

# 硫自养/异养反硝化协同处理含硝氮废水技术的现状与展望

周小国<sup>1</sup>, 郭小雪<sup>2</sup>, 郭春麟<sup>2</sup>, 王志勇<sup>3</sup>, 黄书生<sup>3</sup>, 于艳娟<sup>4</sup>

<sup>1</sup>长江生态环保集团有限公司, 湖北 武汉

<sup>2</sup>武汉大学资源与环境学院, 湖北 武汉

<sup>3</sup>武汉昂天环境技术有限公司, 湖北 武汉

<sup>4</sup>辽宁宇佳科技有限公司, 辽宁 营口

收稿日期: 2022年6月15日; 录用日期: 2022年7月2日; 发布日期: 2022年8月31日

## 摘要

传统的反硝化技术以异养反硝化为主, 不仅需要外加碳源, 而且产泥量大, 容易产生二次污染。近年来自养反硝化技术发展迅速, 其中硫自养反硝化具有处理效率高、污泥产生量少、能耗低等优点, 发展前景良好; 但其反应过程中会产生大量H<sup>+</sup>和硫酸盐, 会对出水水质产生影响。为了进一步提高反硝化效率及出水水质, 降低产泥量, 本文综述硫自养/异养反硝化协同处理技术的研究现状, 并对其发展前景进行讨论和展望。

## 关键词

硫自养反硝化, 异养反硝化, 协同处理, 综述展望

# Present Situation and Prospect of Synergetic Treatment of Sulfur Autotrophic/Heterotrophic Denitrification in the Treatment of Nitrate-Containing Wastewater

Xiaoguo Zhou<sup>1</sup>, Xiaoxue Guo<sup>2</sup>, Chunlin Guo<sup>2</sup>, Zhiyong Wang<sup>3</sup>, Shusheng Huang<sup>3</sup>, Yanjuan Yu<sup>4</sup>

<sup>1</sup>Changjiang Eco-Environmental Protection Group Co., Ltd., Wuhan Hubei

<sup>2</sup>School of Resources and Environment, Wuhan University, Wuhan Hubei

<sup>3</sup>Wuhan Angtian Environmental Technology Co., Ltd., Wuhan Hubei

<sup>4</sup>Liaoning Yujia Technology Co., Ltd., Yingkou Liaoning

Received: Jun. 15<sup>th</sup>, 2022; accepted: Jul. 2<sup>nd</sup>, 2022; published: Aug. 31<sup>st</sup>, 2022

作者简介: 周小国(1980-), 男, 高级工程师, 本科, 研究方向: 水环境治理, Email: zhou\_xiaoguo@ctg.com.cn

文章引用: 周小国, 郭小雪, 郭春麟, 王志勇, 黄书生, 于艳娟. 硫自养/异养反硝化协同处理含硝氮废水技术的现状与展望[J]. 水资源研究, 2022, 11(4): 407-415. DOI: 10.12677/jwrr.2022.114044

## Abstract

The traditional denitrification technology is mainly heterotrophic denitrification, which not only needs additional carbon source, but also produces large amount of mud, which is easy to produce secondary pollution. In recent years, nitrotrophic denitrification technology has developed rapidly. Among them, sulfur autotrophic denitrification has the advantages of high treatment efficiency, low sludge production and low energy consumption, and has a good development prospect. However, a large amount of  $H^+$  and sulfate will be produced in the reaction process, which will affect the effluent quality. In order to further improve denitrification efficiency and effluent quality, and reduce sludge production, this paper reviews the research status of sulfur autotrophic/heterotrophic denitrification co-treatment technology, and discusses its development prospects.

## Keywords

Sulfur Autotrophic Denitrification, Heterotrophic Denitrification, Synergistic Treatment, Review and Prospect

Copyright © 2022 by author(s) and Wuhan University.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

## 1. 引言

生物反硝化技术是最常用的脱除废水中硝态氮的技术,具有经济性、可行性高等优点,分为自养反硝化和异养反硝化两种。传统的异养反硝化技术是以外加碳源作为电子供体,运行成本高,产泥量大,还有可能产生二次污染。近年来,自养反硝化技术受到广泛关注,目前研究较多的自养反硝化过程有氢自养反硝化、硫自养反硝化和铁基质自养反硝化[1]。铁自养反硝化随着反应的进行会在铁表面形成一层钝化膜,影响传质效率,而且反硝化产物往往是  $NH_4^+$ ,并未达到完全反硝化的目的;氢自养反硝化由于氢气的易燃易爆性和较低的水溶性限制了其在水处理领域的大规模应用;而硫自养反硝化是指功能微生物利用还原态的硫作为电子供体,将  $NO_3^-$ -N 还原成  $N_2$  的过程,不仅处理效率高,而且污泥产生量少,能耗低,是一种很好的深度脱氮技术[2]。但是硫自养反硝化技术在反应过程中会产生大量  $H^+$  导致 pH 降低,进而影响脱氮效率[3],与此同时还会产生大量硫酸盐,易出现出水硫酸盐超标的情况[4]。为了提高城市污水脱氮效率,降低处理成本,避免二次污染的产生,部分研究者提出硫自养/异养反硝化协同处理含硝氮废水。硫自养反硝化菌是以单质硫或还原态硫化物作为电子供体进行反硝化脱氮,无需外加碳源,污泥产量低、活性高[5];以异养反硝化为主体的脱氮工艺则具有处理时间短、处理水量大、易于维护管理的优点,目前仍在脱氮工艺中占有主导地位。异养反硝化的脱氮速率很快,但出水氮含量很难达到更低水平,因此将其与硫自养反硝化相结合取得更好的脱氮效果[6]。本文着重介绍硫自养/异养反硝化协同工艺及效果的以往研究工作,并对未来的技术研究提出建议。

