



文章栏目：水污染防治

DOI 10.12030/j.cjee.202004150

中图分类号 X52

文献标识码 A

陈月芳, 张宇琪, 冯惠敏, 等. 微生物耦合铁碳微电解强化水生植物浮床对农村生活污水的深度处理[J]. 环境工程学报, 2020, 14(11): 3007-3020.

CHEN Yuefang, ZHANG Yuqi, FENG Huimin, et al. Advanced treatment of rural domestic sewage by microbial coupling Fe-C micro electrolysis-enhanced floating bed of aquatic plants[J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2020, 14(11): 3007-3020.

微生物耦合铁碳微电解强化水生植物浮床对农村生活污水的深度处理

陈月芳^{1,2,*}, 张宇琪¹, 冯惠敏¹, 刘哲¹, 刘铮³

1. 北京科技大学能源与环境工程学院, 北京 100083

2. 北京市工业污染物资源化处理重点实验室, 北京 100083

3. 中国环境科学研究院, 北京 100012

第一作者: 陈月芳(1973—), 女, 博士, 副教授。研究方向: 废水处理与回用等。E-mail: chenyuefang@ustb.edu.cn

*通信作者

摘 要 为减少农村生活污水中有机物对河流水体的污染, 以现有农村污水分散处理的一级出水为进水, 研究了传统植物浮床、铁碳微电解和常规生物填料的耦合工艺对农村污水的处理效果。该耦合工艺应用物化反应、生物反应、化学反应为共生关系, 建立人工生态系统, 用以削减水体中的污染负荷。结果表明: 微生物耦合铁碳微电解强化浮床在冬季对 COD、TP、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 TN 的去除率分别可达到 78.6%、78.2%、72.2% 和 73.3%, 在夏季的去除率分别可以达到 88.8%、75.6%、78.1% 和 80%; 在冬季和夏季的耦合强化浮床中 COD 的降解速率分别达到 $2.933 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$ 和 $3.529 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$, TP 的降解速率分别为 $0.055 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$ 和 $0.061 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$, $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的降解速率分别为 $0.583 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$ 和 $0.8 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$, TN 的降解速率分别为 $0.73 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$ 和 $1.114 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$, 均优于传统植物浮床与微生物强化浮床的作用效果; 微生物耦合铁碳微电解强化浮床对植物的促生长作用明显强于传统浮床和微生物强化浮床, 冬季实验前后植物增重为 23.3 g, 夏季植物增重达到 67.4 g; 耦合浮床中微生物活性是微生物强化浮床中的 1.81 倍和 1.45 倍; 最后利用因子的相关性分析与主成分分析, 结果进一步表明, 由于微生物与铁碳微电解的协同作用促使微生物数量与活性的提升, 进而对污染物去除效果产生重要影响。以上研究结果可为农村生活污水的深度处理提供技术支持。

关键词 植物浮床; 微生物; 铁碳微电解; 微生物耦合铁碳微电解

随着城市化进程的不断发展, 水体污染问题日益严重, 水污染的问题也从城市蔓延到农村。由于农村生活污染源分散, 不能采用传统的大型污水处理厂工艺, 农村生活污水已成为影响水体环境质量的重要污染源之一。目前, 对于农村污水, 中国采用的常规处理技术主要是自然生态处理工艺系统, 如人工湿地、生物稳定塘、土地渗滤等; 人工处理工艺系统如生物接触氧化池、生物滤池、化粪池、沼气池、氧化沟、生物生态组合工艺等^[1]。针对分散型生活污水处理规模小, 水

收稿日期: 2020-04-30; 录用日期: 2020-08-31

基金项目: 国家水体污染控制与治理科技重大专项 (2017ZX07301005-003)

量分散且变化幅度大的特征, 现有的处理工艺存在一些不足, 难以完全满足农村生活污水的处理要求, 所以探寻合适的农村污水处理办法来改善农村污水处理现状意义重大。

水生植物浮床的主要功效是利用植物的根系吸收以及其上微生物作用来处理水中的富营养物质, 从而降解水中的碳、氮和磷的含量。相较于物理、化学等传统治理污染水体的方法, 利用植物生态浮床技术修复水体具有多重优势, 其具有良好的景观功能、有效增加城市绿化面积、美化水域景观、提高生物浮床周围的生物多样性等优点^[2]。但生态浮床技术在实际应用中也暴露出一些问题, 如易受气候条件及温度的影响、植物种类的影响、填料堵塞、植物生长状况差等问题, 继而影响其处理效率, 不能满足实际需求^[3-4]。有研究^[5]表明, 传统植物生态浮床受温度影响较大, 在水温为 2~29 ℃ 时对 TN 和 TP 的去除率随温度的升高而提升, 超过 29 ℃ 去除率会下降, 25~29 ℃ 为最佳温度, 去除率达到 38%~44%。吴伟等^[6]在池塘中设置了植物浮床系统, 结果表明, 植物浮床系统占池塘体面积 20%、在实验 80 d 时, 对 TN、NH₄⁺-N、NO₂-N 和 NO₃-N 的去除率分别为 39.4%、51.2%、49.7% 和 65%。可见只用单一植物作为浮床系统, 污染物的降解会受到外界各种因素的影响, 且降解效率并不理想。因此, WANG 等^[7]将普通水生植物为基质的浮床系统以沸石和海绵铁为填料的强化浮床系统应用于城市景观水净化, NH₄⁺-N 的去除率可以达到 89.98%, PO₄³⁻-P 的去除率可以达到 92.49%, 高于传统植物浮床对污染物的去除率, 并且在冬季条件下也可以有较好的去除效果。CUI 等^[8]将传统植物浮床与沸石和石灰石结合组成强化浮床, 对 TN、TP 和 NH₄⁺-N 的去除率分别达到 63.5%、59.3% 和 68.0%, 对污染物的去除效果好于传统植物浮床。

微电解处理废水技术主要利用铁的还原性、电化学性和铁离子的吸附共同作用来净化废水。在 20 世纪 80 年代进入我国研究领域, 现已较好地应用在印染、电镀、石油化工、制药、煤气洗涤、印刷电路板生产等工业废水及含砷、含氟废水的处理工程^[9]。此外, WANG 等^[10]使用连续铁碳微电解工艺 (MEP) 和连续铁碳微电解-厌氧污泥床 (UASB) 工艺, 对印染废水进行处理, 颜色去除率可以达到 75%, COD 去除率可以超过 65%; LI 等^[11]用铁碳微电解技术降解含有硝基苯的废水, 对硝基苯的去除率可以达到 90%。因此, 铁碳微电解法可促进污染物的降解, 但是对于应用在有机物含量较低的污水深度处理研究方面鲜有报道, 若将其与其他生物处理或者物理处理工艺相结合, 可探究其污染物去除效果。

本文利用微生物的生物氧化性和铁碳微电解技术的氧化还原性, 来提升植物浮床的净水效果, 希望能将生态浮床用于农村生活污水的治理, 使出水水质达到《城镇污水处理厂污染物排放标准》(GB 18918-2002) 的一级 A 排放标准 (COD<50 mg·L⁻¹、NH₄⁺-N<5 mg·L⁻¹ 或 NH₄⁺-N<8 mg·L⁻¹、TN<15 mg·L⁻¹、TP<0.5 mg·L⁻¹), 以期生态法处理农村生活污水提供新的思路和理论依据。

1 实验材料与方法

1.1 实验用水

实验用水模拟的农村生活污水一级厌氧消化池出水, 经过浮床处理后的生活污水拟达到《城镇污水处理厂污染物排放标准》(GB 18918-2002) 一级排放 A 标准。浮床进水、出水水质如表 1 所示。

