



## 专论与综述

## 生物电化学系统处理废气的研究进展

黄行柱<sup>1,2,3,4</sup> 李建军<sup>2,3,4</sup> 许玫英<sup>2,3,4</sup> 罗建中<sup>1</sup> 杨永刚<sup>\*2,3,4</sup>

1 广东工业大学环境科学与工程学院 广东 广州 510006

2 广东省微生物研究所 广东 广州 510070

3 广东省菌种保藏与应用重点实验室 广东 广州 510070

4 省部共建华南应用微生物国家重点实验室 广东 广州 510070

**摘要:** 生物电化学系统(Bioelectrochemical systems, BESs)可将污染物的降解转化与电能紧密耦联,具有适用基质广泛、反应过程温和且效率高的特点,在环境污染治理中具有广阔的应用前景。近几年,BESs也逐渐被应用到废气处理。由于微生物和电化学过程的复合作用,BESs显示出较高的处理效率和良好的应用前景。本文在对废气类型、效果及反应器构型进行总结的基础上,还对BESs中的重要功能微生物和微生物电化学反应机理进行介绍和讨论,并对BESs在废气处理方面需要解决的问题和研究方向进行展望,以期为提高生物电化学系统的处理性能提供参考。

**关键词:** 生物电化学, 废气, 微生物燃料电池, 微生物电解池

## Waste gas removal by bioelectrochemical systems: a review

HUANG Xing-Zhu<sup>1,2,3,4</sup> LI Jian-Jun<sup>2,3,4</sup> XU Mei-Ying<sup>2,3,4</sup> LUO Jian-Zhong<sup>1</sup>  
YANG Yong-Gang<sup>\*2,3,4</sup>

1 School of Environmental Science and Engineering, Guangdong University of Technology, Guangzhou, Guangdong 510006, China

2 Guangdong Institute of Microbiology, Guangzhou, Guangdong 510070, China

3 Guangdong Provincial Key Laboratory of Microbial Culture Collection and Application, Guangzhou, Guangdong 510070, China

4 State Key Laboratory of Applied Microbiology Southern China, Guangzhou, Guangdong 510070, China

**Abstract:** Bioelectrochemical systems (BESs) couple energy generation with biodegradation and bioconversion of a wide range of contaminants. BESs have increasingly attracted research attentions and would have a broad application prospect in the treatment of environmental pollutants. Recently, BESs are used to treat waste gases. Due to the combined electrochemical and biological processes, BESs generally show higher efficiency and promising application in the treatment of waste gases. Here, we summarize gas types, treatment efficiencies and reactor structures of BESs for waste gas treatment. Moreover, the

**Foundation items:** Guangzhou Special Project (201610010090, 201504010014); Guangzhou Industry-University Research Project (201704020204); NSFC-Guangdong Provincial Joint Fund (U1701243)

**\*Corresponding author:** Tel: 86-20-87137655; E-mail: yyg117@163.com

**Received:** 29-06-2018; **Accepted:** 25-01-2019; **Published online:** 25-02-2019

**基金项目:** 广州市研究专项(201610010090, 201504010014); 广州市产学研项目(201704020204); NSFC-广东省联合基金(U1701243)

**\*通信作者:** Tel: 020-87137655; E-mail: yyg117@163.com

**收稿日期:** 2018-06-29; **接受日期:** 2019-01-25; **网络首发日期:** 2019-02-25

functional microorganisms and the possible bioelectrochemical mechanisms in those systems are summarized. The main problems needing to be solved in the future are also proposed, with the aim to promote BESs in waste gas treatment.

**Keywords:** Bioelectrochemistry, Waste gas, Microbial fuel cells, Microbial electrolysis cells

生物电化学系统(Bioelectrochemical systems, BESs)是指在阳极或阴极室中至少有一侧电化学反应是在微生物细胞或酶的催化作用下进行的体系。BESs 包括微生物燃料电池(Microbial fuel cells, MFCs)、微生物电解池(Microbial electrolysis cells, MECs)、微生物电合成池(Microbial electrosynthesis, MES)、微生物脱盐池(Microbial desalination cells, MDCs)和多技术耦合型 BESs<sup>[1]</sup>等。BESs 的研究起源于 1911 年, Potter 等发现了酵母菌的培养物和某些种类的细菌可以产生电能<sup>[2]</sup>。

BESs 的构型较为多样, 研究最多的是双室和单室 BESs。双室 BESs 一般是由阳极室、阴极室和离子交换膜构成。以双室 MFCs 为例, 有机物在阳极室被微生物氧化产生电子和质子, 质子通过交换膜到达阴极, 电子经外电路到达阴极, 并在此过程中产生电流, 其它类型的 BESs 可进一步利用微生物的产电过程或外加电能来还原阴极的化学物质, 得到低毒或者价值更高的还原产物<sup>[3]</sup>。

BESs 中的电化学反应或微生物电子传递过程可以促进多种污染物的降解和转化<sup>[4]</sup>。目前, 大多数 BESs 使用阳极或阴极室溶解态的有机物作为基质产电<sup>[5-6]</sup>, 包括可生化较强的有机物如葡萄糖、蔗糖等, 以及难生物降解的有毒物质如对苯二甲酸<sup>[7]</sup>、喹啉<sup>[8]</sup>等。此外, MFCs 对难溶物质的强化降解也有较多报道, 如纤维素、多溴联苯醚、多环芳烃等<sup>[4]</sup>。作者课题组通过分析 MFCs 对沉积物中 68 种不同极性有机污染物的降解效率, 发现 MFCs 偏好降解极性较强的有机污染物<sup>[9]</sup>。此外, 功能基因芯片(GeoChip 4.0)分析还显示, MFCs 对微生物的 C、N、S、P 循环以及多种有机污染物降解相关的功能基因有全面的富集作用<sup>[10]</sup>。

相对于溶解态和固态基质的转化, BESs 对于废气的降解转化研究较少。常规的废气处理技术

包括生物滴滤系统、物化处理系统等<sup>[11-12]</sup>。近几年来, 随着 BESs 与常规废气处理技术的结合, 用于气态基质转化降解的 BESs 研究逐渐增加, 成为 BESs 应用研究的新方向。这些气态基质主要包括挥发性有机物(Volatile organic compounds, VOCs)、烟气、一氧化碳合成气等<sup>[12]</sup>。处理工艺主要包括生物滴滤-MFCs、化学吸附-MEC、化学吸收-生物膜电极反应器等。基于本课题组前期的 BESs 和废气处理研究基础, 本文对 BESs 处理气态基质的研究进行综述, 主要包括 BESs 处理气体的种类、反应器结构和微生物电极反应过程等方面, 为科学研究和工程应用提供参考。

## 1 BESs 可转化气体的种类

### 1.1 一氧化碳及其混合气

一氧化碳是大气中普遍存在的气体。含 CO 的混合气也是工业生产、汽车尾气释放的重要污染物之一。煤炭和木材(10%的水分)的高温汽化可产生 CO 混合气, 其主要由一氧化碳、氢气和少量的二氧化碳组成。CO 混合气的热值较低, 可用于内燃机发电, 但能源转换效率较低<sup>[13]</sup>。电化学法可以实现 CO 转化为电能, 然而需要对混合气进行纯化处理, 残留的氢气、硫化物等严重影响转化效率。

