

DOI:10.19853/j.zgjsps.1000-4602.2022.22.002

人工湿地中的微生物电化学技术耦合体系原理及其演变

付晶淼¹, 赵亚乾^{1,2}, 袁玉杰¹, Olivia Addo-Bankas¹, 卫婷¹

(1. 西安理工大学 西北旱区生态水利工程国家重点实验室, 陕西 西安 710048; 2. 都柏林大学土木工程系 Dooge 水研究中心, 爱尔兰)

摘要: 人工湿地用于废水处理是一项成本低且效益好的成熟技术。为了进一步优化该技术,降低建设成本,近年来发展了一系列人工湿地强化系统。在过去的10年,对微生物电化学技术与人工湿地相结合的探索为强化湿地处理系统提供了新的选择,形成了一系列耦合系统,并以较低的占地面积保持高性能运行。基于这种理念,阐释了微生物电化学技术的基本原理以及与人工湿地相结合的可能性和耦合系统效益。重点介绍了人工湿地-微生物燃料电池、人工湿地-微生物电解池、人工湿地-微生物电化学通气管等耦合体系的发展演变过程。讨论了耦合体系面临的挑战及发展前景,以为微生物电化学技术与人工湿地耦合技术发展提供参考。

关键词: 人工湿地; 微生物电化学技术; 人工湿地-微生物燃料电池; 人工湿地-微生物电解池; 人工湿地-微生物电化学通气管

中图分类号: TU992 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-4602(2022)22-0008-08

Principles and Evolution of the Microbial Electrochemical Technology Merging System in Constructed Wetlands

FU Jing-miao¹, ZHAO Ya-qian^{1,2}, YUAN Yu-jie¹, ADDO-BANKAS Olivia¹, WEI Ting¹

(1. State Key Laboratory of Eco-hydraulics in Northwest Arid Region of China, Xi'an University of Technology, Xi'an 710048, China; 2. Dooge Centre for Water Resources Research, School of Civil Engineering, University College Dublin, Ireland)

Abstract: Constructed wetland (CW) is a mature technology with low cost and good efficiency for wastewater treatment. A series of intensified CW systems have been developed in recent years to further optimize this technology and reduce construction costs. In the past decade, there has been growing interest in exploring the possibility of merging microbial electrochemical technology (MET) with CW, offering a new option of an intensified wetland system that could maintain high performance with a lower footprint. Based on this concept, the general principles of MET, and the possibility and benefits of merging with CW were introduced. The development and evolution of several merging systems of constructed wetland-microbial fuel cell (CW-MFC), constructed wetland-microbial electrolytic cell (CW-MEC) and constructed wetland-microbial electrochemical snorkel (CW-MES) were highlighted. In addition, the challenges and development prospects of the merging systems were discussed. It is expected to provide a reference for the further development of MET and CW coupling technology.

Key words: constructed wetlands; MET; CW-MFC; CW-MEC; CW-MES

人工湿地(CW)是一种以生物膜法为主要原理的污水生物处理系统,具有处理生活污水、工业废水、径流和农业等不同来源废水的能力^[1]。CW技术可靠且成本低、效益好,操作维护简单,但占地面积大^[2]。因此,为了减少占地面积和提高污水处理效率,近些年发展了一系列CW强化措施和系统,如通过强化供氧来增强氧化代谢的潮汐流人工湿地^[3],以及将CW与微生物电化学技术(MET)相结合的耦合系统^[4]。

MET是基于微生物学和电化学而迅速发展起来的技术^[5],其原型是微生物燃料电池(MFC),可以将有机或无机化合物的化学能转化为电能。MET是一种用来模拟细菌通过电路与不溶性电子供体和受体(如固态电极)交换代谢电子的装置,一般由阳极室和阴极室组成,以水溶液为微生物的能量源,由离子交换膜隔开,电极刺激氧化还原反应的发生。研究发现,MET可以从污水中去除各种污染物,如有机物以及含氮和磷的化合物,为传统污水处理提供了有效的强化处理方法^[6]。除了将污染物的化学能转化为电能外,MET还可用作生物传感器,用于在线监测废水处理或厌氧消化过程。因此,微生物电化学技术在去除污染物、产电和监控整个处理过程方面具有很大的潜力。

在CW实践中,沿CW深度剖面产生的电势差可用于MET运行,形成一种产电的但同时强化污染物去除的新技术^[7]。因此,综述了CW与不同MET耦合的可能性及优势,重点介绍了耦合体系的原理及其演变。

