樊皓,卢晶莹,张旭.电化学氧化对湖泊沉积物细菌群落结构的影响[J].环境科学与技术,2024,47(S1):15-20. Fan Hao, Lu Jingying, Zhang Xu. Influence of electrochemical oxidation on the bacterial composition in lake sediment[J]. Environmental Science & Technology,2024,47(S1):15-20.

电化学氧化对湖泊沉积物细菌群落结构的影响

樊皓[1], 卢晶莹[2], 张旭[3*]
(1.长江水资源环境保护科学研究所,湖北 武汉 430051;
2.中国三峡建工(集团)有限公司,四川 成都 610095;
3.武汉大学资源与环境科学学院,湖北 武汉 430079)

摘 要:生物电化学技术在水生态修复中具有良好的应用前景。3种不同生境条件下的湖泊沉积物,经过30 d的电化学氧化后,只观测到1种沉积物中细菌微生物的Shannon指数发生了显著性改变(P<0.05)。3种沉积物中共计17个细菌门的相对丰度发生显著性变化:其中只有酸杆菌门、硝化菌门和螺旋菌门的相对丰度大于1%。相反地,相对丰度最高的9个细菌门在电化学氧化组和对照组中的变化则不显著。电化学氧化对沉积物中不同细菌微生物之间的相互关系影响同样较小。但是,在纲分类水平上,电化学氧化对脱卤球菌纲和多种硫酸盐还原菌(如*Thermodesulfovibrionia*和*Desulfobulbia*)的相对丰度影响显著,表明电化学氧化可能改变沉积物中卤素和硫等元素的生物地球化学循环过程。研究成果为明确电化学氧化修复处理污染沉积物所造成的潜在生态效应提供了供更多理论依据。

关键词:沉积物; 电化学氧化; 细菌多样性; 脱硫细菌; 脱卤球菌
中图分类号:X524;X172 **文献标志码**:A **doi**:10.19672/j.cnki.1003-6504.1767.22.338 **文章编号**:1003-6504(2024)S1-0015-06

Influence of Electrochemical Oxidation on the Bacterial Composition in Lake Sediment

FAN Hao[1], LU Jingying[2], ZHANG Xu[3*]
(1. Water Resources Protection Research Institute of Changjiang River, Wuhan 430051, China;
2. Three Gorges Construction (Group) Co., Ltd., Chengdu 610095, China;
3. School of Resources and Environmental Science, Wuhan University, Wuhan 430079, China)

Abstract: Bioelectrochemical technology has promising application in remediation of water ecosystem. After 30 days electrochemical oxidation of three different sediments, significantly different change (P<0.05) of Shannon index was observed only in one sediment sample. The relatively abundance of 17 phyla was statistically different between control sediments and electrochemical oxidized sediments. However, only Acidobacteriota, Nitrospirota and Spirochaetota, among the 17 phyla, have abundance larger than 1%. Conversely, the change of abundance of the top 9 bacterial phyla was not significant. The effects of electrochemical oxidation on bacterial connection were also very light. Nevertheless, at the bacterial class level, the change of relative abundance of Dehalococcoidia and sulfate-reducing bacteria such as *Thermodesulfovibrionia* and *Desulfobulbia*, etc. was significant, suggesting the biogeochemical cycle of halogen and sulfur could be altered by electrochemical oxidation. These findings provide more theoretical basis for underlying the potential ecological effects caused by electrochemical oxidation remediation of polluted sediments.

Key words: sediment; electrochemical oxidation; bacterial diversity; sulfate-reducing bacteria; Dehalococcoidia

天然水体的沉积物通常是多种有机质和无机矿物组成的混合物,经过长时间生物地球化学转化及水体传输而沉积于水体底部所形成。沉积物在水生态系统中扮演着重要角色。首先,沉积物是微生物、沉水植物和底栖生物赖以生存的栖息地。其次,沉积物中发生的好氧-厌氧反应决定了水生态系统中生

《环境科学与技术》编辑部:(网址)http://fjks.chinajournal.net.cn(电话)027-87643502(电子信箱)hjkxyjs@vip.126.com
收稿日期:2022-08-05;修回2022-10-25
基金项目:国家自然科学基金(21477091);中国三峡建设管理有限公司科研项目(JG/18011B)
作者简介:樊皓(1985-),男,工程师,主要从事水资源优化配置研究,(电子信箱)420923318@qq.com;*通讯作者,男,教授,(电子信箱)xuzhang@whu.edu.cn。

