



文章栏目: 水污染防治

DOI 10.12030/j.cjee.201907050

中图分类号 X522

文献标识码 A

唐婧, 杨羽菲, 陈金楠. 微电解耦合固相反硝化脱氮除磷效果及微生物分析[J]. 环境工程学报, 2020, 14(5): 1224-1233.

TANG Jing, YANG Yufei, CHEN Jinnan. Nitrogen and phosphorus removal performance of microelectrolysis coupled with solid denitrification and its microbial community analysis[J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2020, 14(5): 1224-1233.

微电解耦合固相反硝化脱氮除磷效果及微生物分析

唐婧^{1,*}, 杨羽菲¹, 陈金楠²

1. 沈阳建筑大学市政与环境工程学院, 沈阳 110168

2. 沈阳城市建设学院市政与环境工程系, 沈阳 110167

第一作者: 唐婧(1980—), 女, 博士, 副教授。研究方向: 水污染控制理论与技术研究。E-mail: fairy_ben@163.com

*通信作者

摘要 为提高低碳氮比污水中氮、磷的去除率, 通过铁碳微电解耦合固相反硝化系统强化生物脱氮除磷的效果, 分别考察了 HRT、DO、pH 对耦合系统中氮、磷去除效果的影响, 并对铁碳颗粒(FC)、固体碳源颗粒(CC)和悬浮污泥(SS)的微生物群落结构进行了分析。结果表明: 当进水 C/N=1.5 时, 耦合系统的最佳运行参数为 HRT=4 h、DO=2.0 mg·L⁻¹、pH=7.0; 此时 NH₄⁺-N、NO₃⁻-N、TN、TP 的去除率分别为 95.63%、93.48%、94.72%、99.10%。高通量测序分析结果表明: 在门水平上, 3 个样本(FC、CC、SS)中的优势菌门为 *Proteobacteria*、*Actinobacteria* 和 *Bacteroidetes*, 其中具有反硝化脱氮功能的 *Proteobacteria* 在 FC、CC、SS 中分别占样本总数的 72.66%、67.43%、68.66%; 在纲水平上, SS 中 *Alphaproteobacteria* 的相对丰度显著高于 FC 和 CC, FC 中的 *Gammaproteobacteria* 的相对丰度显著高于 CC 和 SS, CC 中的 *Gemmatimonadetes* 相对丰度明显高于 FC 和 SS, 生物除磷主要发生在 CC 中; 在属水平上, *Gemmobacter* 在 FC、CC、SS 中的相对丰度分别为 25.50%、23.64%、32.53%, 对异养反硝化过程起到重要作用。以上结果有助于提高对微电解-自养/异养反硝化除磷耦合系统中微生物生态学的理解。

关键词 铁碳微电解; 固相反硝化; 脱氮除磷; 低碳氮比; 微生物群落

污水的脱氮过程主要由微生物完成, 温度与有机碳浓度是影响微生物处理效率的主要因素。微生物生长的最佳水温是 20~35 °C, 当水温在此范围之外时, 反硝化细菌的增殖代谢速率将降低, 致使反硝化速率也降低^[1]。此外, 菌体生长过程中需要有机物作为碳源提供其生长和反硝化过程所必需的能源, 当碳源不足时, 不能为反硝化提供充足的能量, 反应进行不彻底且造成中间产物亚硝酸盐的积累^[2]。近年来, 我国污水厂进水 COD/N 为 3~5, 有机物浓度偏低, 导致传统的反硝化工艺脱氮不彻底^[3-5]。铁碳微电解技术由于其对碳源的需求小、处理效果好、成本低廉以及操作维护方便等优点被国内外学者广泛关注^[6]。自养反硝化菌可利用铁碳微电解颗粒通过原电池反应生成的 Fe²⁺和 [H] 为电子供体进行自养反硝化反应^[7-8], 但是对于 COD/N<3~5 的污水, 若单独使用铁

收稿日期: 2019-07-09; 录用日期: 2019-10-15

基金项目: 辽宁省教育厅重点攻关项目(lnzd201902); 辽宁省自然科学基金资助项目(20180551254)

碳微电解技术会在处理中出现亚硝态氮积累的现象^[9]。为提高生化工艺的脱氮效果，大多数污水厂采用外加碳源的方式。投加固体碳源一方面可作为微生物的载体，另一方面可补充异养反硝化所需的碳源，从而获得较高的脱氮除磷效率^[10]。近年来，自养反硝化与异养反硝化的结合成为一种新的发展趋势。有研究^[11]发现，自养反硝化和异养反硝化在同一体系内可以协同完成完全反硝化过程。为提高对低 COD/N 污水的脱氮除磷效果，本研究采用铁碳微电解耦合固相反硝化强化生物脱氮除磷系统，通过在系统内投加铁碳微电解填料以及固体碳源颗粒，实现了自养/异养反硝化耦合脱氮，使得氮、磷被有效地去除。对此，分别考察了 HRT、DO、pH 对耦合系统脱氮除磷性能的影响，对门、纲、属 3 个水平上的微生物群落结构进行了多样性分析，从微生物生态学角度解析铁碳微电解-自养/异养反硝化除磷协同机制。

1 材料与方法

1.1 实验材料

实验用固体碳源选取玉米芯，采自阜蒙县生态园。将玉米芯蒸煮后洗净，切割成体积约为 1 cm³ 的方块，放入烘箱以 80 °C 进行干燥。然后将玉米芯置于 1.5% 的 NaOH 溶液中浸没 24 h，最后洗净、中和、烘干、密封保存。

在制备铁碳微电解填料时，将纳米级铁粉与活性炭按 1:2 混合，同时加入一定量石膏粉、铜粉和催化剂，然后加适量水制成粒径约为 10 mm 的球形颗粒，置于真空环境中干燥 24 h 后，再放入真空管式炉，以 900 °C 的高温进行烧结，待自然冷却之后密封保存。