某些同型产乙酸微生物(如 *Acetobacterium*、*Eubacterium*、*Moorella* 等)可以把 CO 转化为乙酸等小分子有机物, 而这些有机物可以被产电微生物用作高效的底物, 实现从 CO 到电能的转化。Kim 等<sup>[14]</sup>最早把 CO 发酵装置与 MFCs 整合, CO 首先在发酵器中发酵产生乙酸盐和丁酸盐。发酵产物进入 MFCs, 可产生 2.5 mA 的电流, 最大累积功率 3.1 mW/L, 该串联系统产电可长时间维持(50 d), 其中主要的同型产乙酸微生物为 *Acetobacterium*<sup>[14-15]</sup>。在此基础上, 研究者们尝试

把 CO 合成气直接通入 MFCs 阳极, 产电和发酵同时在阳极发生。该方法尽管可以产生电能, 但是最大容积功率密度和库伦效率较低<sup>[16]</sup>。一般工业 CO 合成气的末端出气温度较高(45–55 °C), 在此范围内嗜中温菌具有优势。Hussain 等使用以嗜中温菌为主的菌种在 50 °C 条件下运行 MFCs, 结果发现合成气中 CO 转化为电能的效率可达 87%–98%, 容积功率输出可以达到 30–35 mW/L<sup>[17]</sup>。然而如果使用常温菌为主的菌群, 50 °C 运行的 MFCs 转化效率仅有 15%, 容积功率密度为 10 mW/L。而在 37 °C 时, 库伦效率为 43%, 容积功率密度为 33 mW/L<sup>[17]</sup>。梯度变性凝胶电泳(DGGE)分析显示, 该体系中的主要产乙酸微生物为 *Acetobacterium wieringae*, 主要产电微生物为 *Geobacter*<sup>[17]</sup>。目前利用 CO 合成气产电的研究仍然较少, 主要通过同型产乙酸菌和产电菌之间的协同代谢完成, 转化过程中能量损失较大。筛选或通过合成生物学方法构建高效的 CO 产电微生物是进一步提高 CO-电能转化效率的有效途径。

### 1.2 氮氧化物(NO<sub>x</sub>)气体

化石燃料是 NO<sub>x</sub> 的主要排放源, 大量 NO<sub>x</sub> 的排放严重影响生态环境和动植物健康<sup>[18]</sup>。燃煤烟气以 NO 为主要成分, 比例可达 90%。传统的 NO<sub>x</sub> 脱硝技术主要有选择性催化还原(Selective catalytic reduction, SCR; 适应温度主要为 200–450 °C)、选择性非催化还原(Selective non-catalytic reduction, SNCR; 适应温度为 870–1 100 °C)和化学吸收。常用的化学吸收剂为 Fe(II)EDTA, 二价铁易被氧化为三价铁, 失去 NO 吸收能力。为了重复利用吸收剂, 研究者开发了化学吸附生物还原(Chemical absorption-biological reduction, CABR)联合工艺, 成本效益高且绿色节能<sup>[19–20]</sup>。

为了强化吸收剂的再生效率, 浙江大学的研究团队开发了化学吸附-生物电化学反应系统(Chemical absorption-biofilm electrode reactor, CABER)<sup>[21]</sup>。在该体系中, 通过施加一定电流, 铁还原菌和反硝化菌的协同作用可以实现 90%以上

NO 的还原去除<sup>[22]</sup>。在此基础上, Zhou 等用比表面积大的石墨颗粒作为填料, 有效增加了系统的电子传递效率, 阴极对 Fe(III)EDTA 和 NO 的还原能力得到了进一步强化<sup>[23]</sup>。在该系统中, Fe(II)EDTA-NO 还原速率可达 0.313 mmol/(L·h), 同时 Fe(III)EDTA 的还原速率有 0.564 mmol/(L·h)<sup>[23]</sup>。相比传统的微生物脱硝工艺, CABER 的 NO 去除能力提高了 4.5 倍<sup>[24]</sup>。高通量测序分析显示 CABER 生物阴极中的铁还原微生物及反硝化微生物得到了同步富集<sup>[25]</sup>。该团队近年来对 CABER 内的电子传递过程和效率进行了较全面的解析和优化<sup>[21]</sup>, 但相关研究仍处于小试水平, 进一步的扩大化还需要解决电能损耗大、维持成本高和电解环境中微生物活性等问题。

### 1.3 二氧化碳

CO<sub>2</sub> 是一种重要的温室气体, 大气中 CO<sub>2</sub> 浓度的升高是全球变暖的主要原因之一。很多自养型微生物可以把 CO<sub>2</sub> 转化为有机物, 在大气 CO<sub>2</sub> 浓度控制方面发挥着重要作用。1995 年, Kuroda 等用 BESs 把 CO<sub>2</sub> 转化为有机化合物, 如甲烷和醋酸盐<sup>[26]</sup>。后来, Nevin 等发现 *Sporomusa* 和 *Clostridium* 属的某些菌种可直接从阴极接收电子, 进而在细胞内还原 CO<sub>2</sub> 合成乙酸盐<sup>[27]</sup>。目前, 以 CO<sub>2</sub> 作为基质的生物电化学合成产物已经丰富多样, 如甲酸盐、丁酸盐、乙醇、异丙醇、丁醇和沼气等<sup>[28]</sup>。

由于水溶性低, 利用 CO<sub>2</sub> 生物电化学合成有机物仍有很多缺陷, 如产出率低、产物浓度低和耗能大。影响 CO<sub>2</sub> 微生物电化学合成的因素很多, 如微生物菌种、阴极电极材料、离子交换膜和反应器构型等。阴极修饰可以提高 BESs 的性能, 已经有多种的修饰材料被报道, 如金属元素、碳纳米管(Carbon nanotubes, CNTs)、三聚氰酰氯、聚苯胺等<sup>[29]</sup>。Zhang 等发现在 BESs 系统中使用安全的壳聚糖修饰碳布阴极, CO<sub>2</sub> 生成醋酸盐的产率比未修饰电极增加了 7.6 倍<sup>[29]</sup>, 提出了一种环保高效的生物电合成材料和方法。Aryal 等最近对基于 CO<sub>2</sub> 的生物电合成进行了较为全面的综述<sup>[28]</sup>。尽管 BESs 可以将 CO<sub>2</sub> 等温室气体转化为不同功能的高

价值有机物,但目前这些系统仍然存在转化效率较低、电能损耗多、缺少扩大化研究等不足。随着其它相关学科如材料科学、合成生物学的发展,生物电合成系统内的胞外电子传递和胞内物质转化效率及价值都将逐步提高,该技术也将逐步趋于实用。

#### 1.4 挥发性有机废气

VOCs 是目前国内城市群大气污染的重要因素,VOCs 可与氮氧化物经光化学反应产生  $\text{PM}_{2.5}$ 、臭氧等二次污染物。VOCs 污染环境可造成生物体急性或慢性中毒,甚至会导致癌变<sup>[30]</sup>。VOCs 废气的末端治理技术有吸附法、膜分离法、生物法、燃烧法、低温等离子法和光催化法<sup>[31]</sup>等。BESs 可以通过优化电极材料、电极电位和微生物功能等方面,将物理、化学和生物法降解 VOCs 集中于同一体系内,还可以将 VOCs 的化学能转化为电能,因而具有较大的科学和应用研究价值。