1 微生物电化学技术在人工湿地中的耦合

1.1 微生物电化学技术回顾

生物电化学系统(BES)是从微生物学与电化学的结合领域衍生出来的系统,主要包括微生物电化学、酶电化学、生物分子电化学。

微生物电化学的第一次实验可以追溯到20世纪上半叶,Potter的研究结果涉及某些细菌在氧化底物过程中的产电能力,然后是Hooker试图利用氧化还原反应创建一个电细胞,Schroeder等^[5]则描述了生物化学领域的学科与生物电化学系统的相互关系以及微生物电化学技术的应用,具体如图1

所示。

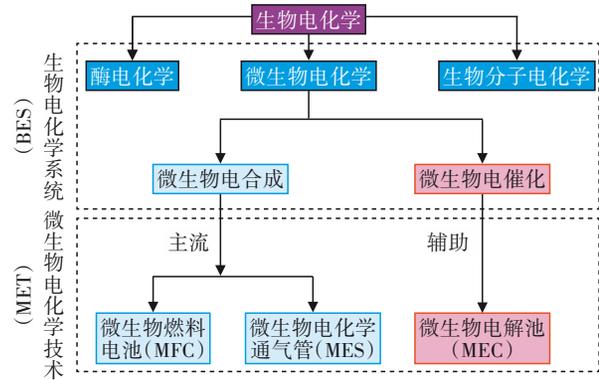


图1 生物化学领域的学科与生物电化学系统的相互关系以及微生物电化学技术的应用

Fig.1 Relationship between the disciplines of biochemistry field and bioelectrochemical system as well as the application of the microbial electrochemical technology

微生物电化学概念是指通过电容性或法拉第相互作用,研究和应用活性微生物细胞与电极之间的相互作用。在法拉第相互作用中,氧化和还原反应是由参与细胞外电子转移的微生物细胞和分子为介质传导的,可以通过微生物电合成或微生物电催化过程^[8]来完成,其中细胞外电子转移的微生物加速了电化学反应。

利用微生物和电极的电化学作用合成复杂的有机化合物,同时产生能量或解决环境问题的技术或应用被称为MET。绝大多数MET依赖于电活性细菌代谢活性的存在,通过固态电极氧化不同种类的化合物。因此,在MET中,两个电极(阳极或阴极)中至少有一个须与微生物工艺相连接^[5](见图2)。

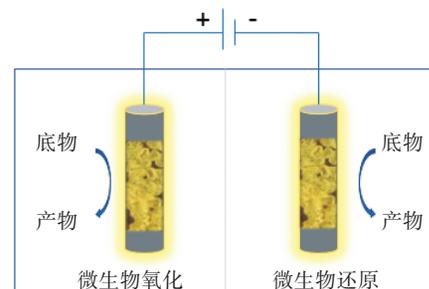


图2 MET系统装置

Fig.2 Simplified representation of MET system setups

此外, MET的电化学特性可以通过改变其配置得到调整, 从而能够在不同的操作条件下运行。例如, MFC在有电阻的情况下可用于产电; 微生物电解池(MEC)通过输入外部电源来合成 H_2 或其他化合物; 微生物电化学通气管(MES)以短路模式运行得到高效率的电化学反应。

1.2 微生物电化学技术与人工湿地的耦合

鉴于MET在同时处理废水和产生能源方面的潜力, 自2012年以来, 多项研究探讨了将这项技术与人工湿地相结合的可能性和潜在效益。

从处理废水的角度来看, MET系统是一项可持续发展的新技术, 易于氧化可降解的有机物。通过氧化和还原工艺处理废水, COD去除率可高达90%, 并具有节省曝气和降低污泥处理成本等优势。但对于高有机活性/复杂的废水, MET则应与其他技术相辅相成。目前, MET虽不能高效产能, 但它是一项可直接从废水中获取能源的技术^[9]。

沿深度方向的CW剖面存在着氧化还原梯度, 底部为厌氧区, 顶部为缺氧/好氧区, 适于微生物电化学系统的应用。在该系统中, 可通过电活性细菌的代谢反应产生电流, 并形成新的氧化还原梯度, 以提高去除效率^[10]。根据水流方向和湿地深度的不同, 所需要的氧化还原电位梯度(即厌氧的阳极和好氧的阴极)可以在CW系统中自发形成, 促使CW与MET相结合。

MET耦合到人工湿地的过程可以通过不同配置来实现^[4]。MFC能够使用位于厌氧区(底部)的阳极和位于需氧区(顶部)的阴极从湿地中收集反应能量, 中间被湿地填料(砾石等)隔开, 并通过外部电路连接。而MEC以类似于MFC的方式耦合到人工湿地中, 其主要区别是通过外部提供的恒电位仪或电源将电极极化^[11]。MES则是一种导电床, 其要求湿地填料是导电材料, 并通过材料周围的化学环境形成氧化还原梯度。因为不设置阳极和阴极, 因此阳极和阴极反应发生在同一导电体的不同位置。当目标是提高不需要严格控制氧化还原电势的电化学反应速率时, 这种情况是比较理想的。而与标准的两电极系统相比, 此种配置中微生物的新陈代谢无法转化为电能^[12]。也就是说MES不以产电为目标, 而集中在污染物的强化处理上。

