

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第37卷 第3期

Vol.37 No.3

2016

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

一种气溶胶测量仪器标定系统的设计及性能评估	陈小彤, 蒋靖坤, 邓建国, 段雷, 郝吉明 (789)
空气细菌真菌污染的分级评价构建方法	张华玲, 姚大军, 张雨, 方子梁 (795)
2014年北京APEC期间大气醛酮污染物的污染特征与来源分析	何晓朗, 谭吉华, 郭送军, 马永亮, 贺克斌 (801)
北京市夏季不同O ₃ 和PM _{2.5} 污染状况研究	王占山, 张大伟, 李云婷, 董欣, 孙瑞雯, 孙乃迪 (807)
2013年1月南京北郊霾天气气溶胶的光学特性	王利朋, 马嫣, 郑军, 崔芬萍, 周瑶瑶 (816)
上海典型持续性PM _{2.5} 重度污染的数值模拟	常炉予, 许建明, 周广强, 吴剑斌, 谢英, 余钟奇, 杨辰 (825)
厦门室内多溴二苯醚的沉降通量、季节变化与人体暴露水平	韩文亮, 刘豫, 陈海明, 陈兴童, 范涛 (834)
复合催化膜生物反应器处理一氧化氮废气研究	黎宝仁, 陈洲洋, 王剑斌, 张再利, 樊青娟, 魏在山 (847)
环胶州湾污水处理厂排放口溶解有机氮生物可利用潜力研究	孔秀君, 张鹏, 杨南南, 梁生康 (854)
面向GOCI数据的太湖总磷浓度反演及其日内变化研究	杜成功, 李云梅, 王桥, 朱利, 吕恒 (862)
三峡库区支流澎溪河水华高发期环境因子和浮游藻类的时空特征及其关系	周川, 蔚建军, 付莉, 崔玉洁, 刘德富, 姜伟, Douglas Haffner, 张磊 (873)
三峡库区消落带水体DOM不同分子量组分三维荧光特征	陈雪霜, 江韬, 卢松, 魏世强, 王定勇, 闫金龙 (884)
黄河河南段水体中正构烷烃的分布特征与来源解析	冯精兰, 席楠楠, 张飞, 刘书卉, 孙剑辉 (893)
岩溶地下河流域表层土壤有机氯农药分布特征及来源分析	谢正兰, 孙玉川, 张媚, 余琴, 徐昕 (900)
长期不同耕作方式下紫色水稻土和上覆水中汞及甲基汞的分布特征	王欣悦, 唐振亚, 张成, 王永敏, 王定勇 (910)
长江口沉积物重金属赋存形态及风险特征	尹肃, 冯成洪, 李扬飏, 殷立峰, 沈珍瑶 (917)
巢湖表层沉积物营养盐和重金属分布及污染评价	熊春晖, 张瑞雷, 吴晓东, 冯立辉, 王丽卿 (925)
三峡库区典型支流库湾消落带沉积泥沙特征及重金属评价	王永艳, 文安邦, 史忠林, 严冬春, 朱波, 唐家良 (935)
海河干流水产品汞污染特征及摄入风险评估	童银栋, 张巍, 邓春燕, 王学军 (942)
三峡库区干支流落干期消落带土壤可转化态氮含量及分布特征	何立平, 刘丹, 于志国, 周斌, 杨振宇, 兰国新, 郭冬琴, 林俊杰 (950)
三峡水库消落带土壤与优势植物淹水后对土-水系统汞形态的影响	梁丽, 王永敏, 张成, 余亚伟, 安思危, 王定勇 (955)
不同灌溉模式下水稻田径流污染试验研究	周静雯, 苏保林, 黄宁波, 管毓堂, 赵堃 (963)
富营养化城市景观水体景观污染下的悬浮颗粒物粒度分布特征	贡丹燕, 潘杨, 黄勇, 包伟, 李倩倩 (970)
间歇曝气对垂直潜流人工湿地脱氮效果的影响	汪健, 李怀正, 甄葆崇, 刘振东 (980)
非水溶性醌加速菌GWF生物还原高氯酸盐的研究	张媛媛, 郭延凯, 张超, 梁晓红, 田秀蕾, 牛文钰, 廉静, 郭建博 (988)
紫外辐射对腐殖酸溶液理化性质及其混凝性能的影响	王文东, 张轲, 范庆海, 郑丹 (994)
类水滑石复合材料吸附去除水中硫酸根离子	顾怡冰, 马邕文, 万金泉, 王艳, 关泽宇 (1000)
富里酸对重金属在沉积物上吸附及形态分布的影响	李雨清, 何江, 吕昌伟, 樊明德, 王维, 张瑞卿, 谢志磊, 汪精华, 于波, 恩和, 丁涛 (1008)
铁有机骨架材料的快速合成及对阴离子染料的吸附性能	孙德帅, 刘亚丽, 张晓东, 秦婷婷 (1016)
富里酸-膨润土复合体对氟的吸附特性	方敦, 田华婧, 叶欣, 何次利, 但悠梦, 魏世勇 (1023)
3种低分子量有机酸对紫色土吸附非的影响	谢黎, 陈本寿, 张进忠, 卢松, 江韬 (1032)
HDTMA改性蒙脱土对土壤Cr(VI)的吸附稳定化研究	蒋婷婷, 喻恺, 罗启仕, 吉敏, 林匡飞 (1039)
水热处理时间对污泥中氮磷钾及重金属迁移的影响	王兴栋, 林景江, 李智伟, 赵焕平, 余广伟, 汪印 (1048)
煤制气废水总酚负荷对反硝化的抑制效应研究	张玉莹, 陈秀荣, 王璐, 李佳慧, 徐燕, 庄有军, 于泽亚 (1055)
硫自养反硝化耦合厌氧氨氧化脱氮条件控制研究	周健, 黄勇, 刘忻, 袁怡, 李祥, 完颜德卿, 丁亮, 邵经纬, 赵蓉 (1061)
低温下活性污泥膨胀的微生物群落结构研究	端正花, 潘留明, 陈晓欧, 王秀朵, 赵乐军, 方乐琪 (1070)
游离氨(FA)耦合曝气时间对硝化菌活性的抑制影响	孙洪伟, 吕心涛, 魏雪芬, 赵华南, 马娟, 方晓航 (1075)
1株Arthrobacter arilaitensis菌的耐冷异养硝化和好氧反硝化作用	何腾霞, 倪九派, 李振轮, 孙权, 冶青, 徐义 (1082)
海洋菌株y3的分离鉴定及其异养硝化-好氧反硝化特性	孙庆花, 于德爽, 张培玉, 林学政, 徐光耀, 李津 (1089)
几种不同方法估算农田表层土壤固碳潜力:以甘肃庄浪县为例	师晨迪, 许明祥, 邱宇洁 (1098)
不同耕作方式下土壤水分状况对土壤呼吸的初期影响	张延, 梁爱珍, 张晓平, 陈升龙, 孙冰洁, 刘四义 (1106)
绿肥间作和秸秆覆盖对冬季油菜根际土壤有机碳及土壤呼吸的影响	周泉, 王龙昌, 熊瑛, 张赛, 杜娟, 赵琳璐 (1114)
黑岱沟露天煤矿排土场不同植被复垦土壤酶活性及理化性质研究	方瑛, 马任甜, 安韶山, 赵俊峰, 肖礼 (1121)
黄土丘陵区退耕时间序列梯度上草本植被群落与土壤C、N、P、K化学计量学特征	张海东, 汝海丽, 焦峰, 薛超玉, 郭美丽 (1128)
包头某铝厂周边土壤重金属的空间分布及来源解析	张连科, 李海鹏, 黄学敏, 李玉梅, 焦坤灵, 孙鹏, 王维大 (1139)
砷污染土壤复合淋洗修复技术研究	陈寻峰, 李小明, 陈灿, 杨麒, 邓琳静, 谢伟强, 钟宇, 黄斌, 杨伟强, 张志贝 (1147)
以预处理剩余污泥为燃料MFC产电性能及不连续供电的可行性	赵艳辉, 赵阳国, 郭亮 (1156)
废弃物焚烧飞灰中持久性自由基与二噁英及金属的关联探究	王天娇, 陈彤, 詹明秀, 郭颖, 李晓东 (1163)
淘汰落后产能政策对我国重点工业行业二噁英类减排的影响	耿静, 吕永龙, 任丙南, 王铁宇 (1171)
《环境科学》征订启事 (1138) 《环境科学》征稿简则 (1155) 信息 (824, 853, 883)	

