

# 微生物燃料电池处理丙酮和氨氮废水及同步产电性能

刘远峰<sup>1,2</sup>, 王 乐<sup>1,2</sup>, 张秀玲<sup>1,2\*</sup>, 郝文龙<sup>1,2</sup>,  
任婷莉<sup>1,2</sup>, 郭开祥<sup>1,2</sup>, 李从举<sup>1,2\*</sup>

(1. 北京科技大学 北京市高效节能与环保工程研究中心, 北京 100083; 2. 北京科技大学 能源与环境工程学院, 北京 100083)

**摘要:** 利用阴离子交换膜作为分隔膜构建了生物阴极微生物燃料电池 (MFC), 通过硝化反硝化过程去除氨氮、降解丙酮同时产电。考察了丙酮质量浓度对 MFC 产电性能及氨氮 (质量浓度 200 mg/L) 和化学需氧量去除率的影响, 采用高通量测序技术分析了阳极及阴极微生物群落结构。结果表明, 在丙酮质量浓度为 50~700 mg/L 范围内, 丙酮的去除率均在 96% 以上; 当丙酮质量浓度 > 300 mg/L 时, 氨氮的去除开始受到抑制, 氨氮最高去除率为 73.7%, 且丙酮质量浓度为 300 mg/L 时, 对应的 MFC 的产电性能最佳, 最高输出功率密度可达 49.7 mW/m<sup>2</sup>。从门级分类上看, 阳极中的优势微生物群落主要为变形菌, 拟杆菌门及厚壁菌门; 阴极上的优势微生物群落为拟杆菌门、放线菌门、变形菌门及酸杆菌门。从属级分类上看, 阳极主要的优势菌种为 *Comamonas*、*Acetoanaerobium*、*Stenotrophomonas*。阴极主要的优势菌种为 *Rhodococcus*、*Aridibacter*、*Thauera*、*Ignavibacterium*。

**关键词:** 微生物燃料电池; 硝化反硝化; 丙酮; 氨氮; 功率密度; 水处理技术

中图分类号: X783

文献标识码: A

文章编号: 1003-5214 (2022) 01-0187-07

开放科学 (资源服务) 标识码 (OSID):



## Treatment of acetone and ammonia-nitrogen wastewater and simultaneous power generation using microbial fuel cell

LIU Yuanfeng<sup>1,2</sup>, WANG Le<sup>1,2</sup>, ZHANG Xiuling<sup>1,2\*</sup>, JIA Wenlong<sup>1,2</sup>,  
REN Tingli<sup>1,2</sup>, GUO Kaixiang<sup>1,2</sup>, LI Congju<sup>1,2\*</sup>

(1. Beijing Higher Institution Engineering Research Center of Energy Conservation and Environmental Protection, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China; 2. School of Energy and Environmental Engineering, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China)

**Abstract:** Biocathode microbial fuel cell (MFC) was constructed by using anion exchange membrane as separator, which could remove ammonia nitrogen by simultaneous nitrification and denitrification process, degrade acetone and generate electricity. The effects of acetone mass concentrations on electricity generation performance of MFC, ammonia nitrogen (mass concentration 200 mg/L) removal rate and chemical oxygen demand removal rate were investigated. The microbial communities of anode and cathode were analyzed by high throughput sequencing technology. The results showed that the removal rate of acetone (mass concentration in the range of 50~700 mg/L) was more than 96%. When acetone mass concentration was higher than 300 mg/L, the removal of ammonia nitrogen began to be inhibited, and the highest removal rate of ammonia nitrogen was 73.7%. Besides, when acetone mass concentration was 300 mg/L, the corresponding MFC achieved the highest electricity generation performance with the highest

收稿日期: 2021-07-22; 定用日期: 2021-09-10; DOI: 10.13550/j.jxhg.20210749

基金项目: 国家自然科学基金 (51973015); 中央高校基本科研业务费专项资金 (06500100, 0612062); 北京市青年人才托举工程

作者简介: 刘远峰 (1990—), 男, 博士生, E-mail: liuyuanfeng1113@126.com。联系人: 张秀玲 (1989—), 女, 博士, E-mail: zxl3705@sina.com; 李从举 (1972—), 男, 教授, E-mail: congju@126.com。

output power density of 49.7 mW/m<sup>2</sup>. At the phylum level, the dominant microbial communities of anode were mainly *Proteobacteria*, *Bacteroidetes* and *Firmicutes*, while those of cathode were *Bacteroidetes*, *Actinobacteria*, *Proteobacteria* and *Acidobacteria*. At the genus level, the dominant bacteria of anode were *Comamonas*, *Acetoanaerobium* and *Stenotrophomonas*, while those of cathode were *Rhodococcus*, *Aridibacter*, *Thauera* and *Ignavibacterium*.

**Key words:** microbial fuel cells; nitrification and denitrification; acetone; ammonia nitrogen; power density; water treatment technology

丙酮作为基本的有机原料,广泛应用于农药、医药、涂料等行业,这些行业排放的有机废水中含有高浓度的丙酮和氨氮化合物,且这些废水本身具有复杂性和毒性,若直接排放到环境中,会对人体健康和环境产生严重的危害<sup>[1-3]</sup>。因此,为了保障人类和环境生态系统的健康与安全,有必要对丙酮/氨氮废水进行高效处理。