源要素的形态和外来污染物的内源负荷。最后，由于浓度扩散和物理/生物扰动，沉积物-上覆水之间发生物质和生物交换，影响上覆水体中的生物地球化学循环。

伴随着外源负荷的增加和水体自净能力的下降，生源要素和其他化学物质在水体沉积物中的累积逐渐显著，进而演变成为天然水体的内源污染源[1]。依据是否改变沉积物的位置，沉积物的修复技术主要分为原位修复和异位修复2种类型[2,3]；依据基本方法原理又可分为物理修复、化学修复和生物修复。原位物理修复主要是通过投加黏土、黄沙和其他活性物质[4]，在沉积物表面形成覆盖物，减缓或者隔绝沉积物与上覆水体的物质交换。化学修复方法则主要利用氧化-还原反应实现对沉积物中污染物的消除[5]。生物修复方法则主要以恢复水生植物和水生动物为主[6]。多种方法的联用技术也是水体沉积物修复领域的研究热点之一。

近年来，研究表明生物电化学技术可以高效去除沉积物中的诸如多环芳烃、喹诺酮类抗生素和四环素类抗生素等物质[7-9]，在沉积物原位修复领域具有良好的应用前景。生物电化学技术广义上可以分为3种类型：微生物燃料电池、微生物电解池和外加电场强化生物修复。以往研究多关注沉积物中目标污染物的降解效率以及碳氮磷的形态转化过程，有关直接电氧化以及电化学氧化反应中产生的活性氧和活性氯等物质对沉积物中微生物群落结构的影响的认识仍显不足。

本文研究了外加电场作用下，电化学氧化对3种沉积物中细菌群落组成和多样性的影响程度，探讨了细菌微生物群落改变对水环境中元素循环造成的潜在影响，为揭示生物电化学技术对沉积物的修复效果和修复机理提供更多的参考依据。

1 实验部分

1.1 电化学氧化实验

沉积物来源于湖北省武汉市武汉大学星湖（总氮：16 800 mg/kg，总磷814 mg/kg，有机质109 mg/kg）。将沉积物置于玻璃方缸内（60 cm×60 cm×90 cm），厚度为30 cm，上覆水高度为50 cm。本文研究了3种不同湖泊生境条件下，电化学氧化对沉积物细菌群落组成和丰度的影响。第1组沉积物（S1）体系中种植36株苦草以模拟草型湖泊系统；第2组沉积物（S2）中未引入其他变量；第3组沉积物（S3）体系中加入0.3 g新鲜樟树叶，模拟湖泊滨湖带多木本植物的生境条件。

电氧化实验条件：以钛网作为阴极，镀有钌铱的钛网作为阳极（电极板尺寸：55 cm×30 cm×2 mm），置于沉积物中。外加工作电压12 V，测定电流0.8 A。电氧化30 d后，将电氧化组沉积物（ES1、ES2和ES3）和控制组（无电极）沉积物（S1、S2和S3）取出进行细菌微生物多样性测定。每组取出3份0~5 cm的沉积物平行样，用于样本统计分析。在对种植有苦草的沉积物进行取样时，采集远离植物根际的沉积物。

1.2 细菌多样性分析

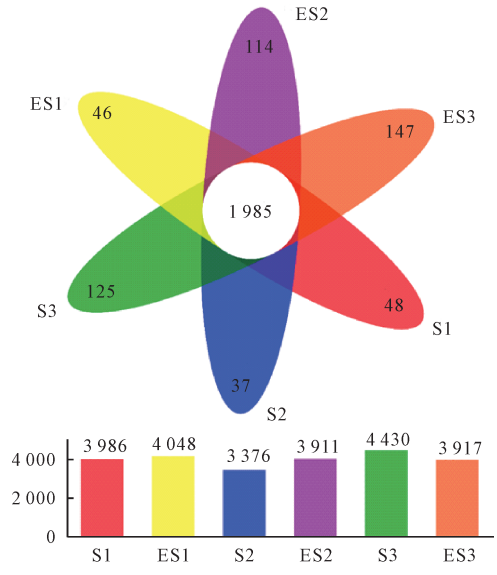
沉积物样品中的DNA使用土壤DNA试剂盒（FastDNA SPIN Kit for soil, MP Biomedicals，USA）提取，之后使用Nanodrop 2000（Thermo Fisher Scientific，USA）测定提取的DNA浓度。抽提的基因组用细菌通用引物16S rDNA中V3-V4片段进行PCR扩增，正向是338F(5'-ACTCCTACGGGAGGCAGCAG-3')和反向引物806R(5'-GGACTACHVGGGTWTCTAAT-3')。PCR扩增条件：95 ℃预变性3 min，接下来按95 ℃变性30 s，55 ℃退火30 s，72 ℃延伸45 s，一共循环27次，最后一次循环时以72 ℃延伸10 min结束。