表 1 实验进、出水水质
Table 1 Test inlet and outlet water quality

进水或出水	COD/(mg·L ⁻¹)	NH ₄ ⁺ -N/(mg·L ⁻¹)	TP/(mg·L ⁻¹)	TN/(mg·L ⁻¹)	pH
进水	100±10	20±2.5	2±0.2	30±0.2	7~8
出水	≤50	≤5(8) ¹⁾	≤0.5	≤15	6~7

注: 1)表示在水温<12 ℃时限值为5, 在水温>12 ℃时限值为8; 实验用水温度冬季为7~11 ℃, 夏季为25~29 ℃。

1.2 实验用材料

1) 实验中生物填料选择辫带式填料，采用中国浙江省杭州某环保科技有限公司直销的辫带式填料，其特征见表 2，该填料具有比表面积大、孔隙率高，挂膜快，脱膜更新容易，使用寿命长，不易被堵塞等优点；同时该填料能有效切割气泡，氧转移率和利用率均比较高^[12]。

2) 铁碳微电解填料，采用杭州某机械厂铸铁车间的废铁屑与杭州某焦碳厂市售粒状焦炭混合所制成的铁碳填料，其特征见表 2。该填料通过预处理、高温烧结等手段将铁及金属催化剂与炭包容在一起形成架构式铁炭，不仅具有良好的吸附性能和较大的比表面积，还具有电化学作用，即能通过微电解反应，去除污水中的污染物质^[13]。

表 2 填料主要特征
Table 2 Main characteristics of fillers

填料名称	材质	特征
辫带式填料	化纤网格丝	辫带间距为20~40 mm，行距为100 mm，孔隙率为99%，比表面积为3 200~6 500 m ² ·m ⁻³
铁碳填料	铁、碳和多元金属催化剂	粒径为20~40 mm，密度为1.2~1.3 g·cm ⁻³ ，比表面积为1.2~1.5 m ² ·g ⁻¹ ，孔隙率为60%~65% ^[14]

1.3 实验装置

本实验用传统植物浮床 (简称为 Y₁) 采用内径为 36.5 cm，高为 40 cm 的水容器进行组装实验，下进水口距离容器底部 3 cm，有效水深为 30 cm，有效容积约为 30 L，进水流量约为 0.2 L·s⁻¹；实验采用生长旺盛、枝叶完整、根茎发达的圆币草 (*Hydrocotyle verticillate*) 作为浮床植物，该植物放置于种植篮中，并由聚苯乙烯塑料板进行固定。微生物填料强化浮床 (简称为 Y₂) 在上面传统植物浮床 Y₁ 基础上，增设生物辫带式填料，该填料悬挂在固定塑料网板下，每床组装量为 3 串，长度约为 30 cm；微生物耦合铁碳微电解强化浮床 (简称为 Y₃)，在微生物填料强化浮床 Y₂ 基础上，又耦合了铁碳填料，添加量为 8 g·L⁻¹。

在处理污水过程中，通过水泵将污水泵入池体，污水在浮床系统中的水力停留时间约为 4~5 d；Y₃ 浮床系统如图 1 所示。同时进行对照水质监测系统 (CK)，即不添加任何植物、辫带填料以及铁碳微电解填料，以减少实验误差，得到比较可靠的分析结果。

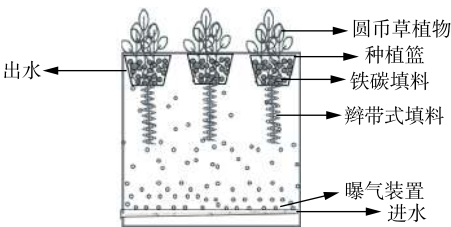


图 1 浮床装置示意图

Fig. 1 Schematic diagram of floating bed installation

1.4 污染物降解速率的计算

COD、TP、NH₄⁺-N、TN 的降解速率根据式 (1) 进行计算。

$$K = \frac{C_0 - C_t}{t}$$

(1)

式中： t 为反应时间，d； C_t 为 t 时刻测定的污染物浓度，mg·L⁻¹； C_0 为初始浓度，mg·L⁻¹； K 为降解速率，mg·(L·d)⁻¹。

通过测定各时刻下的污染物浓度，根据反应时间 t 和反应前后浓度差 ($C_0 - C_t$)，以时间为横坐标，以 $C_0 - C_t$ 为纵坐标，绘制 ($C_0 - C_t$)- t 关系图，其斜率即为污染物的平均降解速率。

1.5 植物干质量测定

进行各组实验前，首先选取 2 组形态大小、质量基本一致 (差别在 ±2% 内) 的圆币草植物，一组进行实验，实验结束后进行干质量测量，另一组作为实验前的植物干质量测量。测量植物干重质量前，先将植株放入称量瓶，在 85 ℃ 下烘干至恒重，之后用电子天平分别称量实验前、后植物整组干重质量，从而计算出实验过程中植物增加的干质量 Δm ，如式 (2) 所示。

$$\Delta m = m_2 - m_1 \quad (2)$$

式中： m_1 为实验前植株干质量，g； m_2 为实验后植株干质量，g。

1.6 微生物数量测定

取一定量带有生物膜的辫带式生物填料，置于具塞三角瓶中，加入萃取液(氯仿:甲醇:水的比例为1:2:0.8的均相混合液)，用振荡仪振荡15 min后静置12 h。然后向萃取液中加入氯仿和水，最终使氯仿:甲醇:水比例为1:1:0.9，此时混合液分为2层，下层为含有脂磷的氯仿相，静置12~24 h。把含有脂磷的氯仿混合物移入消解管，在65~70 ℃水浴中蒸干。用过硫酸钾消解脂磷后，测定磷含量，最终以 $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 表示微生物数量的单位^[15]。

1.7 微生物活性测定

通过测定比好氧速率(SOUR)来表征生物膜中微生物的活性。取BOD测试瓶，加入辫带式填料上取下的生物膜和底物溶液，置于25 ℃水浴中，当瓶内溶液温度达到25 ℃时，开始充氧至完全饱和，马上插入溶解氧测定仪探头，密封BOD测试瓶，记录不同时间的溶解氧变化。SOUR根据式(3)的方法^[16]进行计算。

$$U = \frac{(C_{\text{DO}_1} - C_{\text{DO}_2})}{N(t_2 - t_1)} \quad (3)$$

式中： U 为比好氧速率， $\text{mg}\cdot(\text{g}\cdot\text{h})^{-1}$ ； C_{DO_1} 、 C_{DO_2} 分别为初始和终止溶解氧浓度， $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ； N 为微生物质量分数， $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ ； t_1 为初始时间，h； t_2 为终止时间，h。

2 结果与讨论

2.1 对污染物的降解

本实验在无锡市进行测定，分别检测了3种浮床系统和对照实验在冬季(平均温度为7~11 ℃)和夏季(平均温度为25~29 ℃)时对废水的处理效果，冬季每5 d取一次水样，实验时间为25 d；夏季每4 d取一次水样，实验时间为20 d，并对进、出水样的COD、TP、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 和TN的浓度进行检测。

1) 污水中COD的去除效果。由图2可知，实验结束后，3种浮床系统在夏季对COD的去除率高于冬季。冬季实验结束后 Y_1 、 Y_2 、 Y_3 浮床的出水COD分别为56、44、21 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ，去除率分别达到42.9%、55.1%、78.6%，夏季实验结束后 Y_1 、 Y_2 、 Y_3 浮床的出水COD分别为37、26、11 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ，去除率分别为62.2%、73.5%、88.8%；在冬季和夏季微生物耦合铁碳微电解强化浮床系统 Y_3 相较于传统植物浮床 Y_1 的去除率分别提高了35.7%和26.6%，相较于微生物填料强化浮床系统 Y_2 ，去除率分别提高了23.5%和15.3%。