目前,处理丙酮/氨氮废水的方法有氧化(化学、电化学、光催化及其他氧化工艺)<sup>[4]</sup>、溶剂萃取<sup>[5]</sup>、吸附<sup>[6]</sup>和生物降解技术<sup>[7]</sup>。在这些技术中,生物法具有经济、环保、不产生二次副产物和污染物等优点,受到广泛青睐<sup>[7]</sup>。金艳青等<sup>[8]</sup>将膜工艺与厌氧生物反应器组合构建了沼气循环厌氧膜生物反应器,并用于处理丙酮废水,丙酮去除率高达 91.18%,膜截留与沼气循环装置大大提升了该反应器的混合和传质性能,但膜污染和成本问题有待解决。有机废水中含有大量的生物质能源,若能从有机废水中提取能量,有望缓解污水处理的成本问题。微生物燃料电池(MFC)是利用微生物的催化氧化作用将有机废水中的化学能转换为电能,能够同时实现废水处理与电能回收,是一种绿色能源技术<sup>[9-11]</sup>。近些年,MFC已成功地从养殖场废水<sup>[12]</sup>、垃圾渗滤液<sup>[13]</sup>、制革废水<sup>[14]</sup>等污染物中提取能源,实现了废水的资源化处理,但目前关于 MFC 同步降解丙酮/氨氮废水及产电的研究鲜见报道。从工程角度来看,同时去除丙酮和氨氮是非常必要的研究,这既可以降低占地面积,又可以减少水力停留时间和运行成本。典型的双室 MFC 包括阳极室、阴极室和中间离子交换膜,基于阳极室的厌氧环境和阴极室的好氧环境,为丙酮和氨氮的去除提供了理论可能性。MFC 阴极通过硝化作用将氨氮转化为硝态氮及亚硝态氮,主要通过以下两种途径去除:一是硝态氮或亚硝态氮通过阴离子交换膜(CEM)到达阳极室,通过反硝化细菌的作用转化为 N<sub>2</sub>;二是硝态氮可作为阴极电子受体,与从阳极产生的电子和质子结合,最终被还原为 N<sub>2</sub><sup>[15]</sup>。同时丙酮在阴极好氧微生物的作用下分解为 CO<sub>2</sub> 和 H<sub>2</sub>O,由于丙酮降解菌和硝化细菌会相互抑制,因而有必要研究丙酮的浓度对氨氮去除的影响及 MFC 的产电状况。再者,在一个反应器内实

现丙酮去除、硝化和反硝化过程的机理值得探讨。

本研究拟采用双室 MFC 处理丙酮/氨氮废水同时回收电能,探究不同丙酮质量浓度对氨氮去除的影响以及 MFC 的产电性能,并测试阴极以及阳极的微生物群落结构。本研究对于推动 MFC 技术处理难降解有机废水及硝化和反硝化过程的应用具有重要的理论价值和实践意义。

## 1 实验部分

### 1.1 试剂与仪器

双室 MFC,单腔室的容积为 500 mL,阳极采用石墨碳毡(2 cm×5 cm,GF065,碳能科技股份有限公司),阴极为碳布(2 cm×5 cm,WOS1009,碳能科技股份有限公司),碳布和碳毡使用前需要依次经过丙酮、乙醇、去离子水超声 15 min 进行预处理,去除纤维表面的杂质;两室间用 CEM(7 cm×7 cm,FAA-3-PK-130,德国 Fumasep)分割,CEM 使用前用质量分数 0.5%的 NaCl 溶液浸泡 72 h 以去除添加剂;用钛丝导线连接阳极和阴极,两极之间连接可变电阻箱(ZX21,上海东茂电子科技有限公司)调节电阻大小,外联数据采集卡(MPS-010602,北京启创莫非电子科技有限公司)记录 MFC 的输出电压;电化学性能测试通过配备有三电极体系的电化学工作站(CHI660E,上海辰华仪器有限公司)进行;MFC 装置放入到恒温恒湿(30%)培养箱中,设定温度为(32±2) °C。

### 1.2 污泥接种

厌氧及好氧污泥分别取自污水处理工艺(北京碧水源科技股份有限公司)的厌氧段及好氧段,厌氧污泥使用阳极液进行驯化,阳极液主要成分如下:质量浓度为 0.50 g/L 乙酸钠、0.50 g/L 氯化钠、1.00 g/L 碳酸氢钠、0.53 g/L 磷酸二氢钾、3.30 g/L 磷酸氢二钠、5 mL 微量元素溶液〔每升微量元素溶液含有 10 mL 盐酸(质量分数 25%)、1.50 g 四水合氯化铁、0.07 g 氯化锌、0.10 g 四水合氯化锰、0.19 g 六水合氯化钴、2 mg 二水合氯化铜、0.02 g 六水合氯化镍、0.04 g 钼酸钠〕、5 mL 维生素溶液(每升维生素溶液含有 20 mg 生物素、20 mg 维生素 B、100 mg 盐酸吡哆醇、50 mg 盐酸硫胺素、50 mg

核黄素、50 mg 烟酸、50 mg D-泛酸钙、50 mg 维生素 B12、50 mg 对氨基苯甲酸、50 mg 硫辛酸、50 mg 烟酰胺、50 mg 氯化血红素、50 mg 1,2-萘醌、50 mg 维生素 K2)。阴极液中主要成分为丙酮(质量浓度分别为 50、100、300、500、700 mg/L)、氨氮(质量浓度为 200 mg/L)、磷酸盐缓冲液(PBS, 0.5 mol/L, pH 7.3)。用阴极液驯化好氧污泥并曝气, 将驯化好的污泥分别装入阳极室和阴极室, 并添加阳极液和阴极液进行 MFC 启动, 每次电压低于 0.05 V 更换阳极液及阴极液, 采用分批次进样, 连续启动 3 个周期待输出电压稳定后进行产电性能测试, 每次更换阳极液时用 N<sub>2</sub> 吹 5 min 以保证厌氧环境, 阴极室通入空气保证好氧微生物的活性。

