



弱电强化厌氧微生物降解壬基酚及产电特性研究

王翠翠,汪素芳,白志远,岳秀萍

(太原理工大学环境科学与工程学院,山西太原 030024)

[摘要] 采用弱电强化厌氧生物反应系统对废水中的壬基酚(NP)进行降解,研究系统对NP的降解特性、系统降解NP的产电特性以及NP降解产物的生物毒性。实验结果表明:弱电介导可明显促进NP在厌氧生物体系中的降解,当NP初始质量浓度为30 mg/L时,NP与体系中TOC在6 d内的降解率分别可达61.23%和54.02%,且NP的降解符合一级反应动力学模型;体系具有良好的产电性能,最大输出电压和功率密度分别可达0.72 V和487.37 mW/m²;NP生物降解过程中涉及到的主要产物包括3,4-二羟基苯甲酸和对羟基苯甲酸等,推测其降解机理主要涉及羟基化反应和氧化反应;NP废水在弱电强化厌氧生物反应系统对其进行降解的周期末,生物毒性被明显降低。

[关键词] 降解;壬基酚;厌氧微生物;生物毒性;产电性能

[中图分类号] X703.1 **[文献标识码]** A **[文章编号]** 1005-829X(2022)11-0076-08

Performance of nonylphenol degradation and electricity production by weak electricity enhanced anaerobic microbes

WANG Cuicui, WANG Sufang, BAI Zhiyuan, YUE Xiuping

(College of Environmental Science and Engineering, Taiyuan University of Technology, Taiyuan 030024, China)

Abstract: The weak current enhanced anaerobic biological reaction system was used to degrade NP in wastewater. The degradation characteristics of NP, the electrochemical performance of the system and the biological toxicity of NP degradation products were studied. The experimental results showed that weak current could significantly promote the degradation of NP in the anaerobic biological system. When the initial mass concentration of NP was 30 mg/L, the degradation rates of NP and TOC in system in 6 d could reach 61.23% and 54.02% respectively, and the degradation of NP conformed to the first-order reaction kinetic model. The system had good electricity generation performance, and the maximum output voltage and power density could reach 0.72 V and 487.37 mW/m², respectively. The main products in the biodegradation of NP included 3,4-dihydroxybenzoic acid and *p*-hydroxybenzoic acid. It was speculated that the degradation mechanism mainly involved hydroxylation reaction and oxidation reaction. At the end of the NP degradation cycle of the weak current enhanced anaerobic biological reaction system, the biological toxicity of NP-containing wastewater was significantly reduced.

Key words: degradation; nonylphenol; anaerobic microbes; biological toxicity; electricity generation performance

壬基酚(Nonylphenol, NP)是一种典型的内分泌干扰物,其在环境中不易分解,会对人类健康造成严重危害^[1]。经研究证实,NP的内分泌干扰性主要表现在对人类生殖系统、内分泌系统、免疫系统及神经系统的影响上^[2-4]。环境中的NP主要来源于含有NP废水的直接排放以及壬基酚聚氧乙烯醚(NPEOs)的分解和降解^[5]。目前,在包括大气、水、

土壤和污泥在内的多种环境介质中均检测到了NP的存在,其中关于水环境中检出NP的报道屡见不鲜^[6-8]。水是人类和其他生物接触NP的主要途径^[9],因此如何高效去除废水中的NP至关重要。

目前,研究人员已经对去除废水中NP的方法进行了大量研究,其主要包括物理法、化学法和生物法。如C. LEON-CONDES等^[10]采用臭氧-电氧化耦

[基金项目] 国家自然科学基金项目(21707099,51908396);山西省高等学校创新计划项目(2019L0161)

合体系在 $\text{pH}=7.5$ 、电流密度 20 mA/cm^2 条件下对 NP 进行降解,得到了 68% 的 NP 降解率;W. LIMMUN 等^[11]在酸性条件下,使用含六价铁 $[\text{Fe}(\text{VI})]$ 的高铁酸钾(K_2FeO_4)作为氧化剂对模拟废水中质量浓度为 1 mg/L 的 NP 进行氧化降解, NP 的最大去除率可达 98%;赵晓祥等^[12]利用纯菌恶臭假单胞菌对 NP 进行降解, NP 降解率可达 75.28%。虽然这些方法均可以有效去除水中的 NP,但物理化学法存在反应过程中易产生毒性更大、更难降解的副产物的缺点,相对来讲,生物降解是一种较为环保的方法,其在降解过程中不会产生二次污染,在 NP 去除领域具有更广阔的应用前景。但是目前,研究人员对 NP 的生物处理研究主要集中在对纯菌株的富集及其降解特性的研究方面,对于以混合菌株作为主要降解菌的生物处理工艺处理含 NP 废水的研究尚少。此外,由于 NP 具有高毒性,传统的生物处理技术很难将其从废水中高效去除^[13]。基于此,寻找一种低耗高效的 NP 生物降解技术已经成为研究热点。