图3为3种浮床系统对COD降解速率的影响情况。在冬季和夏季实验过程中， Y_3 浮床COD的降解速率最快，且在冬季到实验中后期，降解速率增势明显，平均降解速率达到2.933 $\text{mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$ 、夏季平均降解速率达到3.529 $\text{mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$ ；而 Y_2 浮床在冬季和夏季实验的平均降解速率分别为1.775 $\text{mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$ 和3.345 $\text{mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$ ， Y_1 浮床在冬季和夏季的平均降解速率分别为1.745 $\text{mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$ 和2.93 $\text{mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$ ，均低于 Y_3 浮床的降解速率。

2) 污水中TP的去除效果。由图4可知，3种浮床系统对TP均有一定的降解作用，冬季实验结束后， Y_1 、 Y_2 、 Y_3 的TP出水浓度分别为1.247、1.17、0.417 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ，去除率分别为34%、41.5%、78.2%，夏季实验结束后3个浮床的TP出水浓度分别为1.067、0.777、0.447 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ，去除率分别为41.1%、57.2%、75.6%。冬季实验 Y_3 浮床相较于 Y_1 浮床，去除率提高了44.2%，相较于 Y_2 浮床，去除率提高了36.7%；夏季实验 Y_3 浮床相较于 Y_1 浮床，去除率提高了34.5%，相较于 Y_2 浮床，去除率提高了18.4%， Y_3 浮床具有更优的降解效果。

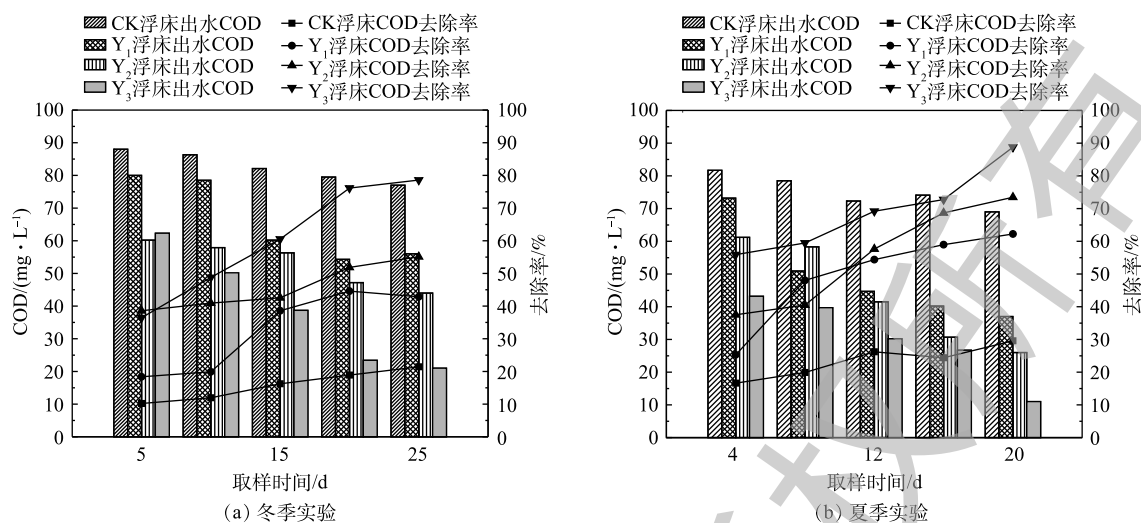


图 2 浮床系统对 COD 去除效果

Fig. 2 Removal effect of COD by floating bed system

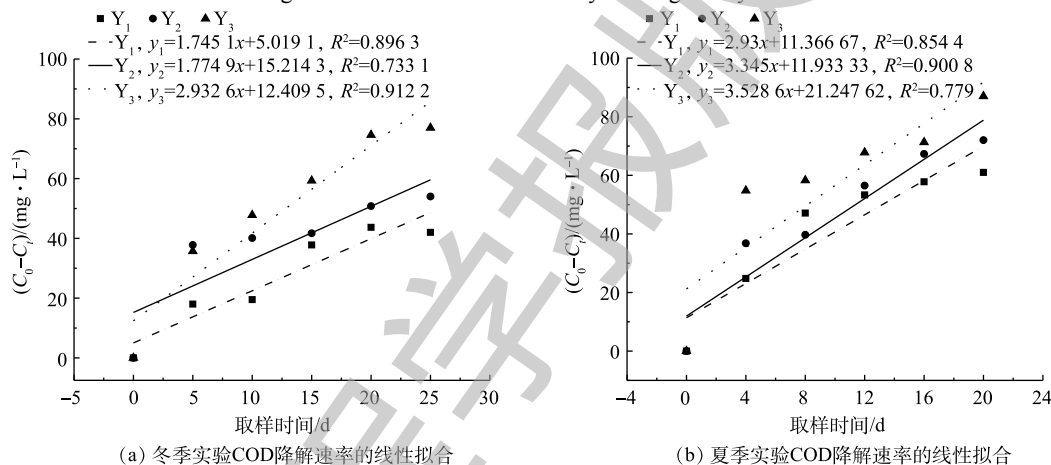


图 3 浮床系统对 COD 的降解速率影响

Fig. 3 Effect of floating bed system on COD degradation rate

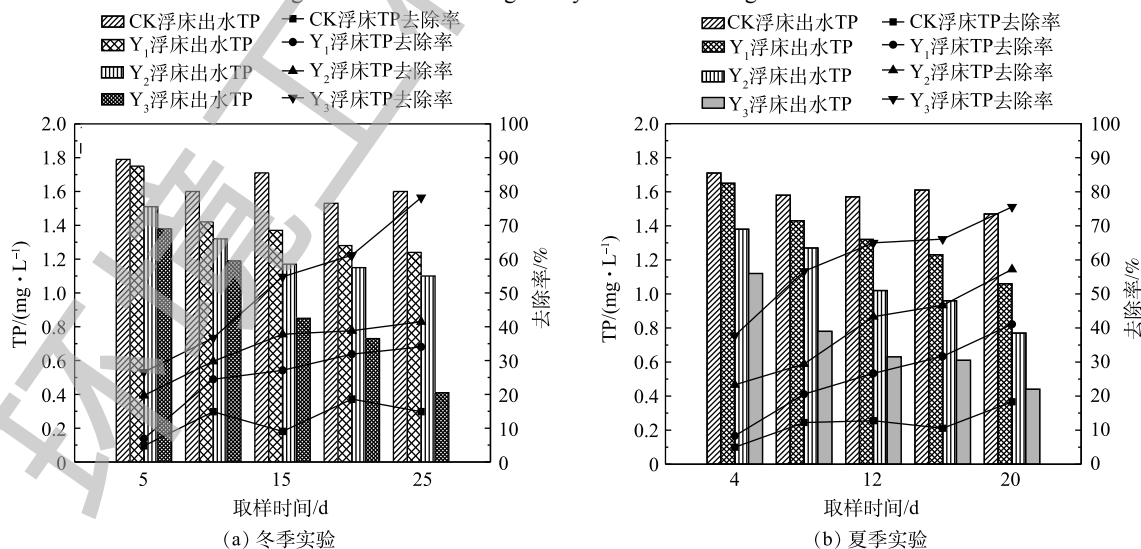


图 4 浮床系统对 TP 去除效果

Fig. 4 Removal of total phosphorus by floating bed system

由图4也可看出,冬季Y₁浮床的去除率起伏变化较大,到实验中后期TP降解程度有下降的趋势,而冬季和夏季Y₂、Y₃浮床的去除率在实验周期内基本呈一直上升趋势,尤其夏季实验后期最为明显。基于此,如图5所示,3种浮床系统中TP的降解速率,冬季和夏季实验中Y₁浮床的降解速率最低,分别为 $0.027\text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$ 和 $0.036\text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$,Y₂浮床在冬季和夏季的降解速率分别为 $0.029\text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$ 和 $0.048\text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$,而Y₃浮床在冬季和夏季的TP降解速率分别可以达到 $0.055\text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$ 和 $0.061\text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$,高于Y₁、Y₂浮床的降解速率。