### 1.3 分析测试方法

化学需氧量(COD)按照 GB11914—89 测定。氨氮的测定按照 HJ 535—2009 测定。丙酮质量浓度的测定采用文献[16]报道的方法, 测试前水样用 0.45 μm 水系微孔滤膜过滤。功率密度通过稳态放电法测定, 即通过测定 MFC 在不同外电阻条件下稳定放电时的输出电压, 根据公式  $P = \frac{UI}{R}$  [电压  $U$  通过数据

采集卡测定(V), 电流  $I$ (A) 通过计算电压  $U$  与外接电阻的阻值  $R$ (Ω) 获得, 功率与阳极面积的比值即为功率密度  $P$ (mW/m<sup>2</sup>) ]。通过测定输出电压及电流密度得到极化曲线。循环伏安曲线和放电电流曲线通过电化学工作站进行测试, 其中电极材料作为工作电极, 甘汞电极作为参比电极(SCE), 铂电极作为对电极。阳极及阴极表面微生物的形貌通过场发射扫描电子显微镜(FESEM, SUPPA 55, 德国卡尔蔡司公司)进行分析, 微生物群落结构通过 16s rRNA 基因测序技术[生工生物工程(上海)股份有限公司])进行分析, 具体操作方法参照文献[17]。

## 2 结果与讨论

### 2.1 丙酮浓度对 MFC 输出电压的影响

外电阻设定为 1000 Ω, 测试了阴极溶液中不同丙酮质量浓度(50、100、300、500、700 mg/L)时对 MFC 产电性能的影响, 结果如图 1 所示。输出电压曲线分为电压上升期、电压稳定期以及电压下降期, 刚开始加入营养物质时, 阳极中的产电微生物消耗有机物产生电子, 电压逐渐升高直至稳定, 待阳极中的有机物消耗殆尽时, 产电微生物活性降低, 输出电压逐渐降低。阴极中加入丙酮和氨氮, 在好氧微生物的作用下, 丙酮逐渐被分解, 氨氮逐渐转变为亚硝态氮或硝态氮, 由于浓度梯度的原因, 部分亚硝态氮或硝态氮从阴极转移到阳极室, 在反硝化细菌的作用下转换成 N<sub>2</sub>。此外, NO<sub>3</sub>和 NO<sub>2</sub>具有

较高的氧化还原电势, 本身可作为电子受体与阳极产生的电子和质子结合发生化学反应, 生成 N<sub>2</sub>[18]。高浓度丙酮会抑制硝化细菌的活性, 使得氨氮的转换效率变低, 造成 NO<sub>3</sub>和 NO<sub>2</sub>浓度的降低, 因而会对 MFC 的产电性能产生影响。由图 1 可知, 随着丙酮质量浓度的逐渐升高直至 300 mg/L 时, MFC 的稳定输出电压基本在 0.22 V 左右, 说明丙酮质量浓度对硝化细菌的抑制作用较小。然而, 当丙酮质量浓度达到 500 mg/L 时, MFC 的输出电压逐渐减弱, 且呈逐渐下降趋势, 当丙酮质量浓度进一步增加到 700 mg/L 时, MFC 的输出电压进一步下降, 说明丙酮对硝化细菌的最佳抑制质量浓度为 300 mg/L。

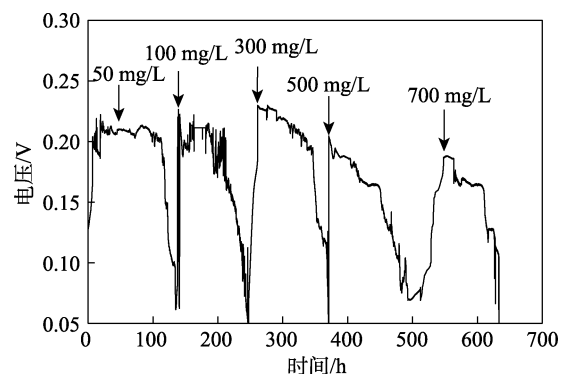


图 1 丙酮质量浓度对 MFC 输出电压的影响

Fig. 1 Effect of acetone mass concentration on MFC output voltage

### 2.2 功率密度和极化曲线

由于丙酮会抑制硝化细菌的活性进而影响氨氮转化成 NO<sub>3</sub>的量, 而且 NO<sub>3</sub>浓度又会影晌阳极反硝化细菌的活性以及阴极电子受体的浓度, 因而 MFC 的产电性能会存在差异。通过改变外电路电阻得到的功率密度曲线和极化曲线见图 2。由图 2a 可知, 当丙酮质量浓度为 300 mg/L 时, MFC 产生的最大输出功率密度为 49.7 mW/m<sup>2</sup>, 而高于或低于此质量浓度时, MFC 的输出功率密度均有所下降, 可能是由于丙酮质量浓度低时, 对硝化细菌的抑制作用小, 因而产生了大量的 NO<sub>3</sub>, 由于浓度梯度作用 NO<sub>3</sub>转移到阳极室, 反硝化细菌消耗了有机碳源, 将 NO<sub>3</sub>转换为 N<sub>2</sub>, 而产电微生物可利用的有机碳源减少, 导致产生的电子数量低, 因而输出功率密度低。丙酮质量浓度为 300 mg/L 时, 由于对硝化细菌的抑制作用小, 因而仍能产生足够量的 NO<sub>3</sub>, 一部分 NO<sub>3</sub>转移到阳极室参与反硝化过程, 然而由于丙酮质量浓度的升高, 导致溶液中氧气的浓度降低, 因而 NO<sub>3</sub>成为优势电子受体, 而另一部分直接在阴极与电子和质子结合, 转换成 N<sub>2</sub>, 因而 MFC 的输出功率有所升高。当丙酮质量浓度进一步升高时, 硝化细菌的活性受到抑制, 导致阴极中 NO<sub>3</sub>浓度降低, 由于