在配制实验用水时，以葡萄糖为碳源、硝酸钾和氯化铵为氮源、磷酸二氢钾为磷源，人工配制低 C/N 污水。控制进水 C/N 为 1.5，NH₄⁺-N 质量浓度为 50 mg·L⁻¹，NO₃⁻-N 质量浓度为 25 mg·L⁻¹，TP 质量浓度为 (3.5±0.5) mg·L⁻¹；配水时加入 1 mg·L⁻¹ 酵母膏和 1 ml·L⁻¹ 微量元素溶液；使用 NaOH 和 H₂SO₄ 调节 pH。

实验中所用 SBR 为圆柱体形，由透明有机玻璃制成，高为 300 mm，内径为 200 mm，实际工作体积为 6.8 L。实验所用的固体碳源填料投加量为 25 g·L⁻¹，铁碳微电解填料的投加量为 28 g·L⁻¹，将 2 种填料装入反应器中，进水由反应器底部依次流经铁碳微电解填料层、固体碳源填料层后出水。反应周期包括进水 5 min，微曝气反应 6 h，沉淀 110 min，出水 5 min，1 个完整周期为 8 h，每天运行 3 个周期，换水比为 1:5。反应温度控制在 20~25 °C。

1.2 分析项目

NH₄⁺-N、NO₃⁻-N、NO₂⁻-N、TN、TP 等指标采用标准方法测定。NH₄⁺-N 采用纳氏试剂分光光度法测定，NO₃⁻-N 采用紫外分光光度法测定，NO₂⁻-N 采用 N-(1-萘基)-乙二胺光度法测定，TN 采用碱性过硫酸钾-紫外分光光度法测定，TP 采用过硫酸钾消解-钼锑抗分光光度法测定，COD、DO、pH 分别采用重铬酸钾法、便携式溶解氧仪、pH 计测定。

1.3 微生物多样性分析

在耦合系统运行稳定时，取出适量的铁碳微电解填料以及玉米芯，装入 50 mL 的离心管中，再加入一定量蒸馏水振荡，采集铁碳填料上和玉米芯上脱落的微生物样品（分别记为 FC 和 CC），同时采集系统内悬浮的微生物样品（记为 SS），6 000 r·min⁻¹ 高速离心后，密封并置于 -20 °C 低温冰箱中保存待测。

取不同微生物离心样品，使用 E.Z.N.ATM Mag-Bind Soil DNA Kit 试剂盒 (OMEGA) 进行 DNA 提取。利用 1% 琼脂糖凝胶电泳检测抽提的基因组 DNA。而后进行 PCR 扩增，扩增过程与 WANG 等^[12] 的研究过程一致，扩增后切胶回收 PCR 产物并进行电泳检测。使用 Qubit3.0 DNA 检测试剂盒精确定量回收 DNA，每个样品 DNA 量取 10 ng，基因测序和序列处理与朱文优^[13] 研究方法一致，最后

将 OUT 代表序列与 Silva 数据库比对,并在门、纲、属 3 个水平统计每个样品的群落组成,最后对各样本数据的质量进行质控过滤,得到各样本有效数据,然后对数据进行优化处理。在数据处理及统计完成后,进行 Alpha 多样性分析、物种分类分析和菌群差异分析。

2 结果与讨论

2.1 铁碳微电解填料的脱氮除磷效果

图 1 反映了溶解氧 (DO) 浓度小于 $0.5 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、大于 $0.5 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时不同铁碳比例的铁碳微电解填料处理后的出水 TN、TP 浓度变化结果。由图 1 可知,当系统内 $\text{DO}<0.5 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时,各组分 TN 去除效果并不理想,主要是因为铁碳微电解作用将硝态氮氧化还原为氨氮;而氨氮由于缺少溶解氧,无法进行硝化作用;当系统内 $\text{DO}>0.5 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时,经 Fe/C 比为 1:2 的铁碳微电解填料处理的出水 TN 浓度最低,稳定于 $7.13 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,去除率为 89.81%,此时磷的去除率为 99.1%。由于铁碳微电解填料对氮的去除效果不佳,故须建立铁碳微电解-固体碳源耦合系统,加强对氮、磷的去除。

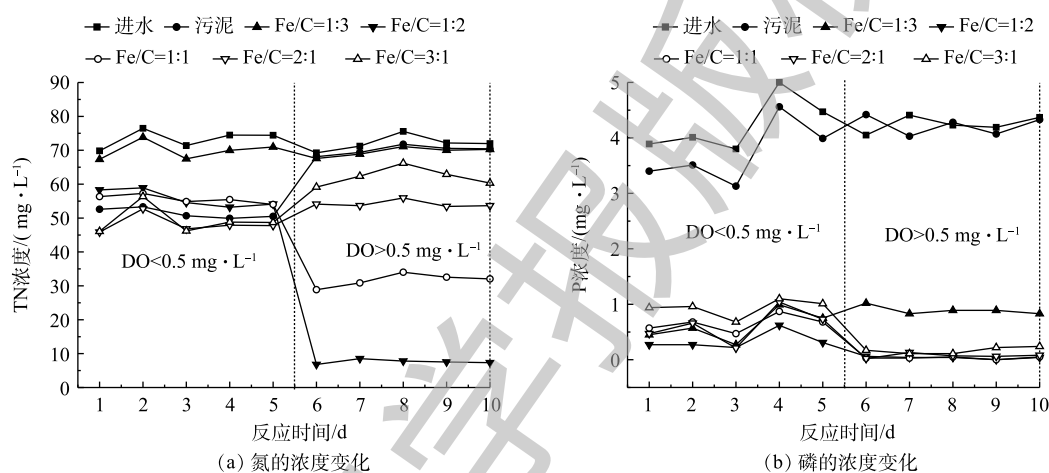


图 1 铁碳微电解填料对脱氮除磷效果的影响

Fig. 1 Effect of iron-carbon microelectrolysis filler on nitrogen and phosphorus removal

