

包埋法固定化细胞技术用于三维电极生物膜反应器

徐忠强^{1,2}, 郝瑞霞¹, 任晓克¹, 徐鹏程¹, 张 娅¹

(1. 北京工业大学 水质科学与水环境恢复工程北京市重点实验室, 北京 100124; 2. 中国市政工程中南设计研究总院有限公司, 湖北 武汉 430010)

摘 要: 为强化三维电极生物膜反应器(3DBER)氢自养反硝化菌的优势,提高再生水深度脱氮效率,采用聚乙烯醇(PVA)包埋法固定3DBER活性炭填料表面的生物膜,并与常规3DBER进行对比,分析在不同电流强度条件下的脱氮效率、有效电流强度和电流效率。结果表明,包埋填料生物膜3DBER的脱氮效率、有效电流强度和电流效率均高于常规3DBER。在C/N值为2、HRT为10 h、电流为80 mA的条件下,包埋填料生物膜3DBER对 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 和TN的去除率分别为89.4%和77.0%,比常规3DBER均提高10%以上。通过扫描电镜观察活性炭表面的生物膜,发现表面分布的主要为短杆状(1~2 μm)反硝化细菌。因此,包埋填料生物膜3DBER能够在增加氢自养优势菌属浓度的同时,提高电流的利用效率,从而强化3DBER工艺对再生水的深度脱氮效果。

关键词: 包埋法; 三维电极生物膜工艺; 活性炭填料; 深度脱氮

中图分类号: TU992 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-4602(2018)19-0037-06

Application of Entrapping Method in Three-dimensional Biofilm-electrode Reactor for Advanced Nitrogen Removal

XU Zhong-qiang^{1,2}, HAO Rui-xia¹, REN Xiao-ke¹, XU Peng-cheng¹, ZHANG Ya¹

(1. Key Laboratory of Beijing for Water Quality Science and Water Environment Recovery Engineering, Beijing University of Technology, Beijing 100124, China; 2. Central and Southern China Municipal Engineering Design & Research Institute Co. Ltd., Wuhan 430010, China)

Abstract: In order to enhance the dominant position of hydrogen autotrophic denitrifying bacteria in three-dimensional biofilm-electrode reactor(3DBER) and improve the nitrogen removal efficiency of reclaimed water, biofilm on the surface of activated carbon fillings of 3DBER were wrapped by polyvinyl alcohol (PVA) imbedding method. The operational effect was compared with that of conventional 3DBER, and the denitrification efficiency, effective current intensity and current efficiency were analyzed under different current conditions. The results indicated that the new 3DBER with the imbedded biofilm on the fillings had higher denitrification efficiency, effective current intensity and current efficiency than that of the conventional process. Under the condition of C/N = 2, HRT = 10 h and $I = 80 \text{ mA}$, the $\text{NO}_3^- - \text{N}$ and TN removal rates of the new 3DBER reached 89.4% and 77.0% respectively, which was over 10% higher than the conventional 3DBER. Meanwhile, microbial morphological characteristic of the biofilm was observed by scanning electron microscope technology. It was found that the short rods (1~2 μm)

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(51378028)

通信作者: 郝瑞霞 E-mail: haorui-xia@bjut.edu.cn

denitrifying bacteria mainly distributed on the surface of the biofilm. The results illustrated that the imbedded biofilm on the surface of activated carbon fillings of 3DBER not only increased the dominant hydrogen autotrophic denitrifying concentration, but also improved the current efficiency. Therefore, advanced nitrogen removal efficiency of reclaimed water by the new 3DBER was enhanced.