电子受体浓度降低, 导致阴极过电势现象严重, 阴极反应过程缓慢, 因而 MFC 产电性能降低。尽管如此, 与现有文献对比, 该 MFC 系统产生的功率密度仍然较低, 如 HWANG 等<sup>[19]</sup>通过向单室 MFC 中添加表面活性剂降解船底含油废水, 产生的最大输出功率密度为 225.3 mW/m<sup>2</sup>; RUGGERO 等<sup>[20]</sup>利用空气阴极处理生活污水, 产生的最大输出功率密度为 132 mW/m<sup>2</sup>。本系统产生的输出功率密度低的原因可能是由于 MFC 系统的容积较大, 且中间为离子交换膜分割, 增加了 MFC 的内阻, 导致产电性能差, 此外阴极电子受体为氧气及硝态氮, 使得阴极产生过电势现象, 导致阴极电化学反应速率缓慢, 因而 MFC 的产电效率低<sup>[21]</sup>。然而, 与其他研究相比, 产电并不是本研究的初衷, 本系统的主要优点在于在一个反应器内实现了丙酮降解且通过同步硝化反硝化过程去除氨氮。MFC 输出电压的大小与外接电阻有关, 如图 2b 所示, 可看到典型的 MFC 极化曲线, 即随着电流密度的逐渐增加, 在初始阶段的电流密度范围内电压迅速下降 (活化损失), 在中电流密度区域内电压缓慢下降 (欧姆损失), 在高电流密度区域内, 电压迅速下降 (浓度损失)。

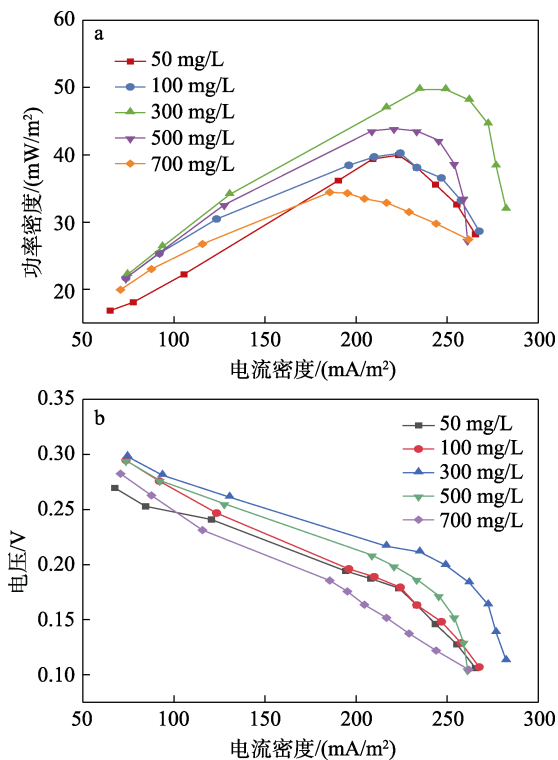


图 2 不同丙酮质量浓度下 MFC 的功率密度 (a) 和极化曲线 (b)

Fig. 2 Power density curves (a) and polarization curves (b) of MFC under different acetone mass concentrations

在同一电流密度下, 丙酮质量浓度为 300 mg/L 对应的 MFC 的电压均高于其他丙酮质量浓度的

MFC, 说明丙酮质量浓度为 300 mg/L 时有较好的产电效果, 此外, 极化曲线的斜率可反映 MFC 的内阻, 但通过该曲线发现内阻差别不大。

### 2.3 电化学性能测试

分别测试了阳极及阴极的电化学性能, 如图 3 所示。

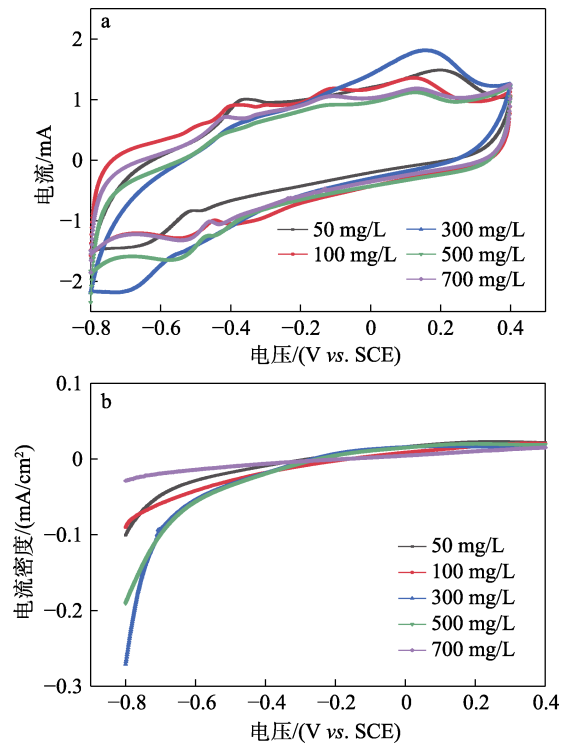


图 3 阳极循环伏安曲线 (a) 及阴极线性扫描伏安曲线 (b)

Fig. 3 Cyclic voltammetry curves of anode (a) and linear sweep voltammetry curves of cathode (b)

图 3a 为不同丙酮质量浓度时阳极的循环伏安曲线, 可以看出, 循环伏安曲线均出现了明显的氧化还原峰, 说明阳极电极上发生了氧化还原反应, 可能是由于阳极上的微生物氧化乙酸钠和 NO<sub>3</sub> 发生还原产生的。当丙酮质量浓度为 300 mg/L 时, 对应阳极的峰值电流最大, 说明此时阳极表面产电微生物活性最强, 这与之前所述的输出功率密度结果一致。图 3b 为阴极表面的线性伏安曲线, 通过线性扫描伏安曲线可以看出, 当丙酮质量浓度为 300 mg/L 时, 阴极表面的电流密度最大, 表明了阴极较快的电化学反应速率, 当丙酮质量浓度达到 700 mg/L 时, 对应的阴极电流密度接近 0, 进一步证明高丙酮质量浓度对硝化细菌的抑制性, 导致阴极中电子受体的浓度过低, 进而限制了 MFC 的产电性能。

