

不同碳源及电压对微生物电解池脱氮性能的影响

石书银, 张雨晴, 阮燕囡, 徐苏云, 刘洪波

(上海理工大学 环境与建筑学院, 上海 200093)

摘要: 在不同电压条件下, 考察微生物电解池(MEC)对模拟沼液中不同碳源(乙酸、富里酸)和总氮的脱除效果, 并分析其微生物群落结构变化。以乙酸为碳源, NO_3^- -N 几乎完全被去除, 化学需氧量(COD)去除率稳定在 72% 左右; 以富里酸为碳源, NO_3^- -N 和 COD 去除率分别下降至 40%~50% 和 50%~60%。比较而言, MEC 在 0.2~0.4 V 电压条件下 COD 和总氮去除性能更稳定; 在更高的电压(0.8 V)条件下, NO_3^- -N 的去除率最高上升至 52%, 但总氮去除率下降至 $(32.4\pm 3.7)\%$ 。高通量测序结果显示, 外加电压可以有效地提高微生物菌群抵抗底物负荷冲击的能力, 并增加 MEC 反应器内的菌群特别是自养脱氮菌的多样性和丰度。其中, 自养反硝化菌 *Thanuera* 的丰度由 4.35% 增长到 7.65%; 在以富里酸为碳源的 MEC 反应器中, 多种厌氧脱氮细菌被激活富集, 反硝化细菌 *Anaerolineae* 最大丰度为 11.16%, 厌氧氨氧化菌 *Planctomycetota* 的相对丰度由对照组的 0.41% 提升至 1.59%。

关键词: 微生物电解池; 微生物群落; 沼液; 富里酸; 反硝化

中图分类号: TK 02 文献标志码: A

Effect of different carbon sources and voltages on denitrification performance in microbial electrolysis cells

SHI Shuyin, ZHANG Yuqing, RUAN Yannan, XU Suyun, LIU Hongbo

(School of Environment and Architecture, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China)

Abstract: The removal rates of different carbon sources (acetic acid, fulvic acid) and total nitrogen in simulated biogas slurry was investigated in microbial electrolysis cell (MEC) under different voltage conditions, and the changes of microbial community structure were analyzed. With acetic acid as the carbon source, NO_3^- -N was almost completely removed, and the chemical oxygen demand (COD) removal rate was stable at about 72%. With fulvic acid as the carbon source, the NO_3^- -N and COD removal rates dropped to 40%~50% and 50%~60%, respectively. Comparatively, the removal efficiencies of COD and total nitrogen in MEC were more stable under the voltage of 0.2~0.4 V. Under the higher voltage of 0.8 V, the removal rate of NO_3^- -N rose to 52% but the total nitrogen removal rate dropped to $(32.4\pm 3.7)\%$. High-throughput sequencing results showed that the applied voltage can

收稿日期: 2022-02-18

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(52070130)

第一作者: 石书银(1998-), 男, 硕士研究生。研究方向: 有机固废处理与资源化。E-mail: ssy13607474770@163.com

通信作者: 徐苏云(1983-), 女, 副教授。研究方向: 固体废物处理与资源化利用。E-mail: xusy@usst.edu.cn

effectively improve the ability of microbial flora to resist the shock of substrate loading, and it also increase the bacterial diversity and abundance in MEC. Among them, the abundance of autotrophic denitrifying bacteria *Thanuera* increased from 4.35% to 7.65%. In the MEC reactor with fulvic acid as the carbon source, a variety of bacteria that play a role in anaerobic nitrification were activated and enriched, such as *Anaerolineae*, which abundance was increased to 11.16%. The relative abundance of Anammox bacteria *Planctomycetota* was increased from 0.41% in the control group to 1.59%.

Keywords: *microbial electrolysis cell; microbial community; biogas slurry; fulvic acid; denitrification*

生物脱氮主要是在氨化细菌、硝化细菌和反硝化细菌的共同作用下，将污水中的有机氮和 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 转化为 N_2 或其他含氮物质，使其从污水或污泥中去除。传统的硝化-反硝化脱氮工艺通常需要分别在好氧、缺氧两个阶段完成硝化、反硝化，由于反硝化对碳源的依赖，在实际脱氮工艺中，往往需要外加碳源以弥补低 C/N 污水碳源的不足。如何提高反硝化对碳源的利用率，是污水生物脱氮领域重要的科学问题^[1]。

生物电化学脱氮是利用一些富集在电极表面具有电化学生活性的氨氧化与反硝化微生物^[2]，催化电极表面与微生物之间的电子传递，进而实现氨氧化与反硝化的耦联脱氮过程^[3]。在微生物电解池 (microbial electrolysis cell, MEC) 中，阳极微生物利用有机物或氨氮为电子供体，电子通过外部电流通路将电子传递至阴极，阴极电活性微生物接收电子，用于硝酸盐或亚硝酸盐的还原^[4]。因此，MEC 系统能够减少反硝化对碳源的依赖。在生物电化学体系中，微生物异养脱氮和自养脱氮可以协同共存；但氨氮氧化能否被氧化为亚硝酸盐或硝酸盐，进而被阴极还原或者直接参与厌氧氨氧化 (Anammox) 脱氮，目前尚未明确^[3]。