以预处理剩余污泥为燃料 MFC 产电性能及不连续供电的可行性

赵艳辉¹, 赵阳国^{1,2*}, 郭亮^{1,2}

(1. 中国海洋大学环境科学与工程学院, 青岛 266100; 2. 中国海洋大学海洋环境与生态教育部重点实验室, 青岛 266100)

摘要: 为探讨微生物燃料电池 (microbial fuel cell, MFC) 处理经预处理后剩余污泥的可行性以及不连续供电能力, 采用双室 MFC, 以剩余污泥热处理上清液为基质进行启动和运行, 通过改变电池阴极电子受体而导致电势差变化来监测其产电的运行稳定性。结果表明, 反应器以氧气作为阴极电子受体 148 h 后启动成功, 最大输出电压 0.24 V, 将阴极电子受体换为铁氰化钾时, 能获得 0.66 V 的最大输出电压和 $4.21 \text{ W} \cdot \text{m}^{-3}$ 的最大功率密度。当将阴极电子受体分别替换为氧气或者开路, 又转换为铁氰化钾后, 电池输出功率恢复迅速, 电池对有机物去除效率基本不受影响, 对化学需氧量 (COD)、氨氮去除效率分别达 70% 和 80%。本研究表明, 利用预处理剩余污泥进行 MFC 处理和产电是可行的, 可获得较高的功率密度, 同时 MFC 可以实现不连续供电。

关键词: 微生物燃料电池; 剩余污泥; 电子受体; 不连续供电; 功率密度

中图分类号: X382; X703 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2016)03-1156-07 DOI: 10.13227/j.hjxx.2016.03.047

Performance of Electricity Generation and Feasibility of Discontinuous Power Supply of MFC by Using Pretreated Excess Sludge as Fuel

ZHAO Yan-hui¹, ZHAO Yang-guo^{1,2*}, GUO Liang^{1,2}

(1. College of Environmental Science and Engineering, Ocean University of China, Qingdao 266100, China; 2. Key Laboratory of Marine Environmental Science and Ecology, Ministry of Education, Ocean University of China, Qingdao 266100, China)

Abstract: The feasibility of treating pretreated excess sludge and capacity of supplying continuous power of microbial fuel cells (MFCs) were investigated. Two-chamber microbial fuel cells were started up and operated by using thermal pretreated excess sludge as the substrate. Potential fluctuations were achieved by changing the cathode electron acceptor. During the changes of electron acceptor, the operational stability of MFCs was assessed. The results indicated that the MFCs started successfully with oxygen as the cathode electron acceptor and reached 0.24 V after 148 hours. When the cathode electron acceptor was replaced by potassium ferricyanide, MFCs could obtain the maximum output voltage and maximum power density of 0.66 V and $4.21 \text{ W} \cdot \text{m}^{-3}$, respectively. When the cathode electron acceptor was changed from oxygen to potassium ferricyanide or the MFCs were closed circuit, the output power of MFCs recovered rapidly. In addition, changes of electron acceptor showed no effect on the removal of COD and ammonia nitrogen. Their removal efficiencies approached to 70% and 80%, respectively. This study concluded that MFC could treat the pretreated excess sludge and produce electricity simultaneously with a high power density. The MFC could also achieve discontinuous electricity supply during operation.

Key words: microbial fuel cells; excess sludge; electron acceptor; discontinuous electricity production; power density

剩余污泥作为污水处理厂生物处理的主要副产物, 其进一步处理费用已占整个污水处理厂运行成本的 25% ~ 65%^[1]。因此, 剩余污泥的处理与处置成为污水处理厂面临的非常棘手的难题^[2]。然而, 剩余污泥中含有丰富的有机质^[3], 不但可以作为生物产甲烷、产氢等能源与底物^[2], 还可以用于微生物培养、堆肥的原料^[4], 人们已经逐渐意识到剩余污泥的重要经济价值, 相关研究和应用也开展起来^[5]。

微生物燃料电池 (MFC) 是一种新型的生物电化学系统, 能够利用微生物作为催化剂将存储在有机物中的化学能以电能形式回收^[6]。MFC 不仅可利

用单一碳水化合物 (如葡萄糖、醋酸盐、丁酸盐等) 作为燃料发电, 而且能利用废水 (如养殖废水、生活污水、啤酒废水、淀粉加工废水、造纸废水等)、废物中的复杂有机物回收电能。以剩余污泥作为 MFC 的燃料, 是剩余污泥资源化利用的又一种新形式, 既处理了污泥, 又能将污泥中丰富的有机质转化为电能, 从而实现污泥的稳定化、减量化与资源化利用, 对于解决污泥处理过程中高能耗等问题具有重要意义。

收稿日期: 2015-10-15; 修订日期: 2015-11-05

基金项目: 新世纪优秀人才支持计划项目 (NCET-12-0501)

作者简介: 赵艳辉 (1990 ~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为污染控制与资源化, E-mail: 785707105@qq.com

* 通讯联系人, E-mail: ygzhaoh@ouc.edu.cn

义. 目前, 基于 MFC 的剩余污泥资源化利用研究, 包括直接方式与间接方式, 其中直接利用剩余污泥的方式即直接以剩余污泥为底物, 不进行预处理; 而间接方式则需要进行必要的预处理, 以提高污泥的可生化性. 由于污泥中的蛋白质、还原性糖和可溶性化学需氧量 (SCOD) 浓度较低, 生化性能较差, 直接以污泥为底物时, MFC 输出功率密度较低, 为了改善 MFC 产电性能, 一般需对剩余污泥进行必要的预处理, 如热处理、酶处理以及酸碱处理等^[7].