## 2. 硫自养/异养反硝化协同技术作用机理及研究现状

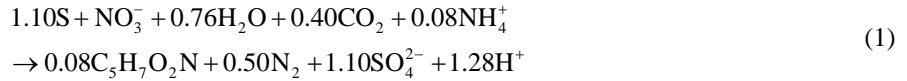
### 2.1. 硫自养反硝化作用机理及研究现状

#### 2.1.1. 硫自养反硝化作用机理

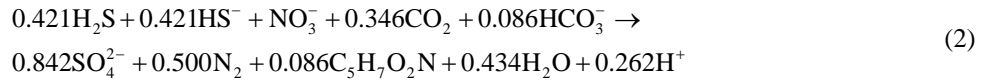
硫自养反硝化是指在缺氧或厌氧的条件下,自养反硝化脱硫细菌将还原性硫化物[7] (如  $S_0$ 、 $S^{2-}$ 、 $S_2O_3^{2-}$ )

作为电子供体,以硝酸盐或亚硝酸盐作为电子受体[2],将其还原成氮气的过程。选择不同的还原性硫化化合物作为电子供体反应过程不同。

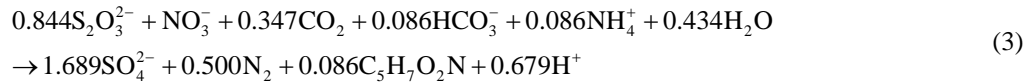
1) 以单质硫为电子供体



2) 以硫化物为电子供体



3) 以还原性含硫化物为电子供体



原理示意图如图1所示[5]。

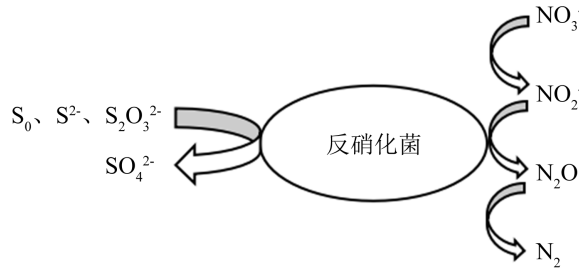


Figure 1. Schematic diagram of principle  
图1. 原理示意图

### 2.1.2. 硫自养反硝化研究现状

硫自养反硝化于20世纪70年代[8]被提出并展开研究。自养反硝化细菌尤其是脱氮硫杆菌的发现引起了广泛关注。近年来对硫自养反硝化的研究主要是从反应机理[9]、反应器设计[10]、运行条件[11]及最佳运行控制方式[12]等方面。

付淘真等[4]在最新的研究中对硫自养反硝化技术中微生物群落的研究进展、电子供体的选择及应用进行了论述,分别讨论了选用硫化物、硫单质、铁硫化物和新型硫源材料作为反硝化电子供体,及其在地下水修复、污水处理厂废水处理中的应用,介绍了硫自养与异养协同反硝化技术的应用研究和成果。目前关于在地下水修复中采用硫自养反硝化技术的研究广泛展开,大多处于小试阶段,尚未在中试及实际的地下水原位修复中进行应用。此外,随着对城市水环境的要求越来越高,为了减少水体富营养化、实现污水深度脱氮,硫自养反硝化将在水环境综合治理领域发挥重要作用。硫自养反硝化技术还可用于处理高盐废水(海水、工业废水等),例如我国香港地区采用海水冲厕所,产生的污水中的硫酸盐浓度极高,香港的陈光浩课题组[13][14]由此推广了硫自养反硝化技术在高盐废水处理中的应用,在深度脱氮的同时还降低产泥量,节约了剩余污泥的处置空间。

除此之外,硫自养反硝化技术效率的影响因素也是讨论的热门话题。张理泰等[15]基于近年来硫自养反硝化的研究成果,探究了电子供体类型、反应器及填料形式、pH、HRT、DO、温度等因素对硫自养反硝化反应效果的影响。电子供体类型对于硫自养反硝化反应效率的影响尤为显著。研究表明,一定程度上以还原性金属硫化物为电子供体的硫自养反硝化过程具有更好的脱氮效果。此外电子供体的量、电子供体的聚集态和纯度、与