Key words: entrapping method; three-dimensional biofilm-electrode reactor; activated carbon filling; advanced nitrogen removal

三维电极生物膜反应器(3DBER)是在传统二维电极生物膜反应器中引入填料,形成第三极,从而增大反应器的电极表面积,促进电化学反应物迁移的新型脱氮技术^[1]。该工艺同时存在异养反硝化和自养反硝化两种生物脱氮过程,适合处理低碳氮比的二级出水。但是,3DBER也存在着一些问题^[2,3],如电解产生的 H_2 和反硝化产生的 N_2 逸出时易冲刷掉填料表面附着的生物膜;阳极产生的 O_2 易扩散到阴极附近,破坏自养反硝化菌的厌氧环境;填充的活性炭颗粒易形成短路电流,降低电流的利用效率等,这些因素阻碍着3DBER脱氮效率的进一步提高。相关研究表明^[4],增加优势菌属浓度和提高电流利用效率是提高3DBER脱氮效率的两种有效途径。

固定化细胞技术是将微生物细胞包埋在半透明的聚合物或膜内。按照固定载体与作用方式的不同分为吸附法、结合法、交联法和包埋法4种类型。其中,包埋法操作简单,对细胞活性影响小,是目前应用最广泛的固定化方法。该技术能够固定筛选出来的优势菌属,增大反应器内优势菌属的浓度和停留时间,从而达到高效处理含氮废水的目的。

将包埋法固定化细胞技术应用于3DBER,对再生水进行深度脱氮处理,将能够有效克服常规3DBER的缺点。为此,笔者探究了包埋法固定化细胞技术应用于3DBER深度脱氮的可行性和优越性,以期改善现有污水厂二级出水总氮含量偏高的现状,推进污水资源化进程,提高再生水水质。

1 试验装置与方法

1.1 试验装置

试验采用两组结构相同的3DBER工艺。阳极采用石墨棒,置于内径为15 cm、反应区高度为40 cm、有效容积为2.4 L的圆柱状反应器中央;阴极采用内夹聚丙烯腈活性炭纤维的双层泡沫镍,沿反应器内壁呈环状布置,阴、阳极分别与直流电源的负极和正极相连接。在阴、阳极之间填充粒径为5~8

mm的活性炭颗粒。反应器进水采用上升流式,底部设置穿孔布水板使布水均匀。试验装置见图1。

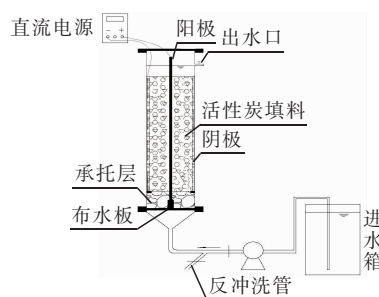


图1 试验装置示意

Fig.1 Schematics of 3DBER

1.2 试验用水

试验用水采用人工配水,在自来水中加入一定量的 CH_3COONa 、 KNO_3 和 KH_2PO_4 ,模拟污水处理厂的二级出水,用1 mol/L的盐酸和氢氧化钠溶液调节配水的pH值。试验水质如下: $NO_3^- - N$ 为28~32 mg/L, COD为58~62 mg/L, COD/TN值为1.8~2.2, $H_2PO_4^-$ 为1.4~1.7 mg/L, pH值为7.0~7.5。所有水质指标均采用国家标准方法测定。

1.3 试验方法

① 自养反硝化菌的培养、驯化及挂膜

反应器挂膜采用微电流培养驯化方式,反应器中添加经过厌氧培养后的活性污泥,进水中添加硝酸钾和乙酸钠(保证配水硝态氮浓度为100 mg/L、COD为150 mg/L左右)。采用0→20 mA→40 mA→60 mA→80 mA梯度电流驯化方式连续流挂膜,且培养液中逐渐减少有机碳源的投加量,以驯化出更多氢自养反硝化菌。每调整一次电流,保证驯化48 h以上,驯化时间约30 d,每天更换新鲜的培养液,并测定进、出水中的硝态氮浓度。当硝态氮去除率稳定在85%左右时,即认为完成挂膜和驯化。

② 填料上细菌的固定化

试验所采用的包埋法是将微生物细胞包埋在半透明的聚合物内,该方法可以将细胞锁在特定的高

分子网络结构中,防止细胞泄漏。具体操作方法如下:将聚乙烯醇(PVA)高温溶解,浓度控制在10%左右,并添加少量的海藻酸钠,冷却至35℃左右,将PVA凝胶均匀涂布于已挂膜的活性炭填料上,静置30 min,使其紧密结合,将涂层活性炭完全浸泡入饱和硼酸中,4℃下固定20 h以上,然后用自来水漂洗去硼酸。

