

УДК 628.35

Е.Е. Сивкова, Е.В. Прибыткова

*Биологический институт Томского государственного университета (г. Томск)
Обособленное структурное подразделение «Научно-исследовательский институт
биологии и биофизики Томского государственного университета» (г. Томск)*

ВЛИЯНИЕ РОГОЗА ШИРОКОЛИСТНОГО (*Typha latifolia* L.) И КОМПОНЕНТОВ ФИЛЬТРУЮЩЕЙ ЗАГРУЗКИ НА ЭФФЕКТИВНОСТЬ УДАЛЕНИЯ СОЕДИНЕНИЙ АЗОТА В СИСТЕМАХ ПОЧВЕННО-БОЛОТНОЙ ОЧИСТКИ СТОЧНЫХ ВОД

Работа выполнена в рамках ФЦП «Научные и научно-педагогические кадры инновационной России» на 2009–2013 гг. (ГК № П143 от 14 апреля 2010 г.).

*Изучено влияние рогоза широколистного (*Typha latifolia*) и наличия известняка в составе фильтрующей загрузки площадок почвенно-болотной очистки сточных вод на процессы удаления соединений азота. Показано изменение содержания ионов аммония в воде, вычислены скорость и эффективность удаления NH_4^+ в зависимости от условий очистки. Установлено, что присутствие высшей водной растительности в системах очистки горизонтального поверхностного потока повышает скорость и эффективность удаления аммонийного азота и уменьшает вымывание микроорганизмов, а также определено отсутствие влияния известняка в системах с горизонтальным типом фильтрации.*

Ключевые слова: *очистка сточных вод; «constructed wetlands», анаммокс, *Typha latifolia*, высшая водная растительность.*

Системы почвенно-болотной очистки сточных вод, построенные по современной экологической технологии «constructed wetlands», в настоящее время являются одним из наиболее перспективных типов очистных сооружений ввиду низких капитальных затрат на строительство, простоты эксплуатации и высокой эффективности обезвреживания загрязненных вод [1]. Многочисленные международные исследования [2–5] свидетельствуют об успешном применении систем «constructed wetlands» для очистки сточных вод различного происхождения, в первую очередь для хозяйственно-бытовых стоков, где одним из главных загрязнителей выступают различные соединения азота.

«Constructed wetlands» представляют собой сконструированные болотные экосистемы, объединяющие физические, химические и биологические процессы, вовлекающие болотную растительность, почвы и связанные с ними микробные сообщества в процесс очистки сточных вод [6]. Стандартные площадки почвенно-болотной очистки состоят из четырех принципиальных элементов: водоупорный слой, фильтрующий слой, болотная растительность и устройства для равномерной подачи очищаемых вод. В научной литературе сооружения типа «constructed wetlands» принято подразделять на два типа [7] в зависимости от местоположения гидравлической проектной линии: в бота-

нических площадках, болотах поверхностного потока с открытой водной поверхностью сточные воды, подаваемые на очистку, проходят в толще воды в контакте с микрофлорой, иммобилизованной на стеблях и листьях водных растений; на биоплато, болотах подповерхностного потока очищаемые воды проходят ниже поверхности фильтрующей среды в контакте с корнями и ризомой растений [7].

Как правило, сооружения почвенно-болотной очистки комбинируются из нескольких ячеек, или площадок, различной конструкции, отвечающих за определенную стадию процесса обезвреживания сточных вод [7]. Для удаления из загрязненной воды соединений азота традиционно используются процессы нитрификации и денитрификации [8]. Однако в последнее время активно исследуется возможность включения анаэробного окисления аммония в системы очистки коммунальных и промышленных сточных вод [9–12]. Включение анаэробного окисления аммония, известного также как анаммокс-процесс, в системы «constructed wetlands» предусматривает возможность в один этап произвести микробиологическую конверсию аммония и нитрита в газообразный азот с использованием нитрита в качестве акцептора электронов. Это позволит уменьшить протяженность нитрифицирующей площадки, поскольку требуется лишь частичная реализация процесса, а также исключить площадку для денитрификации, которая может реализовываться в конце участка анаэробного окисления аммония. Такая возможность представляет немалый интерес, поскольку позволит сократить капитальные и эксплуатационные затраты и повысить эффективность очистки и обеззараживания сточных вод. Кроме того, включение участка в системы почвенно-болотной очистки сточных вод позволит сократить площади, отчуждаемые для строительства биоинженерной системы.

