

微生物种间电子传递的研究进展

何恩静, 彭洁茹, 邱晓莹, 范阳阳*

安徽大学物质科学与信息技术研究院, 安徽 合肥 230601

何恩静, 彭洁茹, 邱晓莹, 范阳阳. 微生物种间电子传递的研究进展[J]. 微生物学通报, 2022, 49(10): 4425-4437

He Enjing, Peng Jieru, Qiu Xiaoying, Fan Yangyang. Interspecies electron transfer in microorganisms[J]. Microbiology China, 2022, 49(10): 4425-4437

摘要: 种间电子传递可促进微生物发生共代谢, 因而在地球生物化学循环和环境污染修复中具有重要意义。根据电子传递方式的不同可将种间电子传递分为直接种间电子传递(direct interspecies electron transfer, DIET)和间接种间电子传递(mediated interspecies electron transfer, MIET), 其中, 直接种间电子传递由于易发生、效率高而受到更加广泛的关注。本文总结了近年来关于种间电子传递的研究进展, 阐述了种间电子传递的途径, 比较了 DIET 和 MIET 的优缺点, 并对开发更多具有种间电子传递功能的微生物提出了建议, 以期加深人们对于种间电子传递的理解, 并对未来该领域的研究提供参考。

关键词: 微生物; 共代谢; 直接种间电子传递; 间接种间电子传递

Interspecies electron transfer in microorganisms

HE Enjing, PENG Jieru, QIU Xiaoying, FAN Yangyang*

Institute of Physical Science and Information Technology, Anhui University, Hefei 230601, Anhui, China

Abstract: Interspecific electron transport is of great significance to geobiochemical cycles and environmental pollution remediation since it can promote microbial co-metabolism. Interspecies electron transfer can be classified into direct interspecies electron transfer (DIET) and mediated interspecies electron transfer (MIET) according to the mode of electron transfer, in which the former has received extensive attention owing to its common occurrence and high efficiency. This study summarized the research progress in interspecies electron transfer, elaborated the involved pathways, compared the advantages and disadvantages between DIET and MIET, and suggested to mine more microorganisms

基金项目: 安徽省自然科学基金(2108085QE246); 安徽省高等学校自然科学研究项目(KJ2021A0073)

Supported by: Natural Science Foundation of Anhui Province (2108085QE246); Natural Science Research Project for Colleges and Universities of Anhui Province (KJ2021A0073)

*Corresponding author: E-mail: fyy@ahu.edu.cn

Received: 2022-03-06; Accepted: 2022-05-23; Published online: 2022-07-11

with interspecies electron transfer function. This review aims to improve understanding of interspecies electron transfer and provide a reference for the future research in this field.

Keywords: microorganisms; co-metabolism; direct interspecies electron transfer (DIET); mediated interspecies electron transfer (MIET)

在自然环境中,单细胞的微生物可以通过小分子物质实现信息、养分、底物和电子的交换,进而构建互营共生的关系,以维持微生物群落的稳定。互营共生是指微生物通过分工合作对不能独立代谢的底物进行联合利用,以获取自身生长所需的能量。微生物种间电子传递(interspecies electron transfer, IET)是近年来发现的一种新型互营共生方式。电子供体微生物通过细胞接触的直接方式或者中间物质介导的间接途径,将电子传递给电子受体微生物,从而实现单一微生物难以完成的代谢过程。目前,微生物 IET 的研究受到广泛关注,已成为微生物相互作用领域的研究热点^[1]。微生物通过 IET 进行共代谢的现象在多种自然或人工条件下普遍存在。作为一种新型的细胞间代谢方式, IET 对微生物种群构成、环境物质循环、温室气体排放等生物地球化学反应及环境污染修复等具有重要意义^[2-4]。

目前,关于 IET 的研究仍处于初始阶段。参与 IET 过程的微生物尚局限于较小范围,而且 IET 作用过程和电子传递机理的研究尚待深入。针对以上问题,本文论述了近年来 IET 领域的研究进展,全面阐述了微生物种间电子传递的作用途径,讨论了参与 IET 的相关微生物,并对其在环境领域的研究意义进行展望,以期为该领域的未来研究提供思路。

1 种间电子传递的方式和机理

1.1 间接种间电子传递(mediated interspecies electron transfer, MIET)

IET 最早发现于微生物的发酵产甲烷过程。

1904 年, Omelianski 等在研究微生物发酵产甲烷时分离到一株微生物,发现该菌株可以产 H₂、乙酸和甲烷,将其命名为 *Methanobacillus omelianskii*^[5-6]。然而,1967 年 Bryant 等对 *M. omelianskii* 培养物进一步分离纯化,发现其实际由产乙酸菌和产甲烷菌两种微生物所组成,其中产乙酸菌可以氧化乙醇产生 H₂ 和乙酸,而产生的 H₂ 进而被产甲烷菌所利用以还原 CO₂ 生成甲烷^[7]。该研究表明在发酵产甲烷过程中, H₂ 是此两种细菌之间进行电子传递的中间载体,初步证实了 MIET 的存在。2009 年, Stams 等发现 MIET 过程中 H₂ 的产生/消耗与多种内源性氧化还原介质(NAD⁺/NADH、FAD/FADH₂、Fd_{ox}/Fd_{red} 以及 F₄₂₀/F₄₂₀-H₂)有关^[8]。电子供体菌首先利用底物氧化脱下的电子以产生还原性的铁氧还蛋白(Fd_{red})、NADH 和 FADH₂, 然后通过这些物质将质子还原成 H₂; 在此过程中, H₂ 分压需保持足够低,以保证 Fd_{red}、NADH 和 FADH₂ 的氧化反应在能量上易于发生^[9]。然而电子受体菌则利用电子供体菌提供的 H₂ 以还原辅酶(F₄₂₀)和铁氧还蛋白(Fd_{ox}), 进而将 CO₂ 还原成甲烷^[10]。由此可见,电子供体菌和电子受体菌通过 H₂ 的介导成功实现了电子的种间传递(图 1)。

除 H₂ 外,甲酸也可以作为电子载体介导 MIET 的发生(图 1)。1988 年, Thiele 等在由 *Desulfovibrio vulgaris* 和 *Methanobacterium formicicum* 所构建的产甲烷反应器中发现代谢产物 H₂ 的含量很少,而且外加 H₂ 也不能大幅促进甲烷的产生,进一步研究揭示,该反应体

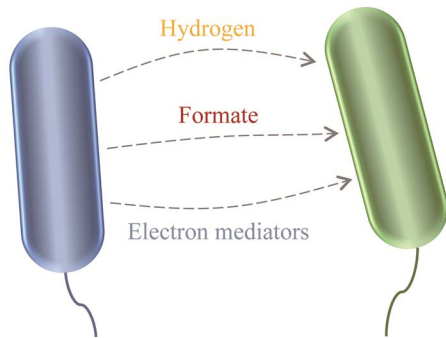


图 1 氢气/甲酸以及电子递质介导的 MIET

Figure 1 MIET mediated by hydrogen/formate and electron mediators.