### 2.4 污染物去除性能

测试了不同丙酮质量浓度下 MFC 对氨氮、阳极 COD 及丙酮的去除效果, 结果如图 4a 所示。

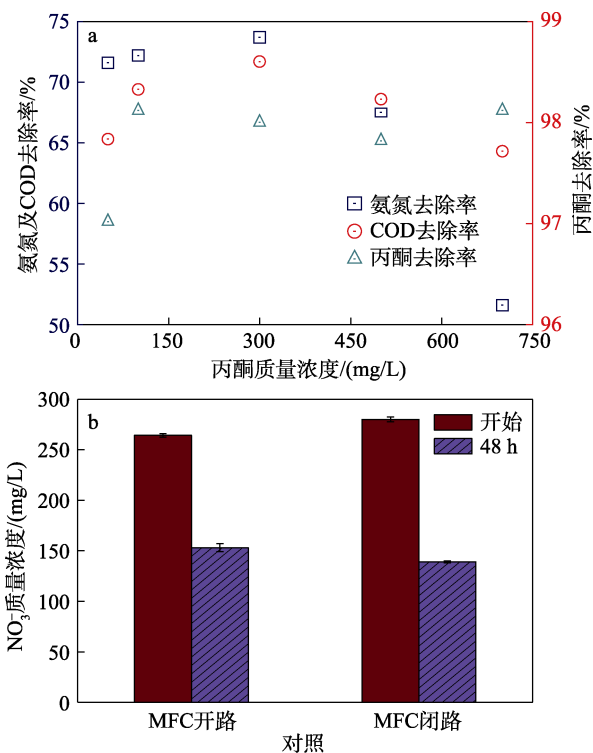


图 4 不同丙酮质量浓度下 MFC 对氨氮、COD 及丙酮去除率 (a); MFC 开路及闭路条件下  $\text{NO}_3^-$  质量浓度的变化 (b)

Fig. 4 Removal rates of ammonia nitrogen, COD and acetone by MFC at different acetone mass concentrations (a); Variation of  $\text{NO}_3^-$  concentration under open and closed MFC conditions (b)

由图 4a 可以看出, 氨氮去除率及 COD 去除率随着丙酮质量浓度的升高先增加后减小, 当丙酮质量浓度为 300 mg/L 时, 对应的氨氮及阳极 COD 去除效果最佳, 去除率分别为 73.7% 和 71.4%, 而丙酮质量浓度为 700 mg/L 时, 氨氮及阳极 COD 的去除率分别下降至 51.6%、64.3%。氨氮去除率下降的原因是由于高质量浓度的丙酮抑制了硝化细菌的活性, 使得氨氮的转换效率变低, 因而氨氮去除率下降, 而高质量浓度丙酮环境下, 阳极 COD 去除率下降的原因可能是阳极中较低浓度的  $\text{NO}_3^-$  抑制了反硝化过程, 由于反硝化过程同样需要消耗碳源, 因而阳极室中的有机物存在过剩现象, 使得阳极 COD 去除率下降。此外, 尽管产电微生物会代谢有机物产生电子和质子, 但由于阴极中电子受体  $\text{NO}_3^-$  浓度较低, 同样会限制阳极反应, 导致产电微生物对有机物的利用率下降。不同质量浓度下, 丙酮的去除率均在 96% 以上, 说明了 MFC 对丙酮具有较好的去除效果, 其测试结果与 MFC 处理苯酚及农药有机物类似, 如用双室 MFC 降解苯酚及氨氮废水苯酚的去除率高达 99% 以上<sup>[22]</sup>; 用双室 MFC 去除农药中的 2,4-二氯苯氧乙酸, 同时添加乙酸钠作为微生物共同碳源, 当运行时间足够长可实现 2,4-二氯苯氧乙酸的完全去除<sup>[23]</sup>。

为了进一步探究阴极中氨氮的去除路径, 直接在阴极室中加入  $\text{NO}_3^-$ , 探究了  $\text{NO}_3^-$  在 MFC 开路及闭路条件下的浓度变化, 结果如图 4b 所示。在 MFC 开路时加入的  $\text{NO}_3^-$  质量浓度为 264.38 mg/L, 经过 48 h 后阴极液中  $\text{NO}_3^-$  的质量浓度变为 153.15 mg/L; 在 MFC 闭路时加入  $\text{NO}_3^-$  质量浓度为 280.15 mg/L, 经过 48 h 后阴极液中  $\text{NO}_3^-$  的质量浓度变为 139.1 mg/L。结果表明, 当 MFC 开路时, 阳极产生的电子无法通过外电路传递到阴极, 因而阴极中的  $\text{NO}_3^-$  无法进行还原去除, 阴极中  $\text{NO}_3^-$  浓度的降低只能通过扩散到达阳极, 在反硝化细菌的作用下转换成  $\text{N}_2$ 。当 MFC 闭路后, 阳极产生的电子可通过外电路到达阴极, 与阴极中的  $\text{NO}_3^-$  发生还原反应, 将  $\text{NO}_3^-$  转换为  $\text{N}_2$ 。闭路条件下 MFC 对  $\text{NO}_3^-$  的去除效果明显高于开路条件, 说明阴极中  $\text{NO}_3^-$  的去除主要通过阴极还原及阳极反硝化过程去除。在 48 h 时, 闭路条件下阴极中并未检测到  $\text{NO}_2^-$ , 说明 MFC 闭路时,  $\text{NO}_3^-$  可能全部还原为  $\text{N}_2$ 。

