

葡萄糖和硝基苯为混合燃料时 MFC 的产电特性研究

李婕¹, 刘广立^{1*}, 张仁铎¹, 罗勇¹, 张翠萍¹, 李明臣¹, 全向春²

(1. 中山大学环境科学与工程学院, 广州 510275; 2. 北京师范大学环境学院, 北京 100875)

摘要:通过构建双极室微生物燃料电池(microbial fuel cell, MFC),以铁氰化钾溶液为阴极电子受体,以硝基苯(nitrobenzene, NB)和葡萄糖为混合燃料,研究 MFC 的产电特性和 NB 的降解情况.结果表明,在外阻为 1000 Ω 的条件下,随着 NB 初始浓度的增加,双极室 MFC 的产电特性明显受到抑制.当葡萄糖浓度为 1 000 mg/L, NB 初始浓度分别为 0、50、150、250 mg/L 时, MFC 的运行周期逐渐缩短,分别为 55.7、51.6、45.9、32.2 h;最大输出电压分别为 670、597、507、489 mV;最大体积功率密度分别为 28.57、20.42、9.29、8.47 W/m³;电荷量分别为 65.10、43.50、35.48、30.32 C. MFC 利用 NB 和葡萄糖为混合燃料,可以在稳定地输出电能的同时实现有机物高效降解, MFC 对 NB 去除率高达 100%,对 COD 的去除率达到 87%~98%.但以 250 mg/L NB 为单一燃料时, MFC 无明显产电现象. DGGE 图谱表明 NB 的加入改变了 MFC 阳极电极上微生物的群落结构.

关键词:硝基苯;微生物燃料电池;产电特性;降解;混合燃料

中图分类号:X382 文献标识码:A 文章编号:0250-3301(2010)11-2811-07

Power Generation from Glucose and Nitrobenzene Degradation Using the Microbial Fuel Cell

LI Jie¹, LIU Guang-li¹, ZHANG Ren-duo¹, LUO Yong¹, ZHANG Cui-ping¹, LI Ming-chen¹, QUAN Xiang-chun²

(1. School of Environmental Science and Engineering, Sun Yat-sen University, Guangzhou 510275, China; 2. School of Environment, Beijing Normal University, Beijing 100875, China)

Abstract: By constructing a dual-chamber microbial fuel cell (MFC), experiments were carried out using an initial glucose concentration of 1 000 mg/L with different nitrobenzene (NB) concentrations (0, 50, 150 and 250 mg/L) as the MFC's fuel. Results showed that with an external resistance of 1 000 Ω , the initial glucose concentration of 1 000 mg/L and the initial NB concentrations of 0, 50, 150, 250 mg/L, the operation periods were 55.7, 51.6, 45.9 and 32.2 h, respectively, the maximum voltage outputs were 670, 597, 507, and 489 mV, the maximum volumetric power densities were 28.57, 20.42, 9.29, and 8.47 W/m³, and the electric charges were 65.10, 43.50, 35.48, and 30.32 C. The MFC could use the NB and glucose mixtures as fuel and generated stable electricity outputs. The degradation rates of NB in the MFC in all cases reached up to 100% and COD removals in the MFC were 87% - 98%. However, the electricity generation was negligible when using 250 mg/L NB as the sole fuel. Denaturing gradient gel electrophoresis (DGGE) profiles demonstrated that the presence of NB resulted in changes of the dominant bacterial species on the electrodes.

Key words: nitrobenzene (NB); microbial fuel cell (MFC); power generation performance; degradation; mixture fuels

硝基苯(nitrobenzene, NB)是一种典型的硝基芳香族化合物,具有高毒性、持久性的特点,已被列入环境优先污染物的行列.含 NB 废水主要来源于制药、制苯胺、杀虫剂、染料等化工行业,多数情况下均属于含盐度高、成分复杂、毒性大的难降解有机废水.利用微生物的活性来降解 NB 污染物成本较低、无二次污染,且微生物又具有较强的可变性及适应性,是处理 NB 污染物的理想方法^[1].关于 NB 的微生物降解,国内外已经进行了大量的研究,目前报道的 NB 微生物降解途径主要包括:2 条氧化途径和一条部分还原途径^[2,3],其中部分还原途径是更加常见的.然而, NB 的微生物还原技术常常需要加入易生物降解的有机物^[4].

