

面向有机污染物消除的“微生物、植物、电”多效耦合作用机制及低能耗型修复技术

刘双江^{1,2}, Philippe F.-X. Corvini^{3,4}, Korneel Rabaey⁵

1 中国科学院微生物研究所 微生物资源国家重点实验室, 北京 100101

2 山东大学 微生物技术国家重点实验室, 山东 青岛 266237

3 *School of Life Sciences, University of Applied Sciences and Arts Northwestern Switzerland, Muttenz 4132, Switzerland*

4 南京大学 环境学院, 江苏 南京 210023

5 *Center for Microbial Ecology and Technology (CMET), Ghent University, Ghent, Belgium*

刘双江, Philippe F.-X. Corvini, Korneel Rabaey. 面向有机污染物消除的“微生物、植物、电”多效耦合作用机制及低能耗型修复技术. 生物工程学报, 2021, 37(10): 3405-3410.

Liu SJ, Corvini PFX, Rabaey K. ELECTRA: electricity-driven low energy and chemical input technology for accelerated bioremediation. Chin J Biotech, 2021, 37(10): 3405-3410.

摘要: 中欧合作项目“面向有机污染物消除的‘微生物、植物、电’多效耦合作用机制及低能耗型修复技术”是由中国国家自然科学基金委和欧盟共同资助的重大国际合作项目。该项目研究领域属于环境生物技术, 研究团队包括 5 个中方单位和 17 个欧方单位, 项目主要围绕新有机污染物的生物降解过程和机制、低能耗生物修复技术开展研究工作。项目执行 2 年来, 在降解污染物的微生物资源、弱电介入增效生物降解和强化电子传递、微生物 3D 打印等方面取得了阶段性成果的同时, 项目团队还开展了有效的交流和实质性合作。未来, 项目团队将克服新冠疫情影响, 强化中欧双方团队内部和团队之间的合作交流, 全面实现项目科学目标, 圆满完成国际合作任务。

关键词: 中国-欧盟合作, 环境生物技术, 新有机污染物, 生物降解, 弱电, 低能耗生物修复技术

Received: June 6, 2021; **Accepted:** July 6, 2021

Supported by: National Natural Science Foundation of China (No. 31861133002), European Union's Horizon 2020 Research and Innovation Program Under Grant Agreement (No. 826244).

Corresponding author: Shuang-Jiang Liu. Tel: +86-10-64807421; Fax: +86-10-64807423; E-mail: liusj@im.ac.cn or liusj@sdu.edu.cn
国家自然科学基金 (No. 31861133002), 欧盟 H2020 (No. 826244) 资助。

网络出版时间: 2021-07-26

网络出版地址: <https://kns.cnki.net/kcms/detail/11.1998.Q.20210723.1652.002.html>

ELECTRA: electricity-driven low energy and chemical input technology for accelerated bioremediation

Shuang-Jiang Liu^{1,2}, Philippe F.-X. Corvini^{3,4}, and Korneel Rabaey⁵

¹ Institute of Microbiology, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100101, China

² State Key Laboratory of Microbial Technology, Shandong University, Qingdao 266237, Shandong, China

³ School of Life Sciences, University of Applied Sciences and Arts Northwestern Switzerland, Muttenz 4132, Switzerland

⁴ School of Environmental Science, Nanjing University, Nanjing 210023, Jiangsu, China

⁵ Center for Microbial Ecology and Technology (CMET), Ghent University, Ghent, Belgium

Abstract: The international cooperation project “electricity-driven low energy and chemical input technology for accelerated bioremediation” (abridged as “ELECTRA”) is jointly supported by National Nature Science Foundation of China (NSFC) and European Commission (EC). The ELECTRA consortium consists of 5 research institutions and universities from China and 17 European research institutions and universities, as well as high-tech companies of EC countries. ELECTRA focuses on researches of biodegradation of emerging organic compounds (EOCs) and novel environmental biotechnologies of low-energy and low-chemical inputs. The project has been successfully operated for 2 years, and has made important progresses in obtaining EOCs-degrading microbes, developing weak-electricity-accelerated bioremediation, and 3D-printing techniques for microbial consortium. The ELECTRA has promoted collaborations among the Chinese and European scientists. In the future, ELECTRA will overcome the negative impact of the COVID-19 pandemic and fulfill the scientific objectives through strengthening the international collaboration.