BESs 处理的 VOCs 大致有芳香烃类、酯类和卤代烃类。除了少数卤代烃,BESs 对于 VOCs 的去除效率普遍大于 80%,部分气体 VOCs 去除效率甚至接近 100%。BESs 对难降解污染物也有强化降解效果。Luo 等的研究表明,不同条件下运行的 MFCs 中,苯酚的降解效率在 60 h 内都可以达到 95%以上<sup>[32]</sup>。表 1-3 总结了 BESs 处理废气污染物的废气种类、装置结构和处理效果。可以看出,用于 VOCs 处理的不同 MFCs 其产电效率、废气降解/转化效率等性能差别很大。造成差异的因素包括很多方面,如 MFCs 的外电阻、电极材料及底物浓度增加<sup>[58]</sup>、底物的可生物降解性等<sup>[41]</sup>。Sharma 等的研究表明,MFCs 缺乏有效的氧化还原介体会导致产电效率低<sup>[59]</sup>。

生物还原脱氯过程中,多数脱氯细菌可以使用氢气或者小分子有机物作为电子供体。最近的研究表明一些脱氯细菌可以从极化的石墨电极上接受电子并用于生物脱氯<sup>[45]</sup>。与此同时,MEC 中阴极液电解产生的氢气也作为电子供体来维持还原脱氯的过程<sup>[46]</sup>,表明 MEC 中可以同时提供氢气

和电极两种电子供体用于生物还原脱氯。由于阳极微生物作用,MEC 中只需提供较低的电压(0.5 V 左右)即可发生电解产氢反应,且不需要贵金属电极,因而相对于电化学还原脱氯,MECs 具有耗能少、成本低等优点。Wu 等在苯降解 MFCs 的阴极添加导电介体铁氰化钾,最大电压从 4.2 mV 增大到 130.8 mV<sup>[33]</sup>。后来 Wu 等在甲苯降解 MFCs 的阳极室添加电子介体绿脓素,功率密度增大 3.6 倍(21.76 mW/m<sup>2</sup>),库伦效率增大 13 倍(11.62%),并把 MFCs 内阻从 500  $\Omega$  减少到 100  $\Omega$ <sup>[34]</sup>。电极是 BESs 和传统生物脱氯系统在结构上的主要区别。需要注意的是,尽管较低的电位有利于 BESs 中的生物和化学还原脱氯,但同时也会耗费更多电能,并刺激产甲烷等竞争过程发生。因而在规模化应用中,电极材料及电位的选择是决定系统效能的关键因素。

## 2 气体 BESs 装置构造及材料

### 2.1 装置结构

已报道的气相 BESs 反应器有单室、双室和填料床 3 种构型。单室构型是阴阳极处于同一溶液中,在阳极处理基质,阴极靠近空气做电子受体,Mehta 等将 CO 发酵和 MFCs 结合,构建了空气阴极单室 MFCs<sup>[16]</sup>。运用薄壁硅胶管和多电极结构可显著提高 MFCs 中 CO 气体的扩散和转化效率<sup>[13,15,17]</sup>。Hussain 等的研究表明,使用多个阳极并联可以有效提高阳极与底物的接触面积,从而提高 CO 混合气的转化效率和电能输出<sup>[13]</sup>。用于废气处理的双室 BESs 与常规 BESs 结构类似,多为板框结构,反应器由多个框架、胶垫组成,阴阳极由质子膜隔开,螺母固定。相对于单室结构,双室的成本较高,内阻也会增大,但由于有效防止阴极电子受体进入阳极侧,双室装置的库伦效率会高于单室。填料床多为圆柱形,以传统生物滴滤塔为基础,在其中心增加导电的阳极<sup>[47]</sup>,周围填充导电性碳质材料,而且很多都没有质子膜的存在<sup>[34]</sup>。在用于处理 VOCs 气体的 BESs 中,该圆柱体构型通常会结合生物滴滤塔形成(Biotrickling

表 1 MFCs 液相中处理的废气种类  
Table 1 Waste gas removal in liquid phase by MFCs

Waste gas	BESs	Microorganisms	Working electrode	Electron mediator	Volumetric power density (W/m <sup>3</sup> )	Maximum removal efficiency (%)	Flow rate/initial concentration	Time (h)	Working model	Maximum coulombic efficiency (%)	References
CO	Dual-chambered MFC	Mesophilic anaerobic sludge	Three anodes: carbon felt	–	33.0	93.0	2 L/d	–	Flow	43.00	[13]
CO Synthesis gas	Dual-chambered MFC	Anaerobic digester fluid from urban wastewater treatment plant	Anode: graphite felt	–	3.13	86.9	8.18±0.31 mmol/h	–	Flow	5.00	[14]
CO Synthesis gas	Single-chambered MFC	Anaerobic sludge from food processing plants	Anode: graphite felt	–	18.0	98.0	4 L/d	–	Flow	–	[15]
CO Synthesis gas	Dual-chambered MFC	Mesophilic anaerobic granular sludge	Anode: carbon felt	–	30.0–35.0	98.0	4–8 L/d	–	Flow	6.00	[17]
Phenol	Dual-chambered MFC	Aerobic activated sludge and anaerobic sludge	Anode: carbon paper	–	28.3	95.0	1 000 mg/L	60	Batch	7.70	[32]
Benzene	Dual-chambered MFC	Sludge from oil cracking wastewater treatment plant	Anode: carbon cloth	Potassium ferricyanide	0.000 1–0.008 4	100.0	10.8 mg/L	22–24.5	Batch	5.70	[33]
Toluene	Dual-chambered MFC	Activated sludge flora from oil cracking wastewater treatment plant	Anode: carbon cloth	Pyocyanin	0.108 8	96.0	55 mg/L	5	Batch	11.62	[34]
Benzene	Dual-chambered MFC	Groundwater contaminated with benzene and sulfides	Anode: graphite fiber	–	0–2.0	80.0	296 mmol/L	720	Batch	–	[35]
Benzene	Dual-chambered MFC	Supernatant of sludge in sewage treatment plants	Anode: graphite particles	–	0.9	>90.0	1 500 g/L	250	Batch	10.00	[36]
Toluene	Dual-chambered MFC	Sludge from oil cracking wastewater treatment plant	Anode: carbon cloth	Neutral red/Potassium ferricyanide	0.007–0.015	100.0	69.2 mg/L	60	Batch	–	[37]
Phenol	Dual-chambered MFC	<i>Cupriavidus basilensis</i>	Anode: graphite rod	–	0.018	86.0	1.06 mmol/L	72	Batch	–	[38]
Phenol	Single-chambered MFC	Anaerobic sludge	Anode: carbon felt	–	0.36	88.9	600 mg/L	56	Batch	3.68	[39]
1,2-Dichloroethane	Dual-chambered MFC	<i>Anodophilic consortia</i>	Anode: graphite plate	–	0.003–0.007	43.0	1 mmol/L	336	Batch	25.00±4.00	[40]

注: –: 参考文献中未提及。

Note: –: No mention in the corresponding reference.