Оптимальные условия для протекания того или иного процесса очистки вод создаются посредством грамотного конструирования систем constructed wetlands. В настоящее время проводится немало исследований по определению различных конструкторских решений и комбинаций элементов очистных систем «constructed wetlands» для повышения их эффективности в удалении определенных групп загрязнителей [13–16].

Целью данной работы являлось изучение условий эффективного удаления соединений азота в системах «constructed wetlands».

Материалы и методики исследования

Исследование проведено на базе лаборатории экологической инженерии и биотехнологии ОСП «НИИ биологии и биофизики Томского государственного университета» (г. Томск).

Для оценки влияния высшей водной растительности и известняка в составе фильтрующей загрузки (субстрата) на эффективность удаления ионов аммония из сточных вод был поставлен опыт, в ходе которого сконструированы две линии эксперимента, состоящие из шести площадок почвенно-болотной очистки, обладающих разными характеристиками (рис. 1). Площадки пред-

ставляли собой полипропиленовые контейнеры с габаритными размерами 52 см × 34 см × 28 см (длина × ширина × высота), объемом 50 л.

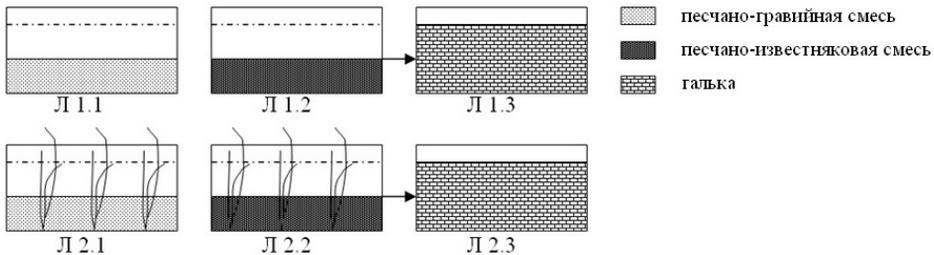


Рис. 1. Экспериментальная установка систем поверхностного потока (Л 1.1–2; Л 2.1–2) и систем подповерхностного потока (Л 1.3 и Л 2.3).
Площадки Л 2.1–2 засажены растительностью

Первая площадка первой линии (Л 1.1) – болото поверхностного потока с фильтрующим слоем из песчано-гравийной смеси высотой 12 см. Уровень заполнения площадки водой от дна контейнера – 25 см. На границе фильтрующего субстрата и воды был установлен перистальтический насос (Watson Marlow 502S) для дренажа площадки.

Вторая площадка первой линии (Л 1.2) – болото поверхностного потока с фильтрующим слоем из песка и известнякового щебня. Высота загрузки – 12 см. Уровень заполнения площадки водой от дна контейнера – 25 см. На границе фильтрующего субстрата и воды установлен перистальтический насос (Watson Marlow 502S) для дренажа площадки.

Третья площадка первой линии (Л 1.3) сконструирована как участок подповерхностного потока. Весь объем контейнера Л 1.3 заполнен галькой (диаметр 1–10 см), емкость закрыта полипропиленовой крышкой с отверстием по центру для подачи очищаемой воды. Насос для дренажа, согласно принципам функционирования площадок подповерхностного потока, установлен у дна контейнера [7].

Площадки второй линии (Л 2.1–3) полностью идентичны по конструкции и составу фильтрующего субстрата площадкам Л 1.1–3, но их обязательным компонентом стала высшая водная растительность, укорененная в субстрате. В качестве растительного компонента использовано наиболее распространенное в системах очистки «constructed wetlands» водное растение – рогоз широколистный (*Typha latifolia* L.). Плотность посадки растений – 6 шт./м².

Началу эксперимента предшествовал подготовительный этап (50 сут), в течение которого на все площадки очистки с интервалом в 10 сут подавалась вода с постепенным увеличением в ней концентрации солей аммония с 0 до 30 мг/л NH₄⁺(0–10–10–30–30). Раствор нужной концентрации приготавливался путем разбавления хлорида аммония нехлорированной водопроводной водой. Данный период был необходим для установления равновесия в искусственных экосистемах (взаимодействие водной среды и субстрата).