1.3 耦合系统可能带来的潜在效益

CW-MET耦合系统使得CW占地面积大、反应

速率慢^[13]等不足得以改善, 污染物处理性能得到加强, 带来了一定的潜在效益。

① 增强处理效率。CW反应速率慢主要是由于系统中存在厌氧环境, 导致电子受体有限^[14]。在没有电子受体的情况下, 厌氧条件限制了微生物的代谢, 进而减慢污染物的降解效率。MET与CW的耦合可为CW的厌氧区提供电子受体, 从而加快厌氧区的微生物代谢。例如, MFC引入的外生电细菌通过电化学效应可提高废水处理效率^[15]。Yang等^[16]测试了MES对淡水中 NO_3^- 的去除效果, 电活性细菌释放了厌氧区底物消耗产生的电子, 电子从阳极流向阴极, 阴极的反硝化细菌利用电子加速反应, 得到的 NO_3^- 去除率高达98%。Xu等^[17]调查研究了CW和CW-MFC中的污染物去除性能和微生物多样性, 并进行了对比分析。结果表明, CW-MFC系统的微生物群落多样性和丰富度均高于CW系统, CW-MFC废水处理的总体性能优于CW。CW-MFC中的COD、 NH_4^+-N 和TP的平均去除率分别为(82.32±12.85)%、(77.79±10.26)%和(95.06±5.45)%, CW中的三者去除率分别为(75.71±11.24)%、(83.56±9.87)%和(93.64±3.55)%, CW-MFC系统中TN的平均去除率[(82.46±4.74)%]也明显高于CW系统。

② 减小占地面积, 降低建设成本。由于处理效率提高、性能增强, 进而减少了土地面积需求^[18]。

③ 可处理特定的复杂污染物。除了生活污水中的常规污染物, CW-MET耦合体系可处理更为复杂的特定污染物、难降解污染物, 包括石油烃、染料、药物、油、硝基苯^[19]等。

④ 可通过微生物对污染物的降解反应产电。电子通过电路从厌氧区转移到需氧区产生电能, 不仅可以增强废水处理能力, 而且可以从废水有机物的降解中收集电能。CW-MFC是典型的产电装置, Doherty等^[20]发现基于铝污泥填料的CW-MFC, 可产生的电量最大功率密度为268 mW/m³。

2 CW-MET耦合体系

2.1 CW-MFC

MFC产电是目前研究最多的MET应用, 其原理见图3。

MFC的整体反应、有机物的氧化和氧的还原在热力学上是自发进行的, 可以从外电路中回收电能。CW-MFC耦合装置的阳极位于底部厌氧区, 阴

极位于顶部缺氧/需氧区。电活性细菌在厌氧区消耗有机化合物并释放电子,该电子从阳极沿着外部电路流向阴极,释放的电子用于 O_2 或 NO_3^- 还原,通过离子分离器或使离子在流体中流动来完成电荷平衡^[4,21]。同样,在使用CW-MFC系统进行废水处理时,除了达到了传统CW的处理性能,还具有从电活性细菌代谢活性及其与电极的相互作用中获取能量的附加价值。表1列举了一些有关此耦合技术的最新研究成果^[19-27]。