表 2 MFC 气相中处理的废气  
Table 2 Gaseous waste gas removal by MFCs

Waste gas	BESs	Microorganisms	Working electrode	Electron mediator	Power density (W/m <sup>3</sup> )	Transfer/removal efficiency (%)	Maximum removal capacity	Working model	Maximum coulombic efficiency (%)	Referenes
CO	Single-chambered MFC	10 mL of anaerobic sludge from a food processing plant	Anode: graphite felt	—	6.4	60.7	4.8 L/d	Flow	8.70	[16]
Toluene	Dual-chambered MFC	Coking plant activated sludge	Anode: carbon cloth	—	6.19±0.45	91.2±2.4	274.5 g/(m <sup>3</sup> ·h)	Flow	1.00	[41]
Ethyl acetate	Dual-chambered MFC	<i>Pseudomonas</i> sp. YATO411 and <i>Pseudomonas citronellolis</i> YAI P52	Anode: carbon cloth	—	4.14–4.72	50.0–100.0	2 288 g/(m <sup>3</sup> ·h)	Flow	67.80	[42]
Ethyl acetate	BF-MFCs	Activated sludge	Anode: graphite rod	—	538.0±21.4	91.3–99.2	65.1 g/(m <sup>3</sup> ·h)	Flow	—	[43]
Ethyl acetate	BF-MFCs	Sludge from oil cracking wastewater treatment plant	Anode: graphite rod	—	0.23	100.0	83.8 g/(m <sup>3</sup> ·h)	Flow	3.95	[44]

注：—：参考文献中未提及。

Note: —: No mention in the corresponding reference.

表 3 MECs 处理的废气  
Table 3 Waste gas removal by MECs

Waste gas	BESs	Microorganisms	Working electrode	Electron mediator	Imposed potential/current density	Removal efficiency (%)	Initial concentration	Time	Working model	Maximum coulombic efficiency (%)	References
NO <sub>x</sub>	Other	<i>Pseudomonas</i> sp. DN-2 and <i>E. coli</i> FR-2	Cathode: carbon rod	–	20 mA	87.0	1.6 mmol/L	2 h	Batch	–	[21]
NO <sub>x</sub>	Other	<i>Pseudomonas</i> sp. DN-2 and <i>E. coli</i> FR-2	Cathode: carbon rod/activated carbon	–	30.53 A/m <sup>3</sup>	>90.0	4 mmol/L	12 h	Batch	83.4	[23]
NO <sub>x</sub>	Other	<i>Pseudomonas</i> sp. DN-2 and <i>E. coli</i> FR-2	Cathode: graphite granule	–	66.7 A/m <sup>3</sup>	98.0	180 mg/L	2 h	Batch	–	[24]
NO	MECs	Activated sludge	Cathode: graphite granule	–	–300–0 mV	>85.5	1.75–2.75 mmol/L	4 h	–	–	[25]
Tetrachloroethene	MECs	Multiple inoculations of different environmental samples	Cathode: graphite felt	Methyl viologen	–500 mV	100.0	75 μmol/L	6 d	Batch	–	[45]
Trichloroethene	MECs	<i>Dehalococcoides</i> spp. enriched microbial culture	Cathode: glassy carbon rod	Methyl viologen	–	45.0	100 μmol/L	9 h	Batch	60.0	[46]
NO <sub>x</sub>	Other	<i>Pseudomonas</i> sp. DN-2 and <i>E. coli</i> FR-2	Cathode: carbon rod	–	30 mA	85.0	2.1±0.19 mmol/L	12 h	Flow	–	[47]
NO <sub>x</sub>	Other	<i>Pseudomonas</i> sp. DN-2 and <i>E. coli</i> FR-2	Cathode: carbon rod	Water	30.53 A/m <sup>3</sup>	–	–	–	–	–	[48]
1,2-Dichloroethane	MECs	<i>Dehalococcoides</i> enriched microbial culture	Cathode: glassy carbon rod	2,6-Disulfonate	–300–900 mV	77.0	181 μmol/L	7 h	Batch	70.0	[49]
1,2-Dichloroethane	MECs	Municipal activated sludge	Cathode: graphite rod	–	–300 mV	70.0	0.6 mmol/L	7 d	Batch	1.0	[50]
Trichloroethene	MECs	<i>Dehalococcoides</i> spp. enriched microbial culture	Cathode: stainless steel mesh	–	9–20 V	55.6–62.5	24 μmol/L	115 d	Flow	–	[51]
Trichloroethene	MECs	Dechlorination enrichment culture	Cathode: graphite granule	–	–250–750 mV	94.7±0.1	35 mmol/L	0.9 d	Flow	–	[52]
Trichloroethene	MECs	<i>Dehalococcoides</i> sp. enriched microbial culture	Cathode: glassy carbon rod	2,6-Disulfonate	–250 mV	80.0	50 mmol/L	7 d	Batch	–	[53]
Trichloroethene and cis-dichloroethylene	MECs	Saline sediment	Cathode: carbon paper	–	–550 mV	>90.0	0.375 mmol/L	4 d	Batch	70.0	[54]
Tetrachloroethene	MECs	<i>Dehalococcoides</i> spp., <i>Desulfotobacterium</i> , <i>Methanogens</i> and <i>Homoacetogens</i>	Cathode: stainless steel	–	0.1 mA/cm <sup>2</sup>	–	156.25 μmol/L	8 h	Batch	13.0	[55]
Tetrachloroethene	NCBE-MECs	Mixed microbial culture for dechlorination	Cathode: carbonized fiber	–	–450 mV	100.0	30 μmol/L	112 d	Batch	–	[56]
Tetrachloroethene	MECs	<i>G. lovleyi</i> strain SZ	Cathode: graphite	–	–300 mV	98.0	400 μmol/L	96 h	Batch	–	[57]

注: –: 参考文献中未提及。

Note: –: No mention in the corresponding reference.

filter-microbial fuel cells, BF-MFCs)的一个复合结构,甚至可以使用级串联或折流式的结构增加废气停留时间,另外阴极也会使用多电极。

## 2.2 电极材料

气相 BESs 常用的电极为碳(或石墨)材料(表 1),包括活性碳、碳纸、碳布、碳毡和碳棒等。碳布和碳纸的导电性较好,性能也较为稳定,但目前价格较高,不适于扩大化应用。活性碳颗粒、碳纤维刷和碳毡等具有化学稳定性好、成本较低、易于扩大化应用等优点,然而应用过程中需要对材料的体积、密度和表面特性等进行优化,否则容易造成堵塞,造成实际接触面积小和处理效率低等问题。由于气体 MFCs 的库伦效率普遍较低,所以为了增大气体与电极表面和生物膜的接触面积,研究者们采用多个阳极或者多个阴极的方式<sup>[13]</sup>,或者用三维电极的结构设计<sup>[23]</sup>,或根据目标污染物的特性对电极材料进行化学处理,都取得了较好的效果<sup>[33]</sup>。由于是气体这种特殊基质,电极表面可以贴合一层气体扩散污染物的膜以提高处理效率<sup>[34]</sup>。