系中甲烷产生依赖甲酸的介导^[11]。此外, 细菌共培养物还可同时使用甲酸和 H_2 作为电子转移载体。Rotaru 等在 *Pelobacter carbinolicus* 和 *Geobacter sulfurreducens* 共培养体系中发现, 当 *P. carbinolicus* 与 *G. sulfurreducens* 的甲酸脱氢酶/氢化酶双突变体($\Delta hybL\Delta fdnG$)共培养时其生长受到抑制, 而与 *G. sulfurreducens* 的氢化酶单突变体($\Delta hybL$)共培养时其生长却不受影响^[12]。这一结果显示, *G. sulfurreducens* 甲酸脱氢酶基因(*fdnG*)的大量表达可以补偿氢化酶缺失对共培养的影响, 从而证明 *P. carbinolicus* 与 *G. sulfurreducens* 可以同时利用 H_2 和甲酸作为种间电子传递载体来实现互营共生^[12]。然而, 目前对于 H_2 和甲酸在双重电子转移体系中各自发挥的作用尚无定论。有研究报道, H_2 和甲酸在溶液中的扩散符合费克扩散定律, 其中 H_2 的扩散速率高于甲酸, 但是甲酸的溶解度则强于 H_2 ^[13]。在相同的扩散速率条件下, H_2 主要介导短距离的电子转移, 而甲酸主要介导长距离的电子转移^[13]。

除中间代谢产物外, 具有氧化还原性能的电子递质也可介导微生物 MIET (图 1)。根据来源不同, 电子递质可分为两种: 一种是细胞自

身分泌的小分子物质, 如黄素、吩嗪和醌类; 另一种是天然或人工合成的化合物, 如腐殖质和中性红等。电子递质可介导细菌种间电子传递。Huang 等研究发现, 在 *G. metallireducens* 和 *G. sulfurreducens* 共培养体系中不仅存在 DIET, 而且存在核黄素介导的 MIET^[14]。其中核黄素以电子递质的形式促进游离态细菌之间的电子传递 MIET。然而在细胞聚集体中, 核黄素则是作为一些细胞色素的辅因子促进 DIET^[14]。此外, Liu 等在 *G. metallireducens* 和 *Rhodospseudomonas palustris* 的共培养体系中也检测到核黄素的存在^[15]。除核黄素之外, 腐殖质也具有独特的电子转移能力, 能在介导细菌种间电子转移方面发挥重要作用^[16], 其中以蒽醌-2-磺酸盐 (anthraquinone-2-sulfonate, AQS) 和蒽醌-2,6-二磺酸盐 (anthraquinone-2,6-disulfonic acid, AQDS) 类的腐殖质研究较多。研究发现, *G. metallireducens* 和 *S. alga* 可以利用 AQDS 作为电子受体进行厌氧呼吸^[17], 而 *G. sulphurreducens* 和 *Wolinella succinogenes* 则能利用 AHQDS 作为电子供体维持细胞生长^[18]。为了验证 AQDS 能否作为电子递质来耦合细菌种间代谢, Lovley 等构建了 *G. metallireducens* 和 *W. succinogenes* 共培养体系。研究显示, *G. metallireducens* 和 *W. succinogenes* 单独培养及共培养时均无法代谢乙酸, 但 AHQDS 的添加能够显著促进共培养体系对乙酸的利用, 在此过程中, AQDS 作为电子递质实现了 *G. metallireducens* 和 *W. succinogenes* 的种间电子转移^[18]。AQS 对种间电子传递的影响具有浓度依赖效应。Li 等研究发现, 添加 0.1 mmol/L AQS 不但无法作为电子递质促进 DIET, 而且还能作为电子竞争剂抑制混合菌群中甲烷的产生^[19]。Cai 等研究显示, 低剂量的 AQS (50 $\mu\text{mol/L}$) 可得到最大的甲烷产量^[20]。此外, 电子递质能否实现细菌的 MIET 还取决于自身的

氧化还原中点电位。Liu 等研究发现, AQDS 能促进 *G. metallireducens* 和 *G. sulfurreducens* 共培养体系中琥珀酸的还原, 但是却无法实现 *G. metallireducens* 和 *M. barkeri* 的共培养体系中甲烷的产生^[21]。这是因为 AQDS/AHQDS 氧化还原的中点电位较高, 使得其只能驱动延胡索酸的还原而无法实现 CO₂ 转化为甲烷。

1.2 直接种间电子传递(direct interspecies electron transfer, DIET)

近年来, 研究者发现微生物可以通过菌体直接接触来传递电子以实现互营共生。2010 年, Summers 等在 *G. metallireducens* 和 *G. sulfurreducens* 的共培养体系中首次证实了 DIET 的存在^[22], 研究发现, *G. sulfurreducens* 氢化酶敲除株虽不能利用 H₂, 但其依然能够与 *G. metallireducens* 共培养, 这显示此两种微生物之间的电子传递并不完全依赖 H₂ 介导; 但是当 *G. sulfurreducens* 中多血红素细胞色素 c 基因 *omcS* 及菌毛合成相关基因 *pilA* 被敲除后, 共培养体系中菌体生长受到抑制^[22]。这一现象显示此共生体系可不依赖于 H₂, 而通过导电菌毛和细胞色素 c 介导的直接接触来实现细胞间的电子传递(图 2)。除 *Geobacter* 共培养体系之外, 产甲烷菌群中也具有潜在的 DIET。Morita 等在啤酒厂废物

转化为甲烷的上流式厌氧污泥反应器中发现颗粒污泥可通过 DIET 形成导电颗粒, 而且该导电颗粒的电导率是 *Geobacter* 共培养物的 3 倍^[23]。DIET 的发现改变了对微生物种间电子传递的传统认识, 为未来 IET 的研究提供了新的方向。

菌毛由固定在细胞膜中的蛋白质细丝所组成^[24]。在 *Geobacter* 胞外电子传递机制的研究中发现, 由蛋白 PilA 组成的 IV 型菌毛是胞外电子转移所必需的^[25-26], 能够实现快速、长距离(厘米级)的电子传递^[27-28]。Rotaru 等在 *M. barkeri* 和 *G. metallireducens* 的共培养体系及 *M. harundinacea* 和 *G. metallireducens* 的共培养体系中也发现通过 DIET 传递电子的现象^[29-30]。研究者通过基因敲除手段验证了 *pilA* 基因是维持共培养体系中微生物生长的关键, 进而证明了菌毛在 DIET 中的重要作用^[29]。近年来的研究表明, 部分导电菌毛是由细胞色素 OmcS 聚合而成, 而 PilA 蛋白则主要调节 *omcS* 和其他多血红素细胞色素的分泌^[31]。在 *G. metallireducens* 和 *G. sulfurreducens* 的共培养体系中, *G. sulfurreducens* 中 *omcS* 基因的缺失会导致这两种微生物均不能正常生长^[22]。这表明 OmcS 也在菌毛介导的 DIET 过程中发挥重要作用。

Ueki 等研究发现, 具有不良导电性能菌毛的 *G. sulfurreducens* Aro-5 菌株和 *G. metallireducens* 之间也能形成 DIET, 表明菌毛对于 DIET 并非必要^[32]。此外, 两种无菌毛的 *Geobacter* 属也能通过 DIET 形成聚集颗粒进行生长, 其中 *G. metallireducens* 中 *Gmet.2896* 编码的细胞色素在 DIET 中发挥了关键作用^[32-33]。产电微生物模式菌希瓦氏菌和地杆菌的基因组分别含有 42 个和 111 个编码细胞色素的基因, 这些细胞色素及其他电子载体共同组成电子传递网络, 将