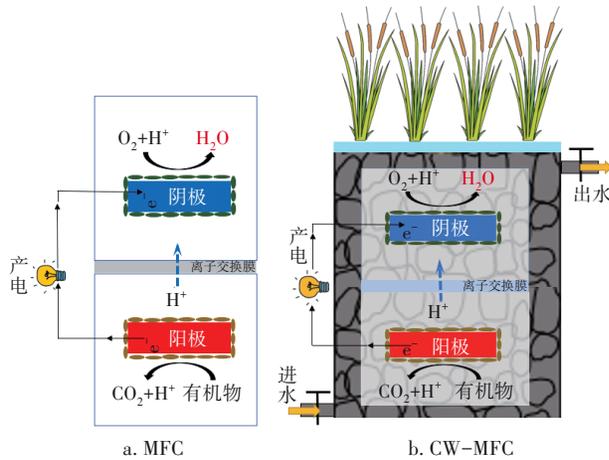


图3 MFC及CW-MFC原理

Fig.3 Mechanism diagrams of MFC and CW-MFC

表1 CW-MFC耦合技术的部分研究情况

Tab.1 Summary of selected studies on CW-MFC coupling technology

项目	运行模式	污染物去除率/%	电化学性能(最大功率密度)
染料废水	间歇	COD:75	15.73 mW/m ²
猪粪废水	上流式连续	COD:64; NO ₃ ⁻ :75; NH ₄ ⁺ :86	268 mW/m ³
生活污水	下流式连续	COD:57; NO ₃ ⁻ :80	8.08 mW/m ²
含油废水	上流式连续	油脂:95; COD:73; TOC:57	102 mW/m ²
药物废水	上流式连续	抗生素:99.5	57.8 mW/m ²
含硼废水	连续	硼:63; NO ₂ ⁻ :19; NO ₃ ⁻ :47	78 mW/m ²
硝基苯废水	上流式连续	硝基苯:92; COD:78	1.53 mW/m ²

CW-MFC的第一个报道是关于不同浓度染料废水中亚甲基蓝去除且产电的实验^[22]。该实验以间歇模式运行,运行96 h后,测得最大COD去除率为75%,最大功率密度为15.73 mW/m²,最大电流密度为69.75 mA/m²。自首次研究以来,CW-MFC实

际应用已从传统的污染物扩展到更复杂的化合物,如染料、药物。

对于常规污染物,Doherty等^[20]对基于铝污泥填料的CW-MFC去除有机物以及产电进行了实验室规模研究,采用上流/下流同时进水模式,取得了COD、NO₃⁻和NH₄⁺的去除效率分别为64%、75%和86%的效果,最大功率密度为0.268 W/m³。Oon等^[23]采用CW-MFC上流运行模式,并尝试了有机负荷和电极配置等不同的电路连接方式。经过1 d的水力停留时间后,COD、NO₃⁻和NH₄⁺的平均去除率分别达到99%、46%和96%,最大功率密度达到93 mW/m³。

Wang等^[24]对CW-MFC反应器的硝酸盐去除能力和电化学性能进行了研究。该反应器以下流式运行,HRT为24~96 h,阳极和阴极均采用碳纤维毡,COD去除率约57%,NO₃⁻去除率约80%,最大产电量为8.08 mW/m²。这一试验发现了一个突出问题,即与在酸性条件下的开路运行相比,在闭路条件下运行的反应器中产生的中性和弱碱性环境丰富了细菌群落,增加了生物能的产生^[24]。

关于CW-MFC处理更复杂废水的报道,如对含油废水的处理性能以及产电进行测试,并与单一的CW和MFC反应器分别进行了比较^[25]。该试验设计的系统以上流式模式连续运行,HRT为3 d,阳极为碳刷,阴极为镀铜碳毡。结果表明,CW-MFC对油的去除率接近95%,对COD的去除率为73%,对总有机碳(TOC)的去除率为57%,功率密度为102 mW/m²。该研究发现植物似乎对阴极的性能起着重要的作用,这可能是植物根系的影响,使一些氧转移到阴极或为电活性细菌群落的发展提供了适宜的条件。

Zhang等^[26]采用上流式CW-MFC对抗生素(四环素和磺胺甲恶唑)去除并同时产电的效果进行了研究。通过在实验室色谱柱中加入掺有不同浓度的四环素和磺胺甲恶唑(200、500和800 μg/L)的模拟污水,HRT为2.5 d时两种抗生素的去除率均达到99.5%以上,最大功率密度为57.8 mW/m²,显示出CW-MFC成为药物去除补充技术的潜力。

Turker等^[27]研究了CW-MFC耦合技术对硼的去除效果和产电性能。CW-MFC由一个表面流反应器和一个卧式地下反应器组成^[27],采用连续运行模式,每天注入3次硼浓度为2~32 mg/L的模拟废

水,稳定运行后,对硼的去除率达到63%左右,产生的功率密度为78 mW/m²。此外,该系统对NO₂⁻和NO₃⁻的去除率分别为19%和47%。这项研究强调了硼浓度的增加对系统产生的功率和电流密度具有负面影响。此外,在根际附近还发现脱氢酶和脲酶与系统中的生物产电密切相关,这表明植物的存在对系统产生了积极影响。

Xie等^[19]研究测试了使用无膜CW-MFC降解废水中硝基苯的性能,并与传统MFC进行了比较。该系统为实验室规模,用含硝基苯(浓度为5~80 mg/L)的模拟废水,以葡萄糖为碳源(浓度为100~600 mg/L),在上流式连续流模式下运行,HRT为24 h时对硝基苯和COD的去除率分别为92%和78%左右,最大功率密度为1.53 mW/m²^[19]。