## 2.3 膜材料

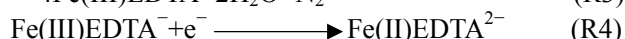
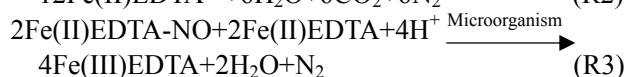
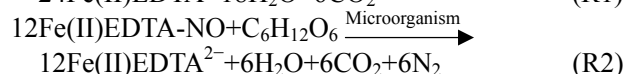
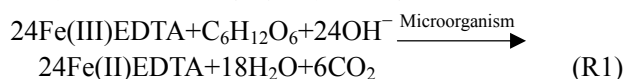
膜是 BESs 的重要部件之一,膜的作用主要是隔开阳极和阴极的氧化还原环境。常用到的交换膜包括:质子交换膜(PEMs)、阳离子交换膜(CEM)、阴离子交换膜(AEM)和超滤膜(UFM)。气相 BESs 所用的交换膜多为质子膜,如 Naffion 膜、聚乙烯醇(PVA)薄膜。Wu 等将 BF-26 的 PVA 与碳布粘合在一起,反复冻融后制备成新型的 PVA 膜电极,在维持高效质子传递的同时,显著降低了膜材料成本<sup>[44]</sup>。在 MFCs 处理气体的研究中,无膜的 MFCs 也受到了一定的关注,使用气体喷头,可溶性的气体进入液体后会达到接近饱和状态,这时 MFCs 的反应受气液传质效率的限制。相对于溶解态底物,难溶性气体的处理在常规体系中的停留时间短,功能微生物的接触机率小是造成降解率低的重要因素。Li 等设计了一种不需要离子交换膜的新型阳极,阳极由气体扩散膜(GDL)、聚四

氟乙烯(PTFE)和碳纸组成,可以将气态的甲苯直接输送到生物膜上,有效提高了甲苯和微生物的接触及处理效率<sup>[41]</sup>。

## 3 电极反应机理

### 3.1 烟气 NO<sub>x</sub> 的生物电化学处理

在烟气 NO<sub>x</sub> 的处理中, BESs 中的 NO<sub>x</sub> 和 Fe(III)EDTA 还原主要是通过生物还原和电化学还原协同完成的,好氧反硝化是烟气 NO<sub>x</sub> 去除的主要途径<sup>[25,49]</sup>。已报道的用于 BESs 去除 NO<sub>x</sub> 的纯培养微生物有 *Pseudomonas* sp. DN-2 和 *Escherichia coli* FR-2<sup>[60-61]</sup>。*Pseudomonas* sp. DN-2 具有 Fe(II)EDTA-NO 和 Fe(III)EDTA 还原能力, *E. coli* FR-2 是 Fe(III)EDTA 还原菌。细菌 FR-2 的细胞生长速率与 Fe(II)EDTA-NO 水中浓度有关,当 Fe(II)EDTA-NO 浓度达到 3.7 mmol/L 时,细菌 FR-2 基本停止生长<sup>[61]</sup>。它们参与了 CABER 阴极中的主要还原反应。Kleifges 等认为 Fe(II)EDTA-NO 溶液中, NO 在电极上可以直接被电化学还原<sup>[62]</sup>。另外,外加电流时 Fe(III)EDTA 在 MEC 阴极上也可以被电化学还原。生物化学还原反应方程式<sup>[49,60-61]</sup>如下:



在 CABER 烟气脱硝过程中, Fe(III)EDTA 到 Fe(II)EDTA 的生物还原速率是关键的限制因素之一<sup>[22,49]</sup>。而通过 BESs 的电流大小可以有效地调控 Fe(II)的浓度,从而维持 NO<sub>x</sub> 较高的还原效率。有研究显示, BESs 中 Fe(III)的还原速率是单独生物还原或电化学还原对照组的近 2 倍<sup>[22]</sup>。

Zhao 等对 MEC 处理 NO<sub>x</sub> 过程中的微生物机理进行研究,发现该体系中电子介体的作用较小,并发现电极生物膜中有较多的纳米导线类似物,推测直接接触式电子传递是微生物从电极获得电子的主要方式<sup>[25]</sup>。高通量测序表明,群落中主要



以反硝化功能菌为主, 如 *Petrimonas*、*Thermomonas*、*Chelatococcus*、*Azospira*; 主要的铁还原菌占全部的 15.11%, 包括 *Actinotalea* 和 *Desulfitobacterium*<sup>[25]</sup>。Ohmura 等发现 *Thiobacillus ferrooxidans* 可以使用电极表面产生的  $H_2$  作为电子供体还原  $Fe^{3+}$  进行化能自养生长<sup>[63]</sup>。Zhou 等提出大多数  $Fe^{3+}$  还原菌可以在厌氧的情况下利用有机物或者氢气作为电子供体<sup>[23]</sup>。因而在 CABER 中 NO 还原的途径可能包括微生物还原、 $Fe(II)$  还原和电极还原, 各种途径的贡献比例受到电极电位、 $Fe(II)$  浓度、微生物活性等多种因素的影响。Zhao 等的研究发现, 在  $Fe(III)$  还原过程中, 基于直接电子传递的 NO 生物还原和化学还原同时发生; 当  $Fe(III)$  完全被还原, 电极电位将持续下降并还原质子产生氢气, 此时基于氢气氧化的 NO 生物还原和化学还原成为主要过程<sup>[25]</sup>。然而关于 CABER 中的生物电化学电子传递机理目前还缺少直接证据, 更深入的研究需要结合一些经典的环境微生物学方法, 如荧光原位杂交、稳定同位素标记和定量 PCR 等。

### 3.2 CO 基质微生物电极反应

已有报道中 CO 合成气在 MFCs 中的产电过程主要是由同型产乙酸菌和产电菌协同完成的, *Acetobacterium* (如 *A. wieringae*) 是该体系中报道最多的同型产乙酸菌<sup>[14,17]</sup>。CO 脱氢辅酶(Carbon monoxide dehydrogenase, CODH)和乙酰辅酶 A 合酶(Acetyl-CoA synthase, ACS)是同型产乙酸菌将 CO 转化为乙酸过程中的关键酶。CO 生物氧化的主要产物是甲烷和乙酸, 而后者可以作为很多产电微生物的电子供体。Hussain 等以 CO 混合气作为唯一碳源, 厌氧活性污泥作为接种微生物驱动 MFCs 产电, 产电结束后 MFCs 阳极室的基底材料中主要是同型产乙酸菌 *Acetobacterium*, 而阳极表面主要是 *Geobacter sulfurreducens*、*Geobacter* sp. T32 和一个未培养的 *Geobacterium*, 作者推测 CO 首先到达基底材料被 *Acetobacterium* 转化为乙酸, 后者经扩散到达阳极表面被 *Geobacter* 氧化产

电<sup>[17]</sup>。实际上, 除乙酸外, CO 合成气及其发酵产物还包括  $H_2$ 、甲酸、乙酸、乙醇、丁酸盐、丁醇等<sup>[64]</sup>, 这些代谢产物大多也可被产电细菌利用。它们在 CO 合成气产电过程中的作用目前关注较少。如 Hussain 等使用的合成气中 CO 与  $H_2$  的体积比为 1:1, 而 *Geobacter* 可以利用  $H_2$  产电, 但该研究并未讨论  $H_2$  对产电的贡献<sup>[17]</sup>。