## 2.5 微生物微观形貌分析

测试结束后, 分别对阳极及阴极表面的微生物形貌进行观察, 如图 5 所示。由图 5a 可以看出, 未负载微生物时, 碳毡表面非常光滑, 负载微生物后, 碳毡纤维表面被微生物完全包覆, 微生物之间基本没有孔隙, 说明阳极表面微生物浓度较高, 这些微生物是代谢有机物及产电的主要来源。由图 5b 可以看出, 碳布表面被好氧微生物包覆, 但微生物之间存在孔隙, 可能是由于阴极曝气的原因, 使得污泥多以小颗粒形貌存在, 污泥絮体蓬松。采用高通量测序技术分析了阳极及阴极表面的微生物种类, 结果如图 5c~e 所示。由图 5c 可以看出, 阳极上的优势菌主要隶属于变形菌、拟杆菌门及厚壁菌门, 研究证实, 目前, 已分离获得的产电微生物多集中在这几门门级上<sup>[24]</sup>。阴极上的微生物在门级上的组成如图 5d 所示, 发现优势微生物主要集中在拟杆菌门、放线菌门、变形菌门及酸杆菌门, 隶属于这些门级中的微生物起到降解丙酮、转换氨氮的作用。由图 5e 可以看出, 阳极上的优势菌主要为 *Comamonas*、*Acetoanaerobium*、*Stenotrophomonas*, 此外还有一些占比较高的微生物未被分类, 还需要进一步鉴定。刘茹等<sup>[25]</sup>在 MFC 阳极中同样发现了 *Comamonas*, 证实其具有产电性能。赵欣等<sup>[26]</sup>利用单室 MFC 除镍, 发现了产电微生物 *Acetoanaerobium*。蒋青青等<sup>[27]</sup>在探究不同污泥接种物对 MFC 菌群形成的影响研究中证实了电化学活性细菌 *Stenotrophomonas* 在生物电化学系统中占据重要位置。阴极上的优势菌隶属于 *Rhodococcus*、*Aridibacter*、*Thauera*、*Ignavibacterium*。据报道, 这些优势菌广



泛存在于多种废水处理装置中且具有多种芳香族污染物的降解能力<sup>[28]</sup>。 *Ignavibacterium* 在污水处理中是主要的脱氮功能菌，当有机氮存在时，其含量明