微生物的接触方式、以及微生物的菌属种类等也会对反应速率产生影响。反应器形式也会对反应效率产生较大的影响，比如上向流进水方式使得反硝化反应过程中产生的气体容易逸出，且有助于厌氧环境的形成，有利于硝化反应的进行。反应器内部填料构建的生物反应的微环境也会影响硫自养反硝化反应的效果。硫自养反硝化过程中会产酸，使得 pH 降低，而参与反应的微生物菌群(脱氮硫杆菌等)都有最适 pH 范围，一旦 pH 值超出这个范围，微生物的反应活性会受到抑制，脱氮效率降低。当 pH 过低时，反应体系中的无机碳源缺乏也会使反硝化效率降低。溶解氧浓度也会对硫自养反硝化过程产生影响，一般来说不宜过高，它主要是会对参与反应的微生物有作用，如过高的溶解氧浓度会对脱氮硫杆菌的反硝化过程产生抑制作用，还会造成亚硝酸盐氮的积累。HRT 不仅会影响硫自养反硝化的效果，而且直接影响硫自养反硝化的工程应用。实验表明，不同的电子供体和反应器在不同温度下的最适 HRT 不同。HRT 越小，所需要的反应容器就越小，建设成本降低，工艺更容易实现大规模应用。温度对硫自养反硝化过程的影响主要是对微生物活性的影响，硫自养菌有其最适生长温度范围，也有最适反硝化温度范围，对温度要求比较高。温度还会影响气体传质速率和污泥沉降性能，进而影响脱氮效果。

硫自养反硝化技术相较于异养反硝化技术更具有优势，但在实际应用中也面临诸多问题，近年来关于不同电子供体硫自养反硝化的研究很多，并逐渐尝试与其他反硝化工艺相结合应用于实践。

## 2.2. 异养反硝化作用机理及研究现状

### 2.2.1. 异养反硝化作用机理

传统的生物脱氮技术分为氨化、硝化、反硝化三个阶段，其中反硝化多为异养反硝化，即在缺氧条件下，反硝化细菌(兼性异养菌)以  $\text{NO}_3^-$  为电子受体，以有机碳源为电子供体，把硝酸还原成氮( $\text{N}_2$ )，从而实现污水脱氮。异养反硝化反应的基本反应过程如图 2 所示。

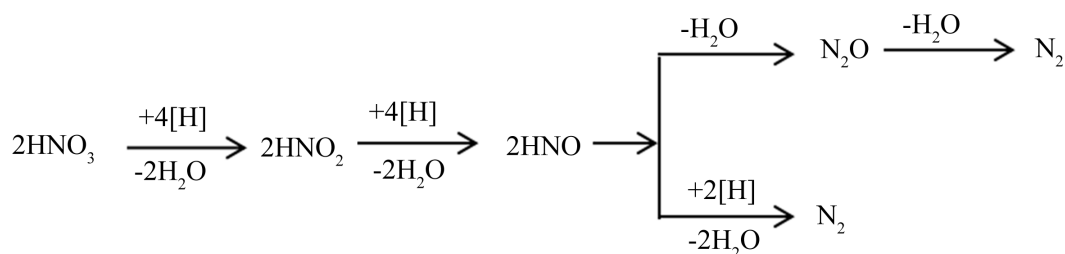


Figure 2. Heterotrophic denitrification reaction process

图 2. 异养反硝化的反应过程

异养反硝化反应的方程式表示为[16]:

1) 硝酸盐还原酶(Nar)催化硝酸盐生成亚硝酸盐:



2) 亚硝酸盐还原酶(Nir)催化亚硝酸盐生成一氧化氮:



3) 一氧化氮还原酶(Nor)催化一氧化氮生成一氧化二氮:



4) 一氧化二氮还原酶(Nos)催化一氧化二氮生成氮气:



### 2.2.2. 异养反硝化研究现状

目前污水处理中生物脱氮多采用 A<sup>2</sup>/O 工艺及其衍生工艺, 其中反硝化菌通常是异养型[17]。异养厌氧反硝化在 A/O 工艺、O/A 工艺中也得到了广泛应用[18]。异养反硝化是目前应用最为广泛的废水生物脱氮反硝化技术, 通过多种工艺及组合工艺的形式出现, 如 A/O、AAO、氧化沟、膜生物反应器(MBR)、序批式活性污泥反应器(SBR)、连续搅拌槽(CSTR)、生物转盘、生物滤池、膨胀颗粒污泥床(EGSB)等[19] [20] [21]。传统的生物脱氮工艺中是将异养兼性反硝化菌和自养硝化菌结合起来进行脱氮, 反应过程中需要控制不同区域的氧气含量, 对实际脱氮工艺限制极大。为了解决这些问题, 研究者们引入了异养好氧反硝化菌[22]。已知的好氧反硝化菌有 *Pseudomonas* spp.、*Alicigenes faecalis* 和 *Thiosphaera pan-totropha* 等[18]。目前国内关于好氧反硝化菌的研究报道较少, 国外对好氧条件下的生物脱氮过程研究较为深入。