PCR扩增后获得的序列由上海美吉生物公司的测序平台Illumina Miseq PE300测定，测得的16S rDNA序列在Silva数据库（http://www.arb-silva.de）进行比对，数据库为silva138/16s_bacteria，按97%相似度进行OTU聚类分析。后续细菌多样性及群落结构分析在MAJORBIO-CLOUD平台（https://cloud.majorbio.com）上进行。

2 结果

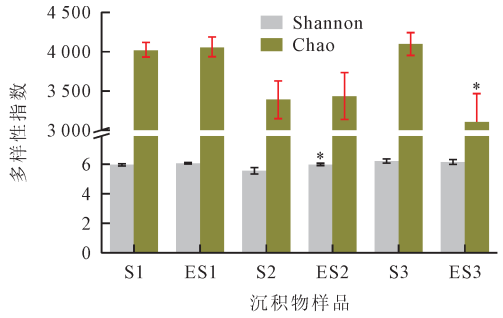
3种沉积物测定的有效序列数分别为35 561±2 683、36 334±1 120、42 739±1 564，电解后，有效序列数分别为35 819±1 109、37 492±607、33 836±3 319。按照97%相似度，6种沉积物样品中的OTU数量分别为3 986（S1）和4 048（ES1），3 376（S2）和3 911（ES2），4 430（S3）和3 917（ES3）。从图1中的结果可以看出，6种沉积物样品中共有的OTU数量为1 985，占总OTU数量的45%~59%。S1和ES1、S2和ES2、S3和ES3共有的OTU分别为82%、76%和80%。

图2是沉积物样品的Chao和Shannon多样性指数。数据表明，S1和ES1的两种α多样性指数不存在显著性差异；S2和ES2的Shannon指数、S3和ES3的Chao指数存在显著差异（P<0.05）。结果表明，电化学氧化对沉积物中细菌的α多样性的整体影响程度不高。



注：柱状图中的数值表示该沉积物样品中OTU数量。

图1 沉积物样品中OTU的Venn分布图



注：*表示控制组和电化学氧化组之间存在显著性差异(p<0.05)。

图2 OTU水平上沉积物样品的Shannon和Chao多样性指数

图3为沉积物中细菌在门分类水平上的相对含量分布图。相对丰度排名前10的细菌门为变形菌门(Proteobacteria)、绿弯菌门(Chloroflexi)、脱硫菌门(Desulfobacterota)、酸杆菌门(Acidobacteriota)、放线菌门(Actinobacteriota)、拟杆菌门(Bacteroidota)、厚壁菌门(Firmicutes)、Sva0485、硝化菌门(Nitrospirota)和Nitrospinota。相对丰度排名前10的细菌门中，只有放线菌门在S1和ES1、硝化菌门在S2和ES2，以及拟杆菌门在S3和ES3中的相对丰度存在显著性差异(P<0.05)(图4)。

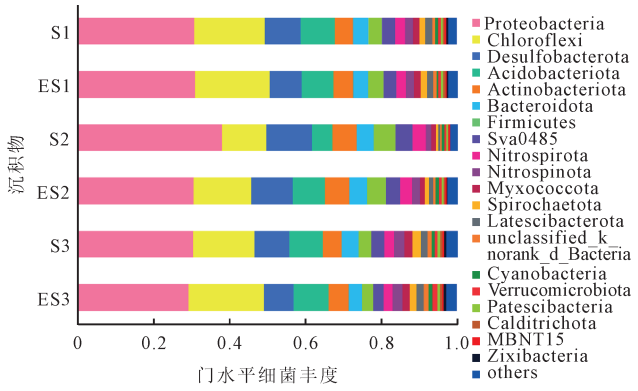


图3 沉积物样品中不同细菌门水平的相对丰度

相对丰度排名前10的细菌纲为γ-变形菌纲(Gammaproteobacteria)、厌氧绳菌纲(Anaerolineae)、脱硫杆菌纲(Desulfobacteria)、病毒杆菌纲(Vicinamibacteria)、梭菌纲(Clostridia)、Sva0485纲(Sva0485)、拟杆