对于 MFC 产电性能的研究, 多局限于对其功率密度的提升. 而在实际应用中, 对一些小型用电器, 如 LED 照明导航、无线传感器^[8]、充电电池^[9]及电容器^[10]等进行供电时, 由于环境条件复杂多变, 即使有电能存储设备, 也需要 MFC 具有不连续供电的能力^[11], 在电压变化或供电开闭时, 需要 MFC 能够快速恢复供电. 可见, 探讨 MFC 不连续供电性能具有重要的现实意义.

在此背景下, 本研究分析 MFC 以预处理剩余污泥为燃料产电的可行性; 同时通过开闭电路和变换不同电子受体改变电势, 探讨 MFC 产电性能对输出电压变化的响应, 以期 MFC 实现不连续供电提供

依据.

1 材料与方法

1.1 反应器装置

采用双室 MFC, 两极室有效容积均为 165 mL, 装置如图 1. 两极室间以质子交换膜 (Nafion 117, Dupont, 美国) 隔开, 质子交换膜的有效面积为 40 cm². 阳极材料为碳布 (6.5 cm × 10 cm), 阴极材料为石墨碳板 (5.0 cm × 7.5 cm), 浸入 1 × PBS 溶液 (50 mmol · L⁻¹, pH 7.0) 或铁氰化钾溶液中. 电极以钛丝作为连接导线, 外接 1 000 Ω 电阻, 电阻两端接电势数据采集卡 (PISO-813 型, 台湾宏格), 对电压进行在线记录.

1.2 剩余污泥预处理及 MFC 启动

MFC 底物为经过预处理的污水处理厂剩余污泥上清液. 本研究采用加热处理方式对污泥进行预处理, 以增强污泥的生物可利用性, 提高污泥降解效果^[12]. 预处理方法如下: 取适量污泥置于 100℃ 水浴中处理 1 h, 然后离心获取上清液备用, 未经处理的剩余污泥以及预处理过的剩余污泥理化特性如表 1.

表 1 阳极室所用原污泥及污泥经热处理后上清液理化性质¹⁾

Table 1 Characteristics of excess sludge used in the anode chamber and supernatant of thermal pretreated excess sludge						
剩余污泥	TCOD /mg · L ⁻¹	SCOD /mg · L ⁻¹	氨氮 /mg · L ⁻¹	TSS /g · L ⁻¹	VSS /g · L ⁻¹	pH
未处理	540	290	70.35	15.42	10.45	6.87
预处理	—	2 004 ~ 2 704	263.12 ~ 304.47	—	—	6.82 ~ 7.50

1) “—”表示无此项值

MFC 接种污泥取自青岛市李村河污水处理厂好氧曝气池, 污泥 TSS 为 10.43 g · L⁻¹, 将其在室温厌氧驯化一周以富集产电微生物. MFC 启动和运行均采用批式方式进行. 取污泥 10 mL 接入阳极室, 加满终浓度为 1 000 mg · L⁻¹ (COD) 的预处理剩余污泥, 同时加入 2 mL · L⁻¹ 微量元素、200 μL · L⁻¹ 氨基酸、200 μL · L⁻¹ 维生素^[13]. 在 MFC 启动初期, 每隔 2 d 更换一次阳极液, 待启动成功后, 反应器电压降到 0.1 V 时, 即更换新鲜阳极液. 在 MFC 启动过程中, 阴极室为 1 × PBS 磷酸盐缓冲溶液, 并持续曝气. 整个实验在 25℃ 条件下进行.

1.3 改变 MFC 的输出电势

当 MFC 启动成功且输出电压稳定后, 将阴极液由 1 × PBS 缓冲溶液换为 30 mmol · L⁻¹ 铁氰化钾. 为探讨 MFC 能否不连续供电, 将反应器分为两组, 每组设置两个平行. 第一组反应器阴极室溶液依次为

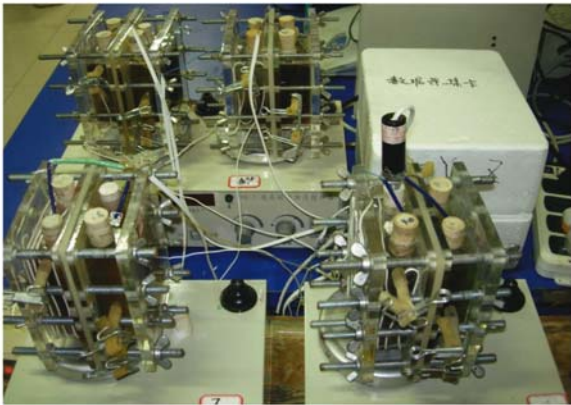


图 1 MFC 实验装置示意

Fig. 1 MFC bioreactors used in this study

30 mmol · L⁻¹ 铁氰化钾、1 × PBS 缓冲溶液 (曝氧气)、30 mmol · L⁻¹ 铁氰化钾, 3 个阶段分别标记为 Pb1、Pb2、Pb3. 第二组反应器阴极室溶液均为 30

$\text{mmol} \cdot \text{L}^{-1}$ 铁氰化钾, 在反应器运行过程中, 电路分别转换为闭路、开路及闭路状态, 3 个阶段分别标记为 Op1、Op2、Op3。

1.4 化学及电化学参数分析

进出水 COD 采用重铬酸钾 ($\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$) 氧化法测定; 进出水氨氮采用纳氏试剂比色法测定^[14]。功率密度曲线、极化曲线等电化学参数均按文献[15]中的方法, 以在线获得的电压为基础进行分析。伏安特性曲线采用 LK2005B 电化学工作站 (兰力科化学电子, 天津) 进行测试, 循环变化的电压施加于工作电极和参比电极之间, 采用三电极体系: 阳极为工作电极, 甘汞电极为参比电极, 阴极为对电极。

2 结果与分析

2.1 MFC 的启动

以热处理的剩余污泥上清液为基质, 两组 MFC 启动阶段输出电压随时间变化如图 2。启动过程中, 电池输出电压稳定上升, 启动第 148 h, 两组 MFC 电压均达到 0.18 V; 在第 290 h 时, 两组 MFC 最大电压均达到 0.24 V 左右, 重现性较好, 电压稳定输出 3 个周期, 表明系统已成功启动。

MFC 启动成功后, 在扫描速度 $1 \text{ mV} \cdot \text{s}^{-1}$, $-0.60 \sim 0 \text{ V}$ 范围内 5 次循环条件下绘制伏安曲线 (图 3)。MFC 启动成功后的循环伏安曲线没有明显的氧化还原峰, 表明 MFC 在整个循环伏安测试过程中均以恒定速度进行充放电, 电池性能较为稳定。