与此同时，MEC 脱氮体系内自养与异养脱氮途径的协同关系，亦会受到碳源种类及外部电子供给的影响。文献 [5] 报道，在 MEC 体系中添加碳源可以加强电子转移过程，从而促进硝酸盐的去除。然而现有研究对不同碳源的影响报道较少、具体作用机制仍不明确。例如，一些低 C/N 废水或高含氮废水如垃圾渗滤液、沼液、厕所黑水等^[6-8]，此类废水中含有部分腐殖质类物质，因生物可降解性差不能被反硝化菌利用，可能对反硝化过程造成负面影响^[9]。另一方面，腐殖质类物质富含芳香族类、羧酸和醌类官能团，可以通过改变官能

团的氧化还原价态参与电子穿梭，促进微生物利用有机或无机化合物进行氧化还原反应^[10]。文献 [11] 研究了 MEC 处理腐殖质类废水的优势，MEC 中的关键微生物降解酶系统可以被电流激活，且电解解离和电化学氧化/还原的同时和合作作用可以有效地去除一些难降解物质。

乙酸钠作为最常用的碳源物质，且易被反硝化菌利用，是本实验理想的碳源物质；而经厌氧发酵过后的沼液，残留有机物为少量有机酸以及不易生物降解的腐殖质类等。实际上，MEC 外加电压的高低不仅能对 MEC 脱氮产生有一定的促进作用，也可能对碳源的利用产生影响；因此，在复杂有机物参与的应用环境中，有必要针对电压强度与碳源种类开展研究，探讨其对阳极有机物氧化、阴极脱氮等生化反应的影响，目前相关研究仍然有限。因此，本研究设计在不同电压 (0.2, 0.4, 0.8 V) 条件下，对比不同底物 (乙酸钠、富里酸) 对 MEC 脱氮效率的影响，并考察其微生物群落结构的变化。

1 材料与方法

1.1 微生物电解池实验装置

实验所用 MEC 反应器由有机玻璃制成^[6]，内径 60 mm，高 160 mm，工作体积为 450 mL，阳极和阴极分别为石墨棒 ($\phi 6\text{ mm}\times 120\text{ mm}$) 和碳毡 ($5\times 38\text{ cm}^2$ ，北京三业碳业有限公司)。为了更多地保留厌氧悬浮生物，每个反应器中加入 15 g 活性炭，其平均粒径为 0.42~1.00 mm。碳毡用硝酸处理，然后卷成圆柱形并固定在圆柱形反应器中，生物阴极比表面积为 $42\text{ m}^2/\text{m}^3$ 。MEC 与电化学工作站连接来施加直流电源电压，对照实验反应器构造相同，外电路为断路状态。

1.2 MEC 反应器启动与运行参数设置

MEC 接种污泥取自上海松申水环境净化有限公司硝化池活性污泥及实验室内上流式厌氧反应器培养的厌氧污泥; 厌氧污泥与硝化池活性污泥以体积比 1 : 1 混合, 将混合污泥接种到本实验所设置的 MEC 中, 在严格厌氧条件下先用葡萄糖作为底物驯化一段时间, 厌氧污泥和活性污泥基本性质如表 1 所示。TS 为总固体占比, VS 为挥发性固体占比。设置模拟沼液的 C/N 摩尔比为 2, 加入硝酸钠及氯化铵作为反硝化和厌氧氨氧化的底物; 先后以乙酸钠(HAc)、富里酸(FA)作为碳

源, 考察 MEC 同步脱氮和有机物降解特性。实验运行阶段水质和去除效果如表 2 所示, 水力停留时间为 24 h。实验所使用的 FA 购自阿拉丁试剂, FA 化学式为C₁₄H₁₂O₈, 含量 85%, 其中, O/C=0.95, H/C=1.06。

表 1 厌氧污泥和活性污泥基本性质
Tab.1 Basic properties of anaerobic sludge and activated sludge

污泥种类	TS/%	VS/%	pH值	VS/TS/%
厌氧污泥	0.93	0.73	7.43	78.49
活性污泥	0.81	0.70	7.21	86.42

表 2 MEC 运行阶段水质和去除效果
Tab.2 Water quality and removal effect during MEC operation

实验阶段	电压/V	碳源组成	总氮含量/(mg·L ⁻¹)	氨氮含量/(mg·L ⁻¹)	硝态氮含量/(mg·L ⁻¹)	COD/(mg·L ⁻¹)	碳氮比
I	0.2	100%乙酸钠, 1 113 mg/L	240	60	180	1 188	2
II	0.2	100% FA, 880 mg/L	240	60	180	1 188	2
III	0.4	100% FA, 880 mg/L	240	60	180	1 188	2
IV	0.8	100% FA, 880 mg/L	240	60	180	1 188	2