2.2 水力停留时间 (HRT) 对耦合系统脱氮除磷效果的影响

控制耦合系统进水溶解氧 (DO) 浓度为 $(2.0\pm 0.1) \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、pH 为 7.0 ± 0.1 , 在 HRT 为 2、3、4、5 h 时分别测定出水中的 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 、TN、TP 的浓度, 结果如图 2 所示。由图 2 可知, $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 的浓度从 0 h 到 2 h 大幅降低, 0~2 h 时去除速率为 $7.5 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{h})^{-1}$, 2~4 h 时去除速率降为 $2.0 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{h})^{-1}$, 4 h 后去除速率接近为 $0 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{h})^{-1}$, 此时水中 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 的浓度为 $1.5 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{h})^{-1}$ 。 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 浓度也随着反应时间的延长而减小, 4 h 后水中 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的浓度为 $1.9 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{h})^{-1}$ 。 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 在反应过程中并未出现积累的现象。 TN 浓度的变化趋势与 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 和 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 大致相同, 反应 4 h 后, 去除速率由 $22 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{h})^{-1}$ 降低到 $6.5 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{h})^{-1}$ 。水中 TP 的去除速率由 $0.9 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{h})^{-1}$ 下降到 $0.4 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{h})^{-1}$, 直至趋于稳定。反应前 2 h, 氮、磷污染物浓度较高, 在与玉米芯、铁碳微电解填料和活性污泥充分接触后, 获得较高的去除速率。反应初期, $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除速率高于 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 去除速率, 主要因为进水 C/N 比低, 有机碳源不足, 难以进行异养反硝化。此时铁碳微电解产生的氢、 Fe^{2+} 为自养反硝化过程提供了电子供体, 随着固体碳源玉米芯的缓慢降解释放碳源, 为异养反硝化提供较为充足的电子供体, 异养反硝化产生的 CO_2 被自养反硝化菌作为无机碳源加以利用^[11]。在自养反硝化菌与异养反硝化菌的共同作用下将氮从系统中去除, 磷与铁碳微电解反应溶出的铁离子接触反应生成沉淀而去除^[14-15]; 当 HRT 继续增加时, 系统内 N、P 污染物浓度较低, 去除速率逐渐降低^[16]。因此, 铁碳微电解耦合固相反硝化强化生物脱氮除磷系统的最佳 HRT 为 4.0 h。

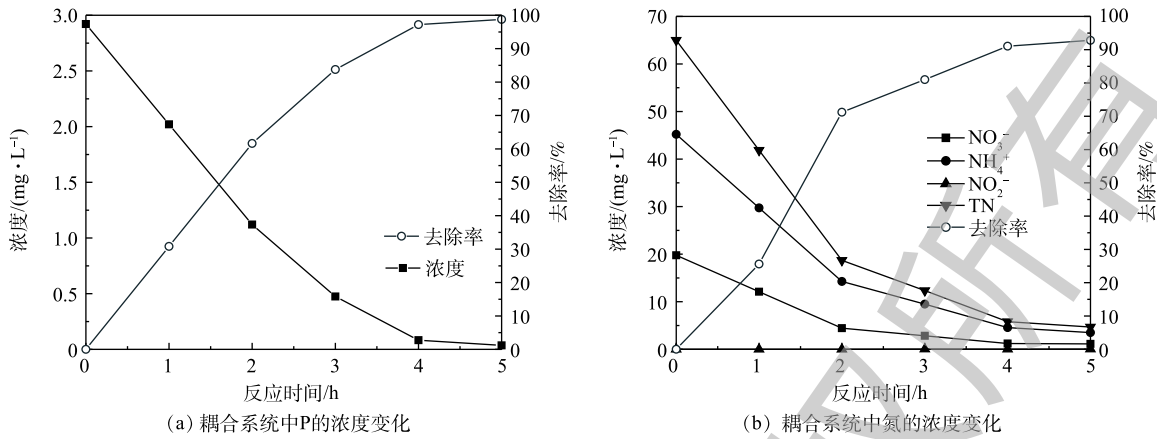


图 2 HRT 对耦合系统脱氮除磷效果的影响

Fig. 2 Effect of HRT on nitrogen and phosphorus removal in the coupled system

2.3 DO 对耦合系统脱氮效果的影响

由于 DO 对于系统除磷效果的影响很小^[17]，因此，本节只考察进水 DO 对于耦合系统脱氮效果的影响，控制进水 DO 的浓度分别为 (1.0±0.1)、(1.5±0.1)、(2.0±0.1)、(2.5±0.1) 和 (3.0±0.1) mg·L⁻¹，HRT 为 4.0 h、进水 pH 为 7.0±0.1，结果如图 3 所示。由图 3(a) 可知，当 DO 为 (1.0±0.1)、(1.5±0.1)、(2.0±0.1)、(2.5±0.1) 和 (3.0±0.1) mg·L⁻¹ 时，出水 NH₄⁺-N 浓度分别为 32.74、15.48、2.28、1.96 和 1.97 mg·L⁻¹，出水 NO₃⁻-N 浓度分别为 0.78、1.45、2.50、7.17 和 10.30 mg·L⁻¹。分析认为，NH₄⁺-N 在硝化细菌的作用下可转化为 NO₂⁻-N 以及 NO₃⁻-N，一部分 NH₄⁺-N 水解电离，NH₃ 在曝气作用下吹脱；NO₃⁻-N 的减少与反硝化脱氮以及化学还原有关。由图 3(b) 可知，NH₄⁺-N 的去除率随 DO 浓度的增加由 29.58% 升高到 95.63%，直至趋于稳定；而在 DO 浓度超过 (2.0±0.1) mg·L⁻¹ 时，NO₃⁻-N 的去除率由 93.48% 降低到 56.72%，这是由于 DO 对于 NH₄⁺-N 在硝化细菌的作用下转化有积极作用，而当底物浓度一定，DO 浓度增加至一定值时，NH₄⁺-N 的去除率将不再随 DO 浓度的增大而升高；在中性条件下，DO 浓度较大时，电子的大量消耗抑制了自养反硝化过程，同时生成了大量的碱，降低反硝化细菌的活性。此外，DO 浓度不宜过大，否则会对填料表面生物膜产生冲刷，使微生物不易于附着，从而影响系统的脱氮效果。因此，铁碳微电解耦合固相反硝化强化生物脱氮除磷系统适宜的 DO 浓度为 (2.0±0.1) mg·L⁻¹。