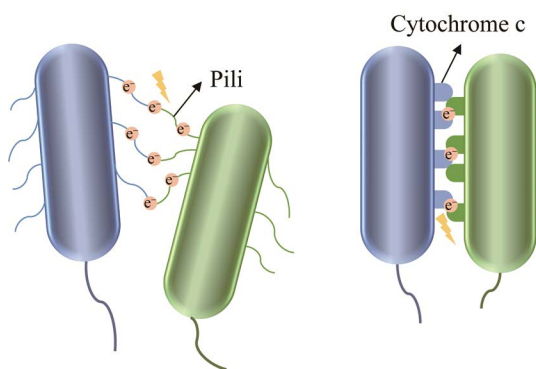


图 2 菌毛及细胞色素 c 介导的 DIET

Figure 2 DIET mediated by pili and cytochrome c.

胞内代谢产生的电子传递给胞外电子受体^[34-35]。当有合适的微生物能接受来自于产电微生物胞外细胞色素 c 传递的电子时,微生物间就有可能发生 IET^[36]。研究表明,当两种微生物间的距离足够近时,微生物的外膜多血红素细胞色素可以进行电子交换,进而完成种间的电子传递^[37]。2017年,Ha 等发现,光合细菌 *Prosthecochloris aestuarii* 与 *G. sulfurreducens* 可以通过 DIET 进行共培养^[38],而当敲除 *G. sulfurreducens* 中跨膜孔蛋白-细胞色素复合体基因(*ombB-omaB-omcB-orfS-ombC-omaC-omcC*)后,共培养体系中微生物的生长受到抑制,这表明细胞色素所组成的跨膜电子通道主导了 DIET 过程^[38]。因此,未来的研究还需要进一步探究 PilA 蛋白和细胞色素在微生物 DIET 中的角色,以及探究菌毛介导 DIET 过程的调控机制。

除了依赖自身细胞结构外,微生物之间也可以借助导电材料促使 DIET 的发生。导电材料通常具有较高的导电性,具有介导微生物间电子转移的潜力^[39-41]。根据性质不同,导电材料主要分为碳基导电材料和非碳基导电材料。其中,常见的碳基导电材料包括颗粒活性炭(*granular activated carbon*, GAC)、石墨烯、生物炭和碳布等,而非碳基导电材料包括针铁矿、磁铁矿及赤铁矿等。导电材料介导 DIET 发生的频率及电子传递的速度与其自身的尺寸及结构有关。Chen 等发现在 *G. metallireducens* 和 *G. sulfurreducens* 的共培养体系及 *G. metallireducens* 和 *M. barkeri* 的共培养体系中添加生物炭,可以显著促进甲烷的生成^[40]。Yang 等研究报道,向活性污泥中添加 GAC 可以增强产甲烷菌与共生菌之间的电子交换,加速甲烷的产生^[42]。Kato 等证实,向稻田土壤中添加非碳基导电材料赤铁矿或磁铁矿等氧化铁纳米颗粒(10–50 nm)有助于产甲烷微生物的富集,加强种间相互作用

并促进甲烷生成^[43]。此外,在一些厌氧反应堆中^[23,30],多种导电材料都被证实可以促进电子转移。导电材料促进 DIET 过程主要是因为导电材料可作为导电菌毛或者细胞色素 c 的替代物强化细胞间的接触,从而实现微生物间的电子转移。Liu 等研究报道,在含有 OmcS 缺失突变体的 *Geobacter* 共培养体系中添加磁铁矿可使 DIET 再次形成;此外,磁铁矿的存在使得野生型的 *Geobacter* 共培养体系中 *omcS* 基因的表达下降^[41]。这些研究表明磁铁矿可以替代 OmcS 促进细菌间的电子转移。

由于导电材料的吸附特性,无导电菌毛或导电性能较差的菌株可以在导电材料表面与其他微生物建立联系,从而达到互营共生。Zhang 等研究发现,添加 GAC 可以促进 *Geobacteraceae* 和 *Methanosaetaceae* 之间的电子传递,加强 DIET 效率,从而更有效地产生甲烷^[44]。导电材料对 DIET 的促进方式取决于自身的颗粒大小和结构差异(图 3)。大粒径的导电材料可以为微生物提供较大的附着面积^[39-40]。在电子转移的过程中,这些大粒径的导电材料可以当作“中转站”,接受电子供体菌传递过来的电子,并将电子传递给电子受体菌。在此过程中,两种微生物即使不发生物理接触,也可以传递电子。姜谦等研究发现,添加导电碳基材料可以促进 DIET 的形成以及促进污泥厌氧消化^[45]。然而纳米级别导电材料具有较小的表面积和粒径,其体积远小于微生物的细胞,只能附着在细胞上。Liu 等研究发现,磁铁矿纳米颗粒(20–50 nm)吸附在导电菌毛上,通过作为菌毛上 OmcS 的替代物,从而增强电子的转移能力^[41]。目前,向培养体系中添加导电材料来促进 DIET 的形成和提高电子传递效率已经被广泛地研究,但是磁铁矿等导电材料也可以作为微生物的终端电子受体,只接受电子,却不会将电子传递给其他

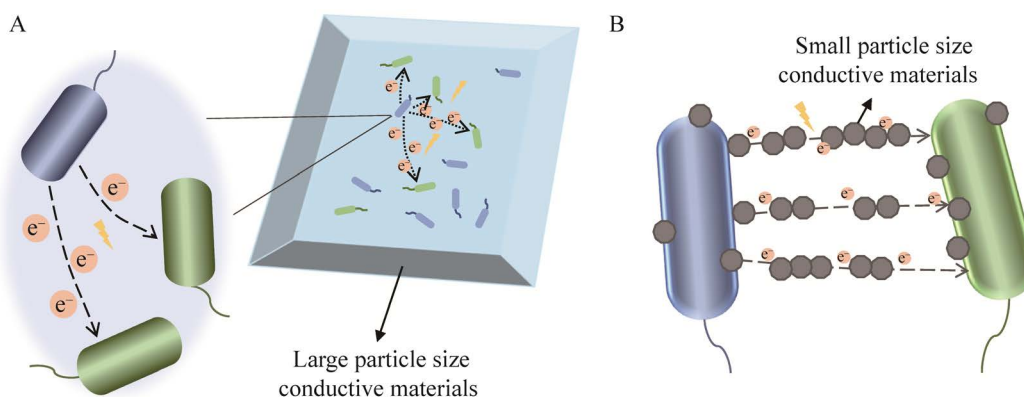


图 3 不同粒径导电材料对 DIET 形成的影响

Figure 3 Effect of different particle size conductive materials on DIET formation.