微生物燃料电池(microbial fuel cell, MFC)是利用电化活性菌^[5]为催化剂将化学能转化为电能的一种装置.近年来,利用 MFC 技术降解多元物质并同步产电的报道越来越多,包括碳水化合物(葡萄糖、乙酸、纤维素)^[6-8]、难降解有机物(苯酚、喹啉、吡啶、活性艳红)^[9-12]、实际废水(养猪废水、食品加工废水、造纸厂废水)^[13-15]等.然而,利用不同的物质作为底物, MFC 的产电性能差别很大.

收稿日期:2010-01-28;修订日期:2010-03-30

基金项目:国家自然科学基金项目(50608070,50779080);广东省教育厅产学研结合项目(2009B090300324)

作者简介:李婕(1987~),女,硕士研究生,主要研究方向为水土环境修复、微生物燃料电池在污水处理中的应用, E-mail: muzijie081@163.com

* 通讯联系人, E-mail: liugl@mail.sysu.edu.cn

Catal 等^[16]发现在没有其他电子供体的时候,木质素水解产物不能直接作为 MFC 的底物实现产电,甚至抑制 MFC 产电性能. Sukkasem 等^[17]调查了硝酸盐对单极室空气阴极 MFC 产电性能的影响,实验结果表明在较高外电阻(270 ~ 1 000 Ω)的情况下, MFC 的最大输出电压不受硝酸盐的影响;但当外电阻为 150 Ω 时,硝酸盐的加入严重地影响了 MFC 的最大输出电压. 本研究通过构建双极室 MFC,探讨了 NB 对 MFC 产电特性的影响以及 NB 在 MFC 中的降解情况,并对不同底物的 MFC 阳极微生物群落结构进行了分析.

1 材料与方法

1.1 MFC 装置构造

本实验构建了循环双极室型 MFC,阴阳两室之间用质子交换膜(Nafion 212, Dupont Co., USA)隔开,且均连接 250 mL 的棕色瓶作为阴阳极槽,阴极液和阳极液经恒流泵(上海琪特分析仪器有限公司, BT1-200)在阴阳极室和阴阳极槽内循环流动,流速为 20 mL/min. MFC 采用碳毛刷电极,插入电极后阴阳极室的有效体积均为 27.0 mL. 阴极采用 50 mmol/L 铁氰化钾作为电子受体,阳极通 N_2 以造成无氧条件,外电路通过导线与插入阴阳两室的碳毛刷电极相连接,并连接外电阻为 1 000 Ω 而构成回路. MFC 反应器保持在恒温(30 $^{\circ}\text{C} \pm 1^{\circ}\text{C}$)条件下运行.

1.2 MFC 的微生物接种与运行

菌源取自广州市猎德污水处理厂 A^2/O 工艺中好氧污泥和厌氧污泥混合上清液(1:1 体积混合). 培养阶段,阳极液由 175 mL 营养液和 25 mL 混合污泥上清液组成,其中营养液配比^[18]为: 1 000 mg/L 葡萄糖、4.089 6 g/L Na_2HPO_4 、2.544 g/L NaH_2PO_4 、0.31 g/L NH_4Cl 、0.13 g/L KCl 、12.5 mL/L 微量元素和 12.5 mL/L 维生素溶液,运行之前阳极瓶通 10 min N_2 以达到无氧条件. MFC 稳定运行几个周期后,将燃料更换为 NB 和葡萄糖的混合溶液,阳极液 + 积仍保持为 200 mL. 此后葡萄糖浓度保持 1 000 mg/L, NB 浓度依次换为 0、50、150、250 mg/L. 对于每一种配比的混合液作为燃料, MFC 运行 3 ~ 4 个周期,当输出电压低于 100 mV 时,更换新基质. 定期采样测定 NB、葡萄糖和 COD.

1.3 化学、电化学分析计算方法

MFC 的输出电压由数据采集系统(PCI1713 型, 深圳研华公司)采集并输出至计算机,采集频率为

每 30 s 一次. 按稳态放电法测定极化曲线和功率密度曲线^[19]. 体积功率密度 P_V 、电荷量 Q 、库仑效率 CE 计算方法见文献[20].

NB 的浓度采用 HPLC 分析(Agilien1100, USA),流动相为乙腈:水 = 7:3 (体积比),流速 1.0 mL/min,进样量为 10 μL ,色谱柱为 TC-C18 反相柱(ODS, 250 mm $\times$ 4.6 mm, 5 μm),柱温 25 $^{\circ}\text{C}$,检测波长为 242 nm. 葡萄糖的测定采用蒽酮浓硫酸比色法^[21]; COD 为标准分析方法^[22].