3) 污水中NH₄⁺-N的去除效果。实验过程中3种浮床系统的NH₄⁺-N浓度及去除率如图6所示,Y₁浮床在冬季和夏季的NH₄⁺-N出水浓度分别为 $9.87\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $9.127\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,去除率分别为51%和59.3%,Y₂浮床在冬季和夏季的出水浓度较Y₁浮床分别降低了 $0.177\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $1.527\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,去除率分别为51.8%和66.1%,Y₃在冬季和夏季的出水浓度较Y₁浮床分别降低了 $4.277\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $4.227\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,去除率分别为72.2%和78.1%;冬季试验Y₃浮床较Y₁浮床,去除率提高21.2%,相较于Y₂浮床,

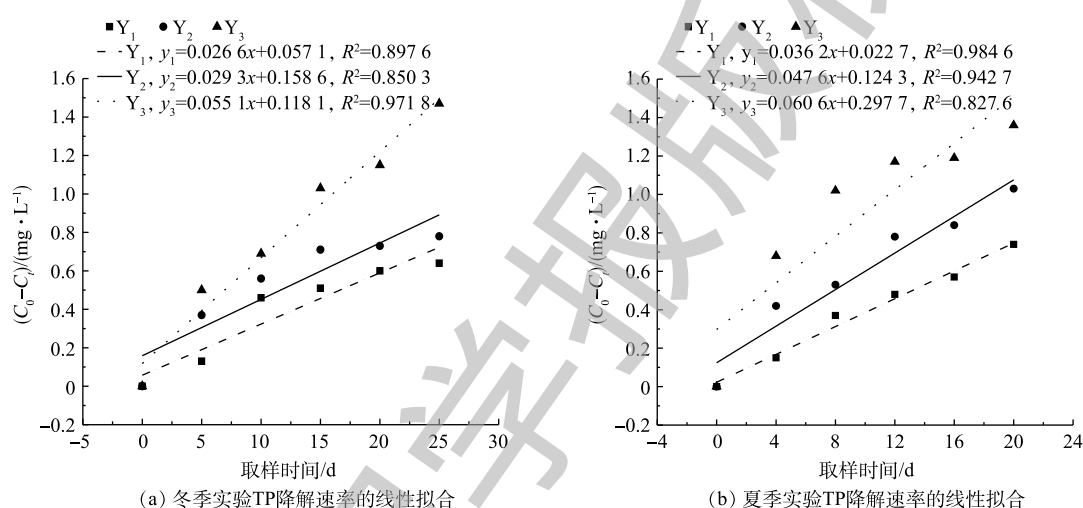


图5 浮床系统对TP的降解速率影响

Fig. 5 Effect of floating bed system on degradation rate of TP

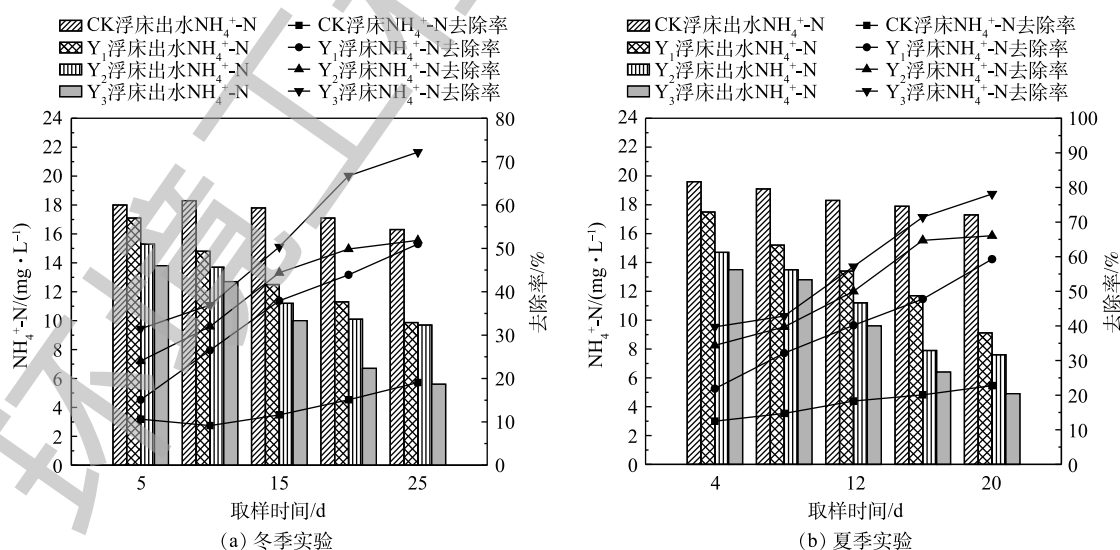


图6 浮床系统对NH₄⁺-N去除效果

Fig. 6 Removal effect of NH₄⁺-N by floating bed system

去除率提升 20.4%；夏季试验 Y_3 浮床较 Y_1 浮床，去除率提高 18.8%，相较于 Y_2 浮床，去除率提升 12%，因此， Y_3 对 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的降解效果更好。

图 6 中显示 Y_1 浮床对 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的去除率变化较为平缓，而 Y_2 、 Y_3 浮床的去除率在整个实验周期内增长较为明显，尤其在实验的前半个周期内，增长趋势显著。图 7 针对 3 种浮床系统的 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 降解速率进行计算，得到 Y_1 在冬季和夏季的降解速率分别为 $0.436 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$ 和 $0.611 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$ ， Y_2 浮床在冬季和夏季的降解速率分别为 $0.432 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$ 和 $0.691 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$ ，而 Y_3 浮床在冬季和夏季的 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 降解速率分别达到 $0.583 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$ 和 $0.8 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$ ，高于 Y_1 、 Y_2 浮床的降解速率。

4) 污水中 TN 的去除效果。图 8 为实验过程中 3 种浮床系统及空白组的 TN 浓度和去除率的变化情况。由图 8 可知，传统植物浮床在实验初期对 TN 的降解作用并不明显，随着水力停留时间的延长，降解作用越来越显著。冬季实验结束后， Y_3 浮床的 TN 去除率为 73.3%，夏季实验结束后， Y_3 浮床的 TN 去除率为 80%。在冬季和夏季实验中 Y_3 浮床较 Y_1 浮床对 TN 的去除率分别提高了