2.2 CW-MEC

MEC及CW-MEC原理如图4所示。

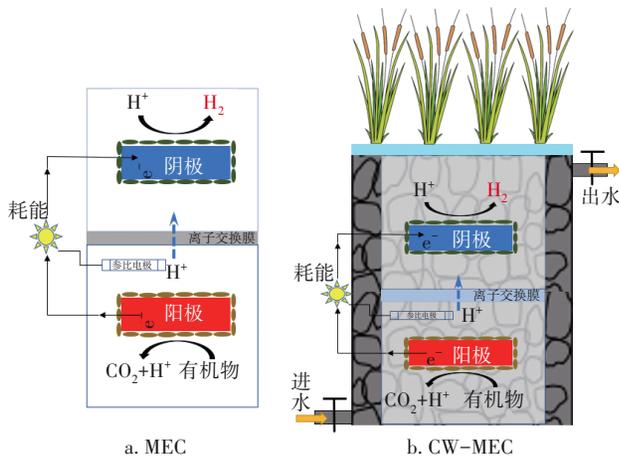


图4 MEC及CW-MEC原理

Fig.4 Mechanism diagrams of MEC and CW-MEC

MEC是基于MFC发展演变的微生物电化学系统,利用电极上的生物膜去除污染物^[11],通过外加电源增强阳极和阴极之间的电位差,使电极反应得以进行或增大电极反应速率。在MEC与MFC构型中,阳极反应几乎是相同的,电活性微生物使用固态阳极作为终端电子受体,将有机物氧化为二氧化碳,同时向溶液/污水中释放质子,质子通过分隔两个电极室的质子交换膜扩散到阴极。电子通过外电路从阳极流向阴极,在合适的(生物)催化剂作用下与可溶性电子受体结合,生成目标产物。不同的是,MFC中的反应在热力学上是自发进行的,MEC需要外部电源向系统中补充少量电能,通过质子的

还原在阴极产生氢气。在早期研究中,MEC可在阴极进行化学电解水反应,从而产生氢气,并与阳极中的有机微生物氧化相结合^[28],氢气可代替有机碳源用于反硝化,将有机硝酸盐氮转化为氮气。

Srivastava等^[11]第一次系统地将MEC耦合到CW中,探索了在低碳条件下增强反硝化作用的可能性。该研究构建了两个小型人工湿地系统:一个是安装带有颗粒石墨电极的CW-MEC装置,太阳能作为外部电源供体连接电极;另一个是填充普通砾石填料的CW,作为对照。以50 mg/L的含不同有机碳比例的确态氮(NO₃⁻-N)合成废水为实验对象。C/N比为2时,在0.583 mA的电流作用下,CW-MEC的确态氮最高去除率为69.3%,对照组CW的去除率为66.2%。研究结果表明,CW-MEC反应器的NO₃⁻-N去除率始终高于常规CW反应器,在低碳条件下,CW-MEC体系具有较强的反硝化能力。该方法为CW强化反硝化提供了新的研究方向,也解决了MEC的规模扩大和成本降低问题。

Yu等^[29]研究了低温(<10 °C)下CW-MEC提高NH₄⁺去除率的可行性和机理。该研究将太阳能电池作为外加电源应用于CW-MEC中,以增强NH₄⁺的去除率。低温持续运行约4个月,CW-MEC对NH₄⁺-N的去除率达到(88.2±7.0)%,比常规CW高(11.7±6.5)%。该研究发现,在CW-MEC中,NH₄⁺主要通过硝化-自养反硝化过程去除,而在CW中,NH₄⁺主要转化为NO₃⁻。当NH₄⁺作为主要产电底物时,电对氨氧化和反硝化过程均有增强作用。研究提出,低温下利用CW-MEC强化去除NH₄⁺是一种经济高效且可持续的方法。