1.4 微生物群落分析

采用试剂盒 FastDNA[®] SPIN Kit for Soil (MP Biomedicals, Santa Ana, CA)提取 MFC 阳极电极上微生物的基因组 DNA, 然后进行 PCR 扩增.

采用对大多数细菌和古细菌 16S rDNA 基因 V3 区都具有特异性的引物对 V3-2 (5'-ATTACCGCGGCTGCTGG-3') 和 V3-3 (5'-CGCCCGC CGCGCGGCGGGCGGGCGGGGCGGGGGCACGGGGGGCCT ACGGGAGGCAGCAG-3') (Invitrogen Biotechnology Co., Ltd)在 25 μL 的反应体系进行 PCR 扩增. 25 μL 反应体系组成为: 2 μL 模板, 2.5 μL 10 $\times$ PCR Buffer, 2.0 μL dNTP mixture, 0.5 μL 每种引物, 0.13 μL Taq 酶, 其余用无菌超纯水补足. PCR 扩增程序如下: 94 $^{\circ}\text{C}$ 预变性 5 min; 接着 10 个循环, 每个循环包括 94 $^{\circ}\text{C}$ 预变性 30 s, 61 $^{\circ}\text{C}$ 退火 30 s (每个循环退火温度降低 0.5 $^{\circ}\text{C}$), 和 72 $^{\circ}\text{C}$ 延伸 1 min; 然后接着 25 个循环, 每个循环包括 94 $^{\circ}\text{C}$ 预变性 30 s, 55 $^{\circ}\text{C}$ 退火 30 s, 和 72 $^{\circ}\text{C}$ 最终延伸 1 min.

采用 C. B. S. SCIENTIFIC DGGE-2001 (Del Mar, CA, USA) 系统, 凝胶浓度为 8%, 变性梯度为 40% ~ 60%, 温度 60 $^{\circ}\text{C}$, 电压 200 V, 在 1 $\times$ TAE 中电泳 5 h, 完毕后将凝胶进行 EB 染色, 并将图像在观测仪中拍照存档.

挑取 DGGE 图谱中的目的条带溶于 20 μL TE 溶液中, 12 000 r/min 离心 2 min, 然后 50 $^{\circ}\text{C}$ 水浴 30 min. 以此为模板, 以 V3-1 (5'-CCTACGGGAGGCAGCAG-3') 和 V3-2 (5'-ATTACCGCGGCTGCTGG-3') 为引物进行 PCR 扩增, 其它扩增程序同上. 对 PCR 产物进行测序, 并将测序结果提交至 GenBank 数据库, 采用 BLAST 将目标序列和基因库中所含序列进行比对, 得到同源性最近的序列.

2 结果与分析

2.1 以硝基苯和葡萄糖为混合燃料时 MFC 的产电

特性

当以1 000 mg/L 葡萄糖为燃料时,MFC 的最大输出电压为 670 mV,运行周期约为 55.7 h. 保持葡萄糖初始浓度为1 000 mg/L,NB 与葡萄糖浓度之比分别为 1:20、3:20、5:20 时,MFC 的产电曲线见图 1 所示. MFC 连续运行 6 个周期共约 262.5 h,不同 NB 浓度的条件下连续运行 2 个周期. 由图 1 可以看出,NB 和葡萄糖共基质的 MFC 成功运行,但随着 NB 浓度的增加,MFC 的产电性能下降,表现为最大输出电压的减小和运行周期的缩短. 当 NB 初始浓度为 50 mg/L 时,MFC 最大输出电压为 597 mV,运行周期为 51.6 h;当 NB 初始浓度为 150 mg/L 时,

MFC 最大输出电压为 507 mV,运行周期为 45.9 h;当 NB 初始浓度为 250 mg/L 时,MFC 最大输出电压为 489 mV,运行周期为 32.2 h;然而以 1000 mg/L 葡萄糖为单一燃料时,MFC 的最大输出电压为 670 mV,运行周期约为 55.7 h. 这可能是由于 NB 含有强吸电子基团硝基基团的缘故,在厌氧条件下 NB 发生部分还原途径,与电极竞争微生物利用葡萄糖产生的电子,从而影响 MFC 的输出电压. 在本实验条件下,当以 250 mg/L NB 作为单一燃料时,MFC 的输出电压很低也不太稳定,最高电压约 70~80 mV,产电现象不明显,说明 NB 这类含吸电子基团的物质不适合单独作为 MFC 的燃料.