此外, 相对于同一细胞内的代谢过程, 不同细菌之间的物质或能量转移一般能量损失较多。而某些同型产乙酸菌属也被发现可以利用乙酸等有机物产电, 如 *Clostridium*, 这些微生物能否单独氧化 CO 产电值得进一步研究。

### 3.3 VOCs 基质微生物电极反应

VOCs 种类和特性较为多样, 限制性步骤和处理机制较为复杂。BESs 阳极中室生物降解 VOCs 分为 3 个过程: (1) VOCs 从气相到液相的传质; (2) VOCs 扩散进入生物膜; (3) VOCs 在生物膜中的生物降解。在生物电化学系统(BESs)中, 可以将电极材料与填充材料结合, 增大 VOCs 接触和生物膜附着比表面积, 对各过程都有促进效果。氧化降解型的 VOCs (如甲苯、苯酚、乙酸乙酯等)或其降解产物一般在阳极作为电子供体; 而还原降解型的 VOCs (如氯代或硝基取代 VOCs)可在阴极作为电子受体被电化学或生物降解。*Geobacter* 是研究最多的产电微生物之一, 除甲酸、乙酸、 $H_2$  等小分子物质外, Zhang 等使用同位素标记分析证明 *G. sulfurreducens* 可以将苯、甲苯完全氧化进行产电<sup>[65]</sup>。由于 BESs 中生物和电化学复合作用, 一些还原降解型的 VOCs 也可在 MFCs 阳极被氧化降解。Pham 等发现多种接种物都可以在 MFCs 阳极促进 1,2-二氯乙烷的降解, 其降解产物主要为乙二醇和甘油, 表明氧化降解是其主要途径<sup>[40]</sup>。

最近的研究表明, MEC 中一些脱氯细菌可以从低电位极化的电极上接受电子并用于生物脱氯, 与之同时, MEC 中阴极液电解产生的氢气也作为电子供体来维持还原脱氯的过程<sup>[53]</sup>, 表明 MEC 中可以同时提供氢气和电极两种电子供体用于生物

还原脱氯。电极电位对该体系中的降解效率、途径和微生物群落都有重要影响。Di 等发现三氯乙烯的还原率随电极电位的降低而升高,在低电位时(-550 mV), *Dehalococcoides* 是主要脱氯菌,其丰度超过 65%;随着电位上升,未培养的 *Chloroflexi* 门微生物成为丰度最高的微生物,可能是由于高电位使  $H_2$  浓度降低,电极成为主要电子供体<sup>[66]</sup>。Chen 等比较了不同阴极电位(-0.06、-0.26、-0.46 和 -0.66 V)下 MEC 降解 TCE 的效果,发现-0.26 V 时效率最高。高通量测序分析发现革兰氏阳性的 *Lactococcus* 成为最高丰度菌,且随着电位降低,其丰度逐渐上升至 60%,脱氯功能基因 *pceA*、*tceA* 和产电关键基因 *omcX* 都在-0.26 V 电位下表达最高<sup>[67]</sup>。由此可见,在使用 MEC 降解氯代有机物时,电极电位并非越低越好,还要综合考虑降解效率、副反应过程和能耗成本。

有研究发现,添加中性红、铁氰化钾、吩嗪、腐殖酸类似物蒽醌-2,6-二磺酸盐(Antraquinone-2,6-disulfonate, AQDS)等电子介体可以促进难降解 VOCs 的降解<sup>[12]</sup>。而有些 VOCs 本身就具有电子介体的功能,如苯酚等<sup>[40]</sup>。不同电子介体对微生物群落的功能和结构有着不同的影响。例如, AQDS 可以促进三氯乙烯转化为二氯乙烯(cis-DCE),但并不能促进 *Dehalococcoides* 等的二氯乙烯还原功能,因而会造成二氯乙烯的累积<sup>[12]</sup>。此外,由于电子介体的电位一般在-0.2 V 左右,在阳极添加电子介体有利于促进微生物和电极之间的电子传递,并可抑制产甲烷过程,因为  $CO_2$  还原产生甲烷的电位约-0.4 V<sup>[12]</sup>。

## 4 展望

BESs 是一种多学科交叉型的技术,经过近 20 年的迅速发展,其潜在应用领域从早期 MFCs 的生物降解、电能回收逐渐扩展到脱盐、产氢、生物电合成及生物传感器等多个方面。随着 BESs 在气相基质转化和降解中的研究增多, BESs 工作电极的运行环境已包括液态(废水、培养液)、固态(沉积物、

土壤)和气态环境。BESs 在转化处理难降解气体和低热值气体等基质表现出较好的效果和应用前景,并逐渐引起越来越多的 BESs 和废气处理相关研究者的关注。但是, BESs 在这些基质的处理过程中还存在较多问题,需要增强以下几个方面研究:

(1) 适用 BESs 转化降解的气体类型需要拓展。如废水处理和工业生产过程中排放的  $H_2S$ 、 $CH_4$  和  $NH_4$  等废气都是潜在的微生物产电可用的电子供体,但研究较少;(2) 高效的气相基质转化同步产电的微生物资源缺乏。对于 BESs 处理废气的微生物过程主要依据高通量测序分析推测,极少有从中分离功能微生物的研究。气相基质转化同步产电微生物的分离和应用不仅有助于发现新的微生物呼吸代谢途径,还可以提高反应器的物质和能量转化效率;(3) 针对气态基质转化的 BESs 其结构及电极材料优化研究不足。较强的学科交叉性是 BESs 研究的一个重要特点。因此, BESs 转化处理气相基质的研究需要微生物、环境和材料等多个领域研究者的共同参与和协作。

## REFERENCES

- [1] Oon YL, Ong SA, Ho LN, et al. Synergistic effect of up-flow constructed wetland and microbial fuel cell for simultaneous wastewater treatment and energy recovery[J]. *Bioresource Technology*, 2016, 203: 190-197
- [2] Potter MC, Waller AD. Electrical effects accompanying the decomposition of organic compounds[J]. *Proceedings of the Royal Society of London. Series B, Containing Papers of a Biological Character*, 1911, 84(571): 260-276
- [3] Logan BE, Rabaey K. Conversion of wastes into bioelectricity and chemicals by using microbial electrochemical technologies[J]. *Science*, 2012, 337(6095): 686-690
- [4] Huang LP, Cheng SA, Chen GH. Bioelectrochemical systems for efficient recalcitrant wastes treatment[J]. *Journal of Chemical Technology and Biotechnology*, 2011, 86(4): 481-491
- [5] Pandey P, Shinde VN, Deopurkar RL, et al. Recent advances in the use of different substrates in microbial fuel cells toward wastewater treatment and simultaneous energy recovery[J]. *Applied Energy*, 2016, 168: 706-723
- [6] Yang YG, Sun GP, Xu MY. Progress of research on the microbial fuel cells in the application of environment pollution treatment—a review[J]. *Acta Microbiologica Sinica*, 2010, 50(7): 847-852 (in Chinese)  
杨永刚, 孙国萍, 许玫英. 微生物燃料电池在环境污染治理研究中的应用进展[J]. *微生物学报*, 2010, 50(7): 847-852
- [7] Song TS, Xu Y, Ye YJ, et al. Electricity generation from