总的来说, 在实际工程应用中, 异养兼性反硝化菌和异养厌氧反硝化菌仍旧占据主导地位。

## 2.3. 硫自养/异养反硝化协同处理作用机理及研究现状

### 2.3.1. 硫自养/异养反硝化协同处理作用机理

在异养反硝化体系中添加硫源, 使得部分硝酸盐以硫自养形式被去除, 其余部分被异养反硝化菌通过反硝化作用去除。硫自养/异养反硝化协同处理弥补了硫自养反硝化和异养反硝化各自的劣势: 异养反硝化需要投加碳源, 才能去除的那部分硝酸盐由硫自养反硝化菌去除, 反硝化系统无需外加碳源, 降低了运行成本, 减少了产泥量; 硫自养反硝化过程中会产生大量 H<sup>+</sup>和 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, 其中 H<sup>+</sup>可由异养反硝化产生的碱度中和, 避免出水 pH 过低。

耿雅雯等[3]利用硫自养/异养协同反硝化理三氯蔗糖生产废水进行深度脱氮, 在反应器中投加 Na<sub>2</sub>S<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 进行协同反硝化。运行 109 天后, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 去除率达 93% 以上, 反应器去除负荷达 3.52 kg/(m<sup>3</sup>·d), 远超纯硫自养反硝化系统的脱氮负荷。Liu 等[23]以两种不同浓度的实际硝酸盐污染水体为实验对象, 引入葡萄糖和硫代硫酸钠作为混合电子供体, 进行硫基自养与异养耦合反硝化实验。结果表明自养菌、兼性菌和异养菌共同促进了高脱氮效率。在最佳 C/N/S 比条件下, 随着进水浓度的增加, 以自养反硝化过程为主, 其次为兼养反硝化过程。硫自养/异养反硝化工艺是处理含硝酸盐废水的一种有前景的替代方法。

### 2.3.2. 硫自养/异养反硝化协同处理研究现状

目前已有研究者在活性污泥中添加硫源来实现以异养为主的协同反硝化。李祥等[24]将硫磺加入到异养反硝化反应器中培养硫自养反硝化菌, 在没有外加碳源的情况下运行 116d, 最终氮去除率达 85%, 减少了 60% 的污泥去除率。XU 等[25]在污水处理厂二沉池出水中加入有机碳源后, 将废水通入以硫磺为填料的自养反硝化反应器, 使出水总氮由(12.9 ± 1.8) mg·L<sup>-1</sup> 进一步降到了 2.5 mg·L<sup>-1</sup> 以下。

异养/硫自养协同反硝化不仅使得异养反硝化产生的碱和硫自养反硝化产生的酸实现了酸碱互补, 降低了硫自养反硝化过程中产生的 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 量和异养反硝化过程中产生的污泥量。王爱杰等[26]提出了有机废水硫氮碳同步脱除系统, 其工艺核心是自养—异养联合反硝化(IAHD), IAHD 体系中硫化物即充当了电子供体。Park 等[27]利用人工湿地构建硫自养—异养联合反硝化体系处理蔬菜大棚的水培废水, 脱氮效果达到了 65.3% ± 9.3%。

虽然异养/硫自养反硝化协同技术具有极大的优势, 但由于自养菌的传代时间比异养菌长, 增殖速率慢, 容易在底物(如 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N)竞争中处于劣势, 使得脱氮体系不够稳定。因此, 如何控制反应条件使异养/硫自养反硝化协同效果更好是目前研究的主要方向。

## 3. 硫自养/异养反硝化协同处理技术微生物群落特征

硫自养/异养反硝化协同处理技术中参与反应的微生物主要有异养型厌氧反硝化细菌和硫化物自养型反硝化细菌。自然界中最普遍的反硝化细菌是假单胞菌属; 其次是产碱杆菌属。最常见的硫自养反硝化菌是噬硫杆

菌(*Thiobacillus*)和硫螺旋菌(*Sulfurimonas*) [4], 其中脱氮硫杆菌(*Thiobacillus denitrificans*)是一种典型的硫自养反硝化菌[9]。常见的硫自养反硝化细菌的分类及代谢特征如表 1。

**Table 1.** Classification and metabolic characteristics of sulfur autotrophic denitrifying bacteria [28] [29] [30]  
**表 1.** 硫自养反硝化细菌的分类及代谢特征[28] [29] [30]

分类	种属	代表菌种	电子供体	代谢特征
严格化能自养型细菌	硫杆菌属	<i>Thiobacillus denitrificans</i> , <i>Thiobacillus thioparus</i>	$\text{HS}^-$ , $\text{S}^0$ , $\text{S}_2\text{O}_3^{2-}$ , $\text{FeS}_2$	最适生长温度 = 28°C~30°C, pH = 6.5~7.0, 只能以二氧化碳或无机碳源为能源进行生长代谢, 有氧和无氧条件均可生长
	硫微螺菌属	反硝化硫杆菌 ( <i>Thiomicrospira denitrificans</i> )		最适生长温度和 pH 为 22°C、7.0, 只能以二氧化碳或无机碳源为能源进行生长代谢, 仅能在无氧或缺氧环境生存
兼性自养型细菌	副球菌属	<i>Paracoccus denitrificans</i>	$\text{S}^{2-}$	在氧气浓度低时难以生长和进行硫氧化反应, 可以以二氧化碳、无机碳源和有机物为碳源进行生长代谢
	硫杆菌属	<i>Thiobacillus delicates</i> , <i>Thiobacillus thyasiris</i> , <i>Thiosphaera pantotropha</i>		
巨大丝状细菌	硫微螺菌属	<i>Beggiatoa</i> , <i>Thioplaca</i>	$\text{S}^{2-}$	丝状硫氧化细菌, 可利用硫化物进行自养氧化