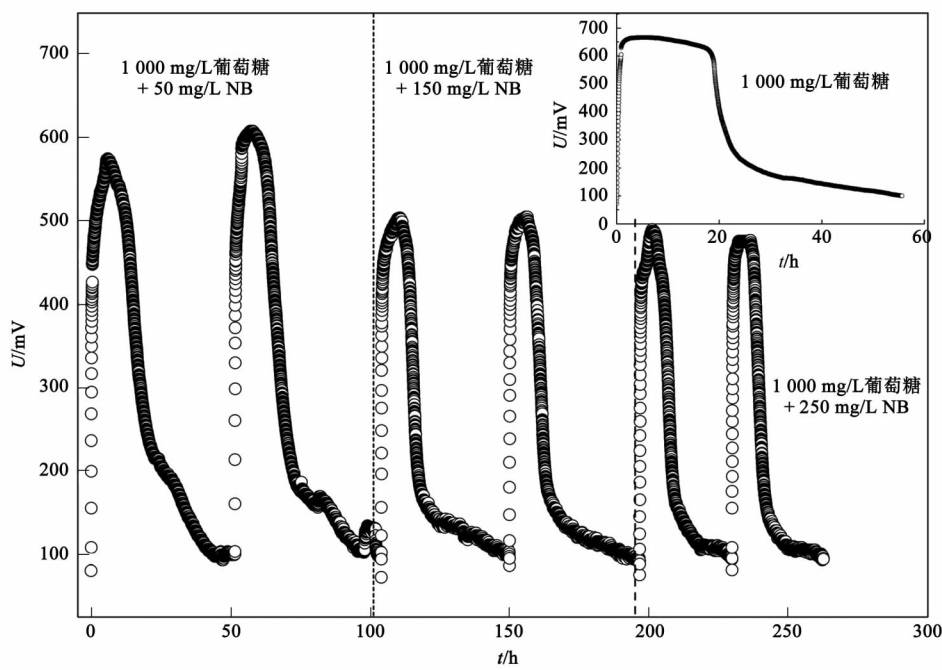


图 1 以 NB 和葡萄糖为混合燃料时 MFC 的连续产电特性曲线
Fig. 1 Continuous electricity generation of the MFCs using NB-glucose mixtures as fuel

2.2 以硝基苯和葡萄糖为混合燃料时 MFC 的功率密度和内阻

MFC 运行稳定 2 个周期后,对其进行稳态放电实验(不同 NB 浓度条件下均如此). 将体积功率密度 P_v 和电压 U 分别对电流密度 I 作图,得到 MFC 对外输出功率密度曲线和极化曲线,如图 2 所示.

图 2 可以看出,随之 NB 浓度的增加,MFC 最大输出功率密度和电流密度范围快速地降低. 以1 000 mg/L 葡萄糖作为单一燃料时,MFC 最大体积功率密度为 28.57 W/m³;但当 NB 浓度从 50 mg/L 增加到 250 mg/L 时,相应地,最大体积功率密度从 20.42 W/m³减小到 8.47 W/m³,电流密度范围也从

2.66~126.85 A/m³ 缩小到 2.67~33.33 A/m³. 根据图 2 中的极化曲线可以计算出 MFC 的内阻,分别为 400 Ω(0 mg/L NB)、600 Ω(50 mg/L NB)、950 Ω(150 mg/L NB)、1 000 Ω(250 mg/L NB),随着 NB 浓度的增加 MFC 内阻增大,这可能是由于 NB 的加入改变了电极微生物群落结构,阻碍了质子-电子传递过程(MFC 内阻增加的原因^[23]之一),是使得 MFC 输出功率降低的主要原因之一.