2.3 CW-MES(METlands)

MES及CW-MES原理如图5所示。

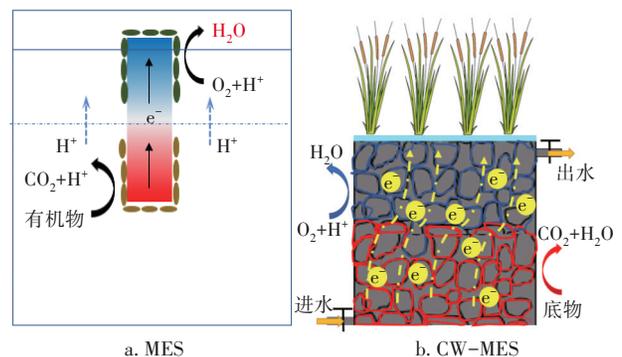


图5 MES及CW-MES原理

Fig.5 Mechanism diagrams of MES and CW-MES

MES也是MET体系之一,被认为是短路的MFC,此装置无关电流收集,仅着眼于去除污染物,因此其配置不需要具有离子交换膜或其他隔板的复杂电化学反应器,设计可以简化为单片导电材料或两个连接的电极,在阳极和阴极区域之间建立直接的电学连接^[30],电极的一侧充当阳极,另一侧充当阴极。阳极部分应存在于厌氧条件下并在其上形成电活性生物膜,而阴极则暴露于大气中,有利于产生氧化还原电势梯度条件。电活性微生物被刺激产生电子并将电子转移到作为无限受体的导电材料上,从而最大限度地增加底物的消耗量,而不是仅靠自由的电子来产生甲烷^[31]。已有研究^[32]报道,将CW与MES耦合可能会转移厌氧区甲烷生成过程中的电子流,从而防止甲烷排放。与MFC相比,MES不产电,但可确保系统实现较高的电化学反应速率。已有研究证明,MES可有效减少废水中的有机物、去除硝酸盐^[16],对碳氢化合物污染的沉积物进行净化和土壤生物修复。由于其装置简单,MES的使用可以在短期内实现大规模开发CW-MES的可能^[33]。

在CW-MES耦合系统中,也可以形成基于电活性生物膜的人工湿地(EABB-CW)。在该体系下,MES耦合在使用导电材料为湿地填料的人工湿地中会形成一种导电生物滤床。与传统的砾石填料人工湿地相比,使用导电性焦炭颗粒的CW-MES可将COD和BOD₅的去除量分别提高3倍和4.5倍^[33]。CW-MES经过0.5 d较短的停留后,出水COD达到125 mg/L,BOD₅达到25 mg/L,而砾石填料湿地系统须经过3.4 d(停留时间)后才达到同样的出水效果。对EABB-CW的进一步研究表明,导电材料的性质对MES去除污染物的能力有一定影响^[4]。

微生物电化学人工湿地(METlands)运行方式基于MES,也是CW-MES耦合方式之一,主要的阳极和阴极反应沿层深梯度进行^[4]。阳极和阴极反应的垂直分布促使局部电荷不平衡,从而产生电场和随深度增加的电势。其中,电场可用来估计电活性细菌产生的电流,目前已被用于测量海洋沉积物中电活性细菌产生的电流。据报道,METlands系统的性能优于以传统砾石为填料的水平潜流湿地,在去除药物污染物方面的能力也远超常规CW。以焦炭为填料的水平潜流METlands系统^[33]已证明,在HRT为0.5~3.5 d的运行工况下,COD和BOD₅的去除

率分别为91%和96%(HRT=0.5 d),NH₄⁺和TN的去除率分别为97%和69%(HRT=3.5 d)。这表明METlands系统可以提高生物降解率,从而减少传统CW的占地面积要求。

3 讨论与展望

自1990年以来,对MET的研究不断增多,主要体现在MET产电和作为有用的“催化”反应的可能性,及其在废水处理中的应用潜力两方面。因此,在提出CW-MFC耦合技术后,MET立即受到广泛关注与研究。经过近10年的发展演变,已由CW-MFC衍生出CW-MEC、CW-MES等一系列CW-MET耦合技术。根据相关研究可看出,CW-MET耦合是一个很有发展的研究领域。

CW-MFC技术潜在的应用从最初处理传统的污染物(如有机物和营养物)扩展到更复杂的化合物(如药物和新兴污染物),并深入探究耦合体系中植物对阴极性能的影响。逐渐演变出需要外加电源的CW-MEC体系具有较低的能耗,其阴极可产氢气且对低碳源污水脱氮效果明显。现已有研究将太阳能用作外部电源供体来连接电极,但是对该技术的研究还不足,未来应继续深入探索。CW-MES能够充分利用微生物电化学作用,最大限度地消耗底物,提高了生物降解率,减少了生物质积累和甲烷生成,且装置简单,有望实现大规模开发。

作为一类新兴的耦合体系,CW-MET的研究整体上处于起步阶段,还存在一些问题。首先,大多数报告均表明该系统是在实验室规模下进行的设计和运行,应用于实际规模的系统待开发,扩大CW-MET规模是这一领域面临的主要挑战。因此,如何将CW-MET应用于实际生产规模是未来研究应该考虑的首要问题。其次,目前对基于CW-MET耦合装置的研究和开发认识不足,这一技术的目标不仅是收集能量,更是依赖微生物电化学原理来提高CW的性能。CW-MEC和CW-MES技术都以增强污染物去除效率为目标,通过强化CW的处理能力,从而减少CW占地面积,降低建设成本。但此技术体系仍在研发中,污染物去除的动态及性能的变化仍存在不确定性。因此,探索并优化CW-MET耦合体系将是未来的发展趋势。