#### 4. 不同因素对硫自养/异养反硝化协同作用的影响

1) 进水 C/N: 硫自养/异养反硝化协同处理反应体系中, 硫自养反硝化过程会产生大量  $\text{H}^+$ , 异养反硝化过程中会产生碱度。根据李祥等[24]的研究结果, 硫自养反硝化菌在异养反硝化反应器内能够实现快速生长, 当控制 C/N 为 0.65~0.75 时, 运行 65 d 后, 异养反硝化产生的碱度满足自养反硝化的需求, 无需额外添加碱。这说明只要将进水的 C/N 控制在一定的范围内, 即可实现异养反硝化与自养反硝化酸碱互补, 维持 pH 环境的稳定。在硫自养/异养反硝化协同反应器中, 将进水 C/N 控制在 0.7 可使异养反硝化产生的碱度满足硫自养反硝化使用, 此时进出水 pH 值差值稳定在 0.15 以内。除此之外, 进水的 C/N 比对异养反硝化过程中硝酸盐去除效能影响较大, C/N 比过低时碳供应不足, 反硝化效率低下, 因此适宜的 C/N 比是影响硫自养/异养反硝化协同处理技术脱氮效果的决定性因素。

2) pH: pH 对反硝化过程的影响是通过影响微生物来实现的。不同微生物有不同的最适 pH 范围。如脱氮硫杆菌的最适生长 pH 范围为 6.8~7 左右[31]。异养反硝化细菌最适的 pH 值范围为 7.0~8.0。生物反硝化最适的 pH 范围为 7~8, pH 过高或过低都会使反硝化效率降低, 造成亚硝态氮积累。

3) 温度: 温度不仅会影响反应速率, 而且会影响微生物的活性。不同的微生物的最适温度范围不同。温度对于对微生物群落、气体传质速率、污泥的沉降性能都具有很大的影响。大部分硫自养菌属于嗜中温菌, 最适生长温度在 30°C~35°C, 最适反硝化温度范围为 25°C~30°C。脱氮硫杆菌的最适反硝化温度为 32.8°C, 而其自身生长最适温度为 29.5°C[32]。异养反硝化细菌的最适生长温度为 20°C~40°C, 温度过低尤其在低于 15°C 时, 反硝化效率明显下降。

4) HRT: 在不同的实验室或工程条件下, 最适水力停留时间不同。HRT 过短时, 微生物与底物接触时间不足, 难以充分降解底物[33]; HRT 过长时, 会出现污泥老化现象。此外, 自养反硝化菌(如脱氮硫杆菌)菌体生长较慢, 需要较长的水力停留时间, 在进水量比较大时, 需要的反应器的体积相对比较庞大, 影响到了实际工程应用。

5) DO: 传统的自养反硝化和异养反硝化微生物多数为兼性厌氧菌, 以  $O_2$  作为电子受体时可产生更多能量, 因此随着 DO 含量升高, 废水中硝酸盐的利用率降低, 直接导致脱氮效能下降及大量含氮中间产物的累积。Silverstein 等[34]研究发现在污水脱氮系统中, 0.1 mg/L 的氧气就会导致反硝化脱氮效率下降, 同时几乎所有氮系化合物还原酶的表达和活性均受到抑制。Hernandez 等[35]的研究结果表明水中 0.2% 的氧饱和度就会影响硝酸盐的去除,  $O_2$  加入后立刻就会对硝酸盐还原产生抑制作用, 而恢复至厌氧条件后硝酸盐的去除率再次上升。DO 存在不仅影响脱氮速率, 还会导致硫酸盐增多, pH 下降[2]。

## 5. 未来展望

由于异养反硝化和硫自养反硝化技术各有其优势和局限性, 将二者结合起来的协同反硝化技术有望成为未来深度脱氮领域的最佳处理方式之一。硫自养反硝化与异养反硝化协同处理含氮废水的优势在于可以减少碱度的投加, 降低成本, 提高了反硝化效率的同时还能保证较低的出水有机物含量。

近些年来人们对硫自养反硝化菌在不同电子供体基质下的应用及其耦合工艺研究很多, 硫自养/异养反硝化协同处理弥补了各自反应过程中存在的缺陷, 目前已有研究者将其运用于低浓度的地下水处理。与完全自养反硝化相比, 协同反硝化的污泥产量仅为完全异养反硝化的 60%, 实现了反硝化过程的污泥减量化。