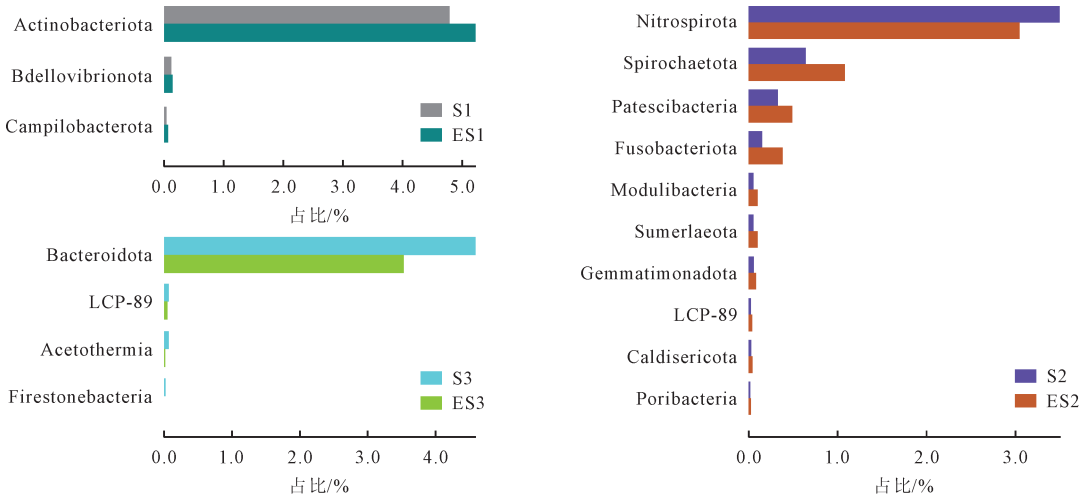


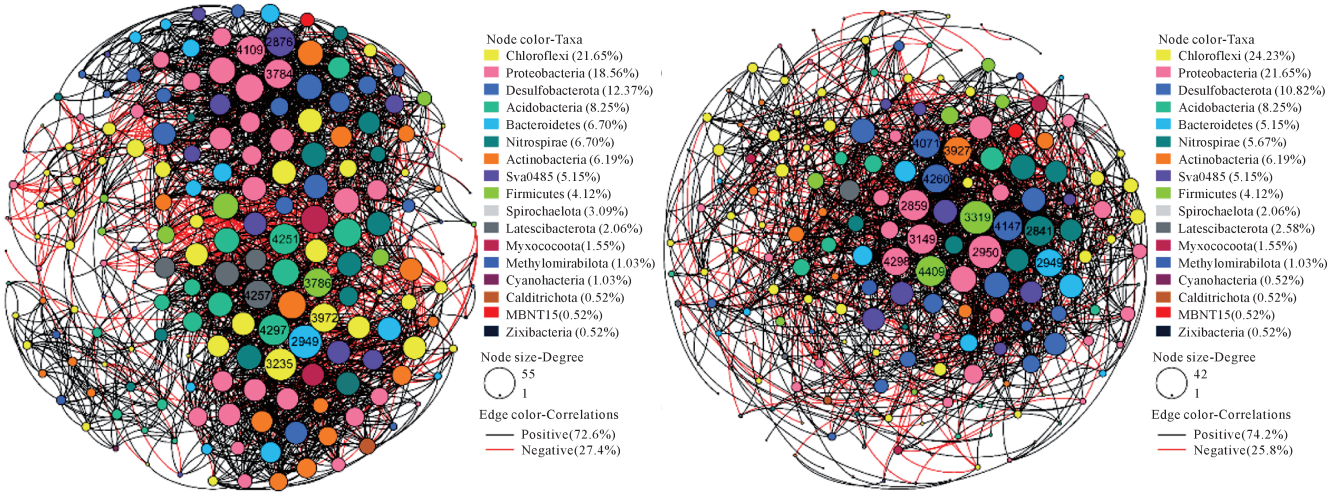
图4 电化学氧化和控制组沉积物样品中相对丰度存在显著性差异(P<0.05)的细菌门