③ 重新组装反应器并挂膜运行

将包埋后的活性炭重新装填到原3DBER中,作为2[#]反应器,并组装与之相同但填料未经包埋的1[#]反应器作为对照,对两组反应器进行重新接种、挂膜和驯化。驯化过程中,包埋的细菌活性得到恢复。挂膜完成后,分别在不同电流条件下运行两组反应器,每天检测出水水质。

2 结果与分析

2.1 电流强度对反硝化效果的影响

两组反应器挂膜完成后,分别在 COD/TN = 2, HRT = 10 h, $I = 0, 20, 40, 60, 80, 100$ mA 条件下运行。期间,每个条件维持稳定运行20 d,每次改变条件都保证稳定5 d以上再开始检测。取每两天 TN 和 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 去除率的平均值为一组数据,两组反应器对 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 和 TN 的去除情况如图2所示。

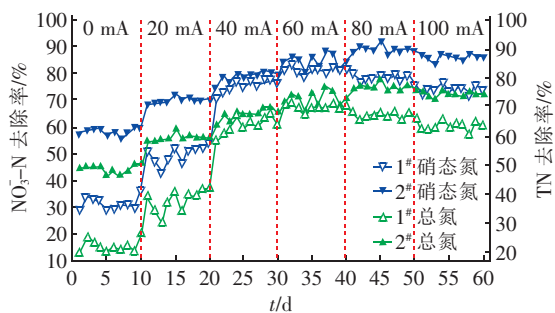


图2 不同电流条件下两组反应器对 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 和 TN 的去除率

Fig. 2 Removal rate of $\text{NO}_3^- - \text{N}$ and TN in two reactors at different current intensity

由图2可知,随着电流强度的增加,两反应器对 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 和 TN 的去除率均呈现先升高后降低的趋势,但2[#]反应器对 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 和 TN 的去除率一直高于1[#]反应器。当电流为0~20 mA时,1[#]反应器的脱氮效率明显低于2[#]反应器;当电流达到80 mA时,2[#]反应器的优势最为明显,对 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 和 TN 的去除率分别维持在89.4%和77.0%左右,而1[#]反应

器只有78.9%和66.8%左右,包埋后 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 和 TN 去除率均提高了10%以上。由图2还可以看出,1[#]和2[#]反应器脱氮的最佳电流分别为60、80 mA。相对于1[#]反应器,2[#]反应器的脱氮效率和最佳电流强度均有所提高。分析其原因,在低碳氮比、低电流(0~20 mA)条件下,由于 H_2 量产生较少,系统中生长的氢自养反硝化菌量就相对较少,而2[#]反应器中预先包埋了一部分氢自养反硝化菌,这有效弥补了低电流条件下自养反硝化菌不足的劣势,故2[#]反应器能够呈现出较高的脱氮效率。

对于3DBER工艺,在主电极间填充一定电阻的导电粒子,当通过电流时每个粒子形成一对电极,电流过程可分为反应电流、旁路电流和短路电流三部分。当加在粒子的电压小于分解电压时,无反应电流,仅有短路电流和旁路电流;当加在粒子的电压大于分解电压时,开始有反应电流通过,粒子两端产生复极^[5]。2[#]反应器的活性炭填料表面被PVA包埋,有效减少了短路电流的产生,有利于电极粒子复极化,使有效电极面积增大。另一方面,由于粒子电阻的增大,只有在更高梯度电场作用下,填料才会感应而复极化为复极性粒子。因此,包埋填料的2[#]反应器的脱氮效率和最佳电流强度均高于未作处理的1[#]反应器。而当电流强度高于最佳电流时,系统中会产生过量的 H_2 ,对反硝化产生抑制作用,即所谓的“氢抑制效应”^[6],使反应器的脱氮效率下降。