除此之外, 硫自养反硝化过程会产生大量  $SO_4^{2-}$ , 需要进行处理, 可考虑投入  $Ca^{2+}$ 。单独采用硫自养反硝化的处理水量小, 进水负荷不能太高, 污泥产量低; 目前应用最为广泛的异养厌氧反硝化处理水量大, 但是需要额外投加碳源, 污泥产量大, 二者结合有望同时实现处理水量大和产泥量低, 是一种非常理想的反硝化体系, 发展前景十分广阔。

## 基金项目

中国长江三峡集团有限公司科研项目 202103363。

## 参考文献

- [1] 翟思媛, 赵迎新, 季民. 自养-异养反硝化协同作用强化污水深度脱氮研究进展[J]. 水处理技术, 2018, 44(6): 1-5+14. ZHAI Siyuan, ZHAO Yingxin and JI Min. Research progress in the synergistic effect of autotrophic and heterotrophic denitrification on advanced denitrification of wastewater. Water Treatment Technology, 2018, 44(6): 1-5+14. (in Chinese)
- [2] 姚鹏程, 袁怡, 龙震宇, 谈家彬. 单质硫自养反硝化研究现状及展望[J]. 现代化工, 2018, 38(6): 28-32. YAO Pengcheng, YUAN Yi, LONG Zhenyu and TAN Jiabin. Research status and prospect of elemental sulfur autotrophic denitrification. Modernization Engineering, 2018, 38(6): 28-32. (in Chinese)
- [3] 耿雅雯, 刘锋, 冯震, 陈俊, 张雪智. 硫自养/异养协同反硝化深度脱氮处理三氯蔗糖生产废水[J]. 化工进展, 2021, 40(10): 5829-5836. GENG Yawen, LIU Feng, FENG Zhen, CHEN Jun and ZHANG Xuezi. Treatment of wastewater from sucralose production by sulfur-autotrophic/heterotrophic denitrification. Chemical Industry Progress, 2021, 40(10): 5829-5836. (in Chinese)
- [4] 付淘真, 刘玉玉, 杨丽原. 硫自养反硝化技术研究现状及展望[J]. 济南大学学报(自然科学版), 2022, 36(3): 322-329. FU Taozhen, LIU Yuyu and YANG Liyuan. Research status and prospect of sulfur autotrophic denitrification technology. Journal of Jinan University (Natural Science Edition), 2022, 36(3): 322-329. (in Chinese)
- [5] 王振兴, 李向全, 侯新伟, 刘玲霞. 地下水硝酸盐污染的生物修复技术研究进展[J]. 环境科学与技术, 2012, 35(S1): 163-166. WANG Zhenxing, LI Xiangquan, HOU Xinwei and LIU Lingxia. Research progress on bioremediation of nitrate pollution in groundwater. Environmental Science and Technology, 2012, 35(S1): 163-166. (in Chinese)
- [6] 史航, 隆添翼, 柳聪, 吴圣凯, 范遥, 刘波. 基于异养-硫自养反硝化耦合技术的陶粒-硫磺混合生物填料对城市污水处理厂尾水的深度脱氮[J]. 环境工程学报, 2022, 16(4): 1363-1372. SHI Hang, LONG Tianyi, LIU Cong, WU Shengkai, FAN Yao and LIU Bo. Deep nitrogen removal of tailwater from municipal wastewater treatment plants by ceramic-sulfur mixed biological fillers based on heterotrophy-sulfur autotrophic denitrification coupling technology. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2022, 16(4): 1363-1372. (in Chinese)
- [7] 刘晓帅, 李再兴, 尹思婕, 高玮, 吕建伟, 吕永涛, 刘艳芳. 硫自养反硝化运行工艺的现状与展望[J]. 煤炭与化工, 2021, 44(7): 155-160.