菌纲(Bacteroidia)、热脱硫弧菌纲(Thermodesulfovibrionia)、P9X2b3D02纲(P9X2b3D02)和嗜热油菌纲(Thermoleophilia)。上述10种细菌纲共占有>65%的细菌组成。秩合检验结果表明排名前10的细菌属的相对丰度在多组比较时有5种(脱硫杆菌纲、梭菌纲、Sva0485纲、拟杆菌纲和热脱硫弧菌纲)具有显著性差异(P<0.05)。在两组比较中，S2和ES2中的*Thermodesulfovibrionia*、S3和ES3中的*Bacteroidia*两种相对丰度排名前10的细菌存在显著差异(P<0.05)。

在属分类水平上，相对丰度排名前20的细菌中只有5个属有明确名称，分别为*Thiobacillus*、*Candidatus Competibacter*、*Dechloromonas*、*Desulfatiglans*和

Sva0081_sediment_group，其他15个属均为norank或者unclassified。上述5种具有明确名称的细菌属与氮、硫和氯元素的生物的地球化学循环有关。虽然秩合检验结果表明排名前20的细菌属的相对丰度在多组比较时有13种(包括具有明确名称的5种属)具有显著性差异(P<0.05)，但是在两组对比中，只发现S2和ES2中*Thiobacillus*的相对丰度的统计差异(P<0.05)。

图5中的结果表明在对照组中的正负连接占比分别为72.6%和27.4%；电氧化后沉积物中的正负连接占比分别为74.2%和25.8%。节点连接度(连接到节点的边数称为节点的度)的最大值分别为55和42。电氧化对不同细菌门连接度占比的影响较小；连接度占比前10的细菌门中只有螺旋菌门(Spirochaetota)和Latescibacterota菌门在对照组和电氧化组中的占比顺序不同。值得注意的是蓝细菌门(Cyanobacteria)连接度的占比由对照组的1.03%降低到电氧化组的0.52%，尽管蓝细菌门的相对丰度在对照组和电氧化组中的差别仅为8%。



(a)沉积物控制组　　(b)电化学氧化组

注：连接表示两种OTU之间存在强(斯皮尔曼系数>0.8)和显著相关(P<0.01)，节点大小正比于连接度。

图5 OTU水平上沉积物控制组和电化学氧化组沉积物的共现性网络图

此外，在阈值为2的条件下，通过线性判别分析并未再找出对照组和电氧化组在丰度上有显著差异的物种。

3 讨论

已有研究表明，外加电流对沉积物中微生物的影响主要因电流密度、电极材质和沉积物性质而异。例如，Yan等发现，在外加电压2 V，70 d的电化学氧化后，沉积物中多环芳烃的降解基因含量比控制组高出一个数量级[10]。Cappello等的研究同样表明，在电流密度为11 A/m^{2}下，电解会增加海洋沉积物中微生物的含量[11]。万辉等发现电压升高增加了*Geobacter*和*Ignavibacterium*的相对丰度，继而提高了对多氯联苯的脱氯效率[12]。曾丽等发现在外加电压为20 V时(钛/二氧化铅电极)，污泥菌胶团的结构发生了破坏[13]。

在本研究中，通过对比分析对照组和电氧化组沉积物中细菌的OTU数目，多样性指数，细菌的相对丰度和连接度以及线性判别结果，电氧化对沉积物中细菌种群的影响整体并不显著。放线菌门(Actinobacteriota)在ES1中的相对丰度显著高于其在对照组S1中的数值。水体中产生霉臭的主要物质是土臭素和2MIB(2-甲基异莰醇)，而这2种物质主要由蓝藻类和放线菌所产生。在纲分类水平上，脱卤球菌纲(Dehalococcoidia)在ES1中的相对丰度比在S1中增加了31%。脱卤球菌纲微生物可以代谢有机卤化物，从而在卤族元素的生物地球化学中起着重要作用[14]。