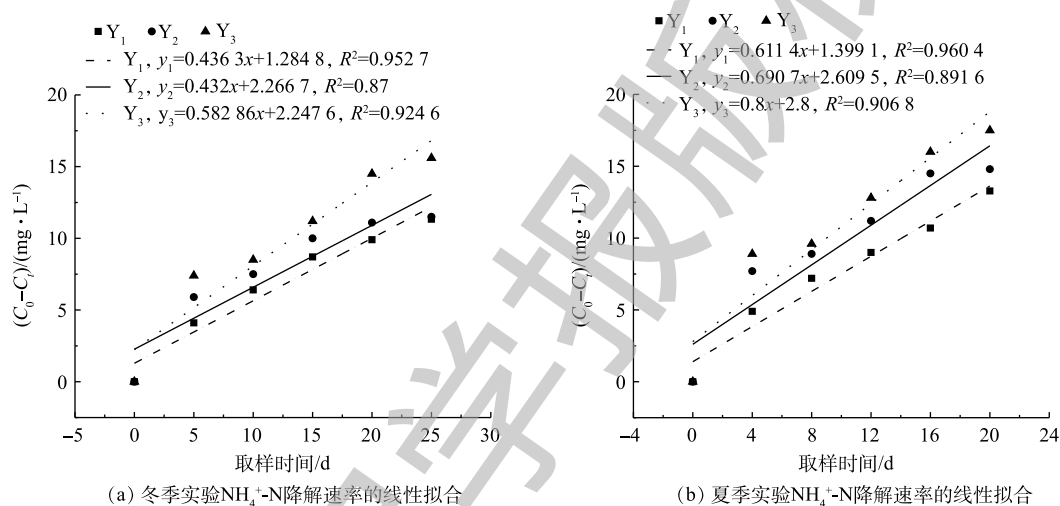


图 7 浮床系统对 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的降解速率影响

Fig. 7 Effect of floating bed system on the degradation rate of $\text{NH}_4^+\text{-N}$

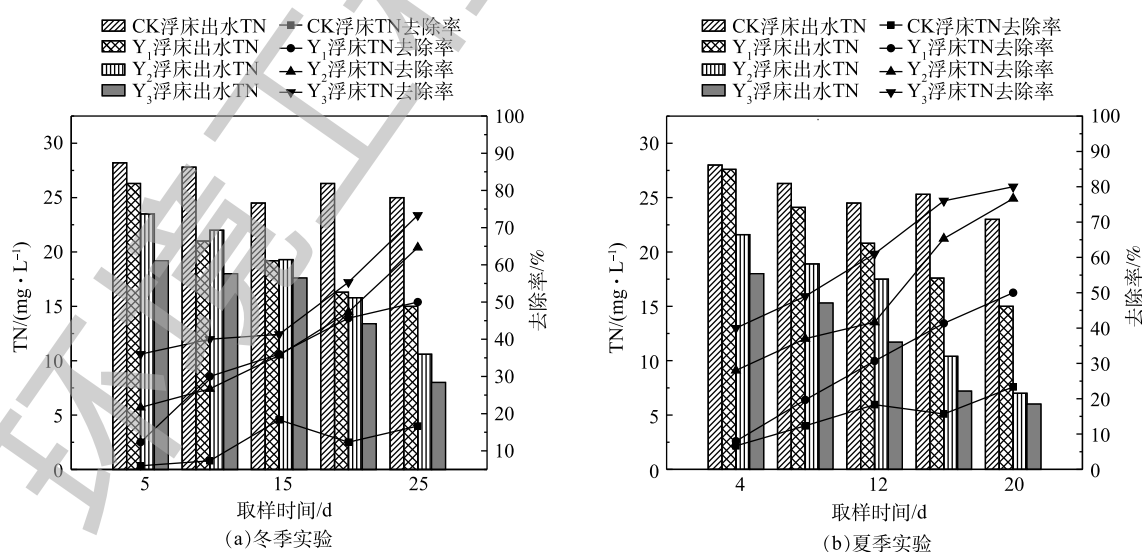


图 8 浮床系统对 TN 去除效果

Fig. 8 Removal effect of floating bed system on TN

23.3% 和 30%，较 Y_2 浮床的去除率分别提升了 8.6% 和 3.3%。

图 9 为 3 种浮床系统对 TN 的降解速率影响情况，综合冬、夏两季的实验结果， Y_3 浮床的降解速率最大，冬季和夏季的降解速率分别达到 $0.73 \text{ mg} \cdot (\text{L} \cdot \text{d})^{-1}$ 和 $1.114 \text{ mg} \cdot (\text{L} \cdot \text{d})^{-1}$ ，而 Y_2 浮床在冬季和夏季的降解速率分别为 $0.702 \text{ mg} \cdot (\text{L} \cdot \text{d})^{-1}$ 和 $1.071 \text{ mg} \cdot (\text{L} \cdot \text{d})^{-1}$ ， Y_1 浮床在冬季和夏季的降解速率分别为 $0.61 \text{ mg} \cdot (\text{L} \cdot \text{d})^{-1}$ 和 $0.774 \text{ mg} \cdot (\text{L} \cdot \text{d})^{-1}$ ，均低于 Y_3 浮床的降解速率。

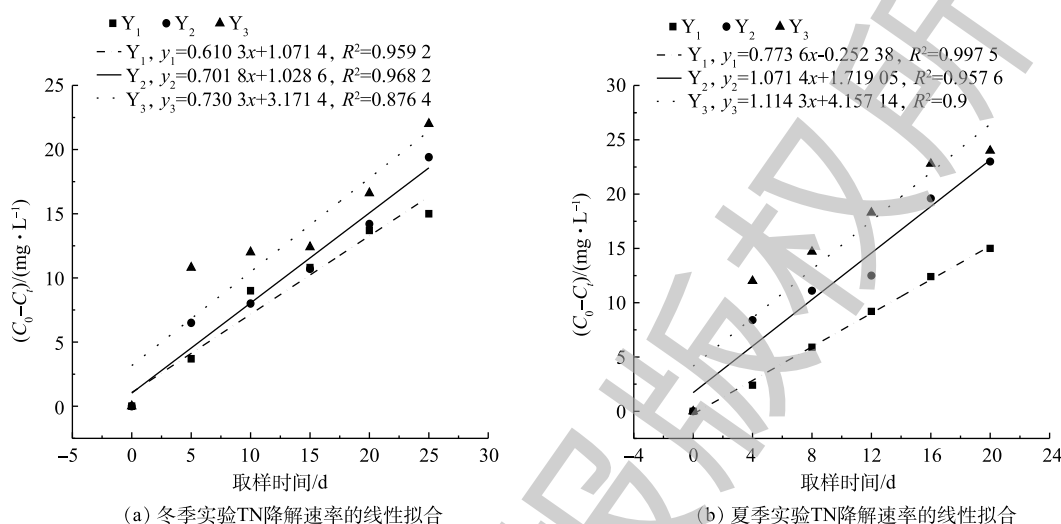


图 9 浮床系统对 TN 的降解速率影响

Fig. 9 Effect of floating bed system on degradation rate of TN

综上所述，微生物耦合铁碳微电解强化浮床对污染物的去除效果强于传统浮床和微生物强化浮床，去除率显著增加，且降解速率也均高于其他 2 种浮床系统，由于其微生物与铁碳微电解的协同作用，使生活污水的出水浓度大幅度降低，且达到《城镇污水处理厂污染物排放标准》(GB 18918-2002) 一级排放 A 标准。

2.2 植物生物量变化测定

根据式 (2)，对圆币草的干重进行了测定，实验前、后圆币草干质量见表 3。由表 3 可知：在冬季实验结束后， Y_3 浮床的植物干重增量是 Y_2 浮床的 1.13 倍，是 Y_1 浮床的 5.42 倍；夏季实验结束后， Y_3 浮床的植物干重增量是 Y_2 浮床的 1.14 倍，是 Y_1 浮床的 2.76 倍。微生物耦合铁碳微电解强化浮床系统显著促进了植物干重的增加。氮是植物重要的结构物质，是植物生长发育过程中需求量较大的营养元素，植物可通过自身吸收氨态氮和有机氮进行营养补充^[17]。浮床中的微生物可以释放难溶矿质中的营养元素、提高植物的抗逆性、降低污染物、减少毒性，以促进植物的生长^[18]。Fe 作为植物生长发育过程中的重要微量元素，也是细胞内大量重要酶的组成部分，铁碳填料的加入，利用其微电解作用，对浮床系统补充更多的铁元素，用于植物的生长需要^[4]，因此，二者的协同作用对植物生长的促进效果更为明显。