微生物^[43]。因此, 研究导电材料在 IET 中的作用时, 还需考虑导电材料对微生物自身的影响。

2 DIET 与 MIET 的比较

DIET 作为一种新发现的种间电子传递途径, 与 MIET 相比具有 3 个优势: 热力学上更利于发生、能量上损失更少及动力学上更高的电子转移速率^[8,46-47]。

在通过 MIET 进行共代谢的产甲烷群落中, 当 H_2 过度产生且消耗不足时, 体系内的 H_2 分压会持续升高, 进而导致挥发性脂肪酸的积累及厌氧系统的严重停滞^[8]。然而在 DIET 介导的产甲烷过程中, 电子是直接转移的, 并不涉及扩散性的电子载体。因此, 甲烷的产生不会受到中间产物或电子递质浓度的影响, 在热力学上会更有利于发生。在 MIET 过程中, 电子载体的产生和消耗需要进行多个酶促反应。每个反应都需要能量消耗^[8], 而通过 DIET 的电子转移则不需要通过复杂的酶促反应, 只需要一些电子转移所需的活化能即可。在 DIET 过程中, 单个细胞发生电子转移需要的吉布斯自由能为 -14.5 kJ/mol , 而在 MIET 过程中需要的吉布

斯自由能则为 -15.2 kJ/mol , 相较于 MIET, DIET 更加节省能量^[48]。此外, DIET 的电子传递效率 $[44.9 \times 10^3 \text{ e}^-/(\text{cp}\cdot\text{s})]$ 比 MIET $[5.24 \times 10^3 \text{ e}^-/(\text{cp}\cdot\text{s})]$ 更快, MIET 的电子转移速率取决于电子载体从电子供体菌向电子受体菌的扩散速度, 而电子载体的扩散又受其浓度梯度的影响^[8]。由于 DIET 直接由导电菌毛或细胞色素介导完成, 其电子转移速率主要取决于电子供体菌和电子受体菌之间的电势差^[30]。

DIET 在能量耗散、合成代谢及动力学上都占有优势, 但是其只能通过导电菌毛或细胞色素的直接接触来完成电子供体菌和电子受体菌之间的电子转移, 在空间距离上具有限制性。相较于 DIET, MIET 不需要直接接触, 能通过电子载体实现更长距离的电子转移。

3 开发更多具有种间电子传递功能的微生物

在电子传递过程中, 根据电子的传递方向及电子的产生与接受主体不同, 可分为电子供体微生物和电子受体微生物(表 1)。所谓电子供体微生物, 是指在厌氧条件下, 能够代谢有机

表 1 具有 IET 功能的微生物

Table 1 Microorganisms having IET function

Electron donor microorganism	DIET/MIET	Electron acceptor microorganism	References
<i>G. metallireducens</i>	DIET	<i>Rhodopseudomonas palustris</i>	[15]
<i>G. metallireducens</i>	MIET (AQDS)	<i>Wolinella succinogenes</i>	[18]
<i>G. metallireducens</i>	DIET	<i>G. sulfurreducens</i>	[22]
<i>G. metallireducens</i>	DIET	<i>M. barkeri</i>	[29]
<i>G. metallireducens</i>	DIET	<i>Methanotrix harundinacea</i>	[30]
<i>G. sulfurreducens</i>	DIET	<i>P. aestuarii</i>	[38]
<i>G. metallireducens</i>	DIET	<i>Methanobacterium</i> sp. YSL	[49]
<i>G. metallireducens</i>	DIET	<i>Methanosarcina horonobensis</i>	[50]
<i>G. sulfurreducens</i>	MIET (conductive minerals)	<i>Thiobacillus denitrificans</i>	[51]
<i>G. sulfurreducens</i>	Unknown	<i>Wolinella succinogenes</i>	[52]
<i>G. sulfurreducens</i>	Unknown	<i>D. desulfuricans</i>	[53]
<i>G. sulfurreducens</i>	Unknown	<i>Clostridium pasteurianum</i>	[54]
<i>Pseudomonas aeruginosa</i>	DIET/H ₂	<i>G. sulfurreducens</i>	[55]
<i>Clostridium</i> spp.	DIET	<i>M. barkeri</i>	[56]
<i>G. hydrogenophilus</i>	DIET	<i>M. barkeri</i>	[57]

物产生电子并将电子传递给其他微生物的一类微生物。目前已报道的电子供体微生物包括 *G. metallireducens* GS-15^[22,29]、*G. sulfurreducens* PCA^[38]、*G. hydrogenophilus*^[57] 和 *Anaerobic methanotrophic*^[37,58]等。这类电子供体微生物以地杆菌为主, 具有较强产电能力, 而且能够合成导电菌毛或细胞色素^[28]。然而导电菌毛或者细胞色素是形成 DIET 的必要条件^[32]。电子受体微生物通常是指在种间电子传递过程中能够接受来自外界传递过来的电子并用于自身代谢的一类微生物。目前已报道的电子受体微生物有 *G. sulfurreducens* PCA^[22]、*M. barkeri*^[29]、*Methanosarcina mazei*^[59]、*M. harundinacea*^[30]、*Methanobacterium* sp. YSL^[49]、*Thiobacillus denitrificans*^[51]、*P. aestuarii*^[38]和 *R. palustris*^[15]等。目前研究较多的电子受体微生物以产甲烷菌为主。产甲烷菌能够接受来自地杆菌传递过来的电子, 将 CO₂ 还原成甲烷。大部分产甲烷菌都不能合成导电菌毛或细胞色素, 但能通过和固体电极接触或者通过 DIET 接受电子而还原 CO₂。

除了目前已报道的具有 DIET 功能的微生物, 亟须开发更多具有 DIET 功能的微生物。

3.1 电子供体菌角度

发生 DIET 的电子供体菌主要是产电微生物, 比如 *Geobacter*。这类微生物具有将电子传递到胞外的跨膜电子传递能力。*Shewanella* 和 *Geobacter* 类似, 也属于电化学活性微生物, 并且两者的胞外电子传递途径类似, 都能将醌池内的电子通过一系列细胞色素组成的电子传递途径传递到胞外^[60]。相较于专性厌氧生长的 *Geobacter*, *Shewanella* 的兼性厌氧生长特性使其更容易培养, 因而被广泛应用于微生物胞外电子传递机制的研究。然而其是否具有种间电子传递的能力却罕有报道。近期有研究报道, 向脱氮副球菌(*Paracoccus denitrificans*)的培养体系里添加 *S. oneidensis* MR-1 能显著增强体系的脱氮效能; 作者推测 *S. oneidensis* MR-1 与 *P. denitrificans* 之间可能形成 DIET, *S. oneidensis* 可以将电子传递给 *P. denitrificans*, 从而促进体系的脱氮效能^[61]。由于 *S. oneidensis* 也具有

硝酸盐还原能力,使得该研究并不能彻底排除 *S. oneidensis* 自身对硝酸盐还原的影响。除 *Geobacter* 和 *Shewanella* 之外,很多微生物也具有跨膜胞外电子释放能力^[62]。这些电活性微生物是否也能够作为电子供体微生物来驱动种间电子传递,是个值得深入探索的问题。