培养液微量营养元素组成 (g/L): NaCl 0.001, CaCl₂·2H₂O 0.001, MgSO₄·7H₂O 0.004 1, KH₂PO₄ 0.05, NaHCO₃ 0.5, FeSO₄·7H₂O 0.033, EDTA 0.01。控制水力停留时间(HRT)为 24 h。

1.3 指标检测及分析方法

分别采用纳氏试剂分光光度法、N-(1-萘基)-乙二胺分光光度法和紫外分光光度法测定进/出水 NH₄⁺-N 浓度、NO₂⁻-N 浓度和 NO₃⁻-N 浓度。COD_{Cr} 浓度测定采用重铬酸钾法^[12]。从反应器采集生物阴极附着污泥和悬浮污泥, 对照组生物阴极污泥和悬浮污泥分别编号为 C1-DJ, C1-XF, 加电组生物阴极污泥和悬浮污泥分别编号为 E1-DJ, E1-XF。污泥样品 DNA 提取后, 通过 Illumina 平台进行高通量测序(上海美吉生物医药科技有限公司)。聚合酶链式反应(PCR)扩增的引物为 515F(5'-GTG CCA GCM GCC GCG G-3')和 806R(5'-GGA CTA CHV GGG TWTCTA AT-3'), 这组引物适用于大部分细菌和古菌^[11]。采用 USEARCH v 7.0 软件以 97% 相似度阈值将高通量测序序列进行聚类分析, 得到 OTU(操作分类单元), 并通过美吉云线分析平台(www.majorbio.com)进行统计分析和绘图。

总氮(TN)去除速率(g/(m³·d))计算式为

$$N = \frac{C_{TN,in} - C_{TN,out}}{T_{HR}}$$

(1)

式中: C_{TN,in}为进水总氮; C_{TN,out}为出水总氮; N 为 TN 去除速率; T_{HR}为水力停留时间。

2 结果与分析

2.1 不同电压条件下氨氮与硝态氮的转化

图 1(a)为不同电压对反应器出水 NO₃-N 浓度变化的影响。当乙酸钠作为碳源时, 硝态氮的平均去除率达到了 99%。当电压从 0.2 V 上升到 0.4 V 时, NO₃-N 的变化与 NH₄⁺-N 有所不同; 出水 NO₃-N 浓度在经过短暂的降低之后, 又升高到 124.4 mg/L, NO₃-N 去除率在第 40 天达到最高的 53%, 之后逐渐下降到 44%, 与添加 0.2 V 电压时基本一致。当电压为 0.8 V 时, NO₃-N 去除率由初期的 45% 逐渐上升至 52%。对照组的 NO₃-N 浓度及去除率的变化较为稳定, NO₃-N 去除率基本稳定在 39%。可以看出, 加电组的反硝化效率随电压变化产生的波动较大, 在改变电压条件的初期都会出现反硝化效率骤降的现象, 这可能是由于电压的增加影响了阳极的氧化作用, 并导致外电路电子的传递出现暂时的变化。但不论电压如何变化, 每个阶段的平均反硝化效率都保持在

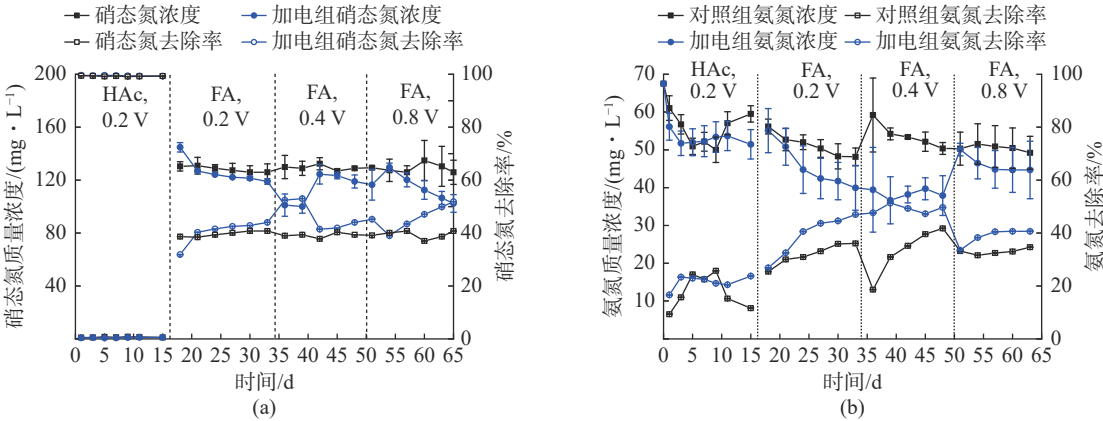


图1 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 质量浓度及去除率随电压的变化

Fig.1 Profile of $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ mass concentration and removal rate under different applied voltages