2.3 MFC 产电的同时对有机物的降解情况

以葡萄糖和 NB 为混合燃料时,MFC 阳极室中 NB、葡萄糖的降解效果见表 1,NB 和 COD 的去除效果见图 3. 实验结果表明,各种浓度配比情况下葡萄

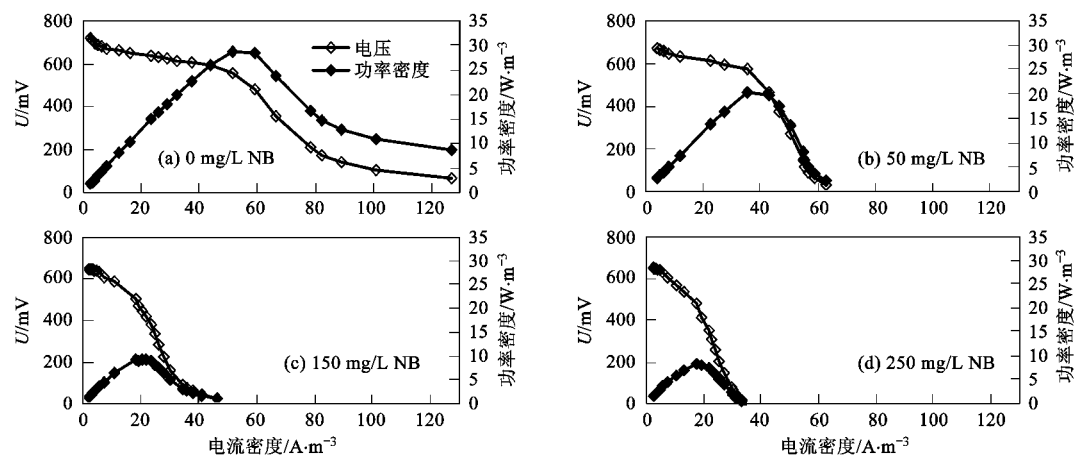


图2 以NB和葡萄糖为混合燃料时MFC的功率密度曲线和极化曲线

Fig.2 Power density and polarization curves of the MFCs using NB-glucose mixtures as fuel

糖均可在2~3 h内被完全降解,同时NB也可以得到高效降解,24 h时均未检出NB,去除率高达100%.从表1可以看出,当葡萄糖浓度为1 000 mg/L,NB初始浓度逐步增大时,NB在MFC阳极室的降解略有差异,NB完全降解时间随着其初始浓度的增大而相应增长.图3显示出在NB和葡萄糖不同配比的情况下,COD的去除率可以达到

87%~98%.在本实验条件下,NB的去除效果优于传统的厌氧降解,Majumder等^[24]实验表明在混合反应器中NB的去除率达到80%~90%,COD的去除率达到60%~96%.本研究中NB在MFC的高效降解很大程度上归于葡萄糖的加入,因为葡萄糖易被厌氧微生物利用产生电子,供NB厌氧降解消耗^[4].

表1 MFC中葡萄糖和NB的降解效果/(mg·L⁻¹)

Table 1 Concentrations of NB and glucose in the MFCs/(mg·L⁻¹)

时间/h	葡萄糖:NB					
	1 000:50		1 000:150		1 000:250	
	葡萄糖	NB	葡萄糖	NB	葡萄糖	NB
0.0	1000.00	50.00	1 000.00	150.00	1 000.00	250.00
0.5	588.28	14.99	741.50	87.26	480.97	145.41
1.0	203.15	3.34	229.98	30.90	105.38	53.09
2.0	21.53	0.53	10.13	6.70	0.72	11.66
3.0	0.30	0.07	0.00	1.10	0.00	2.06
6.0	0.00	0.00	—	0.09	—	0.18
12.0	—	—	—	0.00	—	0.01
24.0	—	—	—	—	—	0.00

3 讨论

3.1 NB对MFC产电性能影响的原因分析

以葡萄糖和NB为混合燃料,MFC的产电性能受NB初始浓度的影响很大.从图1可以看出,随着NB浓度的增加,MFC的最大输出电压逐步降低,运行周期亦相应缩短.当NB初始浓度为0、50、150和250 mg/L时,MFC的电荷量分别为65.10、43.50、35.48和30.32 C;库仑效率分别为2.70%、1.48%、1.24%和1.00%.实验结果表明NB的存在减少了MFC获得的实际电量,但产电量与NB的

浓度并不呈现良好的负相关,50 mg/L NB的加入就使MFC的电荷量大量减少,而后减少幅度相对较小,这与NB的特性密不可分:①NB的高毒性抑制MFC阳极室中产电微生物的活性,影响MFC产电,这与其他难降解有机物的MFC产电性能报道^[9~11]相一致;②在厌氧条件下,NB发生部分还原途径^[2,3],消耗微生物利用葡萄糖产生的电子,减少传递到电极上的电子,从而影响MFC实际获得的电子量;③在高NB浓度的情况下,微生物快速消耗可用碳源,缩短产电时间.本研究中MFC的库仑效率较低,可能是由于循环式MFC的阳极槽中存在大量的