显升高<sup>[29]</sup>。此外还有一些未分类的微生物，这些微生物在降解丙酮的同时可将氨氮转化为硝态氮，实现污染物的高效移除。

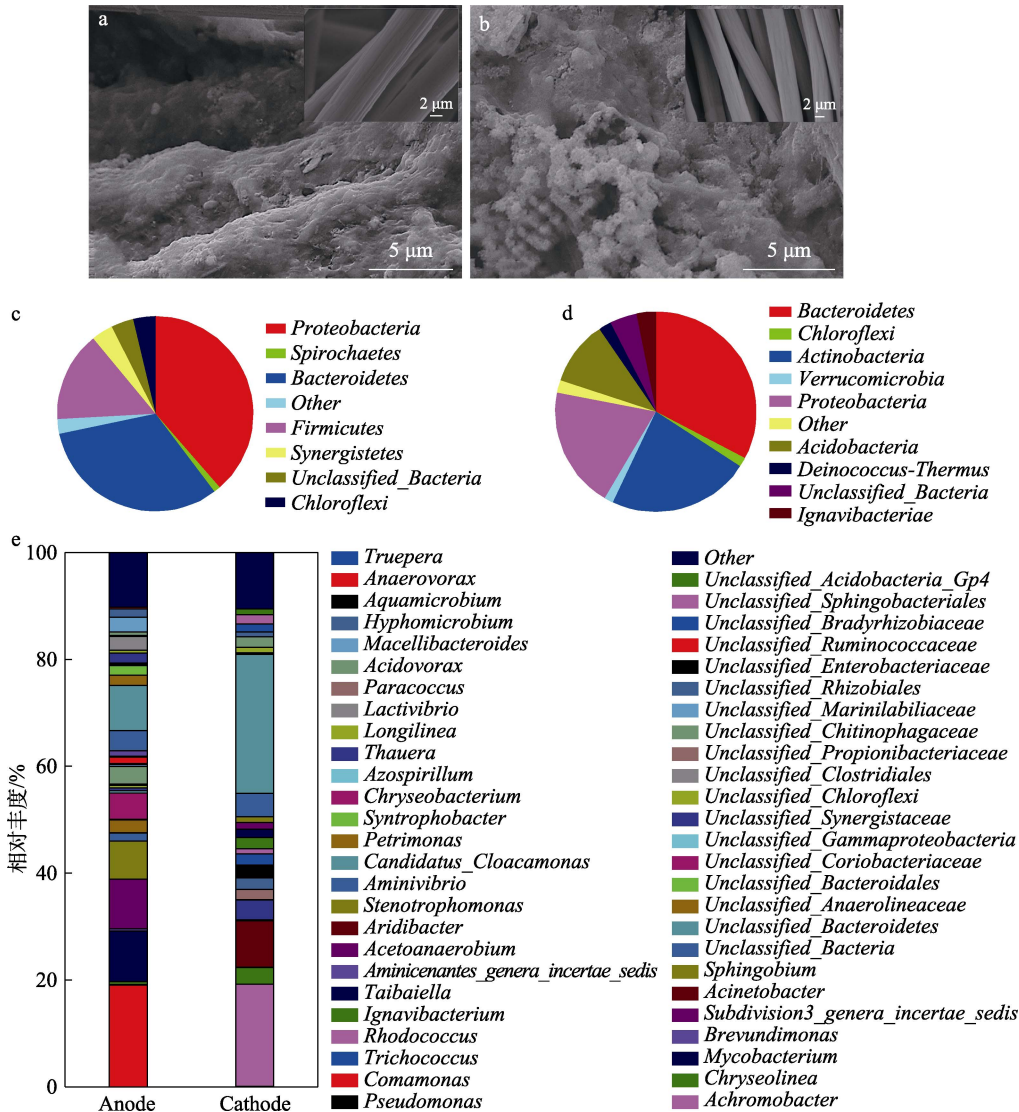


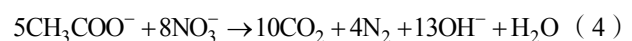
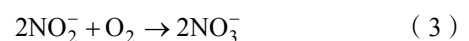
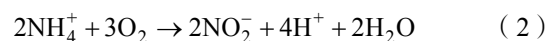
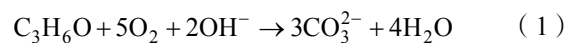
图 5 阳极产电微生物的 SEM 图 (a)；阴极微生物的 SEM 图 (b)；阳极微生物群落结构 (门) (c)；阴极微生物群落结构 (门) (d)；阳极及阴极微生物群落结构 (属) (e)

Fig. 5 SEM image of anodic exoelectrogens (a); SEM image of cathodic microorganism (b); Anodic microbial community structure at phylum level (c); Cathodic microbial community structure at phylum level (d); Microbial community structure of anode and cathode at genus level (e)

### 3 丙酮及氨氮潜在降解途径

结合以上研究结果，将丙酮和氨氮污染物的降解途径归结为图 6。在阴极室，一些好氧微生物如 *Rhodococcus*、*Aridibacter*、*Thauera*，利用丙酮作为营养物质供自身繁殖，实现丙酮的降解〔式 (1)〕。然后这些优势菌如 *Ignavibacterium* 参与硝化反应，将氨氮转换为硝态氮〔式 (2) 和 (3)〕，当丙酮质量浓度低于 300 mg/L 时，未发现丙酮降解菌对硝化细菌的抑制现象，生成的  $\text{NO}_3^-$  一部分转移到阳极室，在阳极室中反硝化细菌的作用下实现脱氮效果〔式

(4)〕。另一部分作为阴极中的电子受体，与产电微生物产生的电子和质子结合〔式 (5) 和 (6)〕，实现脱氮过程。由于阴极室中主要的电子受体是氧气〔式 (7)〕和  $\text{NO}_3^-$ ，存在明显的阴极过电势现象，导致阴极反应速率缓慢，因而，MFC 的产电性能较低。



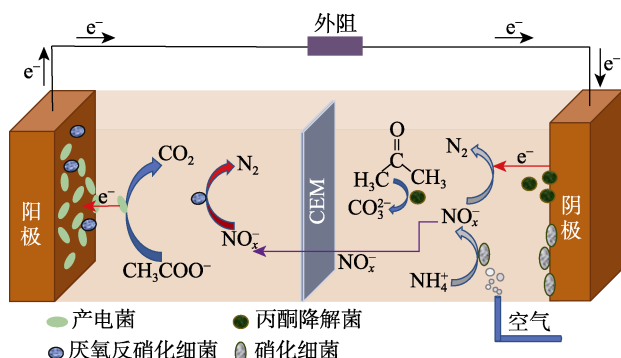
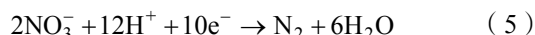


图 6 MFC 同步去除丙酮和氨氮的构想路径

Fig. 6 Proposed pathways for simultaneous removal of acetone and nitrogen in MFC

## 4 结论

本研究成功实现了在双室 MFC 中降解丙酮和氨氮同时回收电能的目的, 当丙酮质量浓度 <300 mg/L 时, 阴极中的硝化细菌未受到明显的抑制, 产生的最大输出功率密度为 49.7 mW/m<sup>2</sup>, 最高 COD 和氨氮去除效率分别为 71.4% 和 73.7%。此外, 丙酮的去除率均在 96% 以上, 说明具有高效的丙酮及氨氮去除性能。对阳极及阴极中的微生物结构进行分析发现, 阳极中的优势菌为 *Comamonas*、*Acetoanaerobium*、*Stenotrophomonas*; 阴极中的主要优势菌为 *Rhodococcus*、*Aridibacter*、*Thauera*、*Ignavibacterium*。本研究为 MFC 在丙酮及氨氮废水的实际应用方面提供了新的思路。

## 参考文献:

[1] WU H, FU Y, GUO C Y, *et al.* Electricity generation and removal performance of a microbial fuel cell using sulfonated poly(ether ether ketone) as proton exchange membrane to treat phenol/acetone wastewater[J]. *Bioresource Technology*, 2018, 260: 130-134.

[2] LIU H B (刘寒冰), JIANG X (姜鑫), WANG X (王新), *et al.* Toluene, benzene and acetone adsorption by activated carbon coated with PDMS[J]. *Environmental Science (环境科学)*, 2016, 37(4): 1287-1294.

[3] XIONG L, HUANG C, CHEN X F, *et al.* Comparison of fermentation by mono-culture and co-culture of oleaginous yeasts for ABE (acetone-butanol-ethanol) fermentation wastewater treatment[J]. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 2016, 4(4): 3803-3809.

[4] CHEN Y F (陈月芳), FAN R (樊荣), TENG K J (滕科均), *et al.* Experimental study on pretreatment of phenol acetone wastewater by electro-catalytic oxidation[J]. *China Environmental Science (中国环境科学)*, 2017, 1: 131-138.

[5] CHOI J, JEONG J H, CHUNG J. Degradation of acetone and isopropylalcohol in electronic wastewater using Fe- and Al-immobilized catalysts[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2013, 218: 260-266.