弱电强化厌氧生物反应技术是将生物技术与电化学系统结合,在对环境中污染物去除的同时,实现废弃能源整合、回收和利用的过程,是一种理想的污染控制与能量回收的环境治理技术^[14-15]。H. HASSAN 等^[16]采用此系统对 2,4-二氯苯酚进行降解,2,4-二氯苯酚降解率可达 60% 以上;康达等^[17]采用零价铁(ZVI)强化厌氧-微生物燃料电池耦合技术降解喹啉,实验结果表明,喹啉在 5 d 内可被降解完毕,降解率达 99.0%。

本研究将 NP 作为单基质碳源,探究弱电强化厌氧生物反应系统的生物阳极对废水中 NP 的降解效率以及矿化程度,并探讨生物阳极对 NP 的降解规律,同时通过记录微生物驯化期电流的变化趋势及功率密度检测弱电强化厌氧生物反应系统的产电性能,最后利用大肠杆菌对降解产物进行生物毒性分析,从而验证该工艺对去除废水中 NP 的有效性。

1 材料与方法

1.1 实验装置

实验采用的厌氧生物反应系统的反应器为双极

室反应器,如图 1 所示,其由阴极室、阳极室、电极、质子交换膜和外电路等组成。阴、阳极室体积各为 250 mL,用质子交换膜隔开,三通阀固定于阳极室用于中间取样。阴、阳极室通入 N_2 进行保护,使之均保持厌氧状态。两极均以碳刷纤维(长 7 cm,直径 5 cm 的圆柱体)作为负载电极,外电路串联一个 $1\,000 \, \Omega$ 的电阻,并用导线与碳刷相连形成闭合回路。实验装置中的电流和电压由数据记录仪(2700 型,Keithley Instruments)记录,每 10 min 记录一次输出电压。

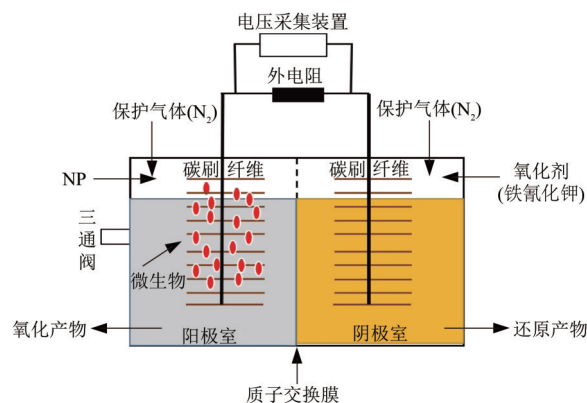


图1 厌氧生物反应系统

Fig. 1 Anaerobic biological reaction system

1.2 微生物接种与反应器运行

污泥取自某污水处理厂浓缩池。使用前,先将污泥在 $4 \, ^\circ\text{C}$ 下沉淀 24 h,再弃去上清液。之后为防止系统淤塞,将污泥用 40 目($425 \, \mu\text{m}$)筛网过滤备用。阳极反应液为人工模拟 NP 废水,由一定浓度的 NP 和营养液组成, pH 为 7。营养液组分为: $\text{Na}_2\text{HPO}_4 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$ 5.775 g/L 、 $\text{NaH}_2\text{PO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 1.385 g/L 、 NH_4Cl 0.31 g/L 、 KCl 0.13 g/L 、Wolfe 维生素微量元素 10 mL/L 、Wolfe 矿质元素液 10 mL/L 。阴极室反应液为 25 mmol/L 的铁氰化钾溶液。

反应器启动之前,首先利用厌氧瓶培养具有降解 NP 能力的菌群。将污泥以与 NP 模拟废水 1:10 的体积比接种于 500 mL 厌氧瓶中,初始 NP 质量浓度为 5 mg/L ,在 $30 \, ^\circ\text{C}$ 的恒温振荡培养箱中培养,每个周期为 6 d,待 1 个周期结束后,将厌氧瓶内上清液倒出,仅留下底部污泥,继续接种少量新鲜污泥。若 NP 降解较少,则保持当前 NP 浓度,继续进行厌氧培养驯化;若 NP 降解较多,则逐渐增大 NP 质量浓度

至 10、20、30 mg/L, 继续在 30 °C 下恒温培养。待在 NP 质量浓度 30 mg/L 条件下总有机碳(TOC)和 NP 降解率均维持在稳定范围内, 表示厌氧瓶中降解 NP 的功能微生物驯化成功。之后, 将微生物富集液混合转接到厌氧生物反应系统阳极室, 在微生物富集液与 NP 模拟废水体积比为 1:3, NP 质量浓度为 30 mg/L, 室温条件下进行生物阳极功能微生物的驯化培养, 每个周期为 6 d, 每周期结束后更换反应液, 同时设置 NP 开路组反应器作为对照组, 考察系统对 NP 的降解特性。