Keywords: ELECTRA, environmental biotechnology, emerging organic compounds (EOCs), biodegradation, biotechnology of low-energy and low-chemical inputs

国家自然科学基金委员会 (National Natural Science Foundation of China, NSFC) 2018 年公布了与欧盟委员会 (European Commission, EC) 共同资助中欧双方科学家在“环境生物修复新技术”领域的合作研究^[1]。项目“面向有机污染物消除的‘微生物、植物、电’多效耦合作用机制及低能耗型修复技术”属于该项合作内容。NSFC 项目由中国科学院微生物研究所主持, 参与单位有中国科学院生态环境研究中心、南京大学、中国科学技术大学和南京农业大学。项目设立 3 个研究课题 (图 1), 分别是“有机污染物降解微生物组的功能解析和微生物菌群 3D 打印技术”“弱电能介入型生物强化处理系统中中毒害性有机污染物的定向转化及调控机制”“植物-微生物耦合作用下人工湿地中新有机污染物的消除原理与技术”^[2]。EC 项目包括 7 个研究模块 (图 1), 由西北瑞士应用科学和艺术大学 (University of Applied Sciences and Arts Northwestern Switzerland) 主持, 参与单

位包括莱比锡亥姆霍兹环境研究中心 (The Helmholtz Centre for Environmental Research-UFZ)、德国杜伊斯堡-埃森大学 (University of Duisburg-Essen)、比利时根特大学 (Ghent University)、意大利博洛尼亚大学 (University of Bologna)、西班牙赫罗纳大学 (University of Girona)、希腊克里特大学 (University of Crete) 等 17 个大学和研究机构, 另外研发型企业参与项目研究, 并承担研究成果转化。本文介绍包括 NSFC 和 EC 项目的主要研究内容和执行两年来取得的一些阶段性成果。

1 项目主要研究内容

项目主要围绕新有机污染物 (Emerging organic contaminants, EOCs) 的生物降解和新型环境生物技术开展研究, 按照两家资助机构支持研究项目属性, 中方更多开展应用基础研究, 欧方则应用基础和技术研发兼顾。EOCs 广泛存在于水体、土壤等环境中, 威胁人类和环境健康。EOCs