4 结语

CW-MET是一种废水处理创新技术,该技术通

过电化学效应在去除有机物和其他污染物以及回收废水中化学潜能方面表现出了显著效果,并由于其增强了CW性能从而减少了对占地面积的需求。目前CW-MET的设计和运行多为实验室规模,尚不能满足实际应用要求,应加大力度研究这一体系面临的扩大规模问题。

在CW-MET中,CW-MFC是最具创新性的配置之一,它融合了MFC的产电以及CW的废水处理能力。这种组合可以作为强化湿地系统的新选择,在保持较小占地面积的同时保持高性能的污水处理。此外,CW-MEC或CW-MES不以收集能量为目标,而是依赖微生物电化学原理来优化CW工艺,无疑可促进污水处理的高效和可持续发展。

参考文献:

- [1] 王同悦, Liam Doherty, 赵晓红, 等. 人工湿地-微生物燃料电池技术的发展现状[J]. 中国给水排水, 2015, 31(17): 129-136.
WANG Tongyue, LIAM Doherty, ZHAO Xiaohong, *et al.* Current status of constructed wetland/microbial fuel cell [J]. China Water & Wastewater, 2015, 31(17): 129-136(in Chinese).
- [2] HOAREAU M, ERABLE B, BERGEL A. Microbial electrochemical snorkels (MESs): a budding technology for multiple applications. A mini review [J]. Electrochemistry Communications, 2019, 104: 106473.
- [3] JI B, ZHAO Y Q, VYMAZAL J, *et al.* Can subsurface flow constructed wetlands be applied in cold climate regions? A review of the current knowledge [J]. Ecological Engineering, 2020, 157: 105992.
- [4] RAMÍREZ-VARGAS C A, PRADO A, ARIAS C A, *et al.* Microbial electrochemical technologies for wastewater treatment: principles and evolution from microbial fuel cells to bioelectrochemical-based constructed wetlands[J]. Water, 2018, 10(9): 1128-1157.
- [5] SCHROEDER U, HARNISCH F, ANGENENT L T. Microbial electrochemistry and technology: terminology and classification[J]. Energy & Environmental Science, 2015, 8(2): 513-519.
- [6] KELLY P T, HE Z. Nutrients removal and recovery in bioelectrochemical systems: a review [J]. Bioresource Technology, 2014, 153: 351-360.
- [7] WEI M M, RAKOCZY J, VOGT C, *et al.* Enhancement and monitoring of pollutant removal in a constructed wetland by microbial electrochemical technology [J]. Bioresource Technology, 2015, 196: 490-499.
- [8] 曲有鹏, 吕江维, 董跃, 等. 电催化-生物电化学耦合系统处理青霉素废水的机制[J]. 环境科学, 2020, 42(5): 2378-2384.
QU Youpeng, LÜ Jiangwei, DONG Yue, *et al.* Mechanism of penicillin wastewater treatment by electrocatalytic and bioelectrochemical coupling systems [J]. Environmental Science, 2020, 42(5): 2378-2384 (in Chinese).
- [9] CORBELLA C, GUIVERNAU M, VINAS M, *et al.* Operational, design and microbial aspects related to power production with microbial fuel cells implemented in constructed wetlands [J]. Water Research, 2015, 84: 232-242.
- [10] WANG Y, ZHAO Y Q, XU L, *et al.* Constructed wetland integrated microbial fuel cell system: looking back, moving forward [J]. Water Science & Technology, 2017, 76(2): 471-477.
- [11] SRIVASTAVA P, YADAV A K, ABBASSI R, *et al.* Denitrification in a low carbon environment of a constructed wetland incorporating a microbial electrolysis cell [J]. Journal of Environmental Chemical Engineering, 2018, 6(4): 5602-5607.
- [12] RAMÍREZ-VARGAS C A, ARIAS C A, CARVALHO P, *et al.* Electroactive biofilm-based constructed wetland (EABB-CW): a mesocosm-scale test of an innovative setup for wastewater treatment [J]. Science of the Total Environment, 2019, 659: 796-806.
- [13] YADAV A K, SRIVASTAVA P, KUMAR N, *et al.* Constructed Wetlands for Industrial Wastewater Treatment [M]. USA: Wiley-Blackwell, 2018.
- [14] SRIVASTAVA P, YADAV A K, GARANIYA V, *et al.* Microbial Electrochemical Technology [M]. USA: Elsevier B V, 2019: 1021-1036.
- [15] XU L, ZHAO Y Q, WANG X D, *et al.* Applying multiple bio-cathodes in constructed wetland-microbial fuel cell for promoting energy production and bioelectrical derived nitrification-denitrification process [J]. Chemical Engineering Journal, 2018, 344: 105-113.
- [16] YANG Q Z, ZHAO H Z, LIANG H H. Denitrification of overlying water by microbial electrochemical snorkel [J]. Bioresource Technology, 2015, 197: 512-524.
- [17] XU F, CAO F Q, KONG Q, *et al.* Electricity production and evolution of microbial community in the