1.3 分析方法

每个周期定期取样, 用 0.22 μm 的有机滤膜去除样品中微生物后分析样品中 NP 浓度和总有机碳(TOC)。其中 NP 浓度通过高效液相色谱(UPLC, Agilent Technologies 1260 Infinity II, USA)进行测定, 测定条件为: 波长 222 nm, 流动相为超纯水和甲醇, 其体积比为 1:9, 流速 1.0 mL/min, 柱温 30 °C。TOC 由 TOC 分析仪(日本岛津 TOC-VCPH)测定。

为了检测弱电强化厌氧生物反应系统在降解 NP 过程中的产电性能, 测定反应器功率曲线和极化曲线。在反应周期内电压最大时, 先断开电路, 开路连接 2 h 以上, 再测定电阻分别为 10 000、7 000、5 000、3 000、2 000、1 500、1 200、1 000、500、100、50、10 Ω 时反应器的电压和电流, 之后用电流除以碳刷横截面积得到电流密度, 依据 $P=E^2/R=I^2R$ 得出功率后除以碳刷横截面积得到各个电流下的功率密度。

采用电化学工作站(Chenhua CHI660, China)扫描循环伏安曲线(CV), 扫速为 6 mV/s, 扫描范围为 -0.58~-0.28 V, 并在 0.01~1×10⁶ Hz 的频率范围内进行电化学阻抗(EIS)扫描, 用于分析反应系统的内部阻抗。

为了分析 NP 在降解过程中产生的中间产物, 采用气相色谱-质谱联用(GC-MS)对取样进行测定。气相色谱柱为 HP-5MS 型毛细管色谱柱(60 m×0.25 mm×0.25 μm), 测试条件为进样口温度 280 °C、气质接口温度 280 °C、载气流速 1.5 mL/min、进样量 1 μL、分流比 10:1, 升温程序设置初始温度 50 °C, 保持 4 min, 以 10 °C/min 升温到 250 °C 保持 5 min, 再以

5 °C/min 升温到 280 °C 保持 10 min。MS 测试采用 EI 电离源, 测试条件为离子源温度 230 °C、四级杆温度 150 °C、电离电位 70 eV、全扫描模式, 扫描范围为 35~550 u。

选择大肠杆菌作为试验菌, 检测反应器出水中剩余 NP 及降解产物对其的生物毒性。设计空白组(超纯水)、对照组(含 15 mg/L NP 的模拟废水)和实验组(弱电强化厌氧生物反应系统反应器出水)共计 3 组实验, 考察反应器出水对大肠杆菌的生长抑制作用。具体操作步骤如下: (1) 将 3 组溶液制成 LB 培养基; (2) 从 -80 °C 冰箱中取出大肠杆菌, 在 4 °C 冰箱中放置 20 min 后用空白组的 LB 培养基将 0.1 mL 大肠杆菌扩培 10 倍; (3) 在空白组培养基、对照组培养基和实验组培养基中分别接种扩培过的大肠杆菌; (4) 测定 3 组培养基的 OD₆₀₀ 值, 37 °C 下在 96 孔板上通过酶标仪微孔板阅读器测定大肠杆菌 24 h 的生长趋势。

2 结果与讨论

2.1 NP 和 TOC 的降解特性

实验考察了弱电强化厌氧生物反应系统对 NP 和 TOC 的降解特性, 结果见图 2。

图 2(a) 给出了弱电强化厌氧生物反应系统对 NP 的降解效果。如图 2(a) 所示, 当 NP 初始质量浓度为 30 mg/L 时, 在每个周期反应器对 NP 的降解率达到稳定后, 生物阳极闭路和生物阳极开路在反应时间为 2 d 时对 NP 的降解率分别为 32.92% 和 18.61%, 在反应时间为 6 d 时对 NP 的降解率分别为 61.23% 和 53.15%。相较于生物阳极开路, 生物阳极闭路对 NP 的去除率更高, 这表明电化学刺激可以提高阳极生物膜对 NP 的降解效果。

图 2(b) 为弱电强化厌氧生物反应系统对 TOC 的去除效果。如图 2(b) 所示, 在反应开始的 2 d 内, 生物阳极闭路 TOC 去除率与生物阳极开路 TOC 去除率相近, 但此后生物阳极闭路 TOC 去除率相较于生物阳极开路 TOC 去除率增大幅度更高, 在反应时间为 4 d 左右二者差距达到最大, 至反应 6 d 后闭路 TOC 去除率最终达到 54.02%。该结果进一步说明