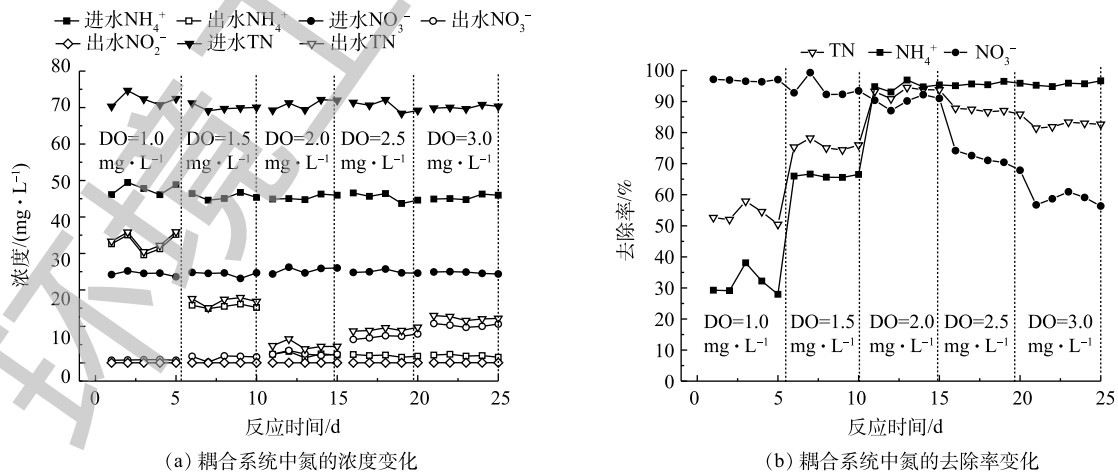


图 3 DO 对耦合系统脱氮效果的影响

Fig. 3 Effect of DO on nitrogen removal in the coupled system

2.4 pH对耦合系统脱氮除磷效果的影响

为考察进水 pH 对耦合系统脱氮除磷效果的影响, 控制 HRT、进水 DO 浓度分别为 4.0 h、 $(2.0\pm 0.1)\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 以 NaOH 和 H_2SO_4 调节进水 pH 分别为 5.5 ± 0.1 、 6.0 ± 0.1 、 6.5 ± 0.1 、 7.0 ± 0.1 、 7.5 ± 0.1 、 8.0 ± 0.1 、 8.5 ± 0.1 , 结果如图 4 所示。由图 4 可知, $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的去除率随 pH 的升高由 83.13% 升高至 95.63%, 当 pH 超过 7.0 ± 0.1 时, $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除率由 95.63% 下降至 89.05%; 同时 $\text{NO}_3^+\text{-N}$ 的去除率也随 pH 的升高而升高, 在 pH 超过 7.0 ± 0.1 时, $\text{NO}_3^+\text{-N}$ 去除率由 93.48% 下降至 70.35%; $\text{NO}_2^+\text{-N}$ 在反应过程中一直处于较低水平, 未出现积累; TN 的去除率在 pH 为 7.0 ± 0.1 时达到最高, 为 94.72%。分析认为, 硝化细菌和氨化细菌适宜 pH 为 7.5~8.5, 反硝化细菌适宜 pH 为 7.0~8.0。当进水 pH 不在所适范围内, 硝化细菌、氨化细菌以及反硝化细菌的活性将会受到抑制, 使得耦合系统脱氮效果下降。因此, 耦合系统的适宜进水 pH 为 7.0 ± 0.1 , 此时, $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^+\text{-N}$ 、TN 以及 TP 的去除率分别为 95.63%、93.48%、94.72% 以及 99.10%。

