中硝酸盐为电子受体,

硫化物、有机物为电子供体, 最终生成 N_2 、 CO_2 、 S^0 等, 实现废水中碳氮硫的同步去除^[6-10]。此工艺运行成本低、无二次污染, 且可回收单质硫, 在含硫含氮废水处理领域具有良好的应用前景^[11]。目前, 国内外关于反硝化脱硫工艺的研究大多以一种易降解的乙酸、葡萄糖等为碳源^[12-14], 尚未见不同碳源对反硝化脱硫工艺影响的报道, 使得该技术的应用受到一定限制。

为此, 针对碳源对反硝化同步脱硫工艺影响报道不足的现象, 构建 UASB 反应器, 考察两种不同碳源(乙酸钠和苯酚)对反硝化脱硫工艺碳氮硫去除效果及单质硫累积的影响, 在此基础上, 通过批次试验进一步探究碳氮硫降解及转化规律, 以期对含硫

收稿日期: 2016-06-12

基金项目: 国家自然科学基金(21307160); 山东省自然科学基金(ZR2013EEQ030); 中央高校科研业务费(16CX02040A)

作者简介: 许健(1992—), 男, 硕士研究生;

王爱杰(1972—), 女, 博士生导师, 长江学者特聘教授

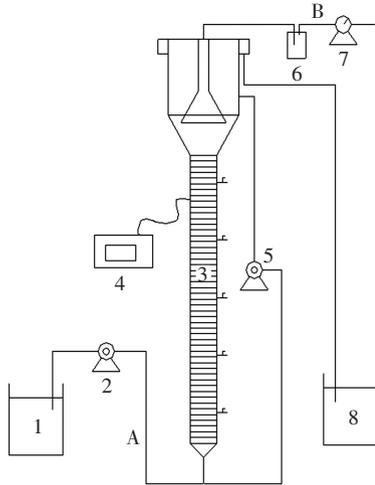
通信作者: 刘春爽, liuchunshuang723@126.com

含氮有机废水的处理提供理论和技术参考。

1 实验

1.1 实验仪器

连续流实验采用 UASB 反应器^[15] (如图 1), 内径 5 cm, 高 80 cm, 有效容积 1.57 L. 实验采用蠕动泵从反应器底部进水, 出水部分回流, 回流比控制为 10 : 1, 反应器采用水浴加热, 温度控制在 $(30 \pm 1) ^\circ\text{C}$.



1—进水箱; 2—进水蠕动泵; 3—UASB 反应区; 4—温控计; 5—回流蠕动泵; 6—吸收瓶; 7—湿式气体流量计; 8—出水计量水箱; A—进水管; B—气体收集器

图 1 UASB 反应器示意

Fig.1 Schematic diagram of upflow anaerobic sludge blanket reactor

表 1 各反应器进水基质

Tab.1 Influent substrate of each reactor

反应器	阶段	HRT/ h	$\rho(\text{S}^{2-})/(\text{mg} \cdot \text{L}^{-1})$	$\rho(\text{NO}_3^- - \text{N})/(\text{mg} \cdot \text{L}^{-1})$	$\rho(\text{C})/(\text{mg} \cdot \text{L}^{-1})$	$\rho(\text{NaHCO}_3)/(\text{mg} \cdot \text{L}^{-1})$	$\rho(\text{K}_2\text{HPO}_4)/(\text{mg} \cdot \text{L}^{-1})$
#1	I	10	200	87.5	77.5	1 500	110
	II	5	200	87.5	77.5	1 500	110
	III	2.5	200	87.5	77.5	1 500	110
#2	I	10	100	150	75	1 500	110
	II	10	200	300	150	1 500	110
	III	10	200	100	150	1 500	110

1.4 分析方法

水样检测前需经 $0.45 \mu\text{m}$ 滤膜过滤, 以防其他物质产生干扰. 采用紫外分光光度法 (HJ/T 346—2007) 测定 $\text{NO}_3^- - \text{N}$; 乙二胺分光光度法 (GB 7493—87) 测定 $\text{NO}_2^- - \text{N}$; 铬酸钡分光光度法 (HJ/T 342—2007) 测定 SO_4^{2-} ; 亚甲基蓝分光光度法 (GB/T 16489—1996) 测定 S^{2-} ; 4-氨基安替比林分光光度法 (HJ 503—2009) 测定苯酚; 离子色谱法测定 Ac^- ; 采用硫平衡推算法计算单质硫产率^[16]; 标准重量法测定 MLSS 和 MLVSS; 采用高通量宏基因组学技术分析微生物群落; PHS-25 型 pH 计直接测定 pH.