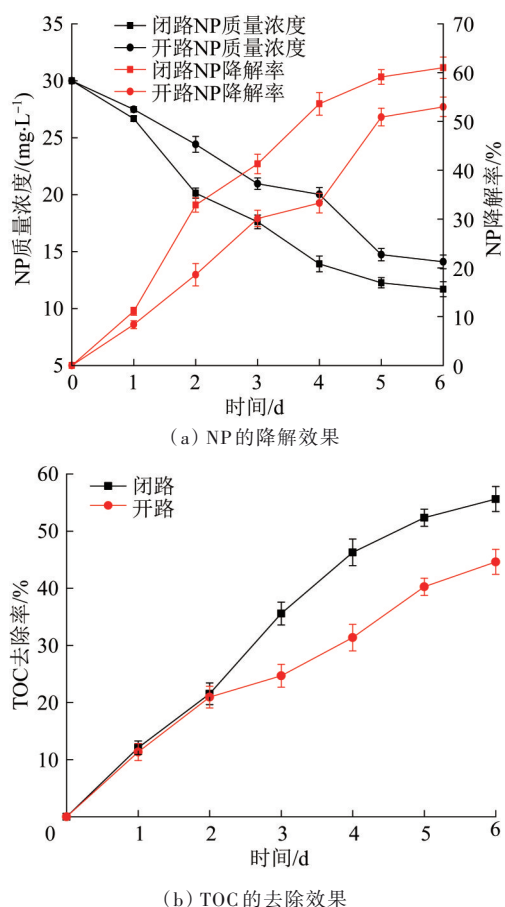


图2 弱电强化厌氧生物反应系统对NP和TOC的去除效果

Fig. 2 Removal effect of NP and TOC by weak current enhanced anaerobic biological reaction system

电化学刺激可以提高厌氧生物系统对NP的降解及矿化效果。

2.2 产电特性研究

为探究弱电强化厌氧生物反应系统降解NP的产电特性,对反应器在能量转换/存储应用中的关键参数及性能曲线,即电流变化、最大输出功率、CV扫描及EIS扫描曲线进行测定,结果见图3。

在弱电强化厌氧生物反应系统反应器启动后,通过数据记录仪收集驯化初期的电流数据,持续收集3个周期,结果如图3(a)所示,厌氧生物反应系统的产电周期为6 d左右,每个周期初始电流均迅速上升,在反应17 h左右电流达到最大,随后电流逐渐下降,直至到达最低值,周期结束。从4个周期电流整体变化趋势来看,每周期的最大电流逐渐变小,第1个周期的最大电流约为0.54 mA,而第4个周期最大

电流仅为0.40 mA。这是由于在NP的存在下,微生物发生了优胜劣汰现象,部分产电微生物死亡或数量降低,同时NP降解优势菌不断富集,从而达到NP降解菌群驯化的目的。

本实验目标是在降解污染物同时获得最大输出功率,在最高电压下获得最大电流密度。在反应器对NP的降解达到稳定后,通过绘制功率密度曲线和极化曲线来反映反应器产电性能。改变反应器外接电阻,使其从10 000 Ω 开始逐渐减少至0,测定不同电阻下的系统电压,结果如图3(b)所示,随着电阻由0增加到1 000 Ω ,反应器两端的电压迅速增加,在电阻为1 000 Ω 时,电压达到0.58 mV,之后随着电阻的增加,电压增加趋于平缓,当电阻为10 000 Ω 时,电压为0.68 mV。通过不同电阻下测得的电压进一步计算进而得出极化曲线和功率密度曲线,极化曲线用来表示电流与电压的关系,可表征弱电强化厌氧生物反应系统在一定电流下能得到的最大电压。由图3(c)可知,在电流密度接近0(电阻无穷大)时,反应器两端电压最大^[18],通过线性拟合得出最大电压约为0.72 V。从功率密度曲线可以看出,随着电流密度的增加,功率密度呈现出先增加后减小的变化趋势,当电流密度为830.27 mA/m²时,功率密度最大,为487.37 mW/m²,根据功率密度峰值法计算得出反应器内阻约为1 000 Ω 。

实验结束后,检测弱电强化厌氧生物反应系统的循环伏安特性曲线,结果如图3(d)所示,CV扫描在低扫速条件下反应器峰值电流为0.01 A,氧化还原峰较为明显,随着扫速的提升,电流逐渐降低,高扫速下氧化还原峰不够明显并且位置发生偏移^[19]。已有研究表明,电极与生物膜之间可以形成能够储存额外电子的双层电容结构,双层电容面积越大,储存电子能力越强^[20-21],该反应体系具有较大双层电容面积,表明其储存电子能力较强。

图3(e)显示了EIS扫描结果,EIS主要反映弱电强化厌氧生物反应系统的电荷转移和传质效能。图中半圆与x轴左侧的第一个交点为欧姆电阻(R_{ohm}),半圆与x轴的第二个交点也就是半圆的直径为电荷