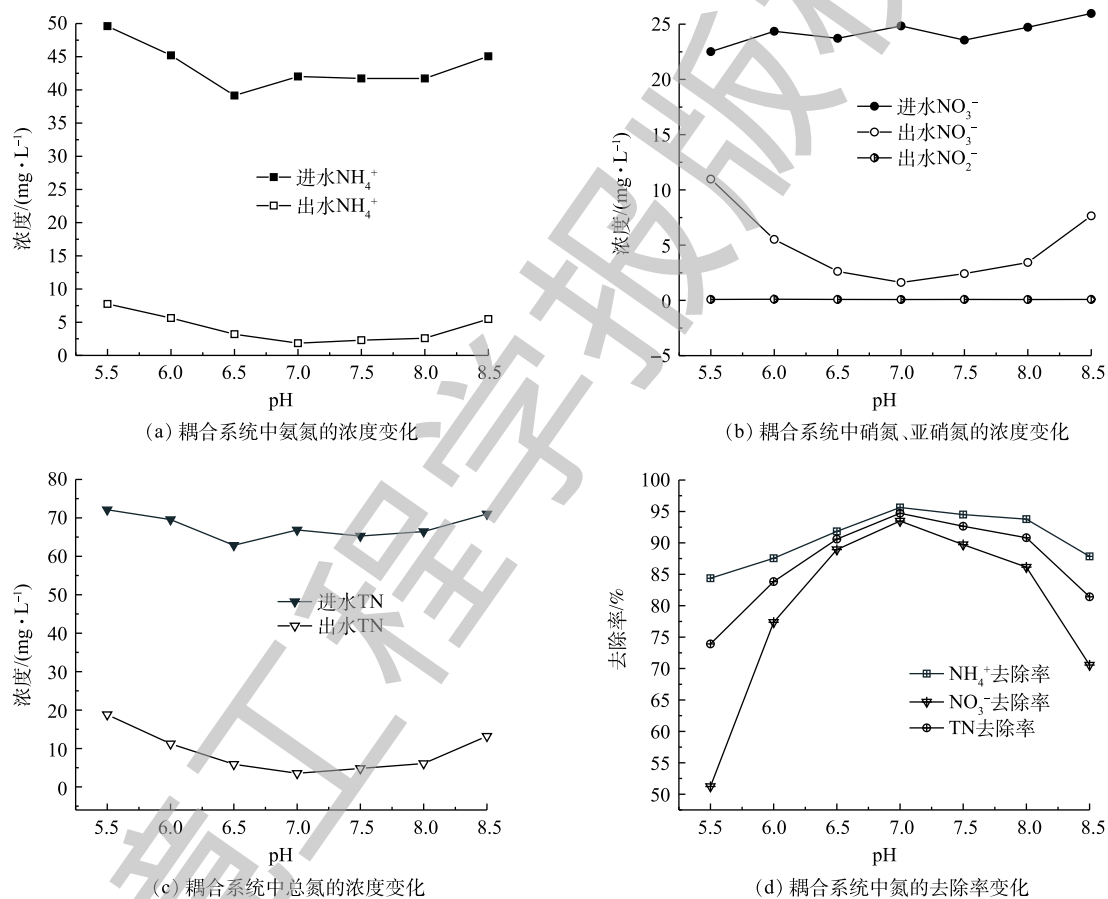


图 4 pH 对耦合系统脱氮效果的影响

Fig. 4 Effect of pH on nitrogen removal in the coupled system

2.5 耦合系统微生物群落分析

高通量测序技术作为新型微生物种群鉴定技术, 具有分析结果准确、高速、高自动化和高灵敏度等特点, 能够准确分析生物的多样性, 故广泛应用于环境微生物鉴定领域^[18]。因此, 本研究采用 Miseq 高通量测序技术对铁碳微电解-固相反硝化耦合系统中的微生物结构进行分析。

1) 微生物群落结构比较分析。图 5 为耦合系统在门水平上的物种相对丰度, 表 1 为在门水平上, 各样本中主要种群的分布情况。由图 5 和表 1 可知, 3 个样本 (FC、CC、SS) 中的优势菌门为

具有反硝化脱氮功能的变形菌门 *Proteobacteria*，在 3 个样本 (FC、CC、SS) 中分别占样本总数的 72.66%、67.43%、68.66%。变形菌是污水处理中最为重要的微生物之一，对污染物生物降解有着重要作用，大多数反硝化菌属于变形菌门 *Proteobacteria*^[19-20]，说明系统的脱氮能力稳定。放线菌门 *Actinobacteria* 在 FC、SS 中的相对丰度显著高于 CC。拟杆菌门 *Bacteroidetes* 在 CC、SS 中的相对丰度显著高于 FC。芽单胞菌门 *Gemmatimonadetes* 在 CC 中的相对丰度为 4.61%，显著高于 FC、SS。分析认为，*Gemmatimonadetes* 可分解纤维素类物质，作用于固体碳源的释碳过程^[21]，该过程主要发生在 CC 中。

图 6 为耦合系统在纲水平上的物种相对丰度情况，表 2 为在纲水平上各样本中主要种群的分布情况。由图 6 和表 2 可知， α -变形纲 *Alphaproteobacteria* 在 3 个样本 (FC、CC、SS) 中所占样本总数最高，分别为 36.73%、37.21%、46.18%，在 SS 中的相对丰度显著高于 FC、CC。FC 中的 γ -变形菌纲 *Gammaproteobacteria* 的相对丰度显著高于 CC 和 SS，对于有机物的降解以及碳、氮、硫等元素的循环起关键性作用，同时对于脱氮过程也发挥着重要作用，对于污水处理较具优势^[22-24]。鞘脂杆菌纲 *Sphingobacteriia* 在 3 个样本 (FC、CC、SS) 中所占样本总数分别为 6.47%、11.12%、11.39%，在 CC 和 SS 中的相对丰度显著高于 FC。CC 中的 *Gemmatimonadetes* 相对丰度明显高于 FC 和 SS，所占样本比例为生物除磷主要发生在 CC 上。

为进一步阐明耦合系统运行过程中细菌群落的变化情况，在属的水平上，选取系统中占有比例较多的几种具有脱氮除磷功能的菌属进行分析，结果如图 7 和表 3 所示。由图 7 和表 3 可知，芽植杆菌属 *Gemmobacter* 在 FC、CC、SS 中的相对丰度分别为 25.50%、23.64%、32.53%，对于异养反硝化过程起到重要作用^[25]。铁矿砂单胞杆菌属 *Arenimonas* 在 FC、CC、SS 中的相对丰度分别为 6.09%、6.10%、5.75%，是最重要的自养反硝化菌属^[26]。*Thauera* 菌属在 CC、SS 中的相对丰度显著高于 FC，这是由于 *Thauera* 属于异养反硝化菌^[27]，而异养反硝化过程主要

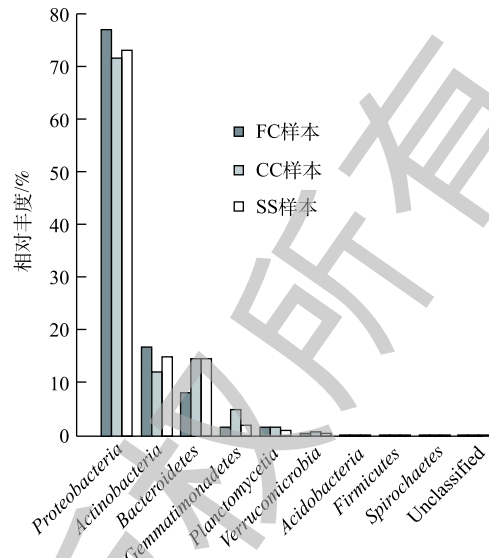


图 5 门水平的物种相对丰度
Fig. 5 Relative abundance of microbes at phylum level

表 1 门水平上各样本主要种群相对丰度
Table 1 Relative abundance of main population of each sample at the phylum level %