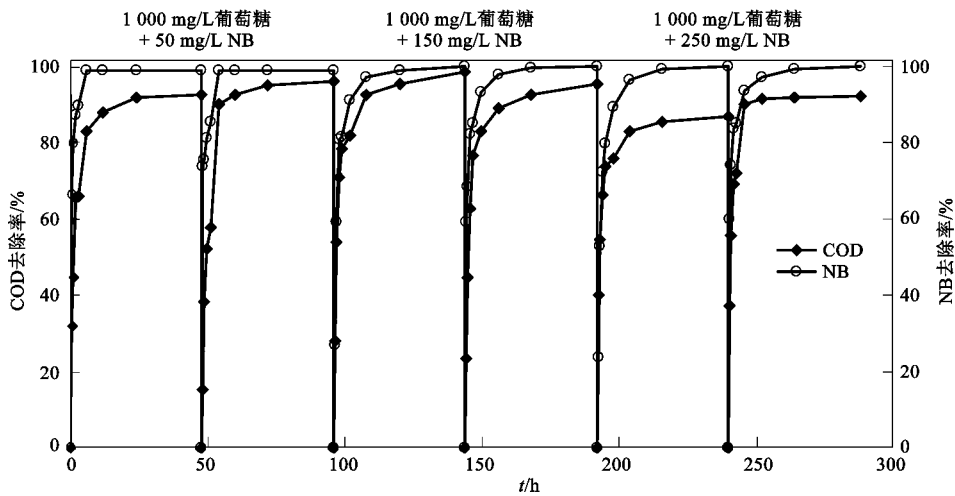


图 3 以 NB 和葡萄糖为混合燃料时 MFC 的 NB 和 COD 去除率随时间变化
Fig.3 Removal rates of NB and COD of the MFCs using NB-glucose mixtures as fuel

产甲烷菌等,会加速有机物的厌氧发酵,减少用于产电的有机物量;另外 NB 的吸电子特性以及阳极液中存在的非电极电子受体(硝酸盐^[17]等)均可能影响 MFC 的库仑效率.

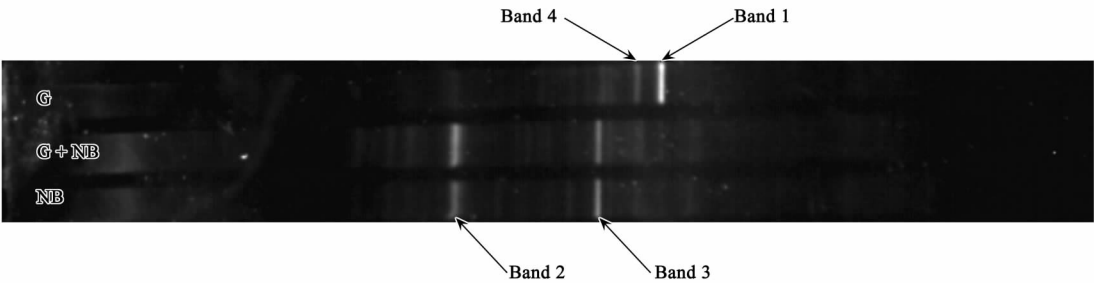
MFC 在实现电能输出的同时可以高效降解 NB 和葡萄糖,然而有机物的完全去除时间均小于 24 h,而 MFC 的产电周期在 32 ~ 52 h 范围内,这表明 MFC 对有机物的降解与产电速率存在一定的差距.一方面 MFC 阳极上微生物多种多样,产电菌和降解菌并不是同一类,产电与降解并不同步,这与先前的报道^[25]一致;另一方面,在新周期的初期微生物将葡萄糖储存在细胞内,阳极液中葡萄糖含量迅速减少,而产电过程仍然持续很久,而随着 NB 初始浓度逐步增大,微生物为抵抗 NB 的毒性,快速利用储存在细胞内的葡萄糖,产电过程仍可以持续,但时间逐步缩短.这种微生物利用有机物产电的机制已有报道:Freguia 等^[26]报道了在初期底物中葡萄糖和乙

酸浓度较高的时候,微生物能够将其储存在细胞内而并未利用;随着葡萄糖和乙酸浓度的降低,微生物将利用初期储备的有机物,维持生长和实现稳定的产电过程.

高效液相色谱(HPLC)对 NB 的测定结果表明,NB 在 MFC 阳极的降解过程中有较为复杂的中间产物出现,受实验条件限制不能确定中间产物的性质,还有待于进一步研究 NB 在 MFC 阳极中的代谢途径,并与传统的厌氧代谢途径做比较.