1.2 实验材料

接种污泥取自中海油 (青岛) 重质油加工工程技术研究中心污水处理工艺曝气池, 静置后去掉上清液. 污泥初始 MLSS 为 $11.1 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$, MLVSS 为 $4.9 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$, 接种量为 1 L, 混合污泥投入密闭的反应器后静置 24 h.

1.3 实验方法

1.3.1 反硝化脱硫工艺的运行

实验同时启动两个 UASB 反应器 #1 和 #2 (其中 #1 以乙酸钠为碳源, #2 以苯酚为碳源), 均进行连续流实验. 试验采用人工配水方式, 各反应器进水溶液基质及指标控制见表 1. 其中进水中的硫化物和硝酸盐分别通过投加化学试剂 $\text{Na}_2\text{S} \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ 和 KNO_3 提供, NaHCO_3 和 K_2HPO_4 分别作为无机碳源和磷源. 试验过程中控制反应器温度为 $(30 \pm 1) ^\circ\text{C}$, 模拟废水 pH 为 7.5 ± 0.2 .

1.3.2 静态批次试验

从 1.3.1 运行稳定后的 #1 和 #2 连续流实验的反应器中各取一定量的污泥, 经沉淀静止后, 将上层液体倒掉, 再将污泥用清水多次冲洗后备用. 实验分为 A、B 两组, 均在 120 mL 厌氧瓶中进行. A 组注入 #1 反应器污泥 20 mL, #1 进水基质 80 mL; B 组注入 #2 污泥 20 mL, #2 阶段 I 进水基质 80 mL, 并调节各瓶 pH 至 7.5 左右, 同时充入氮气 5 min 以保持厌氧环境, 随后恒温振荡器中进行培养, 控制转速 100 r/min , 温度为 $30 ^\circ\text{C}$. 实验全程采用针管定时取水, 水样取出后立即测试, 最大程度地避免与氧接触.

2 结果与讨论

2.1 乙酸钠条件下反硝化脱硫工艺运行效能

以乙酸钠为碳源时, #1 反应器在运行过程 (硫氮比为 5 : 2) 中 S^{2-} 、 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 、 $\text{Ac}^- - \text{C}$ 变化及其转化规律如图 2 所示. 可以看出, 在第 I 阶段 (HRT 为 10 h) #1 反应器刚启动时, $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 、 S^{2-} 和 $\text{Ac}^- - \text{C}$ 的去除率便达到 91%、94% 和 77%, 说明接种污泥对进水基质有良好的适应性, 但此时 S^0 积累率仅为 25%. 连续运行 11 d 后, 反应器中有少量白色固体出现, $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 、 S^{2-} 和 $\text{Ac}^- - \text{C}$ 去除率分别达到 97%、99% 和 100%, S^0 积累率稳定在

45%左右,反应器 N、S、C 的去除效能达 203.7、475.2 和 186 g/(m³·d)。此时污泥 MLVSS 为 2.1 g·L⁻¹, SVI 值为 160 mL/g。通过高通量测序得出反应器中主要的异养反硝化菌属为 *Thauera*、*Thermomonas* 和 *Arenimonas*, 分别占 41.24%、26.42% 和 10.24%, 自养反硝化菌属为 *Thiobacillus*, 占 3.24%。出水 NO₂⁻-N 质量浓度整体较低, 保持在 2 mg/L 以下, 在第 4 天出现最高值 10 mg/L, 是因为 NO₃⁻-N 被快速还原成中间产物 NO₂⁻-N, 但 NO₂⁻-N 的还原速率提升稍有滞后, 导致出水有少量 NO₂⁻-N 积累。