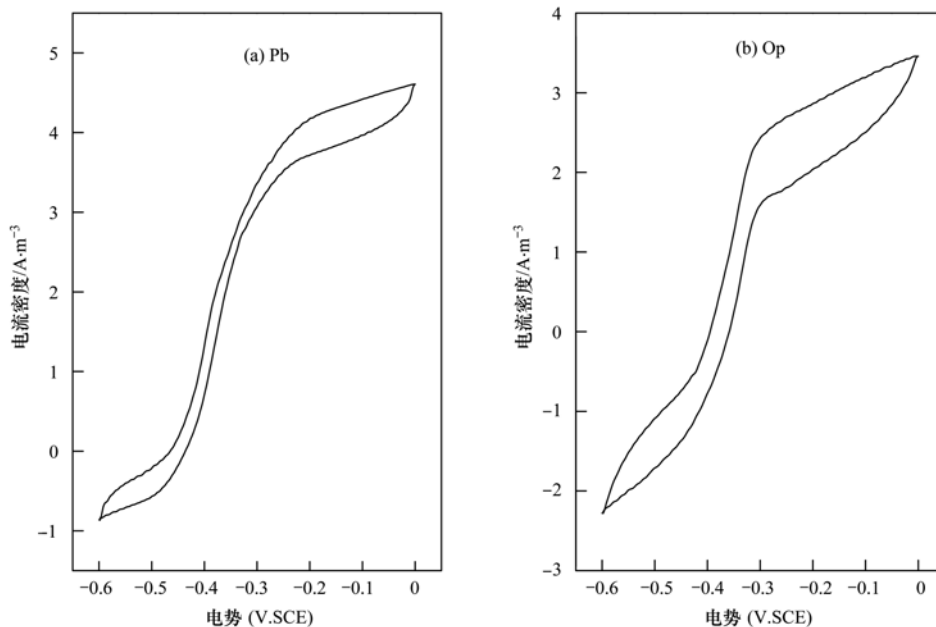


图 3 MFC 启动成功后的循环伏安特性曲线

Fig. 3 Cyclic voltammogram scanning after MFC startup

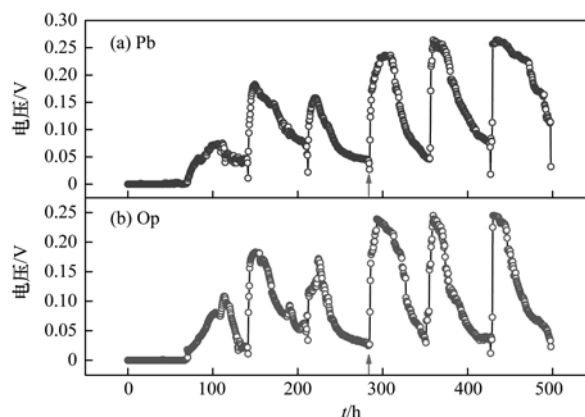


图 2 两组 MFC 以热处理污泥上清液为底物启动

Fig. 2 Startup of two groups of MFCs feeding with supernatant of thermal pretreated excess sludge

2.2 电子受体短暂变化

2.2.1 输出电压对阴极电子受体短暂变化的响应

MFC 阴极室电子受体经铁氰化钾/氧气/铁氰化钾这 3 个阶段的变换, MFC 输出电压随时间变化如图 4 中的 Pb 所示。Pb1 输出电压在 0.60 ~ 0.70 V 之间, 阴极电子受体换为 O_2 时, Pb2 输出电压降到 0.30 ~ 0.40 V 之间, 最后再次将阴极电子受体换回铁氰化钾时, Pb3 最大输出电压亦快速恢复到同 Pb1 阶段。Op1 ~ Op3 阴极液均为铁氰化钾, 电池电路经闭路、开路、闭路模式转换, MFC 的输出电压及开路电势如图 4 中的 Op。Op1 闭路状态输出电压在 0.60 ~ 0.70 V 之间, 电路断开时, Op2 的开路电势最大在 0.8 V, 当电路再次变为闭路时, Op3 最大

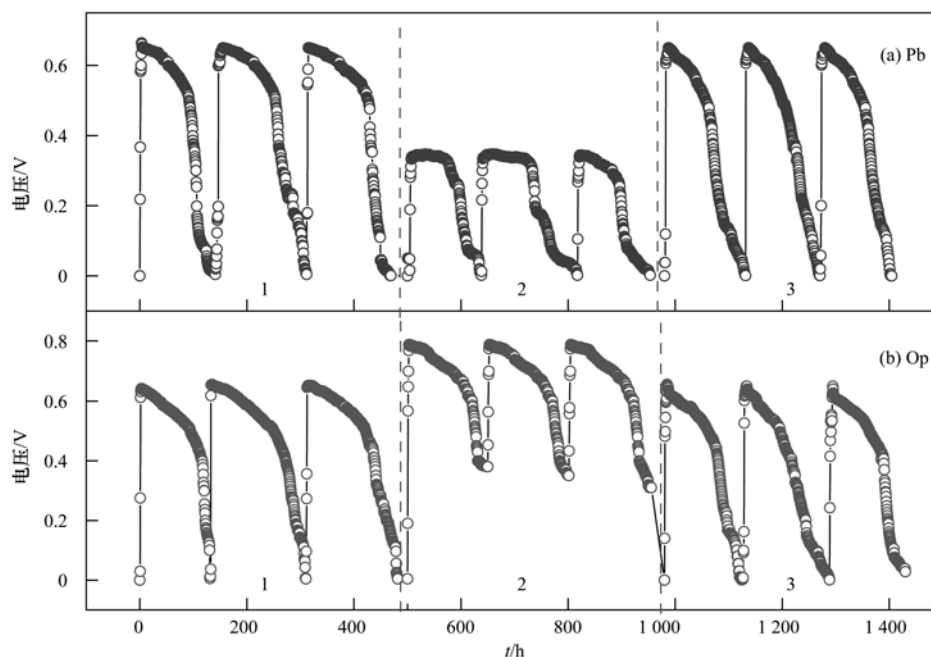


图4 阴极电子受体短暂变化对 MFC 输出电压的影响

Fig. 4 Effect of transient changes of cathode electron acceptor on the output voltage of MFC

输出电压亦快速恢复到同 Op1 阶段。

2.2.2 MFC 功率密度、极化曲线

电子受体变化前后的功率密度曲线如图 5。Pb1、Pb2 和 Pb3 阶段时, MFC 的功率密度达到最大值分别为 1.86 、 1.94 和 $4.21 \text{ W} \cdot \text{m}^{-3}$ 。可见, Pb 实验组功率密度随电子受体变化前、中、后呈逐渐上升趋势, 可能阴极室由铁氰化钾换为缓冲溶液时对质子交换膜有冲洗作用, 增大了质子交换膜传质效率, 再次变为铁氰化钾后功率密度继续增大, 这与 Oh 等^[16]发现使用铁氰化物代替氧气作为电子受体, 将 MFC 功率提高 $1.5 \sim 1.8$ 倍的结果一致。

Op1、Op2 和 Op3 阶段 MFC 的功率密度最大值分别为 1.91 、 5.37 以及 $3.90 \text{ W} \cdot \text{m}^{-3}$, 该实验组 MFC 功率密度随电子受体变化呈现先升后降的趋势。在 Op2 阶段, 阴极电子受体从无到有的瞬间, 其最大功率密度最大, 但该值为开路电压下的获得, 并非 MFC 实际运行能够产生的功率密度。