40% 以上，且当电压为 0.4~0.8 V 期间，平均反硝化效率均为 47%，比 0.2 V 时升高 7%。

如图 1(b)所示，当乙酸钠作为碳源时， $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的去除率呈现先升后降的趋势，对照组 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的去除率呈现上升的趋势。随着电压从 0.2 V 增加到 0.8 V， $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的去除率呈现先升后降的趋势。加电组的平均 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除率由 0.2 V 电压下的 39% 上升到 0.4 V 电压下的 49%。电压升高会增加参与生化反应的电子浓度，并提高电子在细菌胞外和电极间的转移效率。随着电压继续升高到 0.8 V， $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除率逐渐下降到 38%。此外，对照组的 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除率始终维持在 33% 左右。这说明电刺激会使得厌氧氨氧化微生物细胞分泌更多的胞外聚合物，由于电极电势的原因使得氨氧化菌获得了更快的代谢速率和增长速率^[13]，从而改善了 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的阳极氧化；与此同时，电刺激条件下，大量胞外聚合物形成多级多孔的致密结构，可帮助反应体系微生物免受外界不良环境和有毒物质的干扰。而当电压升高到一定值时 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除率降低，这可能是因为过高的电压对微生物产生抑制作用^[14]。在本实验中，适宜电压应不超过 0.8 V，且在 0.4 V 的电压条件下可以达到相对理想的脱氮效率。

2.2 不同电压条件下碳源的转化

图 2 反映了不同电压下 COD 浓度及去除率变化。从图 2 可知，当乙酸钠作为碳源时，加电组和对照组的 COD 去除率相近，平均去除率分别为 70.3% 和 71.8%。如表 3 所示，当底物切换为富里酸时，出水 COD 浓度升高，对照组 COD 平均去除率降低至 49.2%。当加电组 MEC 电压由 0.2 V 升高到 0.4 V 时，COD 平均去除率分别为 55.4%

和 57.5%，高于对照组 16.8%；而当电压升高到 0.8 V 后，加电组 COD 去除率下降至 42.6%，甚至低于对照组，这与 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的变化情况相同。当电压升高到 0.8 V 后，MEC 反应体系的酶活性受到抑制，有机物的利用效率反而降低。因此，施加电压一方面刺激微生物生长和降解污染物，另一方面过高的电流可能抑制微生物活性。也有研究认为生物阳极活性在高电流下明显受阻，可能是由非生物氧化产生有毒化合物导致的结果^[15]。

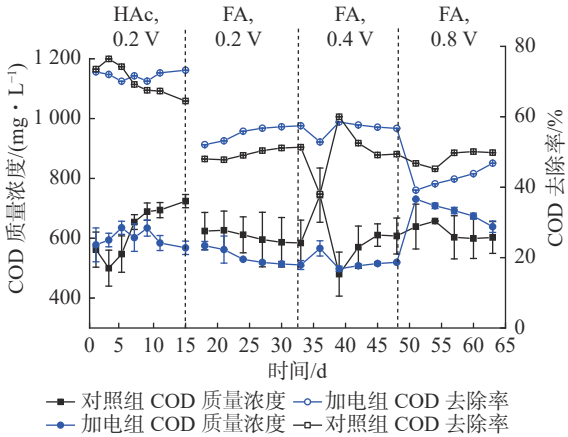


图2 COD 质量浓度及去除率随电压的变化图

Fig.2 Variation of COD mass concentration and removal rate with voltage

从 FA 的去除效果来看，MEC 加电反应器 COD 去除效果均高于不加电对照组，加电对富里酸的降解有促进作用。付成林等^[8] 研究显示，MEC 处理垃圾渗滤液的出水紫外吸光度 E_{254} 较进水显著下降，表明垃圾渗滤液中的芳香化程度下降，不饱和键类被微生物所分解，分子复杂程度降低。与胡敏酸相比而言，FA 分子量更低、芳香结构更少、亲水性更强，能够对反硝化过程发挥