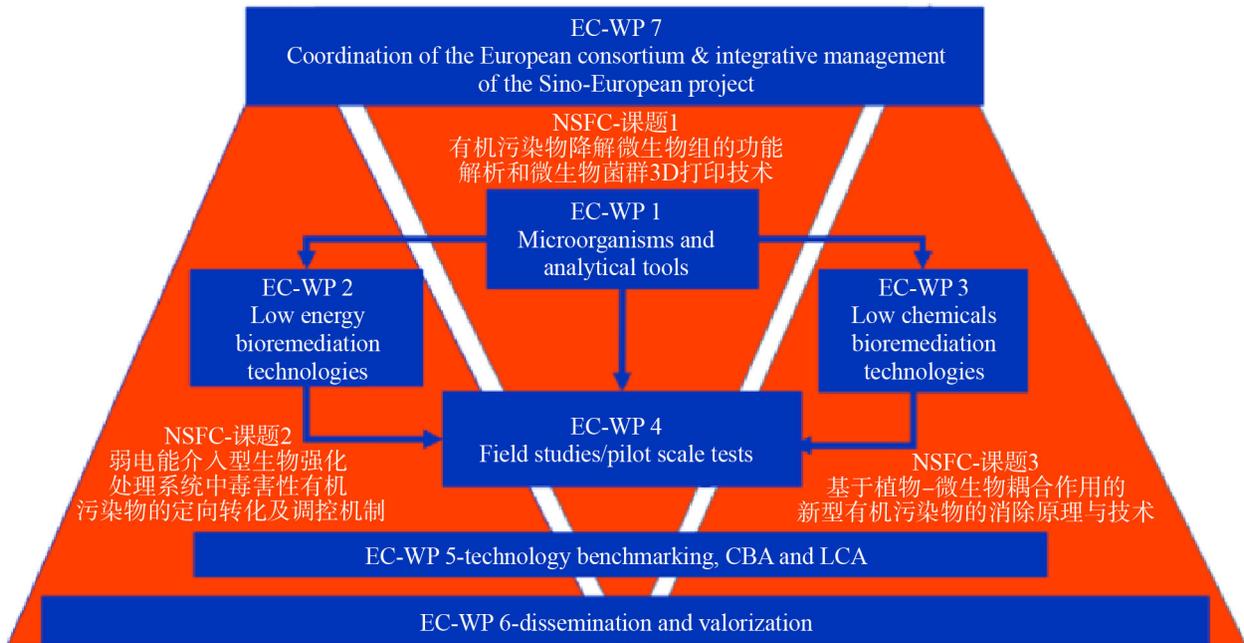


图 1 中欧合作项目中课题设置和研究内容示意图 (红色代表中方研究领域, 3 个课题由 3 个三角形代表; 蓝色代表欧盟研究领域, 由 7 个工作任务包组成)

Fig. 1 Sub-projects (research packages) and major researches of the NSFC-EC joint project. Red area shows the NSFC-funded researches, including three sub-projects. Blue area shows the EC-funded researches, including 7 working packages.

在环境中的转化、降解和最终归趋, 以及针对 EOCs 的生物消除技术, 是当前环境微生物学和环境生物技术发展的重点领域。中方研究团队以三氯卡班、利谷隆、磺胺甲噁唑和四溴双酚 A 等 EOCs 为代表 (图 2), 从降解污染物的微生物组出发, 在群体、菌株、降解酶/基因、降解途径及调控 4 个层面, 研究菌群内部微生物之间及与环境电极和人工湿地植物之间的互动、EOCs 降解机理, 研发生物电化学与生物处理过程耦合、构建弱电介入型 EOCs 生物增效处理系统, 研发植物-微生物联合修复 EOCs 污染的人工湿地技术, 设计并立体构建适用于降解和消除 EOCs 的功能菌群, 发展基于微生物 3D 打印技术等新一代微生物修复技术。欧方团队除了针对上述 EOCs 类污染物之外, 研究对象还包括水体中氮磷等污染物, 并强调与企业合作进行成果转化, 提升技术的成熟度。

2 项目主要进展

项目执行 2 年来, 研究团队在磺胺甲噁唑和四溴双酚 A 等污染物的生物降解菌株资源和降解过程方面取得了显著进展, 获得了降解矿化磺胺甲噁唑和氯霉素的菌株和分解四溴双酚 A 的富集菌群, 揭示了活性污泥细菌互营代谢矿化磺胺甲噁唑的生物学新机制, 发现了活性污泥菌胶团形成细菌分解代谢氯霉素的新途径, 克隆表征了氯霉素氧化脱毒关键酶新基因^[3-4]; 揭示了氮掺杂石墨烯中 N 的掺杂态调控奥奈达希瓦氏菌 *Shewanella oneidensis* MR-1 胞外电子传递的机制^[5]; 并利用废弃物动物羽毛和玉米秸秆制备了一系列 N 掺杂活性炭阳极材料^[6-7]。项目团队发现了电极中的吡咯型活性 N 原子对促进菌株 MR-1 的直接电子传递过程 (DET) 和黄素类物质介导的间接电子传递过程 (MET) 发挥了重要作用; 分子动力学模拟结

20 倍和 7 倍^[8]；以覆碳 SS 和碳毡为原料组装成夹层波纹型电极模块，电极最佳褶皱角度为 40°，工作电极与对电极间距为 2 mm；建立了模块化标件的设计工程标准和即插即用现场装配模式，发明了可控加速器件主导的强化型复合水解酸化技术及系列适配型工艺装置^[9]。