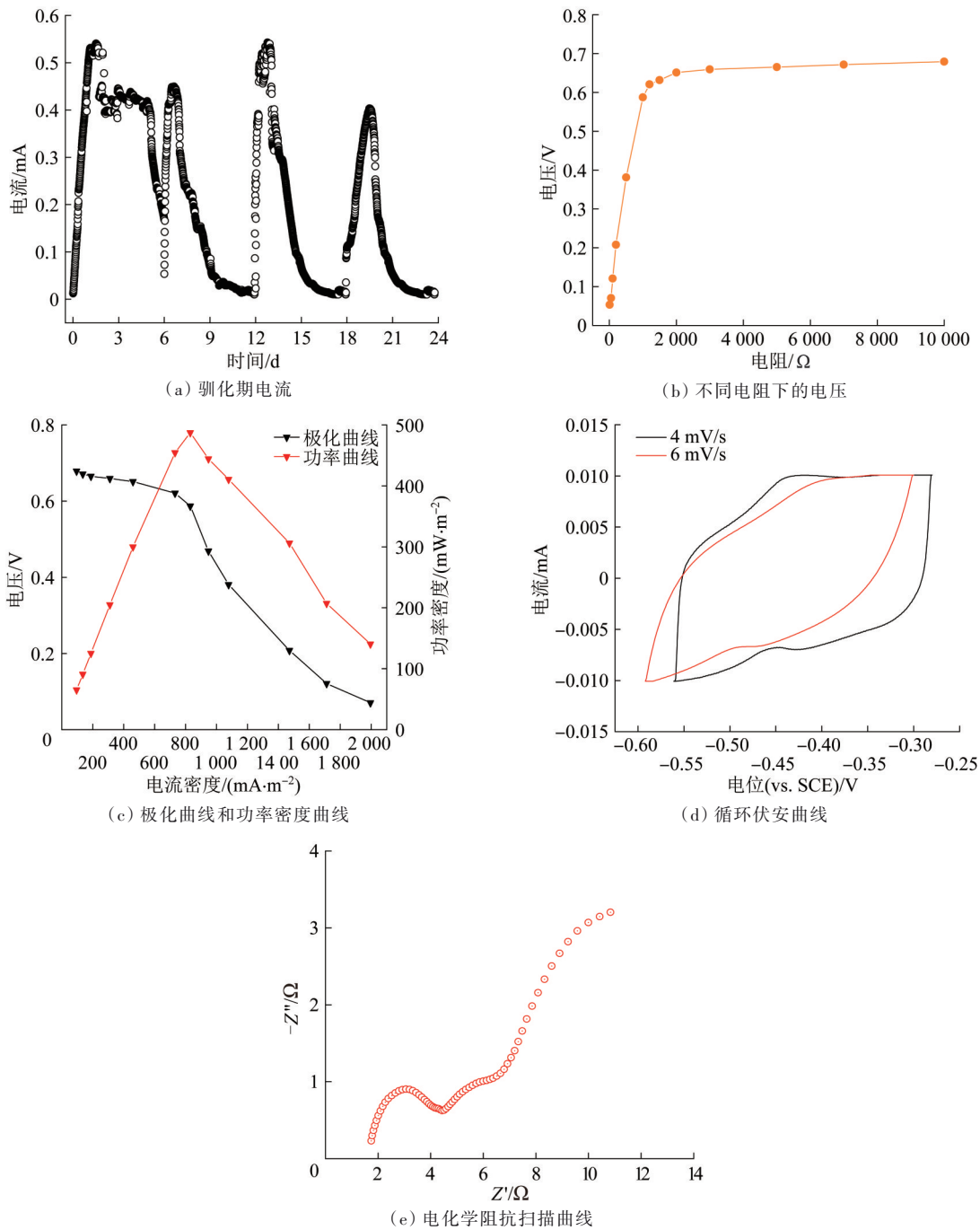


图3 弱电强化厌氧生物反应系统降解NP的产电特性

Fig. 3 Electrogenic characteristics of NP degradation in weak current enhanced anaerobic bioreactor system

转移电阻(R_{ct}),也可以表示反应体系的极化内阻阻值^[22],由图3(e)可以看出弱电强化厌氧生物反应系统的 R_{ohm} 为 $1.68\ \Omega$, R_{ct} 为 $4.44\ \Omega$ 。较小的 R_{ct} 使得电荷转移效率较高,进而强化了该反应体系的电流产生以及能量回收效率,这与微生物燃料电池降解磺胺间甲氧嘧啶的结论相似^[23]。

2.3 NP降解的反应动力学分析

采用一级动力学方程对NP在厌氧生物反应系统中的降解过程进行了模拟和分析,拟合结果见图4,拟合参数见表1。

由图4及表1可知,NP在厌氧生物反应系统中的降解符合一级动力学规律。生物阳极闭路下NP

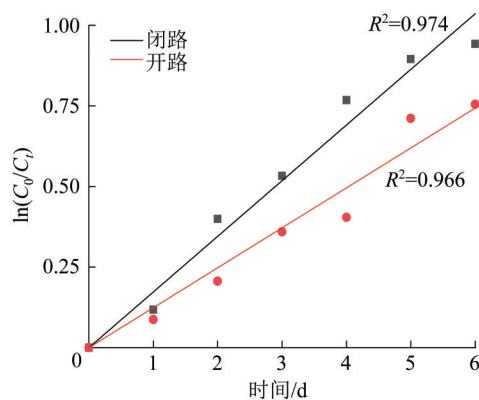


图4 一级反应动力学拟合结果

Fig. 4 First-order reaction kinetics fitting results

表1 厌氧生物反应系统中NP降解的动力学参数

Table 1 Kinetic parameters of NP degradation in anaerobic biological reaction system