表 3 各阶段反应器的性能比较

Tab.3 Performance comparison of reactors in different stages

实验条件	平均去除率/%				$N/(g \cdot m^{-3} \cdot d^{-1})$	COD/TN比值
	COD	$NO_3^- - N$	$NH_4^+ - N$	总氮		
乙酸, 对照组	70.3±4.3	99.2±0.1	17.8±6.4	76.3±1.0	183.1	1.28
乙酸, 0.2 V电压	71.8±1.3	99.5±0.1	21.5±2.4	77.5±1.1	186.0	1.31
富里酸, 对照组	49.2±4.4	39.3±1.1	32.7±5.3	24.6±1.8	59.0	2.44
富里酸, 0.2 V电压	55.4±2.3	40.5±4.4	39.2±6.8	28.2±6.2	67.7	2.65
富里酸, 0.4 V电压	57.5±2.2	45.1±5.7	49.4±1.6	36.5±5.3	87.6	2.47
富里酸, 0.8 V电压	42.6±2.9	46.1±4.6	38.7±3.0	32.4±3.7	77.8	1.79

显著的激励作用, 通过调控代谢过程, 与反硝化微生物之间发生更活跃的相互作用, 刺激参与糖酵解的关键酶(己糖激酶、6-磷酸果糖激酶、3-磷酸甘油醛脱氢酶和丙酮酸激酶)的活性, 进而改善葡萄糖碳源的代谢^[16]。

2.3 MEC 电流随电压的变化情况

MEC 在不同电压(0.2, 0.4, 0.8 V)下的电流变化如图 3 所示。当碳源从乙酸钠切换为富里酸, 电流从 0.06 mA 下降至 0.001 mA, 说明富里酸参与直接电子传递的效应不明显, MEC 电流大小主要与底物转化水平相关, 较低的电流对应较低的碳氮转化率。以 FA 为碳源, 当调整电压后电流在瞬间会立刻上升到最大值, 经过一段时间的波动后逐渐下降, 最终达到稳定值, 分别为 0.0003, 0.03, 0.05 mA。碳毡的面积为 190 cm², 因此, 对应的电流密度为 1.58×10⁻⁵, 1.58×10⁻³, 2.63×10⁻³ A/m²。显然, 稳定电流随外加电压的增加而增加, 该结果与 Ding 等^[17]的研究结果一致。如前所述, 较高的电流条件可能导致非生物氧化或产生有毒化合物, 使得 MEC 生物阳极微生物活性受阻^[15]。

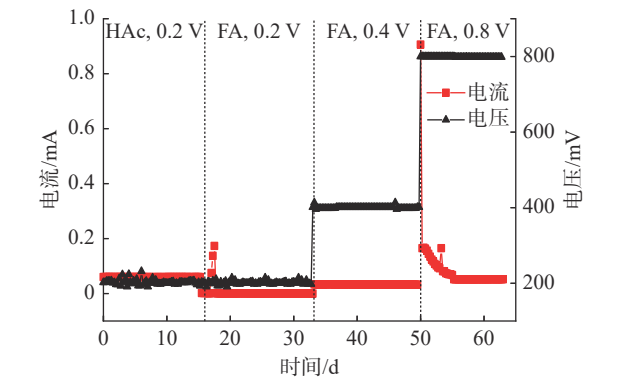
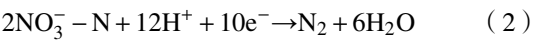


图 3 MEC 电流随电压的变化情况

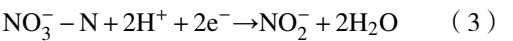
Fig.3 Changes of electric current under different applied voltages in MEC

MEC 的反硝化有两种途径, 即以有机碳为电子供体的异养反硝化, 或以阴极为电子源的生物电化学自养反硝化^[18]; MEC 中 $NH_4^+ - N$ 和 $NO_3^- - N$ 的去除是异养反硝化、自养反硝化和厌氧氨氧化同时作用的结果。传统反硝化 C/N 比需求大于 2.5, 而短程反硝化、厌氧氨氧化以及电活性反硝化的参与能降低对碳源的需求。本研究将不同阶段消耗的碳源量与脱氮量摩尔比进行计算(即脱氮 C/N 比), 以乙酸为碳源时 MEC 实验组与对照组的脱氮 C/N 比分别为 1.28 和 1.31; 当底物切换为 FA, 该值上升至 2.44 与 2.65, 可能与反硝化受抑制相关。当电压从 0.2 V 升高至 0.8 V, 脱氮 C/N 比降低至 1.79, 说明电活性反硝化比例的提升。

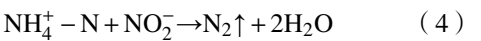
反硝化:



短程反硝化:



厌氧氨氧化:



2.4 微生物种群结构变化

2.4.1 α 多样性指数分析

电极负载和悬浮微生物样本的多样性及丰度变化如表 4 所示。加电组生物阴极(E1-DJ)上的细

表 4 微生物多样性和丰富度变化

Tab.4 Changes in microbial diversity and abundance

编号	覆盖率	Shannon指数	Simpson指数	Chao指数	Ace指数
C1-DJ	0.9983	3.3996	0.1635	572.9167	537.9172
C1-XF	0.9976	4.1327	0.0367	586.7660	568.6882
E1-DJ	0.9973	4.5043	0.0256	661.8571	674.3762
E1-XF	0.9951	4.2550	0.0317	605.6618	613.9728