- constructed wetland-microbial fuel cell [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2018, 339: 479-486.
- [18] SRIVASTAVA P, ABBASSI R, YADAV A K, *et al.* A review on the contribution of electron flow in electroactive wetlands: electricity generation and enhanced wastewater treatment [J]. *Chemosphere*, 2020, 254: 126926.
- [19] XIE T Y, JING Z Q, HU J, *et al.* Degradation of nitrobenzene-containing wastewater by a microbial-fuel-cell-coupled constructed wetland [J]. *Ecological Engineering*, 2018, 112: 65-71.
- [20] DOHERTY L, ZHAO Y Q, ZHAO X H, *et al.* Nutrient and organics removal from swine slurry with simultaneous electricity generation in an alum sludge-based constructed wetland incorporating microbial fuel cell technology [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2015, 266: 74-81.
- [21] 赵晓红,徐磊,任柏铭,等. 铝污泥人工湿地—微生物燃料电池工艺性能初步研究[J]. *中国给水排水*, 2015,31(17): 137-141.
- ZHAO Xiaohong, XU Lei, REN Baiming, *et al.* Preliminary study on alum sludge-based constructed wetland/microbial fuel cell [J]. *China Water & Wastewater*, 2015,31(17): 137-141(in Chinese).
- [22] YADAV A K, DASH P, MOHANTY A, *et al.* Performance assessment of innovative constructed wetland-microbial fuel cell for electricity production and dye removal [J]. *Ecological Engineering*, 2012, 47: 126-131.
- [23] OON Y L, ONG S A, HO L N, *et al.* Synergistic effect of up-flow constructed wetland and microbial fuel cell for simultaneous wastewater treatment and energy recovery [J]. *Bioresource Technology*, 2016, 203: 190-197.
- [24] WANG J F, SONG X S, WANG Y H, *et al.* Nitrate removal and bioenergy production in constructed wetland coupled with microbial fuel cell: establishment of electrochemically active bacteria community on anode [J]. *Bioresource Technology*, 2016, 221: 358-365.
- [25] YANG Q, WU Z X, LIU L F, *et al.* Treatment of oil wastewater and electricity generation by integrating constructed wetland with microbial fuel cell [J]. *Materials*, 2016, 9(11): 885-893.
- [26] ZHANG S, SONG H L, YANG X L, *et al.* Fate of tetracycline and sulfamethoxazole and their corresponding resistance genes in microbial fuel cell coupled constructed wetlands [J]. *RSC Advances*, 2016, 6(98): 95999-96005.
- [27] TURKER O C, YAKAR A. A hybrid constructed wetland combined with microbial fuel cell for boron (B) removal and bioelectric production [J]. *Ecological Engineering*, 2017, 102: 411-421.
- [28] LOGAN B E, RABAEY K. Conversion of wastes into bioelectricity and chemicals by using microbial electrochemical technologies [J]. *Science*, 2012, 337 (6095): 686-690.
- [29] YU B, LIU C, WANG S, *et al.* Applying constructed wetland-microbial electrochemical system to enhance NH_4^+ removal at low temperature [J]. *Science of the Total Environment*, 2020, 724:138017.
- [30] CAROLINA C V, ENRICA P, MARCO B, *et al.* The "Oil-Spill Snorkel": an innovative bioelectrochemical approach to accelerate hydrocarbons biodegradation in marine sediments [J]. *Frontiers in Microbiology*, 2015, 6: 881-891.
- [31] ESTEVE A. Electricity-generating bacteria bioelectrogenesis: sustainable biotechnology [J]. *Research and Technology*, 2015, 181: 109-111.
- [32] LOVLEY D R. Live wires: direct extracellular electron exchange for bioenergy and the bioremediation of energy-related contamination [J]. *Energy & Environmental Science*, 2011, 4(12): 4896-4906.
- [33] AGUIRRE S A, DE GREGORIS T B, BERNA A, *et al.* Microbial electrochemical systems outperform fixed-bed biofilters in cleaning up urban wastewater [J]. *Environmental Science*, 2016, 2(6): 984-993.

作者简介:付晶森(1992-),女,山西长治人,博士研究生,研究方向为非点源污染控制与水资源保护。

E-mail:704416475@qq.com

收稿日期:2020-11-28

修回日期:2020-12-13

(编辑:丁彩娟)