反应器状态	一级动力学方程式	R^2	$C_0/(mg \cdot L^{-1})$	k/d^{-1}	$t_{1/2}/d$
闭路	$\ln C=0.17t$	0.974	30	0.17	4.03
开路	$\ln C=0.12t$	0.966	30	0.12	5.59

降解常数为0.17 d⁻¹,反应半衰期为4.03 d,而生物阳极开路反应半衰期为5.59 d,说明闭路过程有效提高了NP的降解速率。

2.4 NP降解路径推测

为了探索弱电强化厌氧生物反应系统中NP的降解路径,收集了同一周期不同阶段的出水样品并将其混合,经过二氯甲烷萃取后采用GC-MS检测NP降解中间产物,并结合质谱标准谱库,对降解过程中出现的未知化合物进行结构分析,最终推测出7种降解产物。之后根据所推测产物,结合NP降解过程中可能涉及到的反应机理,推测出2条降解路径,所推测降解路径及各路径相应的降解产物见图5。

路径Ⅰ:NP的烷基链经羟基化后生成了短链烷基酚产物(P1),短链烷基酚产物(P1)经氧化生成了对羟基苯乙酸(P2)。随后,对羟基苯乙酸(P2)的芳香环经原位羟基化反应生成了对羟基苯甲酸(P3),该降解途径与报道的*Gliocephalotrichum simplex*对壬基酚的降解方式相似^[24]。之后对羟基苯甲酸(P3)邻位羟基化生成了3,4-二羟基苯甲酸(P4),根据以往报道,这是芳香环裂解前的最后一个中间体,体

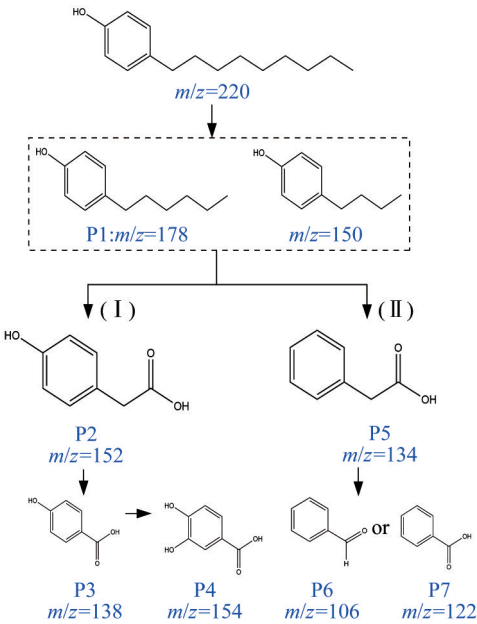


图5 NP降解路径

Fig. 5 Degradation pathways of NP

系未检测到芳香环裂解后的产物。

路径Ⅱ:NP经过羟基化反应生成短链烷基苯酚(P1)后,在微生物的进一步代谢下,短链烷基苯酚(P1)在氧化作用下生成了苯乙酸(P5),苯乙酸(P5)进一步氧化生成了苯甲醛(P6)或苯甲酸(P7)^[25]。

2.5 NP降解产物毒性评价

为了进一步检测NP及其降解产物的生物毒性,以大肠杆菌作为受试菌体对周期末出水中的NP及其降解产物进行了毒性检测。具体方法为:分别采用弱电强化厌氧生物反应系统(NP初始质量浓度为30 mg/L)生物阳极闭路出水的LB培养基(实验组)、含15 mg/LNP的LB培养基(对照组)和超纯水LB培养基(空白组)培养大肠杆菌24 h,每小时测定大肠杆菌生长变化,大肠杆菌的生长趋势见图6。

由图6可知,大肠杆菌的培养在24 h内经历了3个阶段,即延迟期、对数期和稳定期。空白组大肠杆菌的生长速度最快,实验组次之。当大肠杆菌进入稳定期时,实验组的OD₆₀₀值明显高于对照组。这表明,含15 mg/LNP的LB培养基对大肠杆菌的生长有明显的抑制作用,而初始质量浓度为30 mg/L的NP模拟废水经过弱电强化厌氧生物反应系统反应器处理后,在周期末的出水对大肠杆菌的生长抑制作用

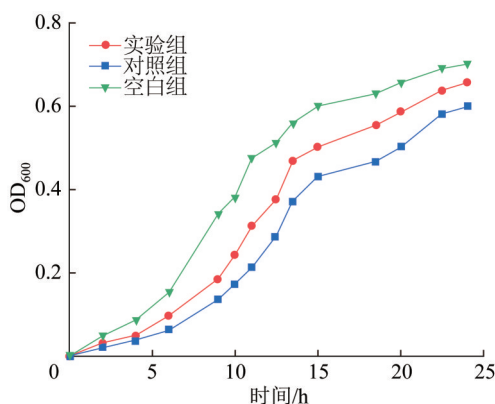


图6 空白组、对照组和实验组 OD₆₀₀ 值对比

Fig. 6 OD₆₀₀ of blank group, control group and NP group

显著降低。因此,实验结果表明,反应器出水中残留的有机物和无机物的生物毒性降低,弱电强化厌氧生物反应系统对废水中NP的降解属于绿色环保的去除工艺。

3 结论

采用弱电强化厌氧生物反应系统对废水中NP的降解进行研究,实验结果表明:

(1)在微生物驯化完成后,NP初始质量浓度为30 mg/L时,生物阳极闭路的NP最大降解率可达61.23%,TOC的去除率为54.02%,均优于生物阳极开路的表现。

(2)NP的微生物降解反应符合一级反应动力学模型,其一级反应速率常数大于生物阳极开路的相应值。

(3)弱电强化厌氧生物反应系统的产电周期约为6 d,最高电压约为0.72 V,最大功率密度为487.37 mW/m²。

(4)NP生物降解过程中共检测到7种降解产物,生物降解机理主要涉及到羟基化反应和氧化反应。

(5)生物毒性检测结果表明,NP经弱电强化厌氧生物反应体系降解后生物毒性明显降低。

参考文献

- [1] LU Zhijiang, GAN J. Analysis, toxicity, occurrence and biodegradation of nonylphenol isomers: A review[J]. Environment International, 2014, 73: 334-345.
- [2] ARUKWE A, CELIUS T, WALTHER B T, et al. Effects of xenoestrogen treatment on zona radiata protein and vitellogenin expression in Atlantic

- salmon (*Salmo salar*) [J]. Aquatic Toxicology, 2000, 49(3): 159-170.
- [3] 左明杰, 洪万树, 周理斌. 壬基酚对中华乌塘鳢精子发生及活力的影响[J]. 厦门大学学报: 自然科学版, 2010, 49(4): 579-584.
- ZUO Mingjie, HONG Wanshu, ZHOU Libin. Effects of nonylphenol on spermatogenesis and sperm motility in *bostrichthys sinensis lacépède* [J]. Journal of Xiamen University: Natural Science, 2010, 49(4): 579-584.
- [4] 邓茂先, 陈祥贵. 环境内分泌干扰物研究进展[J]. 国外医学: 卫生学分册, 2000(2): 65-68.
- DENG Maoxian, CHEN Xianggui. Research progress of environmental endocrine disruptors [J]. Foreign medical sciences: Section hygiene, 2000(2): 65-68.
- [5] DUAN Xu, WANG Xiao, XIE Jing, et al. Acidogenic bacteria assisted biodegradation of nonylphenol in waste activated sludge during anaerobic fermentation for short-chain fatty acids production [J]. Bioresource Technology, 2018, 268: 692-699.
- [6] 邵兵, 胡建英, 杨敏. 重庆流域嘉陵江和长江水环境中壬基酚污染状况调查[J]. 环境科学学报, 2002, 22(1): 12-16.
- SHAO Bing, HU Jianying, YANG Min. A survey of nonylphenol in aquatic environment of Chongqing valley [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2002, 22(1): 12-16.
- [7] JIN Xinglong, JIANG Guibin, HUANG Guolan, et al. Determination of 4-tert-octylphenol, 4-nonylphenol and bisphenol A in surface waters from the Haihe River in Tianjin by gas chromatography-mass spectrometry with selected ion monitoring [J]. Chemosphere, 2004, 56(11): 1113-1119.
- [8] 郝瑞霞, 梁鹏, 周玉文. 城市污水处理过程中壬基酚的迁移转化途径研究[J]. 中国给水排水, 2007, 23(1): 105-108.
- HAO Ruixia, LIANG Peng, ZHOU Yuwen. Study on translation and conversion behavior of nonylphenol in municipal wastewater treatment [J]. China Water & Wastewater, 2007, 23(1): 105-108.
- [9] PENG Jialin, WANG Guoguang, ZHANG Dahai, et al. Photodegradation of nonylphenol in aqueous solution by simulated solar UV-irradiation: The comprehensive effect of nitrate, ferric ion and bicarbonate [J]. Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry, 2016, 326: 9-15.
- [10] LEON-CONDES C, BARRERA-DÍAZ C, BARRIOS J, et al. A coupled ozonation-electrooxidation treatment for removal of bisphenol A, nonylphenol and triclosan from wastewater sludge [J]. International Journal of Environmental Science and Technology, 2017, 14(4): 707-716.
- [11] LIMMUN W, ITO A, ISHIKAWA N, et al. Removal of nonylphenol and nonylphenol monoethoxylate from water and anaerobically digested sewage sludge by Ferrate (VI) [J]. Chemosphere, 2019, 236: 124399.
- [12] 赵晓祥, 董加涛, 庄惠生. 恶臭假单胞菌降解壬基酚的条件优化及产物分析[J]. 安全与环境学报, 2008, 8(3): 85-89.