菌丰度指标 Chao, Ace 指数均高于对照组 (C1-DJ), 菌群多样性指数 Shannon 高于对照组, Simpson 指数低于对照组; 说明加电组生物阴极上的微生物细菌丰度和菌群多样性均高于对照组, 加电可以有效地促进电极微生物种群的生长与繁殖。加电组悬浮微生物 (E1-XF) 丰度和多样性也高于对照组 (C1-XF)。实验结果说明, 加电可以有效地提高微生物菌群抗底物负荷冲击的能力, 还促

进了 MEC 内微生物的活性, 增加了菌群多样性和丰度。

2.4.2 细菌群落结构差异性分析

高通量测序得出的细菌生物群落组成分析如图 4 所示, 选择分类水平总丰度前 50% OTU 进行有效统计。对于所有样品来说, Proteobacteria 和 Chloroflexi 为所有反应器内的优势菌群, 两者都是典型的反硝化及亚硝化菌^[19]。Anaerolineae 在对

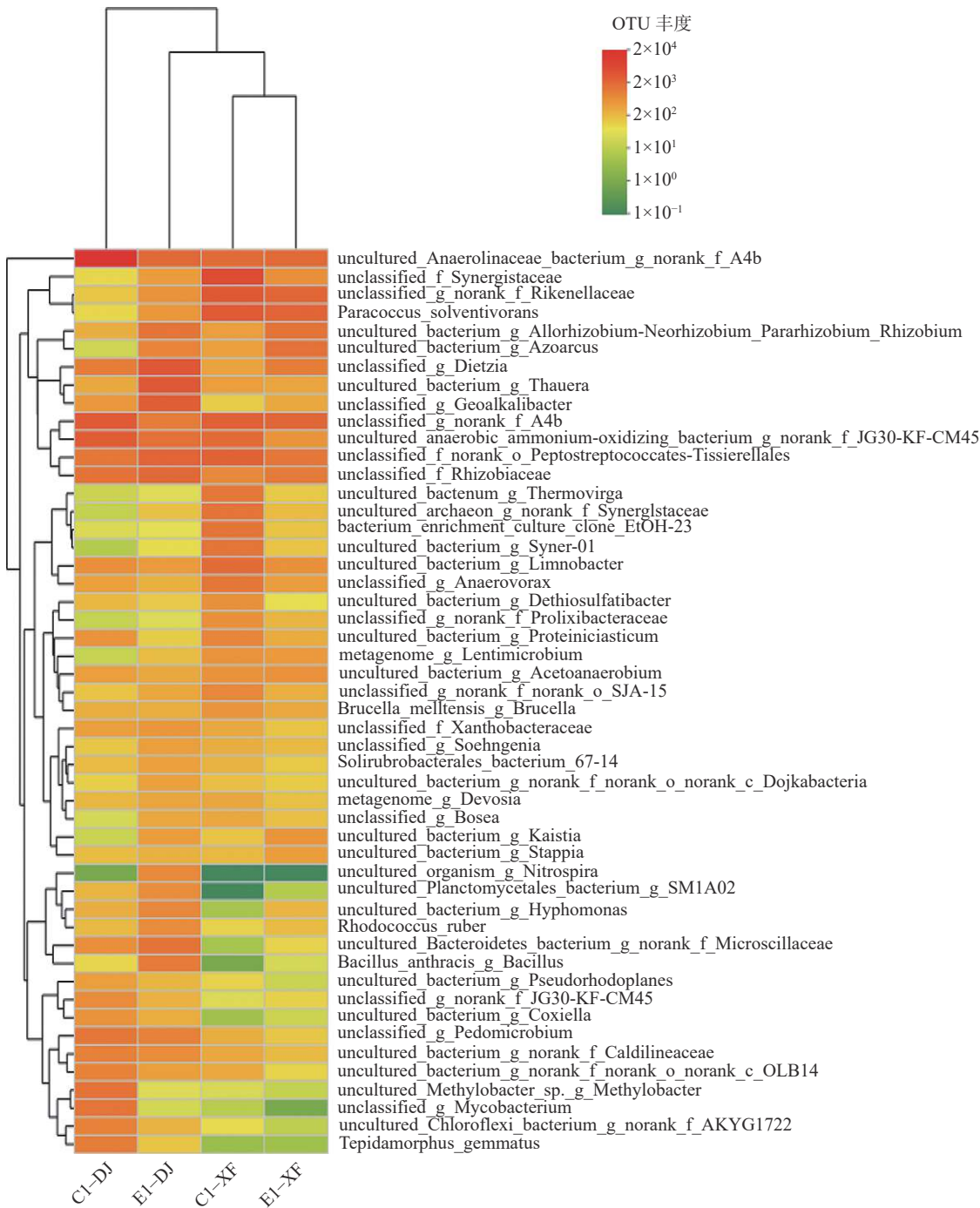


图 4 微生物群落结构 Heatmap 图 (种水平)