92% 和 90%, 连续运行 15 d 后, NO₃⁻-N、S²⁻ 和 Ac⁻-C 去除率分别稳定在 98%、95% 和 98% 左右, S⁰ 积累率约为 41%, 此阶段反应器 N、S、C 的去除效能可达 411.6、912 和 364.56 g/(m³·d)。污泥质量浓度增高, 同时有明显的颗粒污泥生成, 测得污泥 MLVSS 为 2.6 g·L⁻¹, SVI 值为 100 mL/g。异养反硝化菌属 *Thauera*、*Thermomonas* 和 *Arenimonas* 数量均略微降低, 分别降至 39.24%、22.50% 和 9.32%, 自养反硝化菌属 *Thiobacillus* 数量变化不大, 占 2.35%。

第 III 阶段 (HRT 降至 2.5 h), NO₃⁻-N、S²⁻ 和 Ac⁻-C 的出水质量浓度都出现了先增高后降低的现象, 稳定后 NO₃⁻-N、S²⁻ 和 Ac⁻-C 去除率分别达 93%、90% 和 99%, 此时反应器 N、S、C 的去除效能为 781.2、1 728 和 736.56 g/(m³·d)。污泥质量浓度和沉降性均显著增加, 有大量的颗粒污泥产生并沉降在反应器底部, 此时测得污泥 MLVSS 为 3.2 g·L⁻¹, SVI 值为 60 mL/g。在此阶段, 异养菌属 *Thauera*、*Thermomonas*、*Arenimonas* 数量继续下降, 分别降至 30.65%、7.75% 和 9.58%, 同时 *SB-1_norank* 异养反硝化菌属出现, 占 9.03%, 自养反硝化菌属 *Thiobacillus* 数量略微上升, 达 3.10%。S⁰ 积累率增高至 65% 左右, 是因为水力负荷的增加使得微生物群落结构发生改变, 进而导致 S⁰→SO₄²⁻ 的氧化速率降低, 硫酸盐生成量减少, S⁰ 质量浓度增高。

2.2 苯酚条件下反硝化脱硫工艺运行效能

以苯酚为碳源时, #2 反应器在运行过程中 S²⁻、NO₃⁻-N、C₆H₅O⁻-C 变化及其转化规律如图 3 所示。可以看出, 第 I 阶段 (硫氮比为 2:3) #2 反应器刚启动时, NO₃⁻-N、S²⁻ 和 C₆H₅O⁻-C 的去除率分别达 82%、90% 和 83%, 此后三者的去除率均出现先下降后升高的现象, 说明接种污泥对以苯酚为碳源的进水基质产生了不适应性, 系统稳定后 NO₃⁻-N、S²⁻ 和 C₆H₅O⁻-C 去除率分别达 78%、97% 和 96%, 出水 NO₂⁻-N 质量浓度保持在 1 mg/L 以下, 反应器 N、S、C 的去除效能达 280.8、232.8 和 172.8 g/(m³·d)。污泥 MLVSS 值为 2.3 g·L⁻¹, SVI 值为 150 mL/g, 此阶段监测到的异养反硝化菌属有 *Bacillus*、*Thauera* 和 *Pseudomonas*, 分别占 0.24%、0.35% 和 0.12%, 自养反硝化菌属为 *Sulfurovum*, 占 0.34%。实验过程中硫化物全部转化为硫酸盐, 未出现 S⁰ 积累, 与乙酸钠为碳源时结果相差较大。

第 II 阶段 (进水碳氮硫基质同时倍增), NO₃⁻-N、S²⁻ 和 C₆H₅O⁻-C 的出水质量浓度均出现先增高后降低的现象, 随着微生物对进水基质逐渐适应, NO₃⁻-N、S²⁻ 的去除率也分别恢复至 73% 和 95%, 但 C₆H₅O⁻-C 去除率降低明显, 仅为 80%, 实