3.2 电子受体菌角度

在电子受体产甲烷菌群中,目前仅发现甲烷八叠球菌 (*Methanosarcinales*) 和甲烷杆菌 (*Methanobacterium*) 能与产电微生物发生 DIET。其实还有其他大量的微生物参与了甲烷的产生,这些未被研究的微生物通常在混合菌群中不占优势且生长较慢。Kang 等也指出 *Methanomicrobia*、*Methanobacter*、*Methanolinea* 和 *Methanospirillum* 等产甲烷菌也具有发生 DIET 的潜力^[63]。在产甲烷的反应体系中添加导电材料会使整个体系的产甲烷速率提高,通过菌群分析发现多种产甲烷微生物的丰度都有所提升,研究者推测这些丰度提升的产甲烷菌都具有潜在的 DIET 功能^[64-66]。因此,这些产甲烷菌也可以作为未来 DIET 的研究对象。除了产甲烷菌, *Geobacter* 还可以与光合细菌之间形成 DIET。光合细菌 *P. aestuarii* 与 *G. sulfurreducens* 的共培养可以通过 DIET 形成共生厌氧光合作用,使得两种微生物都可以正常生长^[38]。此外,光合细菌 *R. palustris* 通过菌毛接受来自 *G. metallireducens* 的电子,从而为黑暗条件下 *R. palustris* 的 CO₂ 固定提供还原力^[15]。因此,光合细菌也可以作为未来电子受体微生物的研究对象。

3.3 其他角度

除了从电子供体菌和电子受体菌角度考虑之外,还可以从革兰氏阳性菌角度考虑。Yang 等从沉积物中分离到一株革兰氏阳性菌 *Lysinibacillus varians* GY32,进一步研究发现该菌株可以合成

纳米导线介导长距离的电子传递^[67]。Li 等从产甲烷分离物中分离到一株革兰氏阳性菌 *Clostridium*, 发现其与 *M. barkeri* 之间可能存在 DIET^[56]。其他革兰氏阳性菌是否也可以驱动 DIET 的形成,需要进一步探索。此外,群体感应也可影响种间电子传递过程。细菌通过群体感应来感应细胞密度,并调控群体行为。杨钰婷等发现群体感应可以调节电化学活性细菌关键基因的表达来影响种间电子传递^[68]。因此,群体感应也可以作为探究更多具有 DIET 功能微生物的突破口。

除了开发具有 DIET 功能的微生物,也需要开发更多具有 MIET 功能的微生物。Zhao 等发现向厌氧代谢体系中添加导电材料 GAC 可以促进甲烷产生以及化学需氧量 (chemical oxygen demand, COD) 去除,群落结构分析还发现, GAC 的添加促使了 *Synergistaceae* 和 *Cloacibacillus* 的富集^[69]。其他一些研究也发现导电材料的添加不仅会促进甲烷的产生,而且也能导致 *Levilinea*^[70]、*Methanosaeta*^[71] 和 *Euryarchaeota*^[72] 等的富集。这些微生物可以作为研究 MIET 过程的潜在对象。

目前,对于具有 IET 功能微生物的探索主要从以下 3 个方面开展:(1) 检测物种、基因、转录组或蛋白质组。研究通过 16S rRNA 基因序列分析来判断厌氧反应器中参与 IET 的微生物^[73-74]。(2) 分析电化学特性。利用电导率测量来表征生物质传导电子的能力。通过循环伏安法确定标准的胞外电子传递速率^[75]或电子传递发生的氧化还原反应类型来表征微生物和电极之间的电子转移过程^[76]。在进行循环伏安时,需要考虑电场对电子传递的可能影响。(3) 评估代谢途径。通过底物测定^[77]、碳同位素分析^[78] 及特异性抑制实验^[79]对 IET 的代谢过程进行分析检测。(4) 利用荧光原位杂交技术与纳米

级二次离子质谱和稳定同位素探测的结合来确定种间距离、细胞活性, 进而观察微生物之间的相关性是否符合 DIET 或 MIET 模型。

4 IET 的研究意义与展望

IET 的研究对碳循环、氮循环、甲烷的产生及温室气体的排放等生物地球化学循环有着非常重要的意义。微生物的共培养体系里通常需要添加乙醇、丙酸^[80]和丁酸^[81]等有机底物作为碳源以促使 IET 的发生, 进而促进小分子有机底物的降解。此外, 向共培养体系里添加石墨烯、活性炭纤维导电材料也能够改善硝基苯、4-硝基苯酚等持久性污染物的去除^[82-84]。

随着生物电化学的发展, 产电微生物及其电子传递途径已经受到广泛的关注, 进而推动了 IET 研究的发展。然而, 目前已发现的能够驱动 IET 的微生物有限, 主要局限于特定的产电微生物, 因此需要进一步地开发能够发生 IET 的微生物。本文综述了近年来关于种间电子传递方面的研究, 全面阐述了 DIET 和 MIET 两种电子传递途径及参与 IET 的微生物, 并提出探究其他具有 IET 功能的微生物。未来关于 IET 的研究可从以下方面开展: (1) 开发简单高效的电化学生物技术, 在实际环境中筛选更多能发生 IET 的电子供体和电子受体微生物。(2) 借助转录组和基因组测序等技术探究微生物胞内及种间的电子传递通路, 并对电子传递通路的关键节点进行基因敲除, 探究关键基因在电子传递中的作用。(3) 探索具有高传递效能的电子递质和优异导电能力的导电材料, 增加微生物间的电子传递效率, 以提高 IET 在环境污染修复中的应用。(4) 利用基因工程技术结合底物同位素标记等技术解析 DIET 和 MIET 共存的电子传递机制, 并对这两个途径中的电子传递效能进行量化。

REFERENCES

- [1] Phelan VV, Liu WT, Pogliano K, Dorrestein PC. Microbial metabolic exchange—the chemotype-to-phenotype link[J]. *Nature Chemical Biology*, 2012, 8(1): 26-35
- [2] Lovley DR. Syntrophy goes electric: direct interspecies electron transfer[J]. *Annual Review of Microbiology*, 2017, 71: 643-664
- [3] Lovley DR. Live wires: direct extracellular electron exchange for bioenergy and the bioremediation of energy-related contamination[J]. *Energy & Environmental Science*, 2011, 4(12): 4896-4906
- [4] Lovley DR, Ueki T, Zhang T, Malvankar NS, Shrestha PM, Flanagan KA, Aklujkar M, Butler JE, Giloteaux L, Rotaru AE, et al. *Geobacter*: the microbe electric's physiology, ecology, and practical applications[J]. *Advances in Microbial Physiology*, 2011, 59: 1-100
- [5] Omelianski W. Über die trennung der wasserstoff-und methangärung der cellulose[J]. *Zentralblatt für Bakteriologie II*, 1904, 11: 369
- [6] Omelianski W. Über methanbildung in der natur bei biologischen prozessen[J]. *Zentralblatt für Bakteriologie Parasitenkunde II*, 1906, 15: 673-687
- [7] Bryant MP, Wolin EA, Wolin MJ, Wolfe RS. *Methanobacillus omelianskii*, a symbiotic association of two species of bacteria[J]. *Archiv Für Mikrobiologie*, 1967, 59(1): 20-31
- [8] Stams AJM, Plugge CM. Electron transfer in syntrophic communities of anaerobic bacteria and archaea[J]. *Nature Reviews Microbiology*, 2009, 7(8): 568-577
- [9] Stams AJM, De Bok FAM, Plugge CM, Van Eekert MHA, Dolfing J, Schraa G. Exocellular electron transfer in anaerobic microbial communities[J]. *Environmental Microbiology*, 2006, 8(3): 371-382
- [10] 张杰, 陆雅海. 互营氧化产甲烷微生物种间电子传递研究进展[J]. *微生物学通报*, 2015, 42(5): 920-927
Zhang J, Lu YH. A review of interspecies electron transfer in syntrophic-methanogenic associations[J]. *Microbiology China*, 2015, 42(5): 920-927 (in Chinese)
- [11] Thiele JH, Zeikus JG. Control of interspecies electron flow during anaerobic digestion: significance of formate transfer versus hydrogen transfer during syntrophic methanogenesis in flocs[J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 1988, 54(1): 20-29
- [12] Rotaru AE, Shrestha PM, Liu FH, Ueki T, Nevin K, Summers ZM, Lovley DR. Interspecies electron transfer via hydrogen and formate rather than direct electrical connections in cocultures of *Pelobacter*