После подготовительного этапа был начат эксперимент, состоящий из двух десятидневных циклов (время гидравлической задержки на всех площадках исследования составляло 10 сут). В течение эксперимента содержание ионов аммония в подаваемой на площадки воде составляло 60 мг/л. На площадки Л 1.3 и Л 2.3, согласно схеме эксперимента, подавался эффлюент (вода, прошедшая очистку) с площадок Л 1.2 и Л 2.2 соответственно.

По истечении каждого цикла вода, прошедшая очистку, выводилась с площадок в градуированную емкость для измерения объема эффлюента. Содержание аммония, нитритов и нитратов оценивалось фотометрически на спектрофотометре Apel PD303 (Япония), температура воды и уровень pH измерялись потенциометрическим методом с использованием датчика температуры (ДТУ-4-01), электрода ЭС-10601 и иономера Мультистест ИПЛ-513 (Новосибирск, Россия). Уровень растворенного кислорода определялся с использованием оксиметра Hanna HI 9142 (Hanna Instruments).

На протяжении всего эксперимента площадки находились в одинаковых внешних условиях (освещенность, температура, влажность), pH подаваемой на площадки воды варьировал в пределах 7,5–8,5.

Статистическая обработка и построение графиков выполнены в программе StatSoft Statistica 6.0.

Результаты исследования и обсуждение

Присутствие кислорода в сточных водах, поступающих на очистку, является одним из главных факторов, определяющих протекание того или иного процесса трансформации загрязняющих веществ. Так, повышение содержания растворенного кислорода в стоках оказывает существенное влияние на скорость нитрификации, в то время как для денитрификации необходимы анаэробные условия: этот процесс сильно угнетается или прекращается полностью в присутствии молекулярного кислорода, анаммокс-процесс также возможен лишь в бескислородных условиях среды [17].

На экспериментальных площадках в течение всего периода их функционирования концентрация растворенного кислорода в воде контейнеров увеличивалась, в среднем, с 6,2 до 9,9 мг/л. Наиболее значительные изменения по этому показателю были отмечены на площадках Л 1.1 и Л 1.2, где наблюдался активный рост альгокомплекса. Содержание растворенного кислорода в воде контейнера Л 1.2 увеличилось за десять дней цикла с 5,79 до 14,12 мг/л. На площадках подповерхностного потока Л 1.3 и Л 2.3 концентрация растворенного кислорода не превышала 2 мг/л.

Другой общей тенденцией функционирования площадок стало устойчивое снижение концентрации аммонийного азота. Общий вид кривых, показывающих изменение концентрации NH_4^+ в воде площадок очистки, представлен на рис. 2.

Как видно из рис. 2, снижение содержания ионов аммония происходит быстрее в течение первых трех суток эксперимента, затем несколько замедляется. Следовательно, экспериментальные кривые можно визуальнo разделить на два участка – быстрого и медленного удаления.

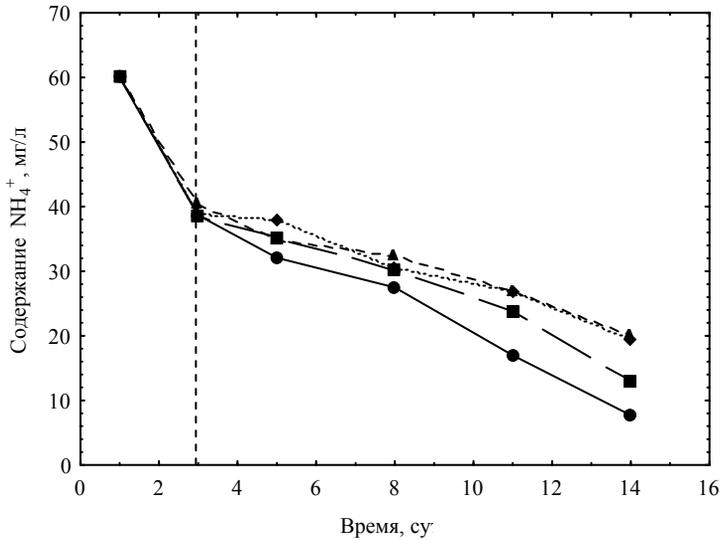


Рис. 2. Изменение содержания NH_4^+ в воде площадок очистки на протяжении цикла функционирования. ▲ – Л 1.1; ◆ – Л 1.2; ■ – Л 2.1; ● – Л 2.2

Полученные данные об изменении содержания NH_4^+ были аппроксимированы линейной зависимостью содержания ионов аммония в воде площадок от времени. На основании экспериментальных данных были рассчитаны скорости удаления аммония в воде площадок, которые представлены в таблице. Скорость рассчитывалась как тангенс угла наклона теоретически полученных прямых к оси абсцисс.