2.2.3 MFC 对 COD 和氨氮的去除

选择 Pb、Op 实验组每个阶段一个周期, 测定 MFC 阳极室中 COD 和氨氮剩余浓度, 结果如图 6。阳极液的 COD 初始浓度为 $(1000 \pm 200) \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$; 氨氮浓度为 $(200 \pm 50) \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。COD 和氨氮的剩余浓度在电子受体变化时呈逐渐下降趋势, 但每阶段浓度变化波动较小, COD 最大可获得 70% 的去除率, 氨氮最大去除率为 80%。可见, MFC 对有机物去除

效果不受阴极电子受体短暂变化的影响。

3 讨论

3.1 MFC 以预处理剩余污泥为燃料进行产电的可行性

本研究结果表明, 以剩余污泥热处理上清液为基质, MFC 可以获得稳定的输出电压, 当以铁氰化钾为阴极电子受体时可获得 0.66 V 的最高输出电压、 $4.21 \text{ W} \cdot \text{m}^{-3}$ 的最大功率密度 (图 4), 均优于目前以单一简单有机物为底物的 MFC 报道。在他们的研究中, 当以葡萄糖^[17]、乙酸钠或淀粉^[18]为底物时, 获得的 MFC 最大功率密度分别为 400 、 36.03 和 $6.32 \text{ mW} \cdot \text{m}^{-3}$ 。同以复杂有机物为底物的 MFC 相比, 本研究的结果也有一定的优势, 例如 Huang 等^[19]应用 MFC 处理造纸废水时, 其最大输出电压和最大功率密度分别达 0.42 V 和 $0.675 \text{ W} \cdot \text{m}^{-3}$ 。在 Feng 等^[20]研究中, 以啤酒废水为底物时能获得 $5.1 \text{ W} \cdot \text{m}^{-3}$ 的最大功率密度, 可能与其底物的生物可利用性好、反应器运行温度高有关。可见, 无论是简单的有机物, 还是复杂有机物, 底物种类不同, MFC 产电性能差异较大, 但本研究以剩余污泥热处理上清液为基质, 输出电压和功率密度均不低于已有报道。究其原因, 可能是剩余污泥经过热预处理, 破坏了污泥中微生物的细胞壁, 促使胞内有机质溶出, 从而使基质中蛋白质、还原性糖和 SCOD 浓度增大。碳源

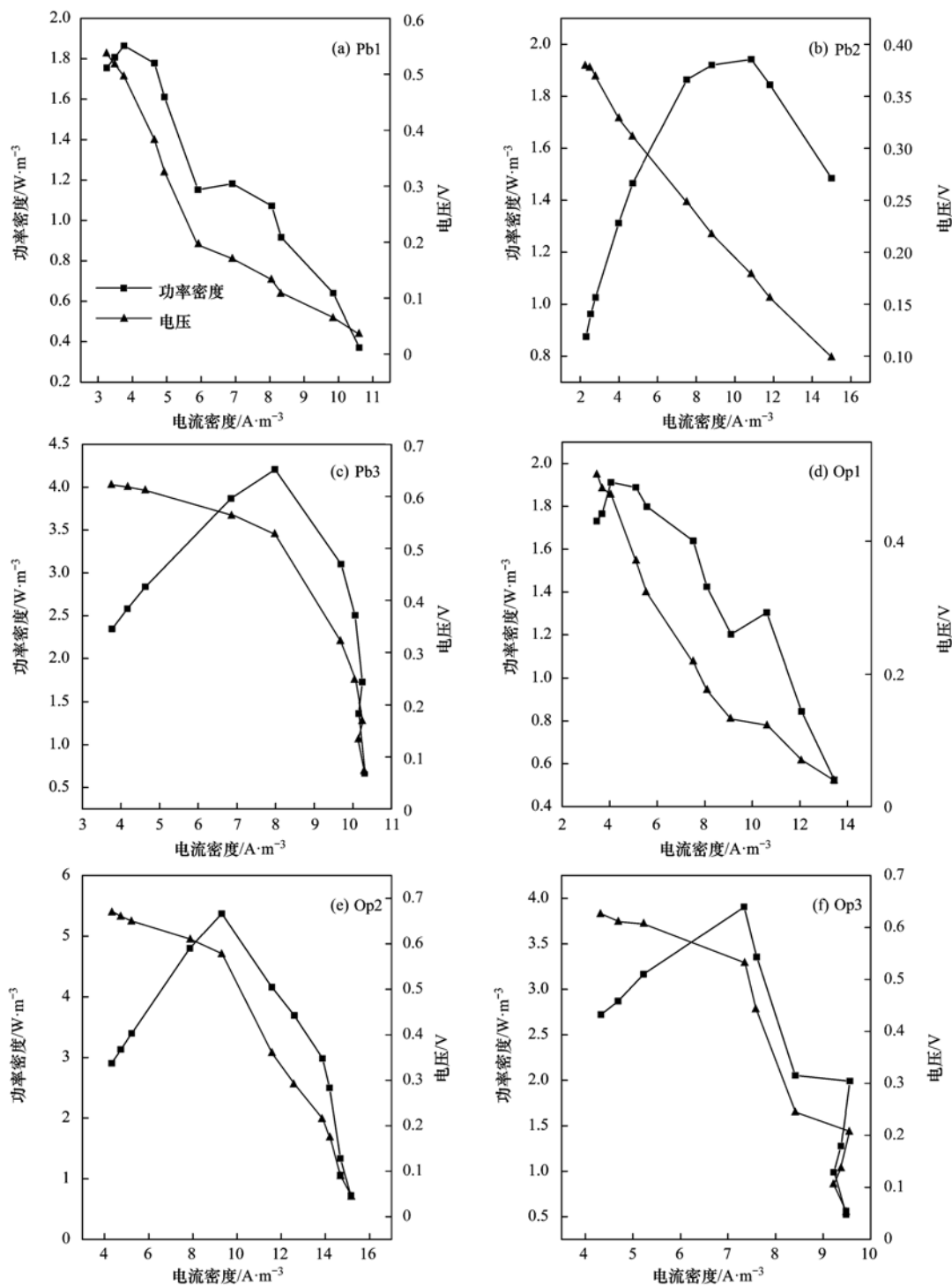


图5 电子受体短暂变化各阶段的功率密度与极化曲线

Fig. 5 Power density and polarization curves during electron acceptor transient changes

越丰富,可生化性则越强,越有利于 MFC 阳极微生物的厌氧发酵^[21]。

3.2 MFC 可以实现不连续供电

如果将 MFC 用于小型仪器设备的实际供电,其必须具有不连续供电的能力,不仅需要切换高低电压,还需要适应开关电路。一般情况下,阳极最大电

势取决于底物的氧化还原电位,本研究由于底物不变,阳极最大电势保持一定值^[22],所以如从阳极底物入手,研究 MFC 不连续供电的可行性,其输出电压不易控制。另一方面,由于阴极电子受体能够克服阴极电位损失,阴极最终电子受体的还原电位在很大程度上影响电池输出电压^[23, 24],因此从阴极电子