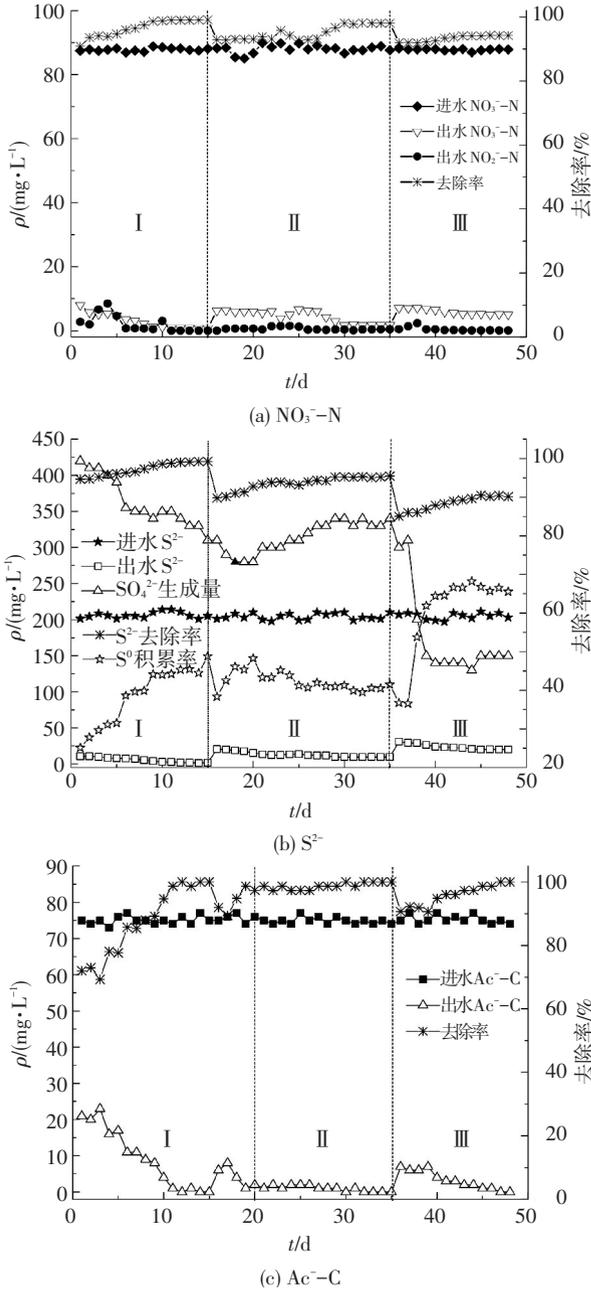


图 2 乙酸钠为碳源时 S²⁻、NO₃⁻-N、Ac⁻-C 的去除

Fig.2 Removal efficiency of NO₃⁻-N、S²⁻、Ac⁻-C using sodium acetate as carbon resource

进入第 II 阶段 (HRT 降至 5 h), 微生物开始显示出适应性, NO₃⁻-N 和 S²⁻ 去除率分别降低至

验过程仍没有 S^0 积累,此阶段反应器 N、S、C 的去除效能达 525.6、456 和 288 $g/(m^3 \cdot d)$. 污泥 SVI 值为 90 mL/g, 沉降性能显著增高, 部分污泥沉降在反应器底部, 污泥质量浓度也略微上升, MLVSS 值升至 2.9 $g \cdot L^{-1}$, 异养反硝化菌属 *Bacillus*、*Thauera* 和 *Pseudomonas* 数量均有所上升, 分别达 0.34%、0.92% 和 2.68%, 自养反硝化菌属 *Thiobacillus*、*Azoarcus* 出现, 分别占 0.32% 和 0.19%, 而 *Sulfurovum* 菌属则完全消失. 可以看出此阶段由于水力负荷的增加使得反硝化脱硫工艺中 $NO_3^- - N$ 、 S^{2-} 和 $C_6H_5O^- - C$ 的去除率下降, 因此, 为保持较高的碳氮硫去除率, 应适当增加水力停留时间 (HRT) 或降低进水基质质量浓度.