Fig.4 Heatmap for microbial community (on species level)

对照组电极(C1-DJ)占绝对主导地位, 其丰度最高达到47.96%, 而在MEC加电组电极(E1-DJ)的丰度为10.10%; 这是一种厌氧反硝化菌, 说明在没有外加电压的情况下, Anaerolineae是对照组氮脱除起主要作用的菌种。亦有研究报道, Anaerolineae是一种具有碳水化合物水解和蛋白质水解代谢能力的细菌, 常在厌氧消化系统检出, 且Anaerolineae菌株具有胞外电子传递能力, 可以还原三价铁和柠檬酸铁^[20]。因此, 在Anaerolineae碳毡电极上得以富集, 参与体系碳源利用以及脱氮微生物之间的电子传递。

对于加电组来说, 除了Proteobacteria和Chloroflexi以外, Firmicutes和Actinobacteriota相对丰度比对照组更多且更均匀。这一结果与Shi等^[21]所报道的一致。Firmicutes能利用不同的电子供体从电极上转移电子, 这可能是其在MEC中选择性富集的原因。Wrighton等^[22]研究结果表明, Firmicutes在产电系统中可以独立于外源电子穿梭, 将电子转移到阳极。Planctomycetota在MEC电极生物膜上的相对含量为1.59%, 明显高于对照组。厌氧氨氧化细菌Anammox属于Planctomycetota, 表明在MEC中Anammox菌得到了有效的富集。这一结果与其表现出的较高的 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 去除率一致。

磁螺菌Proteobacteria、偶氮菌Azoarcus和Thauera都是 β 变形菌门, 都可以在硝酸盐还原条件下降解芳香族化合物^[23-25]。从纲水平看, Clostridia丰度在悬浮相分布更高, C1-XF和E1-XF分别为13.98%和10.41%, 其在电极上的相对丰度为5.88%和8.89%。这是一种典型的水解酸化细菌, 能够将有机物转化成挥发性有机酸、醇、二氧化碳等, 主要参与碳源的转化利用。自养反硝化菌Thauera在加电组电极(E1-XF)丰度为7.65%, 且Geoalkalibacter和Thauera等导电菌的相对丰度高。这说明Geoalkalibacter可能与Thauera通过导电菌毛建立共生关系, 从而促进Thauera在电极上富集, 加快了MEC中性能稳定的反硝化系统的建立, 对MEC丰富的脱氮途径的形成起到重要的作用。Dietzia在MEC阴极生物膜上的丰度为7.26%, 是优势菌属。Dietzia属具有广谱的烃类降解能力, 对高盐、高碱的耐受能力较强^[26], 该菌属在加电组的选择性富集可能是FA作为碳源驯化的结果。

3 结 论

a. 本实验体系最适电压为0.4 V, 该电压条件下的总氮去除率和COD去除率达到最高。

b. 以乙酸为碳源, MEC反硝化效率高达99%以上, 但氨氮去除率仅为21.5%; 富里酸作为碳源可以促进氨氮的协同去除, $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 的同步去除是异养反硝化、自养反硝化和厌氧氨氧化同时作用的结果。

c. MEC加电可有效促进富里酸的降解, 在合适的电压条件下(0.4 V), COD去除率比对照组高出16.8%。

d. 在以富里酸为碳源的MEC反应器中, 多种厌氧脱氮细菌丰度均有增加, 如Thauera, Anaerolineae和Planctomycetota。

参考文献:

- [1] XU S Y, ZHANG Y Q, DUAN Y T, et al. Simultaneous removal of nitrate/nitrite and ammonia in a circular microbial electrolysis cell at low C/N ratios[J]. *Journal of Water Process Engineering*, 2021, 40: 101938.
- [2] SUN H S, XU S J, ZHUANG G Q, et al. Performance and recent improvement in microbial fuel cells for simultaneous carbon and nitrogen removal: a review[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2016, 39: 242–248.
- [3] XU S Y, ZHANG Y C, LUO L W, et al. Startup performance of microbial electrolysis cell assisted anaerobic digester (MEC-AD) with pre-acclimated activated carbon[J]. *Bioresource Technology Reports*, 2019, 5: 91–98.
- [4] CAI W W, LIU W Z, YANG C X, et al. Biocathodic methanogenic community in an integrated anaerobic digestion and microbial electrolysis system for enhancement of methane production from waste sludge[J]. *ACS Sustainable Chemistry & Engineering*, 2016, 4(9): 4913–4921.
- [5] FENG H J, HUANG B C, ZOU Y Q, et al. The effect of carbon sources on nitrogen removal performance in bioelectrochemical systems[J]. *Bioresource Technology*, 2013, 128: 565–570.
- [6] 詹咏, 刘宾寒, 黄嘉良, 等. DASB反应器对脱墨废水降解特性的影响[J]. 上海理工大学学报, 2020, 42(2): 157–162.
- [7] 刘洪波, 冷风, 王兴骥, 等. ABR/MFC/MEC除碳脱氮的影响因素分析与优化[J]. 中国给水排水, 2017, 33(7): 123–128.