项目团队研究发现了土壤基质中四溴双酚 A 的不可提取态残留 (TBBPA-NERs) 在好氧土壤中较为稳定，214 d 内仅释放 1.9% 的母体及其代谢产物，添加 TBBPA 的降解菌苍白杆菌 *Ochrobactrum* sp. 菌株 T 会显著促进 TBBPA-NERs 的释放 (10.9%) 和矿化 (4.6%)，其中释放的组分主要是以酯键共价结合的 NERs^[10]。研究团队回顾并总结了 TBBPA 在不同氧化还原条件下和湿地植物存在时的降解、矿化、代谢途径、NERs 的形成与稳定性，以及这些过程的微观机理^[11]。此外，项目团队研究了不同氧化还原条件下腐殖酸对酚类污染物转化的影响。结果表明，氧化还原状态变化条件下腐殖酸能在很大程度上促进酚类污染物的非生物转化；更为重要的是，在腐殖酸分子发生还原-氧化过程中，酚类物质会与之相结合，进而实现自然环境中非常重要的化学型腐殖化过程。在水位频繁变化及富含腐殖质的湿地中，该机制可能是酚类污染物转化及腐殖化的重要途径^[12]。项目团队就人工湿地中新有机污染物的去除机制，包括基质吸附、微生物降解及植物吸收降解等展开了综述^[13]，针对生物电化学系统在污染物转化方面的应用，项目团队总结了生物电化学系统及其衍生技术在反硝化、脱氯以及去除多环芳烃、农药及抗生素等过程中的作用及其应用前景^[14]。

在 3D 打印方面，项目研究团队基于海藻酸钠、纤维素、I-型卡拉胶、羧甲基纤维素钠、纳米导电材料等材料开发出可用于 3D 生物打印的“生物相容墨水”，表征了“生物相容墨水”的剪切稀释特性，结果表明，研发的“生物相容墨水”具

有良好的印刷性能和导电性能，满足用于 3D 打印的材料所需的流变学特性和高效电子传递效率。实验结果表明，3D 打印在生物膜里的特效杆菌 *Diaphorobacter* sp. 菌株 LR2014-1 和恶臭假单胞菌 *Pseudomonas putida* 菌株 KT2440 (pDCA-1) 能够将利谷隆转化为 3,4-二氯苯胺并进一步完全降解；以电活性菌 *S. oneidensis* MR-1 为对象、基于 3D 生物打印平台构建了具有高菌浓度和优良胞外电子传递能力的 3D 人工电活性生物膜，实现了对甲基橙和硝基苯等毒害性有机污染物的强化去除。

尽管受到新冠疫情的影响，中欧国际合作项目在学术交流方面仍取得了系列重要进展。2019 年 1 月 23–25 日在项目欧方负责人所在单位西北瑞士应用科学与艺术大学召开中欧项目启动大会，中国国家自然科学基金会和欧盟项目管理领导参加了启动会；2019 年 8 月 26 日在中国科学技术大学召开中方项目进展研讨会；2019 年 11 月 25–29 日，在南京、北京分别召开该合作项目中欧青年研究者学术进展研讨会；2020 年 3 月 9–10 日中方项目组成员在线上参加欧方在比利时根特组织的中欧项目进展研讨会；2020 年 12 月 15–17 日，在南京大学召开中方项目进展研讨会，欧方项目负责人和国家自然科学基金委项目主管和部门领导等线上参加并参与讨论。中欧双方共享了研究资源，并在研究方法和分析测试技术上统一标准。德国亚琛工业大学、瑞士西北应用科学与艺术大学等选派人员到中方团队开展研究工作，南京大学、南京农业大学等选派人员到欧方团队单位开展研究工作。

3 展望

项目执行期共计 4 年。因新冠疫情，双方人员交流受到巨大影响，双方项目团队通过线上交流等形式努力开展合作，但合作效率和未来预期成果可能会受到影响。尽管如此，双方团队将通

力协作, 共克时艰, 保障在科学上高水平完成项目任务。目前, 中方团队已经进一步强化内部合作, 并与欧方合作伙伴通力合作。在未来的两年时间里, 项目团队将力争在 EOCs 降解机制、化学与生物处理过程耦合、弱电介入增效生物处理系统构建、植物-微生物联合修复人工湿地技术、微生物 3D 打印技术等方面取得科学突破, 并推进项目成果转化。

致谢: 本文得到了项目研究任务负责人王爱杰、季荣、蒋建东、穆扬等教授和项目科研骨干梁斌、何玉洁等博士的支持, 特此致谢!