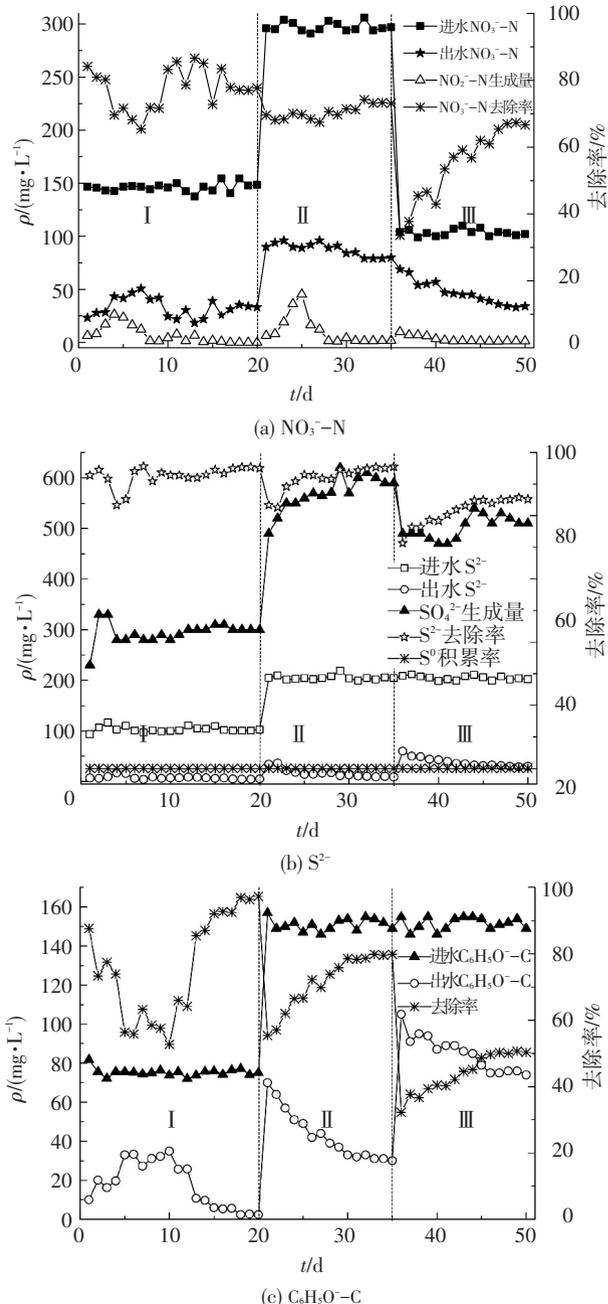


图 3 苯酚为碳源时 S^{2-} 、 $NO_3^- - N$ 、 $C_6H_5O^- - C$ 的去除

Fig.3 Removal efficiency of $NO_3^- - N$ 、 S^{2-} 、 $C_6H_5O^- - C$ using phenol as carbon source

进入第Ⅲ阶段(硫氮比为 2 : 1), 实验全程仍未出现 S^0 积累, $NO_3^- - N$ 、 S^{2-} 和 $C_6H_5O^- - C$ 去除率刚开始仅为 40%、70% 和 33%, $NO_2^- - N$ 质量浓度也出现瞬时积累现象. 11 d 后各指标基本稳定, $NO_3^- - N$ 、 S^{2-} 和 $C_6H_5O^- - C$ 去除率分别恢复至 67%、85% 和 50%, 反应器 N、S、C 的去除效能达 160.8、408 和 180 $g/(m^3 \cdot d)$. 此阶段污泥质量浓度继续增加, 沉降性能则变化不大, 测得污泥 MLVSS 值为 3.3 $g \cdot L^{-1}$, SVI 值为 88 mL/g. 异养反硝化菌属 *Thauera*、*Pseudomonas* 则分别下降至 0.32% 和 0.29%, 而 *Bacillus* 菌属数量则上升至 6.62%; 自养反硝化菌属 *Thiobacillus*、*Azoarcus* 分别占 0.76%、0.21%. 可以看出, 在硫氮比为 2 : 1 时, 碳氮硫去除率较硫氮比为 2 : 3 时均下降明显, 是因为在硫氮比为 2 : 1 时, $NO_3^- - N$ 质量浓度相对过低, 使得 DSR 工艺中电子受体不足, 进而导致硫化物和苯酚去除效果变差, 因此, 控制适当的硫氮比有利于保持较高的碳氮硫去除率.