2.3 微生物活性和数量的变化测定

实验结束后，按照 1.6、1.7 节中的实验方法，分别测定 Y_2 浮床和 Y_3 浮床中填料上微生物数量和活性，结果如表 4 所示。在冬季实验中， Y_3 浮床的微生物数量相比 Y_2 浮床提高了 17.32%， Y_3 浮床中的微生物活性是 Y_2 浮床中的 1.81 倍。在夏季实验中， Y_3 浮床中微生物

表 3 实验前、后植物的干质量变化
Table 3 Changes of dry weight of plants before and after experiment

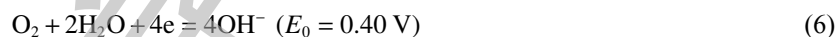
浮床类型	冬季			夏季		
	实验前	实验后	增量	实验前	实验后	增量
Y_1	38.9	43.2	4.3	108.2	132.6	24.4
Y_2	39.1	59.8	20.7	109.3	168.3	59.0
Y_3	39.5	62.8	23.3	109.6	177.0	67.4

数量相比 Y_2 浮床提升了 5.33%， Y_3 浮床中微生物活性是 Y_2 浮床中的 1.45 倍。

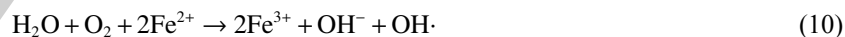
由实验结果可知，在夏季实验中铁碳填料对微生物数量的影响并不明显；但铁碳填料有效促进了微生物活性的提高，提高了约 45%。吴伟等^[6]的研究表明，植物对微生物的生产力和生物量具有一定影响，由此看来微生物活性与数量的提高，一部分原因是依靠铁碳微电解作用，经微电解反应，产生无数微电流，还原有机物以及改变有机物的结构和特性，使之更容易被微生物利用，为微生物的繁衍创造了条件，并促进了微生物的分解代谢能力^[19]；而冬季温度较低，微生物活性会受到影响，微电解产生了参与微生物生命活动的 Fe^{2+} 、 Fe^{3+} 离子，由于 2 种铁离子浓度的增大，加快了微生物细胞电子传递速率，增大了生物活性，生物量随之增加^[20]，另外，由于实验周期较长，延长了反应时间，从而提高了微生物的种群丰度和活性^[21-22]。

2.4 污染物的降解过程分析

在植物浮床中有机物去除主要有植物直接吸收有机污染物、根系释放分泌物和酶降解有机物以及填料上微生物的降解作用，通常主要依靠后 2 种方式^[23]。 Y_3 浮床系统由于铁碳填料的加入，通过耦合在植物系统中的铁碳材料形成原电池，利用微生物与铁碳微电解的协同作用，达到了更好的污染物降解效果，发生如式 (4)~式 (7) 所示的反应^[24-25]。阳极反应见式 (4) 和式 (5)，阴极反应见式 (6) 和式 (7)。



铁碳微电解过程产生大量的具有活性的 $[H]$ 和 Fe^{2+} ，促使大分子难降解有机物转化为容易被微生物降解的简单小分子有机物^[26]；这些活性物质破坏了水中的环状与链状有机物，使其发生断裂。系统中的 Fe^{2+} 被 O_2 氧化成 Fe^{3+} ，在这个过程中会产生具有强氧化性的 $\cdot OH$ 和 $O\cdot$ ，发生的反应如式 (8)~式 (10) 所示。



在式 (9) 和式 (10) 中产生的 $\cdot OH$ 和 $O\cdot$ 可以破坏 $—CN$ 键和 $C=O$ 键^[27]，使水中难降解的有机物降解为小分子物质，促进 COD 的降解。

微电解产生的 Fe^{2+} 和氧化后产生的 Fe^{3+} 在化学及微生物作用下，会生成具有较强吸附能力的胶体絮凝剂 $Fe(OH)_2$ 和 $Fe(OH)_3$ ，其絮凝作用可降低出水浊度^[28]；同时 Fe^{3+} 也会与 PO_4^{3-} 反应生成 $FePO_4$ 沉淀^[29-30]；另外，浮床中的有机质可以与 Fe_2O_3 结合，使磷得到更好的吸附^[4]。由于传统植物浮床一般会缺少碳元素，所以 Y_3 浮床中铁碳微粒用以补充植物所需的碳元素；夏季温度高，微生物的活性相较于冬季偏高，氮磷累积量会达到最佳值^[5]，微生物的生命活动也需要更多的碳作为营养物质，因此铁碳微电解材料的加入也可以促进微生物对磷的吸收。因此， Y_3 浮床在电化学、化学沉淀、微生物作用、吸附作用等多种作用达到除磷的目的，相比于 Y_1 、 Y_2 浮床， Y_3 浮床具有

表 4 实验后微生物数量与活性

Table 4 Quantity and activity of microorganism after experiment

浮床 类型	冬季		夏季	
	微生物数量/ ($mg \cdot g^{-1}$)	微生物活性/ ($mg \cdot (g \cdot h)^{-1}$)	微生物数量/ ($mg \cdot g^{-1}$)	微生物活性/ ($mg \cdot (g \cdot h)^{-1}$)
Y_2	46	68.06	68.73	117.1
Y_3	53.97	122.9	72.39	170.32

更强的作用能力,使磷的去除效果增强。

植物浮床中的氮元素主要利用硝化作用与反硝化作用去除,铁碳微电解过程产生的 Fe^{2+} ,被 O_2 氧化后生成的 Fe_2O_3 作为催化剂可加快硝化反应的进行,进而提高氮的脱除效率^[26]。此外,浮床系统中溶解氧也是不可或缺的物质,浮床系统中的微生物对污染物的降解需要消耗大量的溶解氧,随着溶解氧的含量下降,氧化还原电位降低,致使 Y_2 浮床后期对 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的去除效果减弱^[31]。对于氮元素的降解,之所以 Y_3 浮床作用能力更强,这可能是由于 Y_3 浮床中的植物主要是利用硝化反硝化过程脱氮,铁碳微电解中的铁可以刺激硝化、反硝化细菌的繁殖,进而促进硝化和反硝化过程^[32], $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 在好氧情况下又可被硝化细菌氧化成亚硝酸盐氮和硝酸盐氮,后续随着水力停留时间的延长反硝化菌的出现,将微电解产生的 Fe^{2+} 和 $[\text{H}]$ 作为电子供体,将 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 还原为分子态氮,实现物化-生物耦合,降低了传统生物脱氮过程对有机碳的依赖,进而提高脱氮效率^[33]。

综合以上分析,污染物降解过程如图 10 所示。

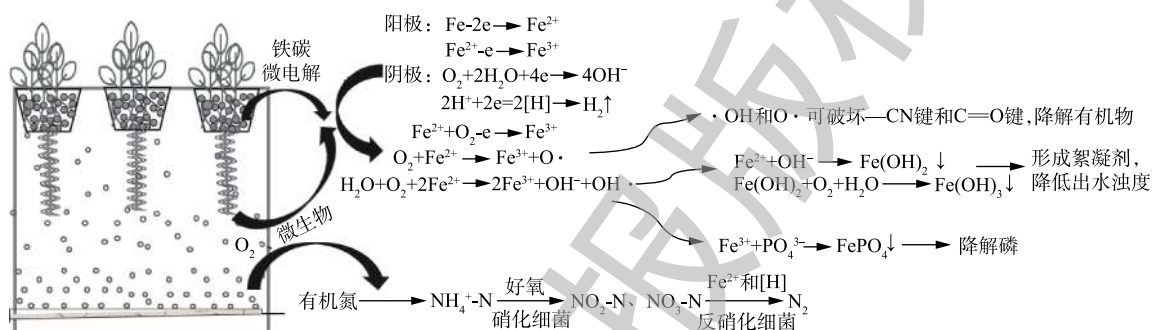


图 10 污染物降解过程

Fig. 10 Process of pollutant degradation

2.5 铁碳填料表征

分别对实验前和实验后的微生物耦合铁碳微电解填料进行 SEM 分析,结果如图 11 所示。由图 11 可见,实验前填料表面平整、结构紧密,在实验后由于微电解作用使得离子析出,导致填料表面凹凸不平,空隙增多。由图 12 可知,填料表面的附着物发现,主要含有铁、碳、磷和氧元素。主要为含铁化合物,包括 FePO_4 、 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 、 Fe_2P 和 $\text{Fe}_6(\text{PO}_4)_4(\text{OH})_5$ 等, $\text{Fe}_6(\text{PO}_4)_4(\text{OH})_5$ 的产生是由 FePO_4 和 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 的共沉淀作用造成的。