电化学氧化对沉积物S2的影响较大，在门分类水平上，有10种细菌微生物的丰度在S2和ES2中存在显著性差异。但是只有硝化菌门和螺旋菌门的微生物相对丰度大于1%。在纲分类水平上，脱卤球菌纲(Dehalococcoidia)在ES2中的相对丰度比在S2中增加了91%。另外发现，相比于未被电氧化的控制组，电氧化组沉积物中的*Thermodesulfovibrionia*和*Desulfobulbia*两类硫酸盐还原菌的相对丰度发生了显著性降低(3.37±0.020)%→(2.88±0.014)%和显著性升高(0.11±0.01)%→(0.16±0.01)%。已有研究表明，*Thermodesulfovibrionia*具有多种厌氧代谢能力，参与硫和氮的生物循环[15]。*Desulfobulbia*也可以利用硫酸盐作

为电子给体,将其还原为硫化物[16]。因此,电化学氧化会改变沉积物中氮和硫的循环过程,从而对水生态系统产生影响。

拟杆菌门(Bacteroidota)在S3中的相对丰度显著高于其在ES3中的相对丰度。刘炫圻等的研究表明,在单一紫外线和紫外线-次氯酸钠联合消毒2种方式下,水中拟杆菌门的相对丰度分别为10.91%和1.52%,表明拟杆菌门细菌对活性氯的耐受性较差[17]。因此,电氧化沉积物中拟杆菌门相对丰度的降低是由于受电氧化中产生的活性氯的灭菌作用。在纲分类水平上,Bacteroidia、Syntrophia、Spirochaetia的相对丰度在电化学氧化后显著降低。脱卤球菌纲在ES3中的相对丰度也显著低于S3,这与其在另外2种沉积物中的变化趋势相反。电化学氧化降低了沉积物中2种主要的硫酸盐还原菌 *Desulfuromonadia* 和 norank_p__*Desulfobacterota* 的相对丰度。细菌微生物的相对变化表明,经过电化学氧化后,沉积物中的脱氯能力得到增加,而硫的还原能力减弱。

4　结论

电化学氧化(30 d)对沉积物细菌多样性和群落组成的整体影响并不显著。然而,电化学氧化对参与卤素和硫等元素生物地球化学循环过程的细菌产生了较大影响,相对丰度发生了显著改变。因此,电化学氧化会对水体的生态系统产生影响。本研究结论仍存在一定的不足,首先反应时间相对较短,电化学氧化对沉积物微生物产生的长期影响仍有待进一步研究。其次,缺少氮磷硫等元素的同步监测数据,微生物变化和元素生物化学循环的关系仍亟需得到阐述。

[参考文献]

[1] 秦伯强. 浅水湖泊湖沼学与太湖富营养化控制研究[J]. 湖泊科学, 2020,32(5):1229-1243.
Qin Boqiang. Shallow lake limnology and control of eutrophication in Lake Taihu[J]. Journal of Lake Sciences, 2020, 32(5):1229-1243.

[2] 范成新,刘敏,王圣瑞,等. 近20年来我国沉积物环境与污染控制研究进展与展望[J]. 地球科学进展, 2021,36(4):346-374.
Fan Chengxin, Liu Min, Wang Shengrui, et al. Research progress and prospect of sediment environment and pollution control in China in recent 20 years[J]. Advances in Earth Science, 2021,36(4):346-374.

[3] 江和龙,王昌辉,白雷雷,等. 湖泊环境科学与工程技术研究进展探讨[J]. 湖泊科学, 2020,32(5):1278-1296.
Jiang Helong, Wang Changhui, Bai Leilei, et al. Advances and prospects in lake environment science and engineering: a review[J]. Journal of Lake Sciences, 2020, 32(5): 1278-1296.

[4] 麦顺之,黄家明,吴群河,等. 活性材料覆盖法修复HOCs污染沉积物研究进展[J]. 环境科学与技术, 2019,42(6):224-230.
Mai Shunzhi, Huang Jiaming, Wu Qunhe, et al. Research process on in-situ remediation of HOCs contaminated sediments by active material capping[J]. Environmental Science & Technology, 2019,42(6):224-230.

[5] 张启超,杨鑫,孙淑雲,等. 过氧化钙在处理厌氧底泥中的应用初探[J]. 湖泊科学, 2015,27(6):1087-1092.
Zhang Qichao, Yang Xin, Sun Shuyun, et al. Preliminary study about application of calcium peroxide in the heavily contaminated sediments remediation [J]. Journal of Lake Sciences, 2015,27(6):1087-1092.