2.2 脱氮效果与碳源消耗之间的关系

据文献报道^[2],当异养菌反硝化脱氮完全时,理论上每去除1 g $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 需要2.86 g COD,而实际上由于细胞合成的需要和氧气的存在,反硝化过程中所需有机碳源的量要大于理论值,实际运行中碳氮比一般控制在3以上^[7]。本研究分别以 ΔCOD 和 ΔTN 表示反应器进、出水 COD 和 TN 的差值,以 $\Delta\text{COD}/\Delta\text{TN}$ 表示完全反硝化与碳源消耗之间的关系。分别在1[#]和2[#]反应器脱氮最佳电流(60和80 mA)条件下,探究脱氮效果与碳源消耗之间的关系,结果如图3所示。可知,随着电流强度由60 mA增大到80 mA,1[#]反应器的 ΔCOD 无明显变化, ΔTN 下降,此时 $\Delta\text{COD}/\Delta\text{TN}$ 由2.21增大到2.26;2[#]反应器的 ΔCOD 稍微下降, ΔTN 上升,此时 $\Delta\text{COD}/\Delta\text{TN}$ 由2.22减小到2.02,远低于完全异养反硝化所需的理论值。分析其原因,包埋后的介质易形成微电解池、增大有效电极面积,提高了有效电流效率;再加上活

性炭填料表面包埋了大量氢自养反硝化菌,随着电流的增大,介质表面电化学反应产生更多的 H_2 ,这些 H_2 可直接为介质表面固定的氢自养反硝化菌所利用,氢自养反硝化作用的增强使系统消耗的 COD 量减少,同时又保证了较高的脱氮效率。而 1[#] 反应器在电流增大时 ΔCOD 保持稳定, ΔTN 下降,是由于系统内氢自养反硝化菌的量相对较少,且过高的电流使系统出现了“氢抑制效应”。综上所述,大量的氢自养反硝化菌被包埋在活性炭填料表面,使系统自养反硝化作用得到明显增强。

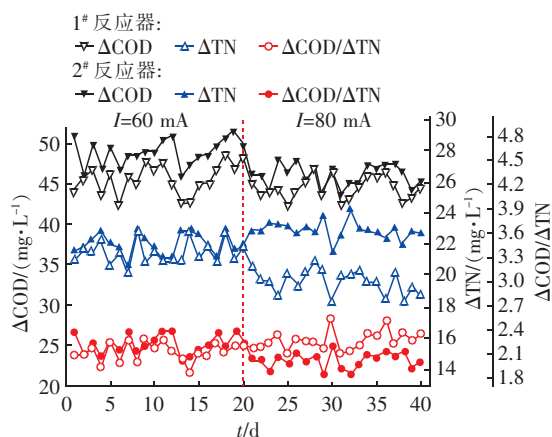


图3 最佳电流条件下 ΔCOD 、 ΔTN 及 $\Delta COD/\Delta TN$ 值的变化

Fig.3 Variations of ΔCOD , ΔTN and $\Delta COD/\Delta TN$ of two reactors at best current intensity

2.3 有效电流强度和电流效率对比

有效电流强度反映了单位时间反硝化过程中硝态氮所获得的总还原电子量。对有效电流强度 I_E 和电流效率 η_I 的定义如下^[8,9]:

$$I_E = \frac{(x_{in} - x_{eff}) \times 5 - y_{eff} \times 3}{14} \times Q \times 26.8 \quad (1)$$

$$\eta_I = \frac{I_E}{I} \times 100\% \quad (2)$$

其中: I 为反应器的电流强度, mA; x_{in} 、 x_{eff} 分别为硝态氮的进、出水浓度, mg/L; y_{eff} 为出水亚硝态氮浓度, mg/L; Q 为进水流量, L/h。

1[#]和2[#]反应器在不同电流条件下的有效电流强度和电流效率如图4所示。可以看出,当电流为20~80 mA时,两反应器的有效电流强度均随电流的增加而增加;当反应器电流>80 mA时,有效电流强度随电流的增加而下降。两反应器的电流效率均随电流的增加而呈递减趋势。2[#]反应器的有效电流强度和电流效率均一直高于1[#]反应器。分析其原因,