- carbinolicus* and *Geobacter sulfurreducens*[J]. Applied and Environmental Microbiology, 2012, 78(21): 7645-7651
- [13] De Bok FAM, Plugge CM, Stams AJM. Interspecies electron transfer in methanogenic propionate degrading consortia[J]. Water Research, 2004, 38(6): 1368-1375
- [14] Huang LY, Liu X, Ye Y, Chen M, Zhou SG. Evidence for the coexistence of direct and riboflavin-mediated interspecies electron transfer in *Geobacter* co-culture[J]. Environmental Microbiology, 2020, 22(1): 243-254
- [15] Liu X, Huang LY, Rensing C, Ye J, Neelson KH, Zhou SG. Syntrophic interspecies electron transfer drives carbon fixation and growth by *Rhodospseudomonas palustris* under dark, anoxic conditions[J]. Science Advances, 2021, 7(27): eabh1852
- [16] Wang YB, Wu CY, Wang XJ, Zhou SG. The role of humic substances in the anaerobic reductive dechlorination of 2,4-dichlorophenoxyacetic acid by *Comamonas koreensis* strain CY01[J]. Journal of Hazardous Materials, 2009, 164(2/3): 941-947
- [17] Lovley DR, Coates JD, Blunt-Harris EL, Phillips EJP, Woodward JC. Humic substances as electron acceptors for microbial respiration[J]. Nature, 1996, 382(6590): 445-448
- [18] Lovley DR, Fraga JL, Coates JD, Blunt-Harris EL. Humics as an electron donor for anaerobic respiration[J]. Environmental Microbiology, 1999, 1(1): 89-98
- [19] Li HJ, Chang JL, Liu PF, Fu L, Ding DW, Lu YH. Direct interspecies electron transfer accelerates syntrophic oxidation of butyrate in paddy soil enrichments[J]. Environmental Microbiology, 2015, 17(5): 1533-1547
- [20] Cai GJ, Zhu GF, Zhou MD, Lü N, Wang RM, Li CX, Li JJ, Pan XF. Syntrophic butyrate-oxidizing methanogenesis promoted by anthraquinone-2-sulfonate and cysteine: distinct tendencies towards the enrichment of methanogens and syntrophic fatty-acid oxidizing bacteria[J]. Bioresource Technology, 2021, 332: 125074
- [21] Liu FH, Rotaru AE, Shrestha PM, Malvankar NS, Nevin KP, Lovley DR. Promoting direct interspecies electron transfer with activated carbon[J]. Energy & Environmental Science, 2012, 5(10): 8982
- [22] Summers ZM, Fogarty HE, Leang C, Franks AE, Malvankar NS, Lovley DR. Direct exchange of electrons within aggregates of an evolved syntrophic coculture of anaerobic bacteria[J]. Science, 2010, 330(6009): 1413-1415
- [23] Morita M, Malvankar NS, Franks AE, Summers ZM, Giloteaux L, Rotaru AE, Rotaru C, Lovley DR. Potential for direct interspecies electron transfer in methanogenic wastewater digester aggregates[J]. mBio, 2011, 2(4): e00159-e00111
- [24] Reguera G, McCarthy KD, Mehta T, Nicoll JS, Tuominen MT, Lovley DR. Extracellular electron transfer via microbial nanowires[J]. Nature, 2005, 435(7045): 1098-1101
- [25] Tan Y, Adhikari RY, Malvankar NS, Ward JE, Woodard TL, Nevin KP, Lovley DR. Expressing the *Geobacter metallireducens* Pila in *Geobacter sulfurreducens* yields pili with exceptional conductivity[J]. mBio, 2017, 8(1): e02203-e02216
- [26] 刘星, 周顺桂. 微生物纳米导线的导电机制及功能[J]. 微生物学报, 2020, 60(9): 2039-2061
- Liu X, Zhou SG. Electrical conductivity and application of microbial nanowires[J]. Acta Microbiologica Sinica, 2020, 60(9): 2039-2061 (in Chinese)
- [27] Lovley DR. Electrically conductive pili: biological function and potential applications in electronics[J]. Current Opinion in Electrochemistry, 2017, 4(1): 190-198
- [28] Malvankar NS, Vargas M, Nevin KP, Franks AE, Leang C, Kim BC, Inoue K, Mester T, Covalla SF, Johnson JP, et al. Tunable metallic-like conductivity in microbial nanowire networks[J]. Nature Nanotechnology, 2011, 6(9): 573-579
- [29] Rotaru AE, Shrestha PM, Liu FH, Markovaite B, Chen SS, Nevin KP, Lovley DR. Direct interspecies electron transfer between *Geobacter metallireducens* and *Methanosarcina barkeri*[J]. Applied and Environmental Microbiology, 2014, 80(15): 4599-4605
- [30] Rotaru AE, Shrestha PM, Liu FH, Shrestha M, Shrestha D, Embree M, Zengler K, Wardman C, Nevin KP, Lovley DR. A new model for electron flow during anaerobic digestion: direct interspecies electron transfer to *Methanosaeta* for the reduction of carbon dioxide to methane[J]. Energy & Environmental Science, 2014, 7(1): 408-415
- [31] Wang FB, Gu YQ, O'Brien JP, Yi SM, Yalcin SE, Srikanth V, Shen C, Vu D, Ing NL, Hochbaum AI, et al. Structure of microbial nanowires reveals stacked hemes that transport electrons over micrometers[J]. Cell, 2019, 177(2): 361-369.e10
- [32] Ueki T, Nevin KP, Rotaru AE, Wang LY, Ward JE, Woodard TL, Lovley DR. *Geobacter* strains expressing