微生物种群	FC样本	CC样本	SS样本
<i>Proteobacteria</i>	72.66	67.43	68.66
<i>Actinobacteria</i>	15.86	11.47	14.06
<i>Bacteroidetes</i>	7.76	13.82	13.86
<i>Gemmatimonadetes</i>	1.50	4.61	1.89
<i>Planctomycetes</i>	1.49	1.56	0.85
<i>Verrucomicrobia</i>	0.34	0.62	0.38
<i>Acidobacteria</i>	0.15	0.14	0.10
<i>Firmicutes</i>	0.06	0.05	0.08

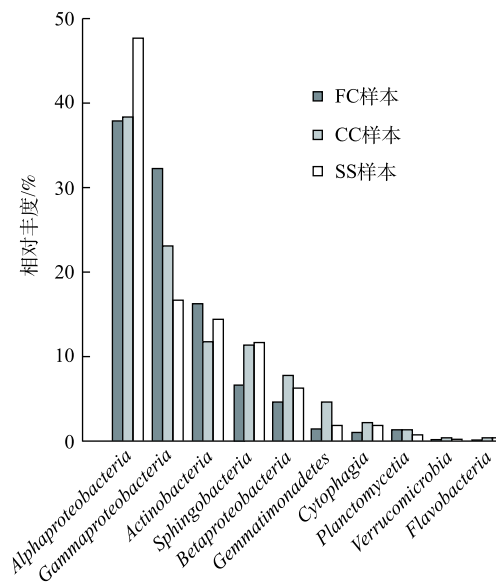


图 6 纲水平的物种相对丰度
Fig. 6 Relative abundance of microbes at class level

发生在CC中,SS中由于固体碳源颗粒的脱落也会发生异养反硝化反应,它们的存在为耦合系统脱氮除磷效果提供了保障。*Flaviumibacter*菌属可以参与碳循环,同时代谢碳水化合物^[28],出芽单孢菌属*Gemmatimonas*与除磷密切相关,新硝氨醇菌属*Novosphingobium*能够充分降解木质素,在CC、SS中的相对丰度高于FC。由图7和表3的分析可知,耦合系统中微生物群落不同位置,其特征也有所不同,故处理工艺与微生物群落结构之间存在着显著的映射关系。

2) 物种组成多样性分析。Alpha多样性可以定量地反映微生物群落的多样性,包括物种丰富度指数和物种多样性指数,结果如表4所示。经过质量控制后,得到优化序列分别为39 586、47 036、46 114条,平均长度分别为416.34、416.36、414.09 bp。在97%的相似度下,FC、CC、SS共得到了4 557个OTUs,其中FC中有

表2 纲水平上各样本主要种群相对丰度
Table 2 Relative abundance of main population of each sample at the class level %

微生物种群	FC样本	CC样本	SS样本
<i>Alphaproteobacteria</i>	36.73	37.21	46.18
<i>Gammaproteobacteria</i>	31.29	22.48	16.20
<i>Actinobacteria</i>	15.86	11.47	14.06
<i>Sphingobacteriia</i>	6.47	11.12	11.39
<i>Betaproteobacteria</i>	4.60	7.71	6.25
<i>Gemmatimonadetes</i>	1.50	4.61	1.89
<i>Cytophagia</i>	1.12	2.20	1.93
<i>Planctomycetia</i>	1.47	1.54	0.85