[6] KODAMATANI H, YOSHIMINE D, FUJIOKA T, *et al.* A novel luminol chemiluminescence induced by photoexcited ketones: A selective determination method for acetone in wastewater[J]. *Talanta Open*, 2021, 3: 100035-100040.

[7] QUESNEL D, NAKHLA G. Removal kinetics of acetone and MIBK from a complex industrial wastewater by an acclimatized activated

sludge[J]. *Journal of Hazard Materials*, 2006, 132: 253-260.

[8] JIN Y Q (金艳青), QI G Y (祁高月), LI Y (李勇), *et al.* Methane cycle anaerobic membrane bioreactor for treating mixed wastewater of acetone and isopropyl alcohol at normal temperature[J]. *Chinese Journal of Environmental Engineering (环境工程学报)*, 2016, 10: 5617-5623.

[9] LIU Y F (刘远峰), ZHANG X L (张秀玲), LI C J (李从举). Advances in carbon-based anode materials for microbial fuel cells[J]. *Chinese Journal Engineering (工程科学学报)*, 2019, 42: 270-277.

[10] LIU Y F, ZHANG X L, ZHANG Q C, *et al.* Microbial fuel cell: Nanomaterials based on anode and their application[J]. *Energy Technology*, 2020, 8: 2000206-2000215.

[11] ZU B (祖波), MA L (马兰), LIU B (刘波), *et al.* Effects of organic substrates on anammox-MFC denitrification electrogenesis performance[J]. *Environmental Science (环境科学)*, 2018, 39: 3937-3945.

[12] YE Y Y, NGO H H, GUO W S, *et al.* Feasibility study on a double chamber microbial fuel cell for nutrient recovery from municipal wastewater[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2019, 358: 236-242.

[13] SONAWANE J M, ADELOJU S B, GHOSH P C. Landfill leachate: A promising substrate for microbial fuel cells[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2017, 42: 23794-23798.

[14] SAWASDEE V, PISUTPAISAL N. Simultaneous pollution treatment and electricity generation of tannery wastewater in air-cathode single chamber MFC[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2016, 41(35): 15632-15637.

[15] FENG C H, HUANG L Q, YU H, *et al.* Simultaneous phenol removal, nitrification and denitrification using microbial fuel cell technology[J]. *Water Research*, 2015, 76: 160-170.

[16] ZHANG C J (张彩娟), XIE B H (谢碧海). Determination of acetone in polluted water by ultraviolet spectrophotometry[J]. *Zhejiang Journal of Preventive Medicine (浙江预防医学)*, 2001, 13: 51-52.

[17] LI Z L, CHENG R, CHEN F, *et al.* Selective stress of antibiotics on microbial denitrification: Inhibitory effects, dynamics of microbial community structure and function[J]. *Journal of Hazard Materials*, 2021, 405: 124366-124378.

[18] SLATE A J, WHITEHEAD K A, BROWNSON D A C, *et al.* Microbial fuel cells: An overview of current technology[J]. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 2019, 101: 60-81.

[19] HWANG J H, KIM K Y, RESURRECCION E P, *et al.* Surfactant addition to enhance bioavailability of bilge water in single chamber microbial fuel cells (MFCs)[J]. *Journal of Hazard Materials*, 2019, 368: 732-738.

[20] RUGGERO R, YANG W L, EMILY Z, *et al.* In-situ biofilm removal from air cathodes in microbial fuel cells treating domestic wastewater[J]. *Bioresource Technology*, 2018, 265: 200-206.

[21] 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.

[22] LIU Y F, ZHANG X L, LI H Y, *et al.* Porous  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanofiber combined with carbon nanotube as anode to enhance the bioelectricity generation for microbial fuel cell[J]. *Electrochimica Acta*, 2021, 391: 138984-138992.

[23] QUAN X C (全向春), QUAN Y P (全燕苹), XIAO Z T (肖竹天). Enhanced removal of herbicide 2, 4-dichlorophenoxyacetic acid and simultaneous power generation in microbial fuel cells[J]. *Environmental Science (环境科学)*, 2017, 38: 1067-1073.

[24] LIU Y F (刘远峰), ZHANG X L (张秀玲), ZHANG Q C (张其春), *et al.* Research progress of anode electrogenic microorganisms in microbial fuel cells[J]. *Fine Chemicals (精细化工)*, 2020, 37: 1729-1737.

[25] LIU R (刘茹), ZHAO Y G (赵阳国), LU S S (卢珊珊), *et al.* Electricity generation from lactate using microbial fuel cell and the distribution characteristics of anode microbial community[J]. *Acta Microbiologica Sinica (微生物学报)*, 2012, 52: 744-752.

[26] ZHAO X (赵欣), WU Y N (吴忆宁), WANG L (王岭), *et al.* Removal of Ni(II) and microbial dynamics in single-chamber microbial electrolysis cell[J]. *Acta Microbiologica Sinica*, 2016, 56: 1794-1801.

[27] JIANG Q Q (蒋青青), ZHANG L (张璐), SUN R (孙睿), *et al.* Impact of different sludge inoculum on microbial community formation of the microbial fuel cells[J]. *Journal of Harbin Institute Technology (哈尔滨工业大学学报)*, 2018, 50(2): 34-39.

[28] LIN X Q, LI Z L, LIANG B, *et al.* Identification of biofilm formation and exoelectrogenic population structure and function with graphene/polyaniline modified anode in microbial fuel cell[J]. *Chemosphere*, 2019, 219: 358-364.

[29] HE S, DING L L, LI K, *et al.* Comparative study of activated sludge with different individual nitrogen sources at a low temperature: Effluent dissolved organic nitrogen compositions, metagenomic and microbial community[J]. *Bioresource Technology*, 2018, 247: 915-923.