- poorly conductive pili reveal constraints on direct interspecies electron transfer mechanisms[J]. *mBio*, 2018, 9(4): e01273-e01218
- [33] Liu X, Zhuo SY, Rensing C, Zhou SG. Syntrophic growth with direct interspecies electron transfer between pili-free *Geobacter* species[J]. *The ISME Journal*, 2018, 12(9): 2142-2151
- [34] Sheng AX, Liu F, Shi L, Liu J. Aggregation kinetics of hematite particles in the presence of outer membrane cytochrome OmcA of *Shewanella oneidensis* MR-1[J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, 50(20): 11016-11024
- [35] Richter H, Nevin KP, Jia HF, Lowy DA, Lovley DR, Tender LM. Cyclic voltammetry of biofilms of wild type and mutant *Geobacter sulfurreducens* on fuel cell anodes indicates possible roles of OmcB, OmcZ, type IV pili, and protons in extracellular electron transfer[J]. *Energy & Environmental Science*, 2009, 2(5): 506
- [36] Fan YY, Tang Q, Li FH, Sun H, Min D, Wu JH, Li Y, Li WW, Yu HQ. Enhanced bioreduction of radionuclides by driving microbial extracellular electron pumping with an engineered CRISPR platform[J]. *Environmental Science & Technology*, 2021, 55(17): 11997-12008
- [37] McGlynn SE, Chadwick GL, Kempes CP, Orphan VJ. Single cell activity reveals direct electron transfer in methanotrophic consortia[J]. *Nature*, 2015, 526(7574): 531-535
- [38] Ha PT, Lindemann SR, Shi L, Dohnalkova AC, Fredrickson JK, Madigan MT, Beyenal H. Syntrophic anaerobic photosynthesis via direct interspecies electron transfer[J]. *Nature Communications*, 2017, 8: 13924
- [39] Chen SS, Rotaru AE, Liu FH, Philips J, Woodard TL, Nevin KP, Lovley DR. Carbon cloth stimulates direct interspecies electron transfer in syntrophic co-cultures[J]. *Bioresource Technology*, 2014, 173: 82-86
- [40] Chen SS, Rotaru AE, Shrestha PM, Malvankar NS, Liu FH, Fan W, Nevin KP, Lovley DR. Promoting interspecies electron transfer with biochar[J]. *Scientific Reports*, 2014, 4: 5019
- [41] Liu FH, Rotaru AE, Shrestha PM, Malvankar NS, Nevin KP, Lovley DR. Magnetite compensates for the lack of a pilin-associated c-type cytochrome in extracellular electron exchange[J]. *Environmental Microbiology*, 2015, 17(3): 648-655
- [42] Yang YF, Zhang YB, Li ZY, Zhao ZQ, Quan X, Zhao ZS. Adding granular activated carbon into anaerobic sludge digestion to promote methane production and sludge decomposition[J]. *Journal of Cleaner Production*, 2017, 149: 1101-1108
- [43] Kato S, Hashimoto K, Watanabe K. Methanogenesis facilitated by electric syntrophy via (semi) conductive iron-oxide minerals[J]. *Environmental Microbiology*, 2012, 14(7): 1646-1654
- [44] Zhang S, Chang JL, Lin C, Pan YR, Cui KP, Zhang XY, Liang P, Huang X. Enhancement of methanogenesis via direct interspecies electron transfer between *Geobacteraceae* and *Methanosaetaceae* conducted by granular activated carbon[J]. *Bioresource Technology*, 2017, 245: 132-137
- [45] 姜谦, 张衍, 刘和. 导电碳颗粒促进污泥厌氧消化及微生物种间电子传递的研究进展[J]. *微生物学通报*, 2019, 46(8): 1998-2008
- Jiang Q, Zhang Y, Liu H. A review on enhancement of sludge anaerobic digestion and microbial inter species electron transfer induced by conductive carbon particles[J]. *Microbiology China*, 2019, 46(8): 1998-2008 (in Chinese)
- [46] Cheng QW, Call DF. Hardwiring microbes via direct interspecies electron transfer: mechanisms and applications[J]. *Environmental Science Processes & Impacts*, 2016, 18(8): 968-980
- [47] Cruz Viggì C, Rossetti S, Fazi S, Paiano P, Majone M, Aulenta F. Magnetite particles triggering a faster and more robust syntrophic pathway of methanogenic propionate degradation[J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, 48(13): 7536-7543
- [48] Storck T, Virdis B, Batstone DJ. Modelling extracellular limitations for mediated versus direct interspecies electron transfer[J]. *The ISME Journal*, 2016, 10(3): 621-631
- [49] Zheng SL, Liu FH, Wang BC, Zhang YC, Lovley DR. *Methanobacterium* capable of direct interspecies electron transfer[J]. *Environmental Science & Technology*, 2020, 54(23): 15347-15354
- [50] Yee MO, Snoeyenbos-West OL, Thamdrup B, Ottosen LDM, Rotaru AE. Extracellular electron uptake by two *Methanosarcina* species[J]. *Frontiers in Energy Research*, 2019, 7: 29
- [51] Kato S, Hashimoto K, Watanabe K. Microbial interspecies electron transfer via electric currents through conductive minerals[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2012, 109(25): 10042-10046