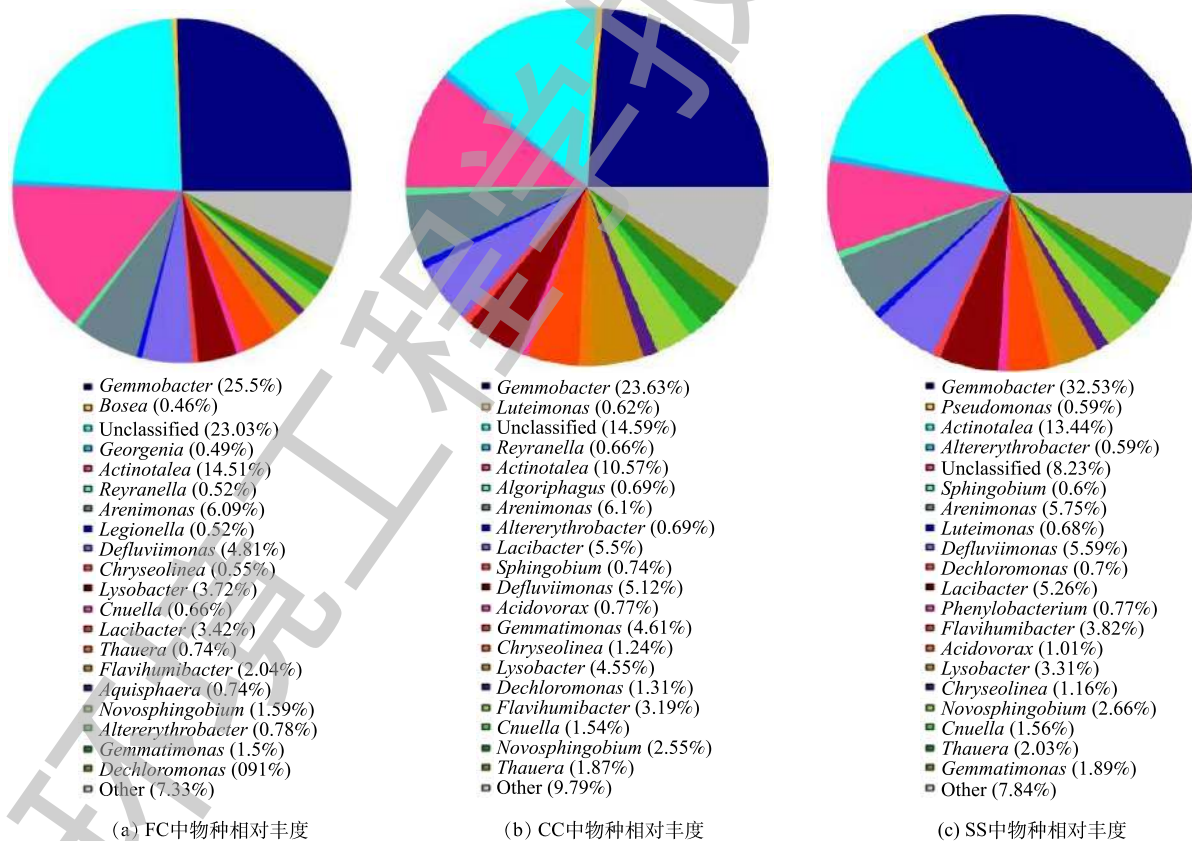


图7 属水平的物种相对丰度

Fig. 7 Relative abundance of microbes at genus level

1 544 个, CC 中有 1 947 个, SS 中有 1 700 个。Shannon、ACE、Chao1、Simpson 指数表明系统中脱氮除磷功能区细菌群落的丰富度, 其中丰富度指数 ACE 和 Chao1 可通过估算群落中所含 OTU 数目的指数来反映耦合系统中种群的丰富度, 数值越大, 表明其所含物种总数越多。由表 4 可知, 3 个样品的 Chao1、ACE 指数均为 CC>SS、FC, 表明固体碳源上的细菌群落丰富度最高, 这可能是由于系统脱氮的效果主要来自于固相反硝化过程。覆盖率越高, 样本中序列没有被测出的概率就越低, 实际反映了测序结果是否可以代表样本的真实情况; Shannon 指数可反映群落种类多样性, 指数越大, 耦合系统内群落的复杂程度越高。

表 3 属水平上各样本主要种群相对丰度
Table 3 Relative abundance of main population of each sample at the genus level %

微生物种群	FC样本	CC样本	SS样本
<i>Gemmobacter</i>	25.50	23.64	32.53
<i>Actinotalea</i>	14.61	10.57	13.44
<i>Arenimonas</i>	6.09	6.10	5.75
<i>Defluviimonas</i>	4.81	5.12	5.59
<i>Lacibacter</i>	3.42	5.50	5.26
<i>Lysobacter</i>	3.72	4.55	3.31
<i>Flaviumibacter</i>	2.04	3.19	3.82
<i>Gemmatimonas</i>	1.50	4.61	1.89
<i>Novosphingobium</i>	1.59	2.55	2.66
<i>Thauera</i>	0.74	1.87	2.03
<i>Dechloromonas</i>	0.91	1.31	0.70

表 4 多样性指数统计表
Table 4 Statistical table of diversity index

样本	序列数目	OTU数目	Shannon指数	ACE指数	Chao1指数	Simpson指数	覆盖率
CC	42 598	1 947	3.570 525	47 908.07	19 030.69	0.09	0.96
FC	34 926	1 544	3.096 69	47 852.3	15 750.33	0.13	0.96
SS	39 861	1 700	3.204 402	47 106.85	16 971.12	0.14	0.96

3 结论

1) 耦合系统在最佳运行参数的条件下, 氨氮、硝态氮、总氮、总磷的去除率分别为 95.63%、93.48%、94.72%、99.10%。

2) 高通量测序分析表明, 耦合系统中异养反硝化细菌 (*Gemmobacter*、*Defluviimonas*、*Thauera*、*Dechloromonas*) 的相对丰度处于较高水平, 同时存在着自养反硝化细菌 *Arenimonas* 以及能够分解纤维素、半纤维素、木质素相关的细菌 (*Actinotalea*、*Chryseolinea*、*Novosphingobium*), 这说明系统内脱氮除磷的过程是自养反硝化与异养反硝化相结合, 且为多种微生物的协同作用。

参考文献

- [1] 毛福荣, 张超, 刘石虎, 等. 基于好氧反硝化及反硝化聚磷菌强化的低温低碳氮比生活污水生物处理中试研究[J]. 中国给水排水, 2019, 35(15): 19-24.
- [2] 张树松, 樊月婷, 孙兴, 等. 菌株 *Diaphorobacter polyhydroxybutyrativorans* SL-205 的反硝化特性[J]. 中国环境科学, 2017, 37(9): 3532-3539.
- [3] 郑晓英, 乔露露, 王慰, 等. 碳源对反硝化生物滤池运行及微生物种群的影响[J]. 环境工程学报, 2018, 12(5): 1434-1442.
- [4] 孙迎雪, 胡银翠, 孙云祥, 等. 反硝化生物滤池深度脱氮机理[J]. 环境工程学报, 2012, 6(6): 1857-1862.
- [5] 丁怡, 宋新山, 严登华, 等. 补充碳源提取液对人工湿地脱氮作用的影响[J]. 环境科学学报, 2012, 32(7): 1646-1652.