2.3 批次试验中碳氮硫降解及转化规律

由图 4 可以看出, A 组中 $NO_3^- - N$ 、 S^{2-} 、 $Ac^- - C$ 质量浓度几乎同步降低, 分别在 25、7 和 15 h 后处于稳定状态. 其中 S^{2-} 去除速率最高; $NO_3^- - N$ 去除速率呈先快后慢的趋势, 在前 10 h 内即去除了 80%; 而 $SO_4^{2-} - S$ 质量浓度在前 15 h 上升较慢, 15~20 h 期间

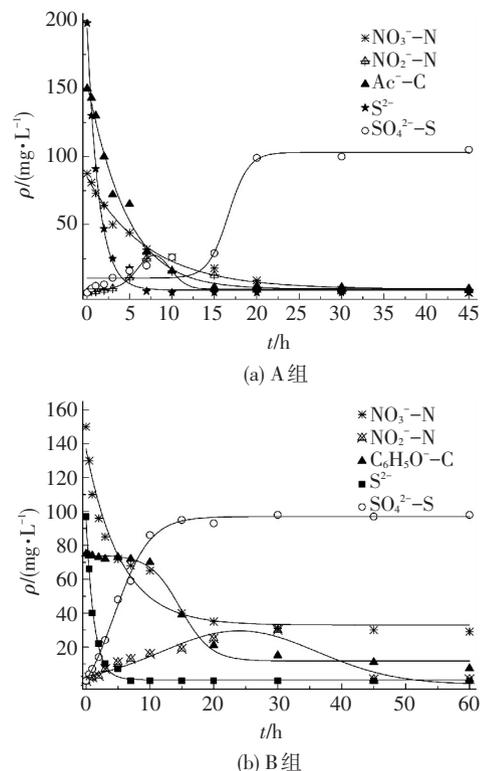


图 4 批次试验中 $NO_3^- - N$ 、 $NO_2^- - N$ 、C、 S^{2-} 、 $SO_4^{2-} - S$ 质量浓度变化

Fig.4 Concentrations of $NO_3^- - N$ 、 $NO_2^- - N$ 、C、 S^{2-} 、 $SO_4^{2-} - S$ in batch cultivation experiment

则迅速上升,20 h 后基本不再变化,和 NO_2^- -N 的消失几乎处于同步状态.此时 S^0 积累率约在 50% 左右.在 Ac^- -C 去除完毕时, S^0 开始迅速反应生成硫酸盐.因此,乙酸钠为碳源时, S^{2-} 、 Ac^- -C、 S^0 的氧化速率为: $q_{\text{S}^{2-}} > q_{\text{Acetate}} > q_{\text{S}^0}$. 当有 Ac^- -C 和 S^0 同时存在时, Ac^- -C 优先被氧化, S^0 就被积累下来.

B 组中 NO_3^- -N、 S^{2-} 反应趋势与 A 组基本相同, NO_2^- -N 质量浓度同样呈现先增高后降低的趋势,在 30 h 时达最高值 32 mg/L,45 h 后消失;但苯酚的去除出现了滞后期,在前 10 h 内几乎没变化,10 h 后才开始降低; SO_4^{2-} -S 质量浓度在前 10 h 内则迅速上升,10 h 后基本不再变化,此时 S^0 积累率为零.可以看出,在 S^0 完全转化为硫酸盐后,苯酚才开始被氧化.因此,苯酚为碳源时, S^{2-} 、苯酚、 S^0 的氧化速率为: $q_{\text{S}^{2-}} > q_{\text{S}^0} > q_{\text{Phenol}}$. 在 S^0 和苯酚同时存在时, S^0 先被氧化,苯酚的去除存在滞后期,从而使得硫化物的氧化产物不能够停留在单质硫阶段,全部转化为硫酸盐.

3 结 论

1) 乙酸钠为碳源时,HRT 为 2.5~10 h, NO_3^- -N、 S^{2-} 和 Ac^- -C 去除率保持在 93%、90% 和 99% 以上,单质硫积累率稳定在 41% 以上;而苯酚为碳源时,HRT 为 10 h, NO_3^- -N、 S^{2-} 和 $\text{C}_6\text{H}_5\text{O}^-$ -C 去除率分别达到 67%、85% 和 50%,但硫化物均转化为硫酸盐,出水无单质硫累积.由此可知,在乙酸钠或苯酚为碳源条件下,反硝化脱硫工艺均能实现碳氮硫的同步去除,但乙酸钠为碳源时,碳氮硫去除效率较高,且存在单质硫积累.