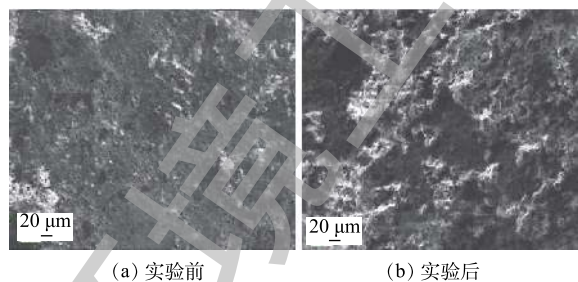


图 11 实验前后填料 SEM 图

Fig. 11 SEM images of the fillers before and after the experiment

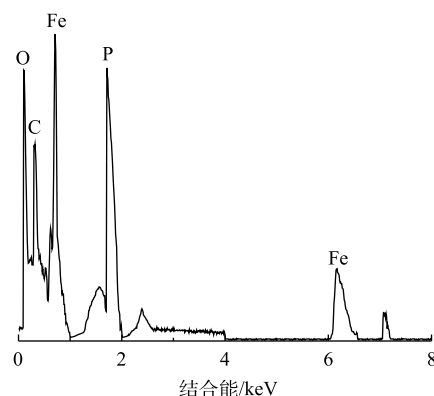


图 12 铁碳填料的 EDS 能谱图

Fig. 12 EDS energy spectrum of iron - carbon filler

2.6 因子分析

由于各个变量之间存在一定的相互作用关系,利用 SPSS Statistics25 软件,对微生物活性、微

生物数量、植株增量以及各污染物的去除率进行了相关性分析和因子分析。由表 5 可知，微生物数量与 TP 去除率、NH₄⁺-N 去除率的相关性强，微生物活性与 TN 的去除率和植株增量相关性显著，COD 去除率与 NH₄⁺-N 去除率相关性强。由此可推断，微生物数量与活性的提升，对污染物的去除均产生一定作用，且微生物活性的增大也有助于植株的生长。

表 5 Spearman 相关性分析
Table 5 Spearman correlation analysis

项目	微生物数量	微生物活性	COD去除率	TP去除率	NH ₄ ⁺ -N去除率	TN去除率	植株增量
微生物数量	1						
微生物活性	0.807	1					
COD去除率	0.935	0.948	1				
TP去除率	0.977*	0.743	0.915	1			
NH ₄ ⁺ -N去除率	0.955*	0.916	0.996**	0.947	1		
TN去除率	0.748	0.961*	0.935	0.738	0.908	1	
植株增量	0.387	0.855*	0.672	0.318	0.605	0.862	1

注：*表示在0.05级别(双尾)，相关性显著；**表示在0.01级别(双尾)，相关性显著。

PCA 分析结果提取到 2 个主成分，总方差解释中第 1 主成分的方差贡献率为 84.961%，第 2 主成分的方差贡献率为 14.137%，且 2 个成份的总方差解释度达到 99.098%。由此可见，这 2 个因子能够反映大部分数据信息。表 6 中第 1 主成分说明了微生物数量与各污染物去除率之间的关系，第 2 主成分说明了植株增量、微生物活性与 TN 去除率之间的影响。由此印证上述的研究结果，微生物耦合铁碳微电解强化浮床对促进植物生长、降解污染物以及生物数量与活性的提升有重要作用，正是由于微电解与微生物之间的耦合作用，促进微生物活性与数量的增长，使传统植物浮床的作用加强，满足对农村生活污水的处理。

表 6 主成分分析成分矩阵
Table 6 Component matrix of principal component analysis

成分	微生物数量/ (mg·g ⁻¹)	微生物活性/ (mg·(g·h) ⁻¹)	COD去除率/%	TP去除率/%	NH ₄ ⁺ -N去除率/%	TN去除率/%	植株增量/g
1	0.957	0.614	0.822	0.977	0.867	0.584	0.130
2	0.262	0.779	0.570	0.195	0.498	0.797	0.991

注：提取方法为主成分分析法；在3次迭代后已收敛。

3 结论

- 1) 微生物耦合铁碳微电解强化浮床对污染物的降解效果以及降解速率均强于传统植物浮床和微生物填料强化浮床。在冬季实验进行 25 d 后，微生物耦合铁碳微电解强化浮床系统的 COD、TP、NH₄⁺-N 和 TN 出水浓度分别为 21、0.41、5.6 和 8 mg·L⁻¹，夏季实验进行 20 d 后，出水浓度分别为 11、0.44、4.9 和 6 mg·L⁻¹，均达到《城镇污水处理厂污染物排放标准》(GB 18918-2002) 的一级 A 排放标准。
- 2) 微生物耦合铁碳微电解强化浮床对浮床植物有明显的促生长作用，冬季和夏季中的实验植株干质量分别增加了 23.3 g 和 67.4 g，与传统植物浮床相比，分别为冬季和夏季实验植株干质量增量的 5.42 倍和 2.76 倍，且植株的良好生长有益于水中污染物的去除。

3) 微生物的数量和活性大小对污染物去除率有一定影响。较微生物填料强化浮床, 耦合强化浮床中的微生物活性与微生物数量均有所升高, 且微生物活性和数量的增长, 亦提升了污染物的降解效率。