- [6] 刘洋, 高健磊, 周子鹏. 铁碳微电解-ABR-改良CASS工艺处理制药废水[J]. *工业水处理*, 2019, 39(5): 92-94.
- [7] 尚亚丹, 李政伟, 海热提, 等. 间歇曝气铁碳微电解耦合人工湿地脱氮除磷研究[J]. *水处理技术*, 2018, 44(10): 99-102.
- [8] 王田野, 魏荷芬, 胡子全, 等. 一株异养硝化好氧反硝化菌的筛选鉴定及其脱氮特性[J]. *环境科学学报*, 2017, 37(3): 945-952.
- [9] 王昌稳, 雷泽远, 李军, 等. 铁碳微电解预处理高盐腌制废水的运行方式研究[J]. *中国给水排水*, 2018, 34(15): 95-99.
- [10] 钱胜强, 杨扬, 等. 5种植物材料的水解释碳性能及反硝化效率[J]. *环境工程学报*, 2014, 8(5): 1817-1824.
- [11] 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.
- [12] WANG Y Y, CHEN J, ZHOU S, et al. 16S rRNA gene high-throughput sequencing reveals shift in nitrogen conversion related microorganisms in a CANON system in response to salt stress[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2017, 317: 512-521.
- [13] 朱文优. 大曲中赭曲霉毒素A及其产生微生物的分布特征研究[D]. 无锡: 江南大学, 2017.
- [14] 何毅, 朱静平. 铁碳微电解系统对废水中TP去除的效果及影响因素[J]. *西南科技大学学报*, 2019, 34(1): 39-44.
- [15] 颜勇, 张佳男, 林涛, 等. 铁碳微电解/BAF预处理农村微污染原水[J]. *中国给水排水*, 2018, 34(23): 50-53.
- [16] WAMKAM C T, OPOKU M K, HONG H P. Effects of pH on heat transfer nanofluids containing ZrO_2 and TiO_2 nanoparticles[J]. *Journal of Applied Physics*, 2011, 109(1): 15-24.
- [17] 贾雪雷, 朱崇梅, 张婉, 等. 微电解法去除生活污水中磷的试验研究[J]. *水处理技术*, 2013, 39(10): 31-34.
- [18] 蒋志云, 韦佳敏, 缪新年, 等. ABR-MBR工艺反硝化除磷微生物群落特征分析[J]. *环境工程学报*, 2019, 13(7): 1-9.
- [19] MAO Y P, XIA Y, ZHANG T. Characterization of *Thauera*-dominated hydrogen-oxidizing autotrophic denitrifying microbial communities by using high-throughput sequencing[J]. *Bioresource Technology*, 2013, 128(1): 703-710.
- [20] ZHU I, GETTING T. A review of nitrate reduction using inorganic materials[J]. *Environmental Technology Reviews*, 2012, 1(1): 46-58.
- [21] 朱砺之, 黄娟, 傅大放, 等. 人工湿地生态系统中的微生物作用及PCR-DGGE技术的应用[J]. *安全与环境工程*, 2012, 19(2): 26-30.
- [22] 刘亚利, 袁一星, 李欣, 等. 污泥发酵液对 A_2O 脱氮除磷和微生物的影响[J]. *哈尔滨工业大学学报*, 2014, 46(10): 42-46.
- [23] FENG C, ZHANG Z, WANG S, et al. Characterization of microbial community structure in a hybrid biofilm-activated sludge reactor for simultaneous nitrogen and phosphorus removal[J]. *Journal of Environmental Biology*, 2013, 34(2SI): 489-499.
- [24] SHEN Z Q, ZHOU Y X, HU J, et al. Denitrification performance and microbial diversity in a packed-bed bioreactor using biodegradable polymer as carbon source and biofilm support[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2013, 250: 431-438.
- [25] 王思宇, 李军, 秀杰, 等. 添加芽孢杆菌污泥反硝化特性及菌群结构分析[J]. *中国环境科学*, 2017, 37(12): 4649-4656.
- [26] XING W, LI J L, CONG Y, et al. Identification of the autotrophic denitrifying community in nitrate removal reactors by DNA-

stable isotope probing[J]. *Bioresourc Technology*, 2017, 229: 134-142.

[27] 黄菲, 梅晓洁, 王志伟, 等. 冬季低温下MBR与CAS工艺运行及微生物群落特征[J]. *环境科学*, 2014, 35(3): 1002-1008.

[28] ZHANG Y, XIE X, JIAO N, et al. Diversity and distribution of *amoA*-type nitrifying and *nirS*-type denitrifying microbial communities in the Yangtze River estuary[J]. *Biogeosciences Discussions*, 2014, 11(8): 2131-2145.

(本文编辑: 曲娜, 郑晓梅, 张利田)

Nitrogen and phosphorus removal performance of microelectrolysis coupled with solid denitrification and its microbial community analysis

TANG Jing^{1,*}, YANG Yufei¹, CHEN Jinnan²

1. School of Municipal and Environmental Engineering, Shenyang Jianzhu University, Shenyang 110168, China

2. Department of Municipal and Environmental Engineering, Shenyang Urban Construction University, Shenyang 110167, China

*Corresponding author, E-mail: fairy_ben@163.com

Abstract In order to improve the removal efficiency of nitrogen and phosphorus in sewage with low carbon-nitrogen ratio, the effects of HRT, DO and pH on nitrogen and phosphorus removal were investigated in a coupled system of iron-carbon microelectrolysis and solid denitrification. The microbial community structure in the iron carbon particles (FC), solid carbon source particles (CC) and suspended sludge (SS) were analyzed. The results showed that when the influent C/N ratio was 1.5, the optimal operating parameters of the coupling system were HRT=4 h, DO=2.0 mg·L⁻¹, pH=7.0, and the removal rates of NH₄⁺-N, NO₃⁻-N, TN, TP were 95.63%, 93.48%, 94.72% and 99.10%, respectively. High-throughput sequencing analysis demonstrated that at the phylum level, the dominant bacteria in the three samples (FC, CC, SS) were *Proteobacteria*, *Actinobacteria* and *Bacteroidetes*, respectively. *Proteobacteria* with denitrifying and denitrifying functions in FC, CC, SS were accounted for 72.66%, 67.43% and 68.66% of the total sample, respectively. At the class level, the relative abundance of *Alphaproteobacteria* in SS was significantly higher than that in FC and CC, while *Gammaproteobacteria* in FC was significantly higher than that in CC and SS. Especially, the relative abundance of *Gemmatimonadetes* in CC was significantly higher than that of FC and SS, indicating that biological of phosphorus removal mainly occurred in CC. At the genus level, the relative abundances of *Gemmobacter* in FC, CC and SS were 25.50%, 23.64% and 32.53%, respectively, which played an important role in denitrification. This study would be helpful to improve the understanding of microbial ecology in the coupled system of microelectrolysis-autotrophic/autotrophic denitrifying and phosphorus removal.

Keywords iron carbon microelectrolysis; solid denitrification; nitrogen and phosphorus removal; low carbon to nitrogen ratio; microbial community