2) 乙酸钠为碳源时, S^{2-} 氧化速率($q_{\text{S}^{2-}}$)>乙酸盐氧化速率(q_{Acetate})> S^0 的氧化速率(q_{S^0}),导致乙酸盐和单质硫同时存在时,乙酸盐优先被氧化,单质硫则被保留下来;而苯酚为碳源时, S^{2-} 氧化速率($q_{\text{S}^{2-}}$)> S^0 的氧化速率(q_{S^0})>苯酚氧化速率(q_{Phenol}),使得苯酚和单质硫同时存在时,单质硫优先被氧化为硫酸盐,苯酚的氧化则滞后.因此,在乙酸钠和苯酚分别为碳源时,DSR 工艺中硫化物的氧化产物会有所差异.

参考文献

[1] OLMOS A, OLGUIN P, FAJARDO C, et al. Physicochemical characterization of spent caustic from the OXIMER process and sour waters from Mexican oil refineries [J]. *Energy & Fuels*, 2004, 18 (2): 302-304.

[2] EL-SHEEKH M M, GHARIEB M M, ABOU-EL-SOUOD G W.

Biodegradation of phenolic and polycyclic aromatic compounds by some algae and cyanobacteria [J]. *Journal of Bioremediation & Biodegradation*, 2012, 3(1):1-9.

[3] CHEN Chuan, REN Nanqi, WANG Aijie, et al. Simultaneous biological removal of sulfur, nitrogen and carbon using EGSB reactor [J]. *Applied Microbiology & Biotechnology*, 2008, 78(6): 1057-1063.

[4] SARTI A, POZZI E, CHINALIA F A, et al. Microbial processes and bacterial populations associated to anaerobic treatment of sulfate-rich wastewater [J]. *Process Biochemistry*, 2010, 45(2): 164-170.

[5] DAMIANOVIC M H R Z, FORESTI E. Dynamics of sulfidogenesis associated to methanogenesis in horizontal-flow anaerobic immobilized biomass reactor [J]. *Process Biochemistry*, 2009, 44(9): 1050-1054.

[6] CHEN Chuan, WANG Aijie, REN Nanqi, et al. Enhancing denitrifying sulfide removal with functional strains under micro-aerobic condition [J]. *Process Biochemistry*, 2010, 45(6): 1007-1010.

[7] CHEN Chuan, WANG Aijie, REN Nanqi, et al. Optimal process pattern for simultaneous sulfur, nitrogen and carbon removal [J]. *Water Science & Technology A Journal of the International Association on Water Pollution Research*, 2009, 136(4): 833-837.

[8] REYES-AVILA J, RAZO-FLORES E, GOMEZ J. Simultaneous biological removal of nitrogen, carbon and sulfur by denitrification [J]. *Water Research*, 2004, 38(14): 3313-3321.

[9] KIM E W, BAE J H. Alkalinity requirements and the possibility of simultaneous heterotrophic denitrification during sulfur-utilizing autotrophic denitrification [J]. *Water Science & Technology*, 2000, 42(3): 233-238.

[10] FURUMAI H, TAGUI H, FUJITA K. Effects of pH and alkalinity on sulfur-denitrification in a biological granular filter [J]. *Water Science & Technology*, 1996, 34(1): 355-362.

[11] WONG B T, LEE D J. Denitrifying sulfide removal and carbon methanogenesis in a mesophilic, methanogenic culture [J]. *Bioresource Technology*, 2011, 102(12): 6673-6679.

[12] FERN NDEZ-NAVA Y, MARA N E, SOONS J, et al. Denitrification of high nitrate concentration wastewater using alternative carbon sources [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2009, 173(1): 682-688.

[13] PENG Yongzhen, MA Yong, WANG Shuying. Denitrification potential enhancement by addition of external carbon sources in a pre-denitrification process [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2007, 19(3): 284-289.

[14] HAMLIN H J, MICHAELS J T, BEAULATON C M, et al. Comparing denitrification rates and carbon sources in commercial scale upflow denitrification biological filters in aquaculture [J]. *Aquacultural Engineering*, 2008, 38(2): 79-92.

[15] LIU Chunshuang, ZHAO Dongfeng, MA Wenjuan, et al. Denitrifying sulfide removal process on high-salinity wastewaters [J]. *Applied Microbiology & Biotechnology*, 2015, 99(15): 1-6.

[16] LEE D J, WONG B T. Denitrifying sulfide removal by enriched microbial consortium: Kinetic diagram [J]. *Bioresource Technology*, 2014, 164(7): 386-393.