- LIU Xiaoshuai, LI Zaixing, YIN Sijie, GAO Wei, LV Jianwei, LV Yongtao and LIU Yanfang. Current status and prospect of sulfur autotrophic denitrification operation process. *Coal & Chemical Industry*, 2021, 44(7): 155-160. (in Chinese)
- [8] 苏柏懿, 吴莉娜, 王春艳, 苏德欣, 贾春芳, 李进. 硫自养反硝化在工业废水处理中的研究进展[J]. *应用化工*, 2022, 51(4): 1070-1076.  
SU Baiyi, WU Lina, WANG Chunyan, SU Dexin, JIA Chunfang and LI Jin. Research progress of sulfur autotrophic denitrification in the treatment of industrial wastewater. *Applied Chemical Engineering*, 2022, 51(4): 1070-1076. (in Chinese)
- [9] 马潇然, 郑照明, 卞伟, 李军, 周荣焯, 杨京月. 硫自养反硝化系统运行效能和微生物群落结构研究[J]. *中国环境科学*, 2020, 40(10): 4335-4341.  
MA Xiaoran, ZHENG Zhaoming, BIAN Wei, LI Jun, ZHOU Rongxuan and YANG Jingyue. Study on the operation efficiency and microbial community structure of sulfur autotrophic denitrification system. *China Environmental Science*, 2020, 40(10): 4335-4341. (in Chinese)
- [10] 胡智丰, 邓时海, 张超, 李德生, 彭帅. 集成式铁基质生物膜反应器自养反硝化深度脱氮[J]. *化工学报*, 2020, 71(7): 3304-3312.  
HU Zhifeng, DENG Shihai, ZHANG Chao, LI Desheng and PENG Shuai. Autotrophic denitrification in an integrated iron matrix biofilm reactor. *Journal of Chemical Industry and Technology*, 2020, 71(7): 3304-3312. (in Chinese)
- [11] WEI, X., et al. Using cold-adapted river-bottom sediment as seed sludge for sulfur-based autotrophic denitrification operated at mesophilic and psychrophilic temperatures. *Science of the Total Environment*, 2020, 735: 139345.  
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.139345>
- [12] 郭启臣, 边喜龙, 王宇清. 市政污水人工湿地硫自养反硝化性能研究[J]. *水处理技术*, 2020, 46(9): 104-107.  
GUO Qichen, BIAN Xilong and WANG Yuqing. Research on the performance of sulfur autotrophic denitrification in constructed wetland of municipal sewage. *Water Treatment Technology*, 2020, 46(9): 104-107. (in Chinese)
- [13] WU, G. M., et al. Electrochemically assisted sulfate reduction autotrophic denitrification nitrification integrated (e-SANI<sup>®</sup>) process for high-strength ammonium industrial wastewater treatment. *Chemical Engineering Journal*, 2020, 381(C): 122707.  
<https://doi.org/10.1016/j.cej.2019.122707>
- [14] CUI, Y.-X., et al. Application of a moving-bed biofilm reactor for sulfur-oxidizing autotrophic denitrification. *Water Science and Technology: A Journal of the International Association on Water Pollution Research*, 2018, 77(4): 1027-1034.  
<https://doi.org/10.2166/wst.2017.617>
- [15] 张理泰, 杨长军, 余丹, 龙泉. 硫自养反硝化用于深度处理脱氮的研究与进展[J]. *云南化工*, 2020, 47(3): 1-4+6.  
ZHANG Litai, YANG Changjun, YU Dan and LONG Quan. Research and development of sulfur autotrophic denitrification for advanced denitrification. *Yunnan Chemical Industry*, 2020, 47(3): 1-4+6. (in Chinese)
- [16] 张若晨. 自养-异养联合反硝化系统中功能菌群互作规律及代谢机制[D]: [博士学位论文]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2019.  
ZHANG Ruochen. The interaction and metabolic mechanism of functional flora in autotrophy-heterotrophic combined denitrification system. Ph.D. Thesis, Harbin: Harbin Institute of Technology, 2019. (in Chinese)
- [17] 白也, 张多英, 曾伟民, 赵丹丹, 张彦龙, 张淑梅. 反硝化菌在地下水中除硝酸盐的应用进展[J]. *生物技术*, 2018, 28(4): 403-409.  
BAI Ye, ZHANG Duoying, ZENG Weimin, ZHAO Dandan, ZHANG Yanlong and ZHANG Shumei. Application of denitrifying bacteria in the removal of nitrate from groundwater. *Biotechnology*, 2018, 28(4): 403-409. (in Chinese)
- [18] 任延丽, 靖元孝. 反硝化细菌在污水处理作用中的研究[J]. *微生物学杂志*, 2005(2): 88-92.  
REN Yanli, JING Yuanxiao. Study on denitrifying bacteria in wastewater treatment. *Journal of Microbiology*, 2005(2): 88-92. (in Chinese)
- [19] ZHENG, M., LIU, Y.-C. and WANG, C.-W. Modeling of enhanced denitrification capacity with microbial storage product in MBR systems. *Separation and Purification Technology*, 2014, 126: 1-6. <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2014.02.012>
- [20] 丁晓倩, 赵剑强, 陈钰, 胡博, 马保成. 传统和氧化沟型 A~2/O 工艺脱氮除磷性能对比[J]. *环境工程学报*, 2018, 12(5): 1480-1489.  
DING Xiaolian, ZHAO Jianqiang, CHEN Yu, HU Bo and MA Baocheng. Comparison of nitrogen and phosphorus removal performance between conventional and oxidation ditch A~2/O processes. *Chinese Journal of Environmental Engineering*, 2018, 12(5): 1480-1489. (in Chinese)
- [21] ZHANG, Y., JI, G. D. and WANG, R. J. Drivers of nitrous oxide accumulation in denitrification biofilters with low carbon: Nitrogen ratios. *Water Research*, 2016, 106: 79-85. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2016.09.046>
- [22] 牛晓倩, 周胜虎, 邓禹. 脱氮微生物及脱氮工艺研究进展[J]. *生物工程学报*, 2021, 37(10): 3505-3519.  
NIU Xiaoqian, ZHOU Shenghu and DENG Yu. Research progress of denitrification microorganism and denitrification process. *Chinese Journal of Biological Engineering*, 2021, 37(10): 3505-3519. (in Chinese)
- [23] LIU, F., et al. Nitrate removal from actual wastewater by coupling sulfur-based autotrophic and heterotrophic denitrification under different influent concentrations. *Water*, 2021, 13(20): 2913-2913. <https://doi.org/10.3390/w13202913>