Скорость удаления NH_4^+ из воды, поступающей на экспериментальные модельные системы очистки, мг/л·сут

Период эксперимента	Вариант эксперимента	1-й цикл	2-й цикл
С начала эксперимента до 3-х сут (быстрое удаление)	Л 1.1	$12,54 \pm 0,25$	$9,85 \pm 0,19$
	Л 1.2	$10,70 \pm 0,21$	$8,70 \pm 0,17$
	Л 2.1	$10,00 \pm 0,20$	$10,70 \pm 0,21$
	Л 2.2	$10,00 \pm 0,20$	$10,68 \pm 0,21$
С 3-х сут до конца эксперимента	Л 1.1	$2,63 \pm 0,05$	$1,66 \pm 0,03$
	Л 1.2	$2,56 \pm 0,05$	$1,56 \pm 0,03$
	Л 2.1	$1,88 \pm 0,04$	$2,28 \pm 0,05$
	Л 2.2	$1,92 \pm 0,04$	$2,57 \pm 0,05$

Представленные в таблице данные показывают, что в течение первого цикла эксперимента на площадках первой линии (без растительности) наблюдаются высокие скорости удаления аммония, что, вероятно, связано с повышенным содержанием растворенного кислорода в воде площадок, необходимого для осуществления реакции нитрификации. Эффективность удаления NH_4^+ из воды площадок первой линии исследования составила 70 и

65,5%. Во втором цикле эксперимента скорость удаления аммония из воды площадок Л 1.1 и Л 1.2 статистически значимо ($p < 0,05$) снизилась как в период быстрого, так и в период медленного удаления. Эффективность очистки воды также снизилась по сравнению с данными, полученными в первом цикле эксперимента, и составила 55 и 55,5% соответственно.

На площадках второй линии эксперимента скорость удаления ионов аммония во втором цикле эксперимента, по сравнению с первым, не только не снижается, но статистически значимо увеличивается ($p < 0,05$). Эффективность очистки воды от NH_4^+ во втором цикле эксперимента также повышается: в течение первого цикла эффективность удаления аммония из воды площадок Л 2.1 и Л 2.2 составляла 55,2 и 55%, а в течение второго цикла – 60,4 и 71,1% соответственно.

Подобная общая тенденция снижения скорости и эффективности удаления аммония на площадках первой линии, вероятно, связана с вымыванием микроорганизмов площадок с эффлюентом, тогда как на площадках второй линии макрофиты создают дополнительные поверхности для прикрепления и удержания микроорганизмов, обеспечивающих разложение аммонийного азота, на стеблях и ризоме растений. Кроме того, растения обеспечивают дополнительное поступление органических веществ микроорганизмам за счет выделений корневых экссудатов.

Что касается трансформации соединений азота, то появление нитратов – конечного продукта окисления аммония, в воде площадок Л 1.1 и Л 1.2 во второй половине цикла служит важным показателем степени очистки воды от аммонийного азота посредством нитрификации [17]. При этом в системах также отмечалось появление нитритов, но их концентрация на протяжении цикла оставалась на низком уровне в связи с быстрым окислением до нитратов. Повышенное содержание растворенного кислорода, возможно образованное за счет жизнедеятельности альгокомплекса, обеспечило полное прохождение реакции нитрификации, тогда как на площадках второй линии вторая фаза нитрификации была замедлена, о чем свидетельствовали стабильное накопление нитритов и минимальная концентрация нитратов в воде этих площадок. Данная схема трансформации аммонийного азота позволяла к концу экспериментального цикла создавать подходящее соотношение ионов аммония и нитритов для начала анаммокс-процесса в случае переноса обрабатываемой воды в анаэробные условия подповерхностной системы очистки.