3.2 不同有机物作为燃料时 MFC 的菌落结构变化分析

图 4 显示了不同底物的 MFC 阳极上微生物 16S rDNA 基因片段的 PCR-DGGE 图谱,从图中可以看出,以纯葡萄糖为燃料时,MFC 阳极上优势菌种为 Band 1、4;而以 NB 和葡萄糖为混合燃料,或纯 NB 为单一燃料时,MFC 阳极上的优势菌种则为 Band 2、3(2 种情况优势菌种的相对丰度略有不同).



G: 葡萄糖; G + NB: 葡萄糖和 NB 混合燃料; NB: 纯硝基苯

图 4 不同底物的 MFC 阳极微生物的 16S rDNA 基因片段的 PCR-DGGE 分析

Fig.4 PCR-DGGE analysis of 16S rDNA extracted from the electrodes of the MFCs with different substrates

同). 这表明 NB 的加入改变了电极上的微生物群落结构, 包括原有菌种相对丰度的改变和新菌种的出现. 将图 4 中的主要条带 (Band 1~4) 进行切胶测序后, 在 GenBank 中进行比对, 结果显示以纯葡萄糖为燃料的 MFC 阳极上的优势菌种分别与 *Enterobacter* sp. (Band 1) 和 *Geobacter* sp. (Band 4) 的同源性达到 100% 和 88%; Band 2 与 *Pseudomonas* sp. 和 *Comamonadaceae* 的同源性较高, 且已有研究表明^[2], 这 2 类菌种都可以降解 NB; Band 3 与 *Desulfovibrio* sp. (一种能够在双电极燃料电池中氧化乙酸的硫还原菌)^[27] 的同源性达到 97%. 这表明 NB 的出现导致 MFC 阳极上 NB 降解菌的迅速增长, 整体上也改变了 MFC 阳极上产电微生物的群落结构. 微生物群落结构的改变将可能导致 MFC 阳极室电子、质子的传递过程, 从而造成内阻增加, 输出功率降低, 与实验结果相一致. 这表明 NB 的毒性是影响 MFC 产电的另一重要因素.

4 结论

(1) MFC 能够以 NB 和葡萄糖作为混合燃料运行产电, 当葡萄糖初始浓度为 1 000 mg/L 时, NB 与葡萄糖浓度之比为 50:1 000、150:1 000 和 250:1 000 时, MFC 的最大输出电压分别为 597、507 和 489 mV; 最大功率密度分别为 20.42、9.29、8.47 W/m³; 电荷量为 43.50、35.48 和 30.32 C.

(2) MFC 可实现对 NB 的高效降解, 24 h 内 NB 的去除率将近 100%, 去除效果优于传统的厌氧降解, 但未发现 MFC 可利用纯 NB 产电现象.

(3) NB 对 MFC 产电性能的影响主要可能由于 NB 的毒性和还原性. 在 MFC 阳极室, NB 的毒性改变电极上微生物群落结构, 阻碍电子-质子传递过程, 增大 MFC 的内阻; NB 厌氧降解消耗电子, 减少 MFC 获得的实际电量, 从而影响 MFC 的产电性能.

参考文献:

- [1] 范丽微, 郭东林, 刘会娟, 等. 硝基苯污染物的生物降解途径[J]. 微生物学通报, 2007, **34**(5): 976-981.
- [2] He Z, Spain J C. Comparison of the downstream pathways for degradation of nitrobenzene by *Pseudomonas pseudoalcaligenes* JS45 (2-aminophenol pathway) and by *Comamonas* sp. JS765 (catechol pathway) [J]. Archives of Microbiology, 1999, **171**: 309-316.
- [3] Liu Z, Yang H, Huang Z, et al. Degradation of aniline by newly isolated, extremely aniline-tolerant *Delftia* sp. AN3 [J]. Applied Microbiology and Biotechnology, 2002, **58**: 679-682.
- [4] Li Y P, Cao H B, Liu C M, et al. Electrochemical reduction of nitrobenzene at carbon nanotube electrode [J]. Journal of Hazardous Materials, 2007, **148**: 158-163.
- [5] Kim B H, Park H S, Kim H J, et al. Enrichment of microbial community generating electricity using a fuel cell type electrochemical cell [J]. Applied Microbiology and Biotechnology, 2004, **63**: 672-681.
- [6] Rabaey K, Lissens G, Siciliano S D, et al. A microbial fuel cell capable of converting glucose to electricity at high rate and efficiency [J]. Biotechnology Letters, 2003, **25**: 1531-1535.
- [7] Liu H, Cheng S, Logan B E. Production of electricity from acetate or butyrate using a single-chamber microbial fuel cell [J]. Environmental Science & Technology, 2005, **39**: 658-662.
- [8] Ren Z, Ward T E, Regan J M. Electricity production from cellulose in a microbial fuel cell using a defined binary culture [J]. Environmental Science & Technology, 2007, **41**: 4781-4786.
- [9] Luo H, Liu G, Zhang R, et al. Phenol degradation in microbial fuel cells [J]. Chemical Engineering Journal, 2009, **147**: 259-264.
- [10] Zhang C, Liu G, Zhang R, et al. Electricity production from and biodegradation of quinoline in the microbial fuel cell [J]. Journal of Environmental Science and Health Part A, 2010, **45**: 1-7.
- [11] Zhang C, Li M, Liu G, et al. Pyridine degradation in the microbial fuel cells [J]. Journal of Hazardous Materials, 2009, **172**: 465-471.
- [12] Sun J, Hu Y, Bi Z, et al. Simultaneous decolorization of azo dye and bioelectricity generation using a microfiltration membrane air-cathode single-chamber microbial fuel cell [J]. Bioresource Technology, 2009, **100**: 3185-3192.
- [13] Min B, Kim J R, Oh S E, et al. Electricity generation from swine wastewater using microbial fuel cells [J]. Water Research, 2005, **39**: 4961-4968.
- [14] Oh S E, Logan B E. Hydrogen and electricity production from a food processing wastewater using fermentation and microbial fuel cell technologies [J]. Water Research, 2005, **39**: 4673-4682.
- [15] Huang L, Logan B E. Electricity generation and treatment of paper recycling wastewater using a microbial fuel cell [J]. Applied Microbiology and Biotechnology, 2008, **80**: 349-355.
- [16] Catal T, Fan Y, Li K, et al. Effects of furan derivatives and phenolic compounds on electricity generation in microbial fuel cells [J]. Journal of Power Sources, 2008, **180**: 162-166.
- [17] Sukkasem C, Xu S, Park S, et al. Effect of nitrate on the performance of single chamber air cathode microbial fuel cells [J]. Water Research, 2008, **42**: 4743-4750.
- [18] Lovley D R, Phillips E J P. Novel mode of microbial energy metabolism; organism carbon oxidation coupled to dissimilatory reduction of iron and manganese [J]. Applied and Environmental Microbiology, 1988, **54**: 1472-1480.
- [19] Logan B E, Hamelers B, Rozendal R, et al. Microbial fuel cells: methodology and technology [J]. Environmental Science

- & Technology, 2006, **40**: 5181-5192.
- [20] Liu H, Cheng S, Logan B E. Production of electricity from acetate or butyrate using a single-chamber microbial fuel cell [J]. Environmental Science & Technology, 2005, **39**: 658-662.
- [21] Raunkje K, Thorkild H, Nielsen P. Measurement of pools of protein, carbohydrate and lipids in domestic wastewater [J]. Water Science and Technology, 1994, **28**: 251-262.
- [22] 国家环境保护局. 水和废水监测分析方法[M]. (第三版). 北京:中国环境科学出版社,1989. 354-356.
- [23] Prasad D, Arun S, Murugesan M, *et al.* Direct electron transfer with yeast cells and construction of a mediatorless microbial fuel cell [J]. Biosensors & Bioelectronics, 2007, **22**: 2604-2610.
- [24] Majumder P S, Gupta S K. Hybrid reactor for priority pollutant nitrobenzene removal [J]. Water Research, 2003, **37**: 4331-4336.
- [25] 张翠萍, 王志强, 刘广立, 等. 以吡啶和葡萄糖为燃料的 MFC 产电特性研究 [J]. 环境科学, 2009, **30** (10): 3089-3092.
- [26] Freguia S, Rabaey K, Yuan Z G, *et al.* Electron and carbon balances in microbial fuel cells reveal temporary bacterial storage behavior during electricity generation [J]. Environmental Science & Technology, 2007, **41**: 2915-2921.
- [27] Bond D R, Holmes D E, Tender L M, *et al.* Electrode reducing microorganisms harvesting energy from marine sediments [J]. Science, 2002, **295**: 483-485.