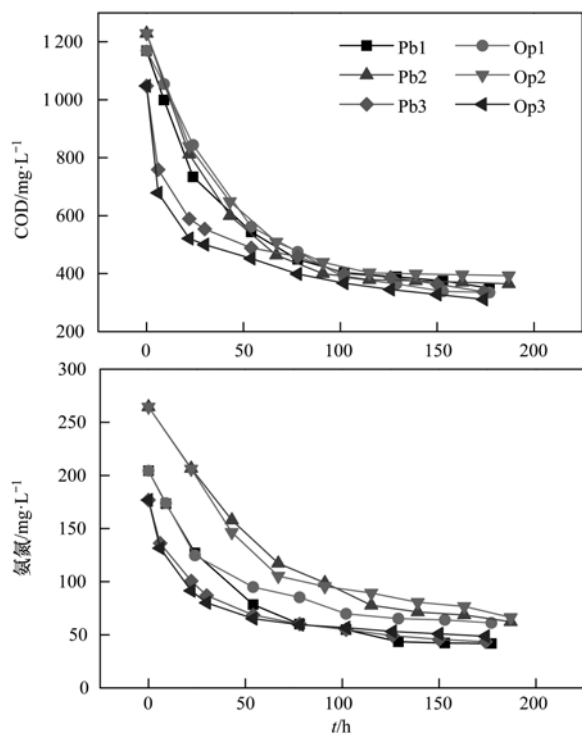


图6 MFC 电子受体变化各阶段 COD 和氨氮的剩余浓度变化

Fig. 6 Variation of residual COD and ammonia nitrogen in MFC during electron acceptor transient changes

受体角度入手研究 MFC 是否能实现不连续供电更为合适。

由于铁氰化钾在水中较好的溶解性,增加了其传质效率,铁氰化钾作为阴极电子受体的最大优势在于其具有超低过电势,使得 MFC 阴极工作电压接近开路电压;而 O_2 在水中的低溶解度,限制了其阴极电位,因此以铁氰化钾为阴极电子受体的电池要比以 O_2 为阴极电子受体的电池的输出电压高^[16, 25]。本研究通过反复切换铁氰化钾和 O_2 两种阴极电子受体,发现 MFC 的输出电压在阴极电子受体为 O_2 时较低,一旦阴极电子受体转换为铁氰化钾后,电压亦快速恢复。由此说明 MFC 产电微生物群落稳定,不会随着阴极受体的变化而发生较大波动, MFC 可以输出不同电压,能够适应用电器功率的波动。

在线监测开闭路电压发现,由闭路转为开路时,开路电压呈规律性周期变化;当再次换为闭路时, MFC 输出电压能够快速恢复到切换电路前的电压和功率。Sevda 等^[11]分别以醋酸盐、葡萄糖人工废水以及高浓度的工业废水为基质,利用单室空气阴极 MFC,监测电路从闭路变为开路,再变回闭路的阴阳极电位的变化,结果发现电压在 10 ~ 20 min 内就能恢复到初始状态,其研究也支持本实验中电压

随电路变化迅速恢复的结果。当 MFC 电路断开时,电子不能由阳极传递到阴极,导致阳极微生物不能利用阳极作为外部电子受体,但阳极表面已经形成了极其稳定的电活性生物膜^[26];因此,当电路恢复到闭路时,生物膜的产电活性亦能快速恢复。

4 结论

(1)利用双室 MFC,以热处理的剩余污泥上清液为基质, MFC 可快速启动,获得 0.66 V 的最大电压及 $4.21 \text{ W} \cdot \text{m}^{-3}$ 的最大功率密度,反应器产电性能良好, MFC 以预处理剩余污泥为燃料产电具有可行性。

(2)短时间内改变阴极电子受体或开闭电路, MFC 对有机物的去除效果基本不受影响,输出电压响应比较迅速, MFC 可应用于实际电路的不连续供电。

参考文献:

- [1] Liu Y. Chemically reduced excess sludge production in the activated sludge process[J]. *Chemosphere*, 2003, **50**(1): 1-7.
- [2] Xiao B Y, Yang F, Liu J X. Evaluation of electricity production from alkaline pretreated sludge using two-chamber microbial fuel cell[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2013, **254-255**: 57-63.
- [3] Wilson C A, Novak J T. Hydrolysis of macromolecular components of primary and secondary wastewater sludge by thermal hydrolytic pretreatment[J]. *Water Research*, 2009, **43**(18): 4489-4498.
- [4] Xiao B Y, Yang F, Liu J X. Enhancing simultaneous electricity production and reduction of sewage sludge in two-chamber MFC by aerobic sludge digestion and sludge pretreatments[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2011, **189**(1-2): 444-449.
- [5] Tyagi V K, Lo S L. Sludge: A waste or renewable source for energy and resources recovery? [J]. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 2013, **25**: 708-728.
- [6] Logan B E, Hamelers H, Rozendal R, *et al.* Microbial fuel cells methodology and technology [J]. *Environmental Science & Technology*, 2006, **40**(17): 5181-5192.
- [7] 沈春花, 曾庆玲, 郭义海. 以微生物燃料电池技术资源化利用剩余污泥的研究进展[J]. *化工进展*, 2011, **30**(9): 2075-2079.
- [8] Donovan C, Dewan A, Heo D, *et al.* Batteryless, wireless sensor powered by a sediment microbial fuel cell [J]. *Environmental Science & Technology*, 2008, **42**(22): 8591-8596.
- [9] Tender L M, Gray S A, Groveman E, *et al.* The first demonstration of a microbial fuel cell as a viable power supply: Powering a meteorological buoy [J]. *Journal of Power Sources*, 2008, **179**(2): 571-575.
- [10] Hatzell M C, Kim Y, Logan B E. Powering microbial electrolysis cells by capacitor circuits charged using microbial fuel cell [J].