Известно, что внесение известняка в почвенный субстрат площадок «constructed wetlands» оказывает влияние на процессы удаления азота из воды посредством стабилизации уровня кислотности, измененного в ходе нитрификации, а также повышает производство нитритов на площадке [18]. Однако в наших экспериментах существенных различий показателя кислотности на площадках Л 1.1 и Л 1.2, Л 2.1 и Л 2.2 отмечено не было; возможно, эффект от присутствия известняка в субстрате наблюдался бы при вертикальном режиме фильтрации.

В системах Л 1.3 и Л 2.3, в которые подавалась вода после предварительной обработки на площадках Л 1.2 и Л 2.2 согласно схеме эксперимента, поддерживалась минимальная концентрация растворенного кислорода

(1–2 мг/л). Такие условия создавали возможность естественного партнерства бактерий-нитрификаторов и анаммокс-бактерий в системах подповерхностного потока. Кислород, присутствующий в воде, подаваемой на площадку, мог использоваться для окисления загрязнителей бактериями-нитрификаторами, что позволяло оградить от ингибирующего действия растворенного кислорода анаммокс-сообщество. Полученные в ходе экспериментов данные показывают, что в воде, поступающей на площадку Л 2.3, соотношение концентраций NO_2^- и NH_4^+ находится на уровне, при котором анаэробное окисление аммония возможно, а содержание нитритов находится ниже ингибирующего уровня [9].

Поскольку концентрация растворенного кислорода в воде площадки Л 2.3 была минимальна и при этом в нем наблюдалось полное удаление NH_4^+ и NO_2^- , то можно предположить, что удаление ионов аммония и нитритов нельзя связывать только с реакцией нитрификации на площадке, но также можно говорить о возможной реализации в этих условиях анаммокс-процесса. Для точного определения возможности включения анаммокс-процесса в системы почвенно-болотной очистки сточных вод требуется более длительное наблюдение, поскольку скорость удвоения биомассы анаммокс-бактерий крайне низкая [9].

Таким образом, наличие высшей водной растительности в системах горизонтального поверхностного потока почвенно-болотной системы очистки сточных вод способствует повышению скорости и эффективности удаления аммонийного азота и уменьшает вымывание микрофлоры с эфлюентом. Это является важным аспектом при проектировании и строительстве очистных сооружений подобного типа ввиду короткой гидравлической задержки и высокой скорости прохождения очищаемой воды на последних. Использование известняка в фильтрующей загрузке не оказало влияния на изменения pH воды, поскольку выбранные для исследования системы горизонтального поверхностного потока не обеспечивают контакта очищаемой воды с глубокими слоями фильтрующей загрузки.

Литература

1. *Vymazal J.* Constructed wetlands for wastewater treatment // *Ecological engineering*. Editorial. 2005. P. 3–5.
2. *Gutierrez-Sarabia A., Fernandez-Villagomez G., Martinez-Pereda P.* Slaughterhouse wastewater treatment in a full-scale system with constructed wetlands // *Water Environment Research*. 2004. № 4. P. 334–343.
3. *Jenssen, P.D. et al.* Potential use of Constructed Wetlands for Wastewater Treatment in Northern Environments // *Water Science Techniques*. 1993. Vol. 28, № 10. P. 149–157.
4. *Mashauri D.A., Mulungu D.M.M., Abdulhussein B.S.* Constructed wetland at the University of Dar Es Salaam // *Water Research*. 2000. Vol. 34, № 4. P. 1135–1144.
5. *Dunbabin J.S., Bowner K.H.* Potential use of constructed wetlands for treatment of industrial wastewaters containing metals // *Science of the Total Environment*. 1992. Vol. 111, № 2/3. P. 56–60.
6. *Сивкова Е.Е., Семёнов С.Ю.* Использование технологии «constructed wetlands» для очистки сточных вод малых населенных пунктов и предприятий // *Вестник Томского государственного университета. Биология*. 2010. № 4 (12). С. 123–130.