- terephthalic acid using a microbial fuel cell[J]. *Journal of Chemical Technology and Biotechnology*, 2009, 84(3): 356-360
- [8] Zhang CP, Liu GL, Zhang RD, et al. Electricity production from and biodegradation of quinoline in the microbial fuel cell[J]. *Journal of Environmental Science and Health Part A Toxic/Hazardous Substances & Environmental Engineering*, 2010, 45(2): 250-256
- [9] Xia CY, Xu MY, Liu J, et al. Sediment microbial fuel cell prefers to degrade organic chemicals with higher polarity[J]. *Bioresource Technology*, 2015, 190: 420-423
- [10] Yang YG, Xu MY, He ZL, et al. Microbial electricity generation enhances decabromodiphenyl ether (BDE-209) degradation[J]. *PLoS One*, 2013, 8(8): e70686
- [11] Zeng PY, Li JJ, Liao DQ, et al. Performance of a combined system of biotrickling filter and photocatalytic reactor in treating waste gases from a paint-manufacturing plant[J]. *Environmental Technology*, 2016, 37(2): 237-244.
- [12] Zhang SH, You JP, Kennes C, et al. Current advances of VOCs degradation by bioelectrochemical systems: A review[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2018, 334: 2625-2637
- [13] Hussain A, Raghavan V, Guiot SR, et al. Electricity production from synthesis gas in a multi-electrode microbial fuel cell[J]. *Journal of Chemical Technology and Biotechnology*, 2014, 89(4): 499-507
- [14] Kim D, Chang IS. Electricity generation from synthesis gas by microbial processes: CO fermentation and microbial fuel cell technology[J]. *Bioresource Technology*, 2009, 100(19): 4527-4530
- [15] Hussain A, Tartakovsky B, Guiot SR, et al. Use of silicone membranes to enhance gas transfer during microbial fuel cell operation on carbon monoxide[J]. *Bioresource Technology*, 2011, 102(23): 10898-10906
- [16] Mehta P, Hussain A, Tartakovsky B, et al. Electricity generation from carbon monoxide in a single chamber microbial fuel cell[J]. *Enzyme and Microbial Technology*, 2010, 46(6): 450-455
- [17] Hussain A, Mehta P, Raghavan V, et al. The performance of a thermophilic microbial fuel cell fed with synthesis gas[J]. *Enzyme and Microbial Technology*, 2012, 51(3): 163-170
- [18] Guo QB, He Y, Sun TH, et al. Simultaneous removal of NO<sub>x</sub> and SO<sub>2</sub> from flue gas using combined Na<sub>2</sub>SO<sub>3</sub> assisted electrochemical reduction and direct electrochemical reduction[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2014, 276: 371-376
- [19] Zhang SH, Chen H, Xia YF, et al. Current advances of integrated processes combining chemical absorption and biological reduction for NO<sub>x</sub> removal from flue gas[J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2014, 98(20): 8497-8512
- [20] Xia YF, Lu BH, Liu N, et al. NO<sub>x</sub> removal in chemical absorption-biological reduction integrated system: Process rate and rate-limiting step[J]. *Bioresource Technology*, 2013, 149: 184-190
- [21] Xia YF, Zhao JK, Li MF, et al. Bioelectrochemical reduction of Fe(II)EDTA-NO in a biofilm electrode reactor: performance, mechanism, and kinetics[J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, 50(7): 3846-3851
- [22] Mi XH, Gao L, Zhang SH, et al. A new approach for Fe(III)EDTA reduction in NO<sub>x</sub> scrubber solution using bio-electro reactor[J]. *Bioresource Technology*, 2009, 100(12): 2940-2944
- [23] Zhou Y, Gao L, Xia YF, et al. Enhanced reduction of Fe(II)EDTA-NO/Fe(III)EDTA in NO<sub>x</sub> scrubber solution using a three-dimensional biofilm-electrode reactor[J]. *Environmental Science & Technology*, 2012, 46(22): 12640-12647
- [24] Xia YF, Shi Y, Zhou Y, et al. A new approach for NO<sub>x</sub> removal from flue gas using a biofilm electrode reactor coupled with chemical absorption[J]. *Energy & Fuels*, 2014, 28(5): 3332-3338
- [25] Zhao JK, Zhang CY, Sun C, et al. Electron transfer mechanism of biocathode in a bioelectrochemical system coupled with chemical absorption for NO removal[J]. *Bioresource Technology*, 2018, 254: 16-22
- [26] Kuroda M, Watanabe T. CO<sub>2</sub> reduction to methane and acetate using a bio-electro reactor with immobilized methanogens and homoacetogens on Electrodes[J]. *Energy Conversion and Management*, 1995, 36(6/9): 787-790
- [27] Nevin KP, Woodard TL, Franks AE, et al. Microbial electrosynthesis: feeding microbes electricity to convert carbon dioxide and water to multicarbon extracellular organic compounds[J]. *mBio*, 2010, 1(2): e00103-10
- [28] Aryal N, Ammam F, Patil SA, et al. An overview of cathode materials for microbial electrosynthesis of chemicals from carbon dioxide[J]. *Green Chemistry*, 2017, 19(24): 5748-5760
- [29] Zhang T, Nie HR, Bain TS, et al. Improved cathode materials for microbial electrosynthesis[J]. *Energy & Environmental Science*, 2013, 6(1): 217-224
- [30] Zhou JA, You Y, Bai ZP, et al. Health risk assessment of personal inhalation exposure to volatile organic compounds in Tianjin, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2011, 409(3): 452-459
- [31] Li MZ, Huang ZH, Kang FY. Progress of volatile organic compounds control technology[J]. *Chemical Industry and Engineering*, 2015, 32(3): 2-9 (in Chinese)  
李明哲, 黄正宏, 康飞宇. 挥发性有机物的控制技术进展[J]. *化学工业与工程*, 2015, 32(3): 2-9
- [32] Luo HP, Liu GL, Zhang RD, et al. Phenol degradation in microbial fuel cells[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2009, 147(2/3): 259-264
- [33] Wu CH, Lai CY, Lin CW, et al. Generation of power by microbial fuel cell with ferricyanide in biodegradation of Benzene[J]. *Clean-Soil Air Water*, 2013, 41(4): 390-395
- [34] Wu CH, Yet-Pole I, Chiu YH, et al. Enhancement of power generation by toluene biodegradation in a microbial fuel cell in the presence of pyocyanin[J]. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, 2014, 45(5): 2319-2324
- [35] Rakoczy J, Feisthauer S, Wasmund K, et al. Benzene and sulfide removal from groundwater treated in a microbial fuel cell[J]. *Biotechnology and Bioengineering*, 2013, 110(12): 3104-3113
- [36] Luo HP, Zhang CP, Song HH, et al. Electricity production of microbial fuel cell with biodegradation of benzene[J]. *Acta Scientiarum Naturalium Universitatis Sunyatseni*, 2010, 49(1): 113-118 (in Chinese)  
骆海萍, 张翠萍, 宋海红, 等. 降解苯的微生物燃料电池产电性能研究[J]. *中山大学学报: 自然科学版*, 2010, 49(1): 113-118
- [37] Lin CW, Wu CH, Chiu YH, et al. Effects of different mediators on electricity generation and microbial structure of a toluene powered microbial fuel cell[J]. *Fuel*, 2014, 125: 30-35
- [38] Friman H, Schechter A, Ioffe Y, et al. Current production in a microbial fuel cell using a pure culture of *Cupriavidus basilensis*