参考文献

- [1] 王志强, 李黎, 罗海霞, 等. 农村生活污水处理技术研究[J]. 安徽农业科学, 2012, 40(5): 2957-2959.
- [2] 陈荷生, 宋祥甫, 邹国燕. 利用生态浮床技术治理污染水体[J]. 中国水利, 2005(5): 50-53.
- [3] 黄锦楼, 陈琴, 许连煌. 人工湿地在应用中存在的问题及解决措施[J]. 环境科学, 2013, 34(1): 401-408.
- [4] 刘学燕, 侯琮语, 李德生, 等. 基于铁碳物化-生物耦合法的新型湿地填料研究[J]. 人民黄河, 2018, 40(11): 92-96.
- [5] 罗固源, 卜发平, 许晓毅, 等. 温度对生态浮床系统的影响[J]. 中国环境科学, 2010, 30(4): 69-73.
- [6] 吴伟, 胡庚东, 金兰仙, 等. 浮床植物系统对池塘水体微生物的动态影响[J]. 中国环境科学, 2008, 28(9): 791-795.
- [7] WANG W H, WANG Y, LI Z, et al. Effect of a strengthened ecological floating bed on the purification of urban landscape water supplied with reclaimed water[J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 622-623: 1630-1639.
- [8] CUI N X, CHEN G F, LIU Y Q, et al. Comparison of two different ecological floating bio-reactors for pollution control in hyper-eutrophic freshwater[J]. *Scientific Reports*, 2018, 8(1): 14306.
- [9] 李水秋. 铁碳微电解技术处理难降解废水的研究进展[J]. 广东化工, 2017, 44(12): 204-205.
- [10] WANG Y, FENG M, LIU Y. Treatment of dye wastewater by continuous iron-carbon microelectrolysis[J]. *Environmental Engineering Science*, 2016, 33(5): 333-340.
- [11] LI M, ZOU D, ZOU H, et al. Degradation of nitrobenzene in simulated wastewater by iron-carbon micro-electrolysis packing[J]. *Environmental Technology*, 2011, 32(15): 1761-1766.
- [12] 苏亿位, 刘金保. 辫带式水处理填料实用技术[C]//中国印染行业协会. 2014威士邦全国印染行业节能环保年会, 2014: 227-229.
- [13] 张清华, 门传玲, 王树林. 铁碳微电解法处理生活污水工艺参数的优化[J]. 机械工程材料, 2011(4): 70-73.
- [14] 陈月芳, 刘哲, 侯荣荣, 等. 耦合微生物和微电解组合浮床装置及处理生活污水的方法: 201710778741.6[P]. 2017-12-15.
- [15] 桑军强, 王志农, 李福志, 等. 饮用水生物处理中微生物量和活性的测定方法[J]. 环境工程学报, 2005, 6(8): 88-90.
- [16] 李海燕. 生物接触氧化工艺生物膜特性的研究[D]. 镇江: 江苏大学, 2007.
- [17] 李诗奇, 李政, 王仙宁, 等. 植物对氮磷元素吸收利用的生理生态学过程研究进展[J]. 山东农业科学, 2019, 51(3): 151-157.
- [18] PII Y, MIMMO T, TOMASI N, et al. Microbial interactions in the rhizosphere: Beneficial influences of plant growth-

- promoting *rhizobacteria* on nutrient acquisition process: A review[J]. *Biology and Fertility of Soils*, 2015, 51(4): 403-415.
- [19] 汪彩琴, 高心怡, 陈辉, 等. 微电解技术处理难降解工业废水的研究进展[J]. 化工环保, 2016, 36(5): 477-481.
- [20] 李爽, 李晓敏, 李芳柏. Fe(II)对反硝化过程及其功能微生物群落的影响[J]. 中国环境科学, 2018, 38(1): 263-274.
- [21] ZHANG L, ZHANG L, LI D. Enhanced dark fermentative hydrogen production by zero-valent iron activated carbon micro-electrolysis[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2015, 40(36): 12201-12208.
- [22] 赵昕燕, 卞伟, 侯爱月, 等. 季节性温度对短程硝化系统微生物群落的影响[J]. 中国环境科学, 2017, 37(4): 1366-1374.
- [23] KYAMBADDE J, KANSIIME F, GUMAELIUS L, et al. A comparative study of *Cyperus papyrus* and miscanthidium violaceum-based constructed wetlands for wastewater treatment in a tropical climate[J]. *Water Research*, 2004, 38(2): 475-85.
- [24] LAI B, ZHOU Y, QIN H, et al. Pretreatment of wastewater from acrylonitrile-butadiene-styrene (ABS) resin manufacturing by microelectrolysis[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2012, 179: 1-7.
- [25] 陈江安, 周丹, 邱廷省, 等. 氰化尾渣制备微电解填料及降解甲基橙研究[J]. 中国环境科学, 2018, 38(10): 210-216.
- [26] 陈欣, 祝惠, 阎百兴, 等. 铁碳微电解基质强化人工湿地污染物去除率的室内模拟实验[J]. 湿地科学, 2018, 16(5): 684-689.
- [27] LIN H, LIN Y, LIU L. Treatment of dinitrodiazophenol production wastewater by Fe/C and Fe/Cu internal electrolysis and the COD removal kinetics[J]. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, 2015, 58: 148-154.
- [28] FU G P, HUANGSHEN L K, GUO Z P, et al. Effect of plant-based carbon sources on denitrifying microorganisms in a vertical flow constructed wetland[J]. *Bioresource Technology*, 2017, 224: 214-221.
- [29] 樊杰, 万徐, 张璎. 磷酸铁沉淀对生物除磷所需钾离子的吸附竞争[J]. 环境科学与技术, 2014, 37(4): 57-61.
- [30] ZHANG L L, YUE Q Y, YANG K L, et al. Enhanced phosphorus and ciprofloxacin removal in a modified BAF system by configuring Fe-C micro electrolysis: Investigation on pollutants removal and degradation mechanisms[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2018, 342: 705-714.
- [31] DENG S, LI D, YANG X, et al. Biological denitrification process based on the Fe(0)-carbon micro-electrolysis for simultaneous ammonia and nitrate removal from low organic carbon water under a microaerobic condition[J]. *Bioresource Technology*, 2016, 219: 677-686.
- [32] PAPCIAK D, KALETA J, PUSZKAREWICZ A. Removal of ammonia nitrogen from groundwater on chalcedony deposit in two-stage biofiltration process[J]. *Rocznik Ochrona Srodowiska*, 2013, 15(1): 1352-1366.
- [33] 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): 104-107.
- (本文编辑: 曲娜, 郑晓梅)

Advanced treatment of rural domestic sewage by microbial coupling Fe-C micro electrolysis-enhanced floating bed of aquatic plants

CHEN Yuefang^{1,2,*}, ZHANG Yuqi¹, FENG Huimin¹, LIU Zhe¹, LIU Zheng³

1. School of Energy and Environmental Engineering, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China

2. Beijing Key Laboratory of Resource-Oriented Treatment of Industrial Pollutants, Beijing 100083, China

3. Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China

*Corresponding author, E-mail: chen Yuefang@ustb.edu.cn

Abstract In order to reduce the pollution of organic matter in rural domestic sewage to river water body, the coupling processes of traditional plant floating bed, iron-carbon micro-electrolysis and conventional biological fillers were used to study its treating effect towards the first-grade effluent of existing rural sewage treatment. The coupling process took physical and chemical reactions, biological reactions and chemical reactions as symbiotic relationships, which can establish an artificial ecosystem to reduce the pollution load in water. The results showed that the removal rates of COD, TP, $\text{NH}_4^+\text{-N}$ and TN by the microbial coupling iron-carbon micro-electrolysis-enhanced floating bed enhanced could reach 78.6%, 78.2%, 72.2% and 73.3%, respectively in winter. In summer, the removal rates could reach 88.8%, 75.6%, 78.1% and 80%, respectively. The COD degradation rates by the coupled enhanced floating bed in winter and summer reached $2.933 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$ and $3.529 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$, respectively. The TP degradation rates were $0.055 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$ and $0.061 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$, respectively. The $\text{NH}_4^+\text{-N}$ degradation rates were $0.583 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$ and $0.8 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$, respectively. The TN degradation rates were $0.73 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$ and $1.114 \text{ mg}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$, respectively. They were better than the treating effects of the traditional plant floating bed or microorganism enhancing floating bed. In addition, microbial-coupled iron-carbon micro-electrolysis-enhanced floating bed had a significantly stronger growth-promoting performance on plants than traditional floating bed and micro-enhanced floating bed. In winter, the plant weight gain before and after the experiment was 23.3 g, and in summer was 67.4 g. The microbial activity in the coupled floating bed was 1.81 and 1.45 times that in the microbial-enhanced floating bed. Finally, the correlation analysis and principal component analysis of the factors were used to further indicate that the synergistic effect of micro-electrolysis of iron and carbon promoted the increase of the number and activity of microorganisms, and thus had an important influence on the removal effect of pollutants. This study provides strong technical support for the advanced treatment of rural domestic sewage, and has great significance for improving the status quo of rural sewage treatment.

Keywords plant floating bed; microorganism; iron carbon micro electrolysis; microorganism coupling iron carbon micro electrolysis