- [24] 李祥, 马航, 黄勇, 朱亮, 杨朋兵, 朱强. 异养与硫自养反硝化协同处理高硝氮废水特性研究[J]. 环境科学, 2016, 37(7): 2646-2651.  
LI Xiang, MA Ma, HUANG Yong, ZHU Liang, YANG Pengbing and ZHU Qiang. Research on the co-treatment of high nitrate-nitrogen wastewater by heterotrophic and sulfur autotrophic denitrification. *Environmental Science*, 2016, 37(7): 2646-2651. (in Chinese)
- [25] XU, Z. C., et al. Combined heterotrophic and autotrophic system for advanced denitrification of municipal secondary effluent in full-scale plant and bacterial community analysis. *Science of the Total Environment*, 2020, 717(C): 136981.  
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.136981>
- [26] 王爱杰, 杜大仲, 任南琪, 刘春爽, 万春黎. 一种同步脱氮脱硫并回收单质硫的新工艺初探[J]. 中国科技信息, 2005(9): 56-57+71.  
WANG Aijie, DU Dazhong, REN Nanqi, LIU Chunshuang and WAN Chunli. A new process for simultaneous denitrification, desulfurization and recovery of elemental sulfur. *China Science and Technology Information*, 2005(9): 56-57+71. (in Chinese)
- [27] PARK, J.-H., et al. Enhancement of nitrate removal in constructed wetlands utilizing a combined autotrophic and heterotrophic denitrification technology for treating hydroponic wastewater containing high nitrate and low organic carbon concentrations. *Agricultural Water Management*, 2015, 162: 1-14. <https://doi.org/10.1016/j.agwat.2015.08.001>
- [28] 车轩, 罗国芝, 谭洪新, 吴嘉敏, 蒋燕, 齐巨龙, 孙大川. 脱氮硫杆菌的分离鉴定和反硝化特性研究[J]. 环境科学, 2008(10): 2931-2937.  
CHE Xuan, LUO Guozhi, TAN Hongxin, WU Jiamin, JIANG Yan, QI Julong and SUN Dachuan. Isolation, identification, and denitrification characteristics of *Thiobacillus azoides*. *Environmental Science*, 2008(10): 2931-2937. (in Chinese)
- [29] TANG, K., BASKARAN, V. and NEMATI, M. Bacteria of the sulphury cycle: an overview of microbiology, biokinetics and their role in petroleum and mining industries. *Biochemical Engineering Journal*, 2008, 44(1): 73-94.  
<https://doi.org/10.1016/j.bej.2008.12.011>
- [30] 王玮. 一株脱硫自养菌的分离与特性研究[J]. 工业微生物, 1997(4): 33-36.  
WANG Wei. Isolation and characterization of a desulphurizing autotrophic bacterium. *Industrial Microbiology*, 1997(4): 33-36. (in Chinese)
- [31] 张忠智, 鲁莽, 魏小芳, 马道祥, 白长琦. 脱氮硫杆菌的生态特性及其应用[J]. 化学与生物工程, 2005(2): 52-54.  
ZHANG Zhongzhi, LU Mang, WEI Xiaofang, MA Daoxiang and BAI Changqi. Ecological characteristics and application of *Thiobacillus azoides*. *Chemical and Biological Engineering*, 2005(2): 52-54. (in Chinese)
- [32] 叶良涛, 左胜鹏. 脱氮硫杆菌自养反硝化及其影响因素研究进展[J]. 环境科学与管理, 2011, 36(3): 58-63.  
YE Liangtao, ZUO Shengpeng. Research progress of autotrophic denitrification by *thiobacillus azoides* and its influencing factors. *Environmental Science and Management*, 2011, 36(3): 58-63. (in Chinese)
- [33] 王博, 刘永红, 王宁, 王全红. 不同水力停留时间下两级 A/O-PBG/MBBR 污水脱氮性能及生物膜活性变化研究[J]. 化学工程师, 2022, 36(3): 37-41.  
WANG Bo, LIU Yonghong, WANG Ning and WANG Quanhong. Study on denitrification performance and biofilm activity of two-stage A/O-PBG/MBBR wastewater under different hydraulic retention times. *Chemical Engineer*, 222, 36(3): 37-41. (in Chinese)
- [34] OH, J. and SILVERSTEIN, J. Oxygen inhibition of activated sludge denitrification. *Water Research*, 1999, 33(8): 1925-1937.  
[https://doi.org/10.1016/S0043-1354\(98\)00365-0](https://doi.org/10.1016/S0043-1354(98)00365-0)
- [35] HERNANDEZ, D. and ROWE, J. J. Oxygen regulation of nitrate uptake in denitrifying *Pseudomonas aeruginosa*. *Applied and Environmental Microbiology*, 1987, 53(4): 745-750. <https://doi.org/10.1128/aem.53.4.745-750.1987>