[6] 杨东翰,李本行,张立秋,等. 大型溞-沉水植物组合系统去除北京沙河水库水与底泥污染物效果研究[J]. 环境科学学报, 2021,41(1):255-262.
Yang Donghan, Li Benhang, Zhang Liqiu, et al. Study on the efficiencies of removing pollutants from water and sediment of Shahe Reservoir in Beijing by *Daphnia magna*-submerged macrophytes system[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2021,41(1):255-262.

[7] 陶玥彤,李茹莹. 生物电化学系统对河道沉积物中抗生素的强化去除[J]. 环境科学学报, 2021,41(4):1383-1392.
Tao Yuetong, Li Ruying. Enhanced removal of antibiotics from the river sediments by bioelectrochemical systems[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2021,41(4):1383-1392.

[8] 吴云鹏,曾庆军,陈平山,等. 铁基生物炭联合生物电化学原位修复Pb-多环芳烃复合污染底泥的效果与机理[J/OL]. 生态学杂志, 2022:1-9.(2022-05-23).https://kns.cnki.net/kcms/detail/21.1148.Q.20220523.0951.004.html.
Wu Yunpeng, Zeng Qingjun, Chen Pingshan, et al. Effect and mechanism of Fe-based biochar combined with bioelectrochemical technology for in situ remediation of Pb-polycyclic aromatic hydrocarbons contaminated sediment[J/OL]. Chinese Journal of Ecology, 2022:1-9.(2022-05-23).https://kns.cnki.net/kcms/detail/21.1148.Q.20220523.0951.004.html.

[9] Yan Z S, He Y H, Cai H Y, et al. Interconnection of key microbial functional genes for enhanced benzo[a]pyrene biodegradation in sediments by microbial electrochemistry[J]. Environmental Science and Technology, 2017,51(15):8519-

8529.

[10] Yan F, Reible D. Electro-bioremediation of contaminated sediment by electrode enhanced capping[J]. Journal of Environmental Management, 2015,155:154-161.

[11] Cappello S, Cruz Viggi C, Yakimov M, et al. Combining electrokinetic transport and bioremediation for enhanced removal of crude oil from contaminated marine sediments: results of a long-term, mesocosm-scale experiment[J]. Water Research, 2019,157:381-395.

[12] 万辉,易筱筠,刘小平,等. 施加不同电压对河涌底泥中多氯联苯厌氧还原脱氯的影响[J]. 环境工程学报, 2018,12(2):581-589.
Wan Hui, Yi Xiaojun, Liu Xiaoping, et al. Effects of applied different potential on reductive dechlorination of PCBs in anaerobic sediment[J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2018,12(2):581-589.

[13] 曾丽,杨波,蒋超金,等. 采用Ti/PbO_2阳极氧化进行污泥预处理的研究[J]. 环境科学学报, 2017,37(4):1382-1387.
Zeng Li, Yang Bo, Jiang Chaojin, et al. Study on the pretreatment of municipal sludge by the electrooxidation with Ti/PbO_2 anode[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2017,37(4):1382-1387.

[14] 杨毅,张耀之,李秀颖,等. 脱卤球菌纲(Dehalococcodia Class)在有机卤化物生物地球化学循环中的作用[J]. 环境科学学报, 2019,39(10):3207-3214.
Yang Yi, Zhang Yaozhi, Li Xiuying, et al. Roles of Dehalococcodia Class in the biogeochemical cycle of organohalides [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2019,39(10):3207-3214.

[15] Long Y C, Jiang J, Hu X J, et al. The response of microbial community structure and sediment properties to anthropogenic activities in Caohai wetland sediments[J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2021,211:111936.

[16] Waite D W, Chuvochina M, Pelikan C, et al. Proposal to reclassify the proteobacterial classes *Deltaproteobacteria* and *Oligoflexia*, and the phylum *Thermodesulfobacteria* into four phyla reflecting major functional capabilities[J]. International Journal of Systematic and Evolutionary Microbiology, 2020,70(11):5972-6016.

[17] 刘炫圻,宋春刚,冯萃敏,等. 紫外线-茶多酚/次氯酸钠联合消毒管网微生物特性分析[J]. 环境工程学报, 2019,13(3):616-623.
Liu Xuanqi, Song Chungang, Feng Cuimin, et al. Analysis of microbial characteristics in pipe network with ultraviolet & tea polyphenols or ultraviolet & sodium hypochlorite combined disinfection[J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2019,13(3):616-623.