- Journal of Power Sources, 2013, **229**: 198-202.
- [11] Sevda S, Dominguez-Benetton X, De Wever H, *et al.* Evaluation and enhanced operational performance of microbial fuel cells under alternating anodic open circuit and closed circuit modes with different substrates[J]. Biochemical Engineering Journal, 2014, **90**: 294-300.
- [12] Climent M, Ferrer I, Baeza M D M, *et al.* Effects of thermal and mechanical pretreatments of secondary sludge on biogas production under thermophilic conditions [J]. Chemical Engineering Journal, 2007, **133**(1-3): 335-342.
- [13] 尹亚琳, 高崇洋, 赵阳国, 等. 好氧-厌氧混合污泥启动微生物燃料电池产电性能及微生物群落动态特征[J]. 微生物学报, 2014, **54**(12): 1471-1480.
- [14] 国家环境保护总局. 水和废水监测分析方法[M]. (第四版). 北京: 中国环境科学出版社, 2002. 354-359.
- [15] Zhu X P, Yates M D, Hatzell M C, *et al.* Microbial community composition is unaffected by anode potential[J]. Environmental Science & Technology, 2014, **48**(2): 1352-1358.
- [16] Oh S E, Logan B E. Proton exchange membrane and electrode surface areas as factors that affect power generation in microbial fuel cells[J]. Applied Microbiology and Biotechnology, 2006, **70**(2): 162-169.
- [17] 孔晓英, 李连华, 李颖, 等. 葡萄糖浓度对微生物燃料电池产电性能的影响[J]. 太阳能学报, 2013, **34**(2): 349-352.
- [18] 易丹, 陶虎春, 李兆飞, 等. 双室微生物燃料电池利用乙酸钠和淀粉产电研究[J]. 环境科学研究, 2008, **21**(3): 141-145.
- [19] Huang L P, Logan B E. Electricity generation and treatment of paper recycling wastewater using a microbial fuel cell [J]. Applied Microbiology and Biotechnology, 2008, **80**(2): 349-355.
- [20] Feng Y J, Wang X, Logan B E, *et al.* Brewery wastewater treatment using air-cathode microbial fuel cells [J]. Applied Microbiology and Biotechnology, 2008, **78**(5): 873-880.
- [21] Kim D, Lee K, Park K Y. Enhancement of biogas production from anaerobic digestion of waste activated sludge by hydrothermal pre-treatment[J]. International Biodeterioration & Biodegradation, 2015, **101**: 42-46.
- [22] 卜文辰, 蔡昌凤. 微生物燃料电池阴极电子受体研究进展[J]. 应用化工, 2013, **42**(6): 1124-1127.
- [23] He C S, Mu Z X, Yang H Y, *et al.* Electron acceptors for energy generation in microbial fuel cells fed with wastewaters: A mini-review[J]. Chemosphere, 2015, **140**: 12-17.
- [24] 孔晓英, 袁振宏, 孙永明, 等. 微生物燃料电池阴极电子受体与结构的研究进展[J]. 可再生能源, 2010, **28**(1): 122-126.
- [25] 陈庆云, 王云海. 微生物燃料电池阴极功能的研究进展[J]. 化工进展, 2013, **32**(10): 2352-2360.
- [26] Lovley D R. Bug juice: harvesting electricity with microorganisms [J]. Nature Reviews Microbiology, 2006, **4**(7): 497-508.