- ZHAO Xiaoxiang, DONG Jiatao, ZHUANG Huisheng. Optimal biodegradation conditions of *Pseudomonas putida* for nonylphenol and the analyses of its degradation products[J]. Journal of Safety and Environment, 2008, 8(3): 85-89.
- [13] RAHMANI A R, SALARI M, SHABANLOO A, et al. Sono-catalytic activation of persulfate by nZVI-reduced graphene oxide for degradation of nonylphenol in aqueous solution: Process optimization, synergistic effect and degradation pathway[J]. Journal of Environmental Chemical Engineering, 2020, 8(5): 104202.
- [14] 孙齐, 韩严和, 齐蒙蒙. 微生物燃料电池应用及性能优化研究进展[J]. 工业水处理, 2020, 40(7): 6-11.
- SUN Qi, HAN Yanhe, QI Mengmeng. Research progress on application and performance optimization of microbial fuel cells[J]. Industrial Water Treatment, 2020, 40(7): 6-11.
- [15] 华涛, 李胜男, 冯宇航, 等. 典型大环内酯类抗生素污染物生物电化学降解研究[J]. 工业水处理, 2020, 40(2): 50-55.
- HUA Tao, LI Shengnan, FENG Yuhang, et al. Research on typical macrolides degradation by microbial electrochemical technologies[J]. Industrial Water Treatment, 2020, 40(2): 50-55.
- [16] HASSAN H, JIN Bo, DAI Sheng, et al. Chemical impact of catholytes on *Bacillus subtilis*-catalysed microbial fuel cell performance for degrading 2, 4-dichlorophenol[J]. Chemical Engineering Journal, 2016, 301: 103-114.
- [17] 康达, 汪素芳, 岳秀萍. 零价铁强化厌氧-MFC耦合降解喹啉效果影响探究[J]. 工业水处理, 2018, 38(9): 17-20.
- KANG Da, WANG Sufang, YUE Xiuping. Research on the influence of enhanced anaerobic zero valent iron-microbial fuel cell combination on the effect of quinoline degradation[J]. Industrial Water Treatment, 2018, 38(9): 17-20.
- [18] 汪素芳, 郑杰蓉, 赵晓婵, 等. 阴阳室微生物燃料电池对磺胺嘧啶的降解性能及其产物生物毒性[J]. 科学技术与工程, 2020, 20(10): 4172-4177.
- WANG Sufang, ZHENG Jierong, ZHAO Xiaochan, et al. Removal of sulfadiazine by cathode-anode microbial fuel cells and the biotoxicity of the intermediate[J]. Science Technology and Engineering, 2020, 20(10): 4172-4177.
- [19] 刘芝宏. 游离亚硝酸强化剩余污泥电发酵产氢同步磷释放及机制研究[D]. 太原: 太原理工大学, 2020.
- LIU Zhihong. Study on hydrogen recovery and phosphorus release mechanism in electro-fermentation system enhanced by free nitrous acid[D]. Taiyuan: Taiyuan University of Technology, 2020.
- [20] LIU Zhihong, ZHOU Aijuan, LIU Hongyan, et al. Extracellular polymeric substance decomposition linked to hydrogen recovery from waste activated sludge: Role of peracetic acid and free nitrous acid copretreatment in a prefermentation-bioelectrolysis cascading system[J]. Water Research, 2020, 176: 115724.
- [21] LIANG Dawei, PENG Sikan, LU Shanfu, et al. Enhancement of hydrogen production in a single chamber microbial electrolysis cell through anode arrangement optimization[J]. Bioresource Technology, 2011, 102(23): 10881-10885.
- [22] 冯宇杰. 光催化辅助微生物燃料电池对广谱抗菌类抗生素的降解性能研究[D]. 太原: 太原理工大学, 2020.
- FENG Yujie. Study on the degradation performance of broad-spectrum antimicrobial antibiotics by photocatalytically assisted microbial fuel cells[D]. Taiyuan: Taiyuan University of Technology, 2020.
- [23] 杨玉蓉, 蒋瑾, 刘小红, 等. 微生物燃料电池对磺胺间甲氧嘧啶的降解研究[J]. 农业环境科学学报, 2020, 39(3): 612-620.
- YANG Yurong, JIANG Jin, LIU Xiaohong, et al. Effects of microbial fuel cells on sulfamonomethoxine degradation[J]. Journal of Agro-Environment Science, 2020, 39(3): 612-620.
- [24] MTIBAA R, EZZANAD A, ARANDA E, et al. Biodegradation and toxicity reduction of nonylphenol, 4-tert-octylphenol and 2, 4-dichlorophenol by the ascomycetous fungus *Thielavia* sp HJ22: Identification of fungal metabolites and proposal of a putative pathway[J]. Science of the Total Environment, 2020, 708: 135129.
- [25] 郝瑞霞, 梁鹏, 赵曼, 等. 壬基酚初级生物降解产物的辨认[J]. 环境科学, 2008, 29(4): 1077-1081.
- HAO Ruixia, LIANG Peng, ZHAO Man, et al. Recognition and analysis on primary metabolites of nonylphenol[J]. Environmental Science, 2008, 29(4): 1077-1081.

[作者简介] 王翠翠(1996—), 硕士。E-mail: wangcuicui427@163.com。通讯作者: 汪素芳, 副教授。E-mail: wangsufang@tyut.edu.cn。

[收稿日期] 2022-07-30(修改稿)