REFERENCES

- [1] 2018 年度国家自然科学基金委员会与欧盟委员会环境生物技术合作研究项目申请指南. [2021-06-02]. <http://www.nsf.gov.cn/publish/portal0/tab442/info72596.htm>
- [2] 2018 年度国家自然科学基金委员会与欧盟合作研究项目批准通知. [2021-06-02]. <http://www.nsf.gov.cn/publish/portal0/tab442/info74269.htm>.
- [3] Ma XD, Liang B, Qi MY, et al. Novel pathway for chloramphenicol catabolism in the activated sludge bacterial isolate *Sphingobium* sp. CAP-1. *Environ Sci Technol*, 2020, 54(12): 7591-7600.
- [4] Qi M, Liang B, Zhang L, et al. Microbial interactions drive the complete catabolism of the antibiotic sulfamethoxazole in activated sludge microbiomes. *Environ Sci Technol*, 2021, 55(5): 3270-3282.
- [5] Wang YX, Li WQ, He CS, et al. Active N dopant states of electrodes regulate extracellular electron transfer of *Shewanella oneidensis* MR-1 for bioelectricity generation: experimental and theoretical investigations. *Biosens Bioelectron*, 2020, 160: 112231.
- [6] Wang YX, Li WQ, He CS, et al. Efficient bioanode from poultry feather wastes-derived N-doped activated carbon: performance and mechanisms. *J Clean Prod*, 2020, 271: 122012.
- [7] Wang YX, He CS, Li WQ, et al. High power generation in mixed-culture microbial fuel cells with corncob-derived three-dimensional N-doped bioanodes and the impact of N dopant states. *Chem Eng J*, 2020, 399: 125848.
- [8] Lin XQ, Li ZL, Liang B, et al. Accelerated microbial reductive dechlorination of 2,4,6-trichlorophenol by weak electrical stimulation. *Water Res*, 2019, 162: 236-245.
- [9] 王爱杰, 程浩毅, 彭永臻, 等. 污废水增效处理加速器件: 中国, ZL201710332928.3, 2020-03-24.
- [10] Xu DC, Zhai SY, Cheng HY, et al. Wire-drawing process with graphite lubricant as an industrializable approach to prepare graphite coated stainless-steel anode for bioelectrochemical systems. *Environ Res*, 2020, 191: 110093.
- [11] Wang AJ, Wang HC, Cheng HY, et al. Electrochemistry-stimulated environmental bioremediation: development of applicable modular electrode and system scale-up. *Environ Sci Ecotechnol*, 2020, 3: 100050.
- [12] Wang SF, Ling XH, Wu X, et al. Release of tetrabromobisphenol A (TBBPA)-derived non-extractable residues in oxic soil and the effects of the TBBPA-degrading bacterium *Ochrobactrum* sp. strain T. *J Hazard Mater*, 2019, 378: 120666.
- [13] 蔡蕊, 王文姬, 许航, 等. 四溴双酚 A 在土壤中的降解转化及残留研究进展. *环境化学*, 2021, 40(1): 102-110.
Cai R, Wang WJ, Xu H, et al. Degradation, transformation, and residue formation of tetrabromobisphenol A (TBBPA) in soil: a review. *Environ Chem*, 2021, 40(1): 102-110 (in Chinese).
- [14] Jia X, He YJ, Corvini PFX, et al. Transformation of catechol coupled to redox alteration of humic acids and the effects of Cu and Fe cations. *Sci Total Environ*, 2020, 725: 138245.

(本文责编 陈宏宇)