- [8] 付成林, 伍永钢, 胡谦, 等. 负载两种不同电极材料 MEC 处理实际垃圾渗滤液的运行特性 [J]. 化工进展, 2021, 40(S2): 402–410.
- [9] 董晶晶, 吴迪, 马柯, 等. 好氧颗粒污泥工艺强化脱氮研究进展 [J]. 应用与环境生物学报, 2018, 24(1): 177–186.
- [10] DONG S S, LI M, CHEN Y G. Inherent humic substance promotes microbial denitrification of landfill leachate via shifting bacterial community, improving enzyme activity and up-regulating gene[J]. *Scientific Reports*, 2017, 7(1): 12215.
- [11] HUANG L P, CHENG S A, CHEN G H. Bioelectrochemical systems for efficient recalcitrant wastes treatment[J]. *Journal of Chemical Technology & Biotechnology*, 2011, 86(4): 481–491.
- [12] 刘新文, 赵海龙, 蔡欣悦, 等. 农村生活与生产综合污水生物处理的 A/O 工艺启动策略与特性研究 [J]. 能源研究与信息, 2022, 38(2): 70–75.
- [13] LIU Z, SUN D Z, TIAN H Z, et al. Enhancing biotreatment of incineration leachate by applying an electric potential in a partial nitrification-Anammox system[J]. *Bioresource Technology*, 2019, 285: 121311.
- [14] PATIL S A, GILDEMYN S, PANT D, et al. A logical data representation framework for electricity-driven bioproduction processes[J]. *Biotechnology Advances*, 2015, 33(6 Pt 1): 736–744.
- [15] BAEK G, SHI L, ROSSI R, et al. The effect of high applied voltages on bioanodes of microbial electrolysis cells in the presence of chlorides[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2021, 405: 126742.
- [16] LI M, CHEN Y G, SU Y L, et al. Effect of fulvic acids with different characteristics on biological denitrification[J]. *RSC Advances*, 2016, 6(18): 14993–15001.
- [17] DING A Q, YANG Y, SUN G D, et al. Impact of applied voltage on methane generation and microbial activities in an anaerobic microbial electrolysis cell (MEC)[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2016, 283: 260–265.
- [18] HUSSAIN A, MANUEL M, TARTAKOVSKY B. A comparison of simultaneous organic carbon and nitrogen removal in microbial fuel cells and microbial electrolysis cells[J]. *Journal of Environmental Management*, 2016, 173: 23–33.
- [19] CHEN W J, DAI X H, CAO D W, et al. Performance and microbial ecology of a nitrification sequencing batch reactor treating high-strength ammonia wastewater[J]. *Scientific Reports*, 2016, 6: 35693.
- [20] TOMASEK A, STALEY C, WANG P, et al. Increased denitrification rates associated with shifts in prokaryotic community composition caused by varying hydrologic connectivity[J]. *Frontiers in Microbiology*, 2017, 8: 2304.
- [21] SHI M Z, ZHAO X Y, ZHU L J, et al. Elucidating the negative effect of denitrification on aromatic humic substance formation during sludge aerobic fermentation[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2020, 388: 122086.
- [22] WRIGHTON K C, AGBO P, WARNECKE F, et al. A novel ecological role of the Firmicutes identified in thermophilic microbial fuel cells[J]. *The ISME Journal*, 2008, 2(11): 1146–1156.
- [23] TAN B F, JANE FOWLER S, LABAN N A, et al. Comparative analysis of metagenomes from three methanogenic hydrocarbon-degrading enrichment cultures with 41 environmental samples[J]. *The ISME Journal*, 2015, 9(9): 2028–2045.
- [24] KLEINSTEUBER S, SCHLEINITZ K M, VOGT C. Key players and team play: anaerobic microbial communities in hydrocarbon-contaminated aquifers[J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2012, 94(4): 851–873.
- [25] XU M Y, ZHANG Q, XIA C Y, et al. Elevated nitrate enriches microbial functional genes for potential bioremediation of complexly contaminated sediments[J]. *The ISME Journal*, 2014, 8(9): 1932–1944.
- [26] 郑鑫, 王蒙, 许子牧, 等. Dietzia 菌随机插入突变体文库的构建及功能基因筛选 [J]. 应用与环境生物学报, 2020, 26(4): 775–782.

(编辑: 石 瑛)