- growing in acetate or phenol as a carbon source[J]. *Microbial Biotechnology*, 2013, 6(4): 425-434
- [39] Song TS, Wu XY, Zhou CC. Effect of different acclimation methods on the performance of microbial fuel cells using phenol as substrate[J]. *Bioprocess and Biosystems Engineering*, 2014, 37(2): 133-138
- [40] Pham H, Boon N, Marzorati M, et al. Enhanced removal of 1,2-dichloroethane by anodophilic microbial consortia[J]. *Water Research*, 2009, 43(11): 2936-2946
- [41] Li J, Li M, Zhang J, et al. A microbial fuel cell capable of converting gaseous toluene to electricity[J]. *Biochemical Engineering Journal*, 2013, 75: 39-46
- [42] Wu CH, Tsai YY, Lin CW. Modifying membrane anode in a microbial fuel cell to improve removal of gaseous ethyl acetate without reducing generation of electricity[J]. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, 2016, 62: 169-176
- [43] Wu CH, Lin CW. Electricity generation and kinetic aspects of a biotrickling filter-microbial fuel cell for the biofiltration of ethyl acetate vapor from waste gas[J]. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, 2016, 68: 332-337
- [44] Wu CH, Shih JC, Lin CW. Continuous production of power using microbial fuel cells with integrated biotrickling filter for ethyl acetate-contaminated air stream treatment[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2016, 41(47): 21945-21954
- [45] Yu J, Park Y, Nguyen VK, et al. PCE dechlorination by non-*Dehalococcoides* in a microbial electrochemical system[J]. *Journal of Industrial Microbiology & Biotechnology*, 2016, 43(8): 1095-1103
- [46] Aulenta F, Tocca L, Verdini R, et al. Dechlorination of trichloroethene in a continuous-flow bioelectrochemical reactor: effect of cathode potential on rate, selectivity, and electron transfer mechanisms[J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, 45(19): 8444-8451
- [47] Gao L, Mi XH, Zhou Y, et al. A pilot study on the regeneration of ferrous chelate complex in NO<sub>x</sub> scrubber solution by a biofilm electrode reactor[J]. *Bioresource Technology*, 2011, 102(3): 2605-2609
- [48] Li W, Xia YF, Zhao JK, et al. Generation, utilization, and transformation of cathode electrons for bioreduction of Fe(III)EDTA in a biofilm electrode reactor related to NO<sub>x</sub> removal from flue gas[J]. *Environmental Science & Technology*, 2015, 49(7): 4530-4535
- [49] Leitão P, Rossetti S, Nouws HPA, et al. Bioelectrochemically-assisted reductive dechlorination of 1,2-dichloroethane by a *Dehalococcoides*-enriched microbial culture[J]. *Bioresource Technology*, 2015, 195: 78-82
- [50] Leitão P, Rossetti S, Danko AS, et al. Enrichment of *Dehalococcoides mccartyi* spp. from a municipal activated sludge during AQDS-mediated bioelectrochemical dechlorination of 1,2-dichloroethane to ethene[J]. *Bioresource Technology*, 2016, 214: 426-431
- [51] Lohner ST, Tiehm A. Application of electrolysis to stimulate microbial reductive PCE dechlorination and oxidative VC biodegradation[J]. *Environmental Science & Technology*, 2009, 43(18): 7098-7104
- [52] Aulenta F, Catervi A, Majone M, et al. Electron transfer from a solid-state electrode assisted by methyl viologen sustains efficient microbial reductive dechlorination of TCE[J]. *Environmental Science & Technology*, 2007, 41(7): 2554-2559
- [53] Aulenta F, Di Maio V, Ferri T, et al. The humic acid analogue anthraquinone-2,6-disulfonate (AQDS) serves as an electron shuttle in the electricity-driven microbial dechlorination of trichloroethene to cis-dichloroethene[J]. *Bioresource Technology*, 2010, 101(24): 9728-9733
- [54] Aulenta F, Reale P, Canosa A, et al. Characterization of an electro-active biocathode capable of dechlorinating trichloroethene and cis-dichloroethene to ethene[J]. *Biosensors and Bioelectronics*, 2010, 25(7): 1796-1802
- [55] Aulenta F, Reale P, Catervi A, et al. Kinetics of trichloroethene dechlorination and methane formation by a mixed anaerobic culture in a bio-electrochemical system[J]. *Electrochimica Acta*, 2008, 53(16): 5300-5305
- [56] Patil SS, Adetutu EM, Rochow J, et al. Sustainable remediation: electrochemically assisted microbial dechlorination of tetrachloroethene-contaminated groundwater[J]. *Microbial Biotechnology*, 2014, 7(1): 54-63
- [57] Strycharz SM, Woodard TL, Johnson JP, et al. Graphite electrode as a sole electron donor for reductive dechlorination of tetrachloroethene by *Geobacter lovleyi*[J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2008, 74(19): 5943-5947
- [58] Catal T, Li KC, Bermek H, et al. Electricity production from twelve monosaccharides using microbial fuel cells[J]. *Journal of Power Sources*, 2008, 175(1): 196-200
- [59] Sharma V, Kundu PP. Biocatalysts in microbial fuel cells[J]. *Enzyme and Microbial Technology*, 2010, 47(5): 179-188
- [60] Zhang SH, Li W, Wu CZ, et al. Reduction of Fe(II)EDTA-NO by a newly isolated *Pseudomonas* sp. strain DN-2 in NO<sub>x</sub> scrubber solution[J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2007, 76(5): 1181-1187
- [61] Li W, Wu CZ, Zhang SH, et al. Evaluation of microbial reduction of Fe(III)EDTA in a chemical absorption-biological reduction integrated NO<sub>x</sub> removal system[J]. *Environmental Science & Technology*, 2007, 41(2): 639-644
- [62] Kleifges KH, Juzeliūnas E, Jüttner K. Electrochemical study of direct and indirect NO reduction with complexing agents and redox mediator[J]. *Electrochimica Acta*, 1997, 42(19): 2947-2953
- [63] Ohmura N, Matsumoto N, Sasaki K, et al. Electrochemical regeneration of Fe(III) to support growth on anaerobic iron respiration[J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2002, 68(1): 405-407
- [64] Henstra AM, Sipma J, Rinzema A, et al. Microbiology of synthesis gas fermentation for biofuel production[J]. *Current Opinion in Biotechnology*, 2007, 18(3): 200-206
- [65] Zhang T, Gannon SM, Nevin KP, et al. Stimulating the anaerobic degradation of aromatic hydrocarbons in contaminated sediments by providing an electrode as the electron acceptor[J]. *Environmental Microbiology*, 2010, 12(4): 1011-1020
- [66] Di BA, Verdini R, Rossetti S, et al. CARD-FISH analysis of a TCE-dechlorinating biocathode operated at different set potentials[J]. *New Biotechnology*, 2012, 30(1): 33-38
- [67] Chen F, Li ZL, Liang B, et al. Electrostimulated bio-dechlorination of trichloroethene by potential regulation: Kinetics, microbial community structure and function[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2019, 357: 633-640