7. *Constructed Wetlands Treatment of Municipal Wastewaters Manual* – National Risk Management Research Laboratory; Office of Research and Development; U.S. Environmental Protection Agency. Cincinnati, Ohio 45268 EPA/625/R-99/010 September 1999.
8. Kalyuzhnyi S., Gladchenko M., Mulder A., Versprille B. New anaerobic process of nitrogen removal // *Water Science Technology*. 2006. № 54 (8). P. 163–170.
9. Анюшева М.Г., Калюжный С.В. Анаэробное окисление аммония: микробиологические, биохимические и биотехнологические аспекты // *Успехи современной биологии*. 2007. Т. 127, № 1. С. 34–43.
10. Kalyuzhnyi S., Gladchenko M., Mulder A., Versprille B. DEAMOX – new biological nitrogen removal process based on anaerobic ammonia oxidation coupled to sulphide driven conversion of nitrate into nitrite // *Water Res.* 2006. № 40. P. 3637–3645.
11. Furukawa K. et al. Innovative treatment system for digester liquor using anammox process // *Bioresour. Technol.* (2009), doi:10.1016/j.biortech.2008.11.055.
12. Hellinga C., Schellen A.A.J.C., Mulder J.W. et al. The SHARON process: an innovative method for nitrogen removal from ammonium rich waste water // *Water Science and Technology*. 1998. Vol. 37, № 9. P. 135–142.
13. Kadlec R.H., Tanner C.C., Hally V.M., Gibbs M.M. Nitrogen spiraling in subsurface-flow constructed wetlands: Implications for treatment response // *Ecological Engineering*. 2005. № 25. P. 365–381.
14. Donga Z., Suna T. A potential new process for improving nitrogen removal in constructed wetlands – Promoting coexistence of partial-nitrification and ANAMMOX // *Ecological engineering*. 2007. № 31. P. 69–78.
15. Faulwetter J.L., Gagnon V., Sundberg C. et al. Microbial processes influencing performance of treatment wetlands: A review // *Ecological Engineering*. 2009. № 35. P. 987–1004.
16. Molle P., Prost-Boucle S., Lienard A. Potential for total nitrogen removal by combining vertical flow and horizontal flow constructed wetlands: A full-scale experiment study // *Ecological engineering*. 2008. № 34. P. 23–29.
17. *Практикум по микробиологии: Учеб. пособие для студ. высш. учеб. заведений / А.И. Нетрусов, М.А. Егорова, Л.М. Захарчук и др.; под ред. А.И. Нетрусова. М.: Академия, 2005. 608 с.*
18. Tao W., Wang J. Effects of vegetation, limestone and aeration on nitrification, anammox and denitrification in wetland treatment systems // *Ecological engineering*. 2009. № 35. P. 836–842.

Поступила в редакцию 15.01.2011 г.

Elena E. Sivkova, Ekaterina V. Pribytkova

*Biological Institute of Tomsk State University, Tomsk, Russia
Research Institute of Biology and Biophysics of Tomsk State University, Tomsk, Russia*

THE EFFECTS OF *Typha latifolia* AND COMPONENTS OF FILTER MEDIA ON AMMONIA NITROGEN REMOVAL IN CONSTRUCTED WETLAND TREATMENT SYSTEMS

Ecological engineering offers today one of the most perspective technologies for wastewater treatment, called «constructed wetlands» treatment systems. «Constructed wetlands» are artificial wetlands using as wastewater treatment plants which rely upon natural microbial, biological, physical and chemical processes to treat wastewater with minimal economical and ecological costs. In recent years numerous researches have covered various aspects of using «constructed wetlands» such as the role of wetland vegetation and its species in systems, using different types of substrate, vegetation man-

agement. All this aspects can influence on increasing of system's efficiency in wastewater treatment.

This research revealed the effects of macrophyte species (broadleaved cattail – *Typha latifolia*) and limestone in filter media on ammonia nitrogen removal in lab-scale free water surface (FWS) «constructed wetlands». The two lines of experimental wetlands consisted of six wetland cells constructed with clear polypropylene containers (52*34 cm and height 28 cm) in volume of 50 litres.

It is found out that vegetation in FWS wetlands raises velocity, efficiency of NH_4^+ removal and reduces washing away of microorganisms with effluents likely due of creating of additional surface for bacteria's attachment. It is a very important aspect of «constructed wetlands» designing and building in view of a short hydraulic retention time and high speed of processing water in this kind of «constructed wetland» systems. Limestone used in filter media in this experiment has not influenced to acidity level of water because chosen in this research horizontal surface flow constructed wetlands did not provide contact water with deep layers of filter media.

Key words: wastewater treatment; constructed wetlands; anammox; *Typha latifolia*; macrophyte species.

Received January 15, 2011