随着反应器电流强度的增加,系统中产生更多的 H_2 ,有效促进了氢自养反硝化细菌的生长。在电流为80 mA时,有效电流强度能够为反硝化提供足够的 H_2 ,使有效电流强度达到最大, NO_3^- 向生物膜扩散过程成为限制步骤;随着反应器电流强度的继续增加,过量的 H_2 对自养反硝化产生抑制效应,电场对物质的迁移速度影响也随之增强, NO_3^- 向阴极的扩散受阻^[10],此后脱氮效率反而下降,从而有效电流强度也随之呈下降趋势。

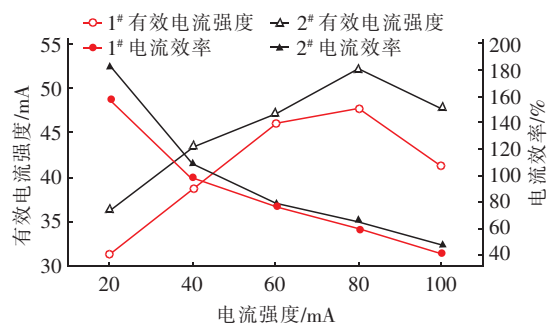
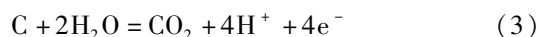


图4 不同电流条件下两反应器的有效电流强度和电流效率

Fig.4 Effective current intensity and current efficiency of two reactors at different current intensity

1[#]和2[#]反应器的电流效率最大时可分别达到157.7%和182.5%。分析其原因,对于3DBER工艺来说,介质填料在高梯度的电场作用下感应而复极化为复极性粒子,在粒子的一端发生阳极反应,在另一端发生阴极反应,整个粒子成为一个立体的电极,粒子之间构成一个微电解池。在介质颗粒活性炭表面主要发生如下阳极和阴极反应:



由式(3)和(4)可知,在 H_2O 提供电子供体的同时又产生 CO_2 ,为反硝化菌的自养过程提供了充足的无机碳源;同时, CO_2 有利于中和 OH^- ,使系统具有缓冲 pH 值的能力,为反硝化细菌的生长提供适宜的中性环境,因此两反应器的电流效率均能远大于100%。3DBER工艺的最大特点是反应器的有效电流强度大于电流强度;相应地,反应器在反硝化时的电流效率也大于100%,这与刘晓^[11]、杨琳^[12]等人的结论一致。而2[#]反应器中活性炭填料表面的绝缘层能够有效消除短路电流,使粒子之间形成微电解池的比例明显增大;再加上2[#]反应器预先包埋了一部分氢自养菌,使系统内自养反硝化作用明

显增强,从而能够保证无论是在低电流还是高电流条件下,2[#]反应器的有效电流强度和电流效率均高于1[#]反应器。

2.4 包埋前后填料性状及生物膜表面特征

分别取不同阶段的活性炭颗粒,运用李素梅等人^[13]的扫描电镜预处理方法对其进行预处理,然后采用扫描电镜观察活性炭颗粒表面及其所附着的生物膜形态,结果如图5所示。