CONTENTS

Development and Performance Evaluation of a Supramicron Particle Generation System for Aerosol Instrument Calibration	CHEN Xiao-tong, JIANG Jing-kun, DENG Jian-guo, <i>et al.</i> (789)
Establishment of Assessment Method for Air Bacteria and Fungi Contamination	ZHANG Hua-ling, YAO Da-jun, ZHANG Yu, <i>et al.</i> (795)
Chemical Characteristics and Sources of Atmospheric Carbonyls During the 2014 Beijing APEC	HE Xiao-lang, TAN Ji-hua, GUO Song-jun, <i>et al.</i> (801)
Different Air Pollution Situations of O ₃ and PM _{2.5} During Summer in Beijing	WANG Zhan-shan, ZHANG Da-wei, LI Yun-ting, <i>et al.</i> (807)
Aerosol Optical Properties in the Northern Suburb of Nanjing During Haze Days in January 2013	WANG Li-peng, MA Yan, ZHENG Jun, <i>et al.</i> (816)
A Numerical Study of Typical Heavy Air Pollution Episode of PM _{2.5} in Shanghai	CHANG Lu-yu, XU Jian-ming, ZHOU Guang-qiang, <i>et al.</i> (825)
Indoor Deposition Flux, Seasonal Variations and Human Exposure Levels of Polybrominated Diphenyl Ethers in Xiamen, China	HAN Wen-liang, LIU Yu, CHEN Hai-ming, <i>et al.</i> (834)
Nitric Oxide Removal with a Fe-TiO ₂ /PSF Hybrid Catalytic Membrane Bioreactor	LI Bao-ren, CHEN Zhou-yang, WANG Jian-bin, <i>et al.</i> (847)
Potential Bioavailability of Dissolved Organic Nitrogen in the Discharge Outlets of Sewage Treatment Plants Around the Jiaozhou Bay	KONG Xiu-jun, ZHANG Peng, YANG Nan-nan, <i>et al.</i> (854)
Inversion Model and Daily Variation of Total Phosphorus Concentrations in Taihu Lake Based on GOCI Data	DU Cheng-gong, LI Yun-mei, WANG Qiao, <i>et al.</i> (862)
Temporal and Spatial Distribution of Environmental Factors and Phytoplankton During Algal Bloom Season in Pengxi River, Three Gorges Reservoir	ZHOU Chuan, YU Jian-jun, FU Li, <i>et al.</i> (873)
Three-dimensional Fluorescence Spectral Characteristics of Different Molecular Weight Fractionations of Dissolved Organic Matter in the Water-level Fluctuation Zones of Three Gorges Reservoir Areas	CHEN Xue-shuang, JIANG Tao, LU Song, <i>et al.</i> (884)
Distribution Characteristics and Source Apportionment of <i>n</i> -Alkanes in Water from Yellow River in Henan Section	FENG Jing-lan, XI Nan-nan, ZHANG Fei, <i>et al.</i> (893)
Distribution Characteristics and Source Identification of Organochlorine Pesticides in Surface Soil in Karst Underground River Basin	XIE Zheng-lan, SUN Yu-chuan, ZHANG Mei, <i>et al.</i> (900)
Effects of Long-term Different Tillage Methods on Mercury and Methylmercury Contents in Purple Paddy Soil and Overlying Water	WANG Xin-yue, TANG Zhen-ya, ZHANG Cheng, <i>et al.</i> (910)
Speciation and Risk Characteristics of Heavy Metals in the Sediments of the Yangtze Estuary	YIN Su, FENG Cheng-hong, LI Yang-yang, <i>et al.</i> (917)
Distribution and Pollution Assessment of Nutrient and Heavy Metals in Surface Sediments from Lake Gehu in Southern Jiangsu Province, China	XIONG Chun-hui, ZHANG Rui-lei, WU Xiao-dong, <i>et al.</i> (925)
Characteristics of Deposited Sediment and Assessment of Heavy Metals in Typical Tributaries Bay Riparian Zone of the Three Gorges Reservoir	WANG Yong-yan, WEN An-bang, SHI Zhong-lin, <i>et al.</i> (935)
Pollution Characteristics Analysis and Risk Assessment of Total Mercury and Methylmercury in Aquatic Products of the Haihe Stem River	TONG Yin-dong, ZHANG Wei, DENG Chun-yan, <i>et al.</i> (942)
Distribution and Content of Transferable Nitrogen in the Soil of Water Level Fluctuating Zones of Mainstream and Its Tributary of Three Gorges Reservoir Areas During the Dry Period	HE Li-ping, LIU Dan, YU Zhi-guo, <i>et al.</i> (950)
Effect of Soil and Dominant Plants on Mercury Speciation in Soil and Water System of Water-Level-Fluctuation Zone in the Three Gorges Area	LIANG Li, WANG Yong-min, ZHANG Cheng, <i>et al.</i> (955)
Runoff Pollution Experiments of Paddy Fields Under Different Irrigation Patterns	ZHOU Jing-wen, SU Bao-lin, HUANG Ning-bo, <i>et al.</i> (963)
Grain Size Distribution Characteristics of Suspended Particulate Matter as Influenced by the Apparent Pollution in the Eutrophic Urban Landscape Water Body	GONG Dan-yan, PAN Yang, HUANG Yong, <i>et al.</i> (970)
Effect of Intermittent Aeration on Nitrogen Removal Efficiency in Vertical Subsurface Flow Constructed Wetland	WANG Jian, LI Huai-zheng, ZHEN Bao-chong, <i>et al.</i> (980)
Effect of Non-dissolved Quinone on Perchlorate Reduction by Strain GWF	ZHANG Yuan-yuan, GUO Yan-kai, ZHANG Chao, <i>et al.</i> (988)
Effects of UV Radiation on the Physicochemical Properties and Coagulation Properties of Humic Acid Solution	WANG Wen-dong, ZHANG Ke, FAN Qing-hai, <i>et al.</i> (994)
Removal of Sulfate Ions from Aqueous Solution by Adsorption with Hydrotalcite-like Composite	GU Yi-bing, MA Yong-wen, WAN Jin-quan, <i>et al.</i> (1000)
Effects of Fulvic Acid on Adsorption and Form Distribution of Heavy Metals on Sediments	LI Yu-qing, HE Jiang, LÜ Chang-wei, <i>et al.</i> (1008)
Rapid Synthesis of Metal Organic Framework and Its Adsorption Properties on Anionic Dyes	SUN De-shuai, LIU Ya-li, ZHANG Xiao-dong, <i>et al.</i> (1016)
Adsorption Properties of Fluorine onto Fulvic Acid-Bentonite Complex	FANG Dun, TIAN Hua-jing, YE Xin, <i>et al.</i> (1023)
Influence of Three Low-Molecular-Weight Organic Acids on the Adsorption of Phenanthrene in Purple Soil	XIE Li, CHEN Ben-shou, ZHANG Jin-zhong, <i>et al.</i> (1032)
Adsorptive Stabilization of Soil Cr(VI) Using HDTMA Modified Montmorillonite	JIANG Ting-ting, YU Kai, LUO Qi-shi, <i>et al.</i> (1039)
Effects of Hydrothermal Treatment Time on the Transformations of N, P, K and Heavy Metals in Sewage Sludge	WANG Xing-dong, LIN Jing-jiang, LI Zhi-wei, <i>et al.</i> (1048)
Inhibition of Denitrification by Total Phenol Load of Coal Gasification Wastewater	ZHANG Yu-ying, CHEN Xiu-rong, WANG Lu, <i>et al.</i> (1055)
Element Sulfur Autotrophic Denitrification Combined Anaerobic Ammonia Oxidation	ZHOU Jian, HUANG Yong, LIU Xin, <i>et al.</i> (1061)
Changes of Microbial Community Structure in Activated Sludge Bulking at Low Temperature	DUAN Zheng-hua, PAN Liu-ming, CHEN Xiao-ou, <i>et al.</i> (1070)
Synergetic Inhibitory Effect of Free Ammonia and Aeration Phase Length Control on the Activity of Nitrifying Bacteria	SUN Hong-wei, LÜ Xin-tao, WEI Xue-fen, <i>et al.</i> (1075)
Heterotrophic Nitrification and Aerobic Denitrification of the Hypothermia Aerobic Denitrification Bacterium: <i>Arthrobacter arilaitensis</i>	HE Teng-xia, NI Jiu-pai, LI Zhen-lun, <i>et al.</i> (1082)
Isolation, Identification and Nitrogen Removal Characteristics of a Heterotrophic Nitrification-Aerobic Denitrification Strain y3 Isolated from Marine Environment	SUN Qing-hua, YU De-shuang, ZHANG Pei-yu, <i>et al.</i> (1089)
Estimation of Topsoil Carbon Sequestration Potential of Cropland Through Different Methods: A Case Study in Zhuanglang County, Gansu Province	SHI Chen-di, XU Ming-xiang, QIU Yu-jie (1098)
Priming Effects of Soil Moisture on Soil Respiration Under Different Tillage Practices	ZHANG Yan, LIANG Ai-zhen, ZHANG Xiao-ping, <i>et al.</i> (1106)
Effects of Green Manure Intercropping and Straw Mulching on Winter Rape Rhizosphere Soil Organic Carbon and Soil Respiration	ZHOU Quan, WANG Long-chang, XIONG Ying, <i>et al.</i> (1114)
Heidaigou Opencast Coal Mine: Soil Enzyme Activities and Soil Physical and Chemical Properties Under Different Vegetation Restoration	FANG Ying, MA Ren-tian, AN Shao-shan, <i>et al.</i> (1121)
C, N, P, K Stoichiometric Characteristic of Leaves, Root and Soil in Different Abandoned Years in Loess Plateau	ZHANG Hai-dong, RU Hai-li, JIAO Feng, <i>et al.</i> (1128)
Soil Heavy Metal Spatial Distribution and Source Analysis Around an Aluminum Plant in Baotou	ZHANG Lian-ke, LI Hai-peng, HUANG Xue-min, <i>et al.</i> (1139)
Mixture Leaching Remediation Technology of Arsenic Contaminated Soil	CHEN Xun-feng, LI Xiao-ming, CHEN Can, <i>et al.</i> (1147)
Performance of Electricity Generation and Feasibility of Discontinuous Power Supply of MFC by Using Pretreated Excess Sludge as Fuel	ZHAO Yan-hui, ZHAO Yang-guo, GUO Liang (1156)
Correlation of Persistent Free Radicals, PCDD/Fs and Metals in Waste Incineration Fly Ash	WANG Tian-jiao, CHEN Tong, ZHAN Ming-xiu, <i>et al.</i> (1163)
Effects of Eliminating Backward Production Capacities on Reduction of Dioxin Emissions in Key Industries	GENG Jing, LÜ Yong-long, REN Bing-nan, <i>et al.</i> (1171)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 欧阳自远

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军
朱永官 刘志培 刘 毅 汤鸿霄 孟 伟 周宗灿 林金明
欧阳自远 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞
黄 耀 鲍 强 潘 纲 潘 涛 魏复盛

环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2016年3月15日 第37卷 第3期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 37 No. 3 Mar. 15, 2016

主 管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主 办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协 办	(以参加先后为序) 北京市环境保护科学研究院 清华大学环境学院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主 编	欧阳自远	Editor-in-Chief		OUYANG Zi-yuan
编 辑	《环境科学》编辑委员会 北京市2871信箱(海淀区双清路 18号, 邮政编码:100085) 电话:010-62941102, 010-62849343 传真:010-62849343 E-mail: hjkx@rcees.ac.cn http://www.hjkx.ac.cn	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science (HUANJING KEXUE) P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel:010-62941102, 010-62849343; Fax:010-62849343 E-mail: hjkx@rcees.ac.cn http://www.hjkx.ac.cn
出 版	科 学 出 版 社 北京东黄城根北街16号 邮政编码:100717	Published	by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印 刷 装 订	北京北林印刷厂	Printed	by	Beijing Bei Lin Printing House
发 行	科 学 出 版 社 电话:010-64017032 E-mail: journal@mail.sciencep.com	Distributed	by	Science Press Tel:010-64017032 E-mail: journal@mail.sciencep.com
订 购 处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易总公司 (北京399信箱)	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号: ISSN 0250-3301
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国 内 定 价: 120.00 元

国外发行代号: M 205

国 内 外 公 开 发 行