- [52] Galushko AS, Schink B. Oxidation of acetate through reactions of the citric acid cycle by *Geobacter sulfurreducens* in pure culture and in syntrophic coculture[J]. Archives of Microbiology, 2000, 174(5): 314-321
- [53] Cord-Ruwisch R, Lovley DR, Schink B. Growth of *geobacter sulfurreducens* with acetate in syntrophic cooperation with hydrogen-oxidizing anaerobic partners[J]. Applied and Environmental Microbiology, 1998, 64(6): 2232-2236
- [54] Moscoviz R, De Fouchécour F, Santa-Catalina G, Bernet N, Trably E. Cooperative growth of *Geobacter sulfurreducens* and *Clostridium pasteurianum* with subsequent metabolic shift in glycerol fermentation[J]. Scientific Reports, 2017, 7: 44334
- [55] Semene L, Laloo AE, Schulz BL, Vergara IA, Bond PL, Franks AE. Deciphering the electric code of *Geobacter sulfurreducens* in cocultures with *Pseudomonas aeruginosa* via SWATH-MS proteomics[J]. Bioelectrochemistry, 2018, 119: 150-160
- [56] 李莹, 郑世玲, 张洪霞, 王炳臣, 王欧美, 刘芳华. 产甲烷分离物中 *Clostridium* spp.与 *Methanosarcina barkeri* 潜在的种间直接电子传递[J]. 微生物学通报, 2017, 44(3): 591-600
- Li Y, Zheng SL, Zhang HX, Wang BC, Wang OM, Liu FH. Potential direct inter species electron transfer (DIET) from *Clostridium* spp. to *Methanosarcina barkeri* in methanogenic isolates[J]. Microbiology China, 2017, 44(3): 591-600 (in Chinese)
- [57] Rotaru AE, Woodard TL, Nevin KP, Lovley DR. Link between capacity for current production and syntrophic growth in *Geobacter* species[J]. Frontiers in Microbiology, 2015, 6: 744
- [58] Wegener G, Krukenberg V, Riedel D, Tegetmeyer HE, Boetius A. Intercellular wiring enables electron transfer between methanotrophic archaea and bacteria[J]. Nature, 2015, 526(7574): 587-590
- [59] Zheng SL, Zhang HX, Li Y, Zhang H, Wang OM, Zhang J, Liu FH. Co-occurrence of *Methanosarcina mazei* and *Geobacteraceae* in an iron (III)-reducing enrichment culture[J]. Frontiers in Microbiology, 2015, 6: 941
- [60] Jeuken LJC, Hards K, Nakatani Y. Extracellular electron transfer: respiratory or nutrient homeostasis?[J]. Journal of Bacteriology, 2020, 202(7): e00029-e00020
- [61] Jiang M, Zheng X, Chen YG. Enhancement of denitrification performance with reduction of nitrite accumulation and N₂O emission by *Shewanella oneidensis* MR-1 in microbial denitrifying process[J]. Water Research, 2020, 169: 115242
- [62] Logan BE, Rossi R, Ragab A, Saikaly PE. Electroactive microorganisms in bioelectrochemical systems[J]. Nature Reviews Microbiology, 2019, 17(5): 307-319
- [63] Kang HJ, Lee SH, Lim TG, Park JH, Kim B, Buffière P, Park HD. Recent advances in methanogenesis through direct interspecies electron transfer via conductive materials: a molecular microbiological perspective[J]. Bioresource Technology, 2021, 322: 124587
- [64] Ren S, Usman M, Tsang DCW, O-Thong S, Angelidaki I, Zhu XD, Zhang SC, Luo G. Hydrochar-facilitated anaerobic digestion: evidence for direct interspecies electron transfer mediated through surface oxygen-containing functional groups[J]. Environmental Science & Technology, 2020, 54(9): 5755-5766
- [65] Jiang Q, Chen YD, Yu SK, Zhu RL, Zhong C, Zou HJ, Gu L, He Q. Effects of citrus peel biochar on anaerobic co-digestion of food waste and sewage sludge and its direct interspecies electron transfer pathway study[J]. Chemical Engineering Journal, 2020, 398: 125643
- [66] Wang GJ, Gao X, Li Q, Zhao HX, Liu YZ, Wang XC, Chen R. Redox-based electron exchange capacity of biowaste-derived biochar accelerates syntrophic phenol oxidation for methanogenesis via direct interspecies electron transfer[J]. Journal of Hazardous Materials, 2020, 390: 121726
- [67] Yang YG, Wang ZG, Gan CF, Klausen LH, Bonnè R, Kong GN, Luo DZ, Meert M, Zhu CJ, Sun GP, et al. Long-distance electron transfer in a filamentous Gram-positive bacterium[J]. Nature Communications, 2021, 12: 1709
- [68] 杨钰婷, 陈瑾, 陈姗姗, 周顺桂. 群感效应对电活性微生物胞外电子传递的影响[J]. 微生物学报, 2020, 60(11): 2399-2411
- Yang YT, Chen J, Chen SS, Zhou SG. Advances in understanding the impact of quorum sensing on extracellular electron transfer of electroactive microorganisms[J]. Acta Microbiologica Sinica, 2020, 60(11): 2399-2411 (in Chinese)
- [69] Zhao ZQ, Li Y, Quan X, Zhang YB. Towards engineering application: potential mechanism for enhancing anaerobic digestion of complex organic waste with different types of conductive materials[J]. Water Research, 2017, 115: 266-277
- [70] Xu YG, Wang MW, Yu QL, Zhang YB. Enhancing

- methanogenesis from anaerobic digestion of propionate with addition of Fe oxides supported on conductive carbon cloth[J]. *Bioresource Technology*, 2020, 302: 122796
- [71] Zhang M, Wang YC. Effects of Fe-Mn-modified biochar addition on anaerobic digestion of sewage sludge: biomethane production, heavy metal speciation and performance stability[J]. *Bioresource Technology*, 2020, 313: 123695
- [72] Chen SJ, Tao Z, Yao FB, Wu B, He L, Hou KJ, Pi ZJ, Fu J, Yin HY, Huang Q, et al. Enhanced anaerobic co-digestion of waste activated sludge and food waste by sulfidated microscale zerovalent iron: insights in direct interspecies electron transfer mechanism[J]. *Bioresource Technology*, 2020, 316: 123901
- [73] Dang Y, Holmes DE, Zhao ZQ, Woodard TL, Zhang YB, Sun DZ, Wang LY, Nevin KP, Lovley DR. Enhancing anaerobic digestion of complex organic waste with carbon-based conductive materials[J]. *Bioresource Technology*, 2016, 220: 516-522
- [74] Zhao ZS, Li Y, Yu QL, Zhang YB. Ferroferric oxide triggered possible direct interspecies electron transfer between *Syntrophomonas* and *Methanosaeta* to enhance waste activated sludge anaerobic digestion[J]. *Bioresource Technology*, 2018, 250: 79-85
- [75] Yuan Y, Zhou SG, Xu N, Zhuang L. Electrochemical characterization of anodic biofilms enriched with glucose and acetate in single-chamber microbial fuel cells[J]. *Colloids and Surfaces B: Biointerfaces*, 2011, 82(2): 641-646
- [76] Beese-Vasbender PF, Grote JP, Garrelfs J, Stratmann M, Mayrhofer KJJ. Selective microbial electrosynthesis of methane by a pure culture of a marine lithoautotrophic archaeon[J]. *Bioelectrochemistry*, 2015, 102: 50-55
- [77] Seib MD, Berg KJ, Zitomer DH. Influent wastewater microbiota and temperature influence anaerobic membrane bioreactor microbial community[J]. *Bioresource Technology*, 2016, 216: 446-452
- [78] Rotaru AE, Calabrese F, Stryhanyuk H, Musat F, Shrestha PM, Weber HS, Snoeyenbos-West OLO, Hall POJ, Richnow HH, Musat N, et al. Conductive particles enable syntrophic acetate oxidation between *Geobacter* and *Methanosarcina* from coastal sediments[J]. *mBio*, 2018, 9(3): e00226-e00218
- [79] Wang GJ, Li Q, Gao X, Wang XC. Synergetic promotion of syntrophic methane production from anaerobic digestion of complex organic wastes by biochar: performance and associated mechanisms[J]. *Bioresource Technology*, 2018, 250: 812-820
- [80] Jing YH, Wan JJ, Angelidaki I, Zhang SC, Luo G. iTRAQ quantitative proteomic analysis reveals the pathways for methanation of propionate facilitated by magnetite[J]. *Water Research*, 2017, 108: 212-221
- [81] Barua S, Zakaria BS, Dhar BR. Enhanced methanogenic co-degradation of propionate and butyrate by anaerobic microbiome enriched on conductive carbon fibers[J]. *Bioresource Technology*, 2018, 266: 259-266
- [82] Wang J, Wang D, Liu GF, Jin RF, Lu H. Enhanced nitrobenzene biotransformation by graphene-anaerobic sludge composite[J]. *Journal of Chemical Technology & Biotechnology*, 2014, 89(5): 750-755
- [83] Li L, Liu Q, Wang YX, Zhao HQ, He CS, Yang HY, Gong L, Mu Y, Yu HQ. Facilitated biological reduction of nitroaromatic compounds by reduced graphene oxide and the role of its surface characteristics[J]. *Scientific Reports*, 2016, 6: 30082
- [84] Amezcua-Garcia HJ, Rangel-Mendez JR, Cervantes FJ, Razo-Flores E. Activated carbon fibers with redox-active functionalities improves the continuous anaerobic biotransformation of 4-nitrophenol[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2016, 286: 208-215