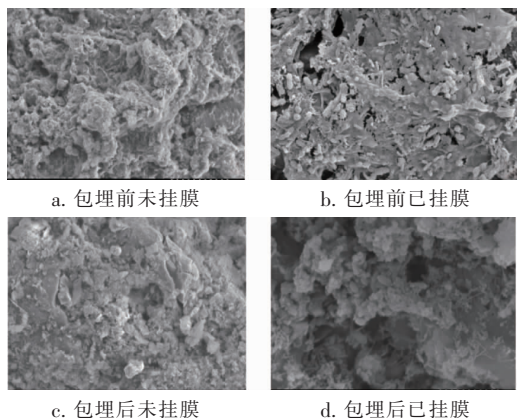


图5 填料性状和微生物电镜图像

Fig.5 SEM pictures of fillings and microorganism before and after entrapment

由图5(a)可以看出,活性炭颗粒表面凹凸不平,有较大的比表面积,便于微生物的附着。由图5(b)可以看出,活性炭颗粒表面以短杆状(1~2 μm)微生物为主,并有少许椭球状(0.5~1 μm)微生物。这些细菌紧密附着在活性炭填料上,表面有较多粘液,有利于提高抗冲击能力和充分利用活性炭电解产物CO₂完成自养反硝化;同时,生物膜表面分布着大量的缝隙,有利于与硝态氮充分接触进行高效脱氮作用和N₂产物的顺利排出。黄显怀等人^[7]对电极生物膜工艺微生物的分离鉴定结果表明,系统中异养反硝化菌以肠杆菌科为主,而自养反硝化菌以0.5~4 μm的非螺旋杆状假单胞菌属为主,说明活性炭颗粒表面覆盖了大量的自养反硝化菌,是本试验所需要包埋的优势菌属。而椭球状(0.5~1 μm)微生物可能为具有反硝化功能的 *Enterobacter*^[14]。

由图5(c)可以看出,包埋后的活性炭颗粒表面变得更加疏松且有一定的粘性,这更加有利于微生物的附着。由图5(d)可以看出,包埋后的活性炭颗粒表面分布的微生物主要为短杆状(1~2 μm)微生

物,可能为假单胞菌属的反硝化细菌。王建超等人^[15]采用16S rDNA克隆文库法得出,3DBER中的主要细菌种类为β-直杆菌和黄单胞杆菌。本研究中生物膜的优势微生物形态与现有关于3DBER反硝化微生物形态特征报道基本一致。

3 结论

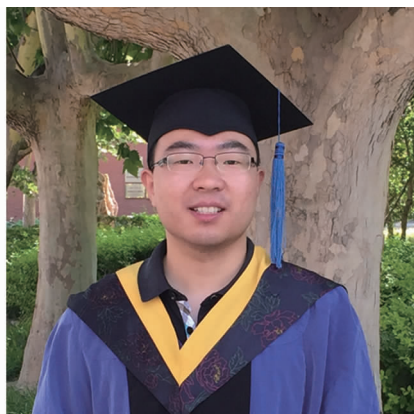
① 3DBER填料包埋后,自养反硝化作用明显增强,脱氮效率明显优于未包埋的常规3DBER工艺,且包埋后脱氮最佳电流强度有所提高。

② 填料包埋后的3DBER工艺,有效电流强度和电流效率均有明显提升。扫描电镜显示,包埋后的活性炭颗粒表面更加疏松,生物膜表面分布的主要为短杆状(1~2 μm)反硝化细菌。

参考文献:

- [1] 姚静华,赵国智,田光明,等. 复三维电极-生物膜反应器脱除饮用水中硝酸盐的试验研究[J]. 环境科学学报,2012,32(6):1333-1341.
Yao Jinghua, Zhao Guozhi, Tian Guangming, et al. Nitrate removal from drinking water by a three-dimensional biofilm-electrode reactor[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2012, 32(6): 1333-1341 (in Chinese).
- [2] 胡传侠,杨昌柱,杨群,等. 固定化三维电极-生物膜法去除污水中硝酸盐氮[J]. 环境科学与技术,2008,31(2):83-87.
Hu Chuanxia, Yang Changzhu, Yang Qun, et al. Study on removal of nitrate from secondary effluent by immobilized three-dimension electrode-biofilm reactor[J]. Environmental Science & Technology, 2008, 31(2): 83-87 (in Chinese).
- [3] 唐金晶,郭劲松,方芳,等. 三维电极生物膜脱氮系统的电场响应性[J]. 重庆大学学报,2013,36(5):138-142,150.
Tang Jinjing, Guo Jingsong, Fang Fang, et al. Nitrogen reduction stimulated by a three-dimensional electrochemical-biofilm reactor and its correlation with electric field [J]. Journal of Chongqing University, 2013, 36(5): 138-142, 150 (in Chinese).
- [4] 陈建平. 三维电极生物膜反应器脱除低C/N值废水中硝酸盐氮和COD[D]. 武汉:华中科技大学,2006.
Chen Jianping. Three-dimensional Electrode-biofilm Reactor for Nitrate and COD Removal from Wastewater of Low C/N Ratio [D]. Wuhan: Huazhong University of Science & Technology, 2006 (in Chinese).

- [5] 蒋萌阳,朱建荣,戴静波. 复极性三维电极处理印染废水的能耗分析[J]. 宁波工程学院学报,2005,17(2):19-21.
Jiang Mengyang, Zhu Jianrong, Dai Jingbo. Analysis of energy consumption for the treatment of dyeing wastewater with double-three-dimensional electrodes [J]. Journal of Ningbo University of Technology, 2005, 17(2):19-21 (in Chinese).
- [6] Flora J R V, Suidan M T, Islam S, *et al.* Numerical modeling of a biofilm-electrode reactor used for enhanced denitrification[J]. Water Sci Technol, 1994, 29(10): 517-524.
- [7] 黄显怀,鲍立宁,马利民. 电极生物膜法处理水中硝酸盐氮的试验研究[J]. 哈尔滨工业大学学报,2003,35(12):1486-1488.
Huang Xianhuai, Bao Lining, Ma Limin. Denitrification of drinking water by biofilm-electrode process[J]. Journal of Harbin Institute of Technology, 2003, 35(12): 1486-1488 (in Chinese).
- [8] 曲久辉,范彬,刘锁祥,等. 电解产氢自养反硝化去除地下水中硝酸盐氮的研究[J]. 环境科学,2001,22(6):49-52.
Qu Jiuhui, Fan Bin, Liu Suoxiang, *et al.* Autotrophic denitrification of groundwater by electrochemical process [J]. Environmental Science, 2001, 22(6): 49-52 (in Chinese).
- [9] 冯玉杰,李晓岩. 电化学技术在环境工程中的应用[M]. 北京:化学工业出版社,2002.
Feng Yujie, Li Xiaoyan. Application of Electrochemical Technology in Environmental Engineering[M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2002 (in Chinese).
- [10] 封志飞,赵国智,李文红,等. 电化学生物膜反硝化磁场促进效应[J]. 环境科学研究,2012,25(1):63-69.
Feng Zhifei, Zhao Guozhi, Li Wenhong, *et al.* Magnetic field enhancement of nitrogen removal by bioelectrochemical process [J]. Research of Environmental Sciences, 2012, 25(1): 63-69 (in Chinese).
- [11] 刘晓,黄显怀,金文标. 电极-生物膜法在生物脱氮处理中的潜力[J]. 工业用水与废水,2006,37(3):57-59.
Liu Xiao, Huang Xianhuai, Jin Wenbiao. Potential of biofilm-electrode process in biological nitrogen removal [J]. Industrial Water & Wastewater, 2006, 37(3): 57-59 (in Chinese).
- [12] 杨琳. 三维电极生物膜反应器全自养脱氮的研究[D]. 重庆:重庆大学,2012.
Yang Lin. Completely Autotrophic Nitrogen Removal in a Three-dimensional Electrode Biofilm Reactor [D]. Chongqing: Chongqing University, 2012 (in Chinese).
- [13] 李素梅,郝瑞霞,孟成成. 三维电极生物膜反应器低温启动试验研究[J]. 中国给水排水,2013,29(5):101-105.
Li Sumei, Hao Ruixia, Meng Chengcheng. Start-up of three-dimensional electrode biofilm reactor at low temperature [J]. China Water & Wastewater, 2013, 29(5): 101-105 (in Chinese).
- [14] Hao R X, Li S M, Li J B, *et al.* Denitrification of simulated municipal wastewater treatment plant effluent using a three-dimensional biofilm-electrode reactor: Operating performance and bacterial community [J]. Bioresource Technol, 2013, 143: 178-186.
- [15] 王建超,郝瑞霞,孟成成,等. 3DBER-S反硝化脱氮性能及其菌群特征[J]. 环境科学研究,2015,28(2):310-317.
Wang Jianchao, Hao Ruixia, Meng Chengcheng, *et al.* Study on performance and bacterial community of coupling 3-dimensional biofilm-electrode with sulfur autotrophic denitrification [J]. Research of Environmental Sciences, 2015, 28(2): 310-317 (in Chinese).



作者简介:徐忠强(1988-),男,河南驻马店人,硕士研究生,研究方向为再生水深度脱氮技术。

E-mail: zhongqiangxu@foxmail.com

收稿日期:2016-05-18