



王舒,刘兴翔,张宸僊,等.生物电化学系统去除抗生素研究进展[J].能源环境保护,2022,36(3):8-15.
Wang Shu,Liu Xingxiang,Zhang Chenxi,et al. Research progress on removal of antibiotics by bioelectrochemical systems[J]. Energy Environmental Protection,2022,36(3):8-15.

生物电化学系统去除抗生素研究进展

王舒¹,刘兴翔¹,张宸僊¹,徐弘炜¹,杨泽¹,陈斌¹,张帅^{1,2,3,*}

(1.南京信息工程大学环境科学与工程学院,江苏南京 210044;
2.江苏省大气环境监测与污染控制重点实验室(AEMPC),江苏南京 210044;
3.大气环境与装备技术协同创新中心(CIC-AEET),江苏南京 210044)

摘要:本文介绍了生物电化学系统(BES)对抗生素的去除性能,总结了反应过程对微生物电解池(MEC)性能和微生物燃料电池(MFCs)产电的影响,分析了 BES 耦合系统的处理效率,探讨了耐药细菌(ARB)和抗生素耐药性基因(ARGs)的归趋。分析认为:在 MEC 中,外加电压的大小影响抗生素降解效率,阴极提供电子并还原抗生素;抗生素的有效去除主要依靠 BES 中的共代谢降解或阳极直接氧化,抗生素可以充当唯一电子供体并且作为 MFC 发电的唯一碳源;在没有外接电源的情况下,一些耦合系统对抗生素的去除更为节能高效;降解抗生素的过程中,低电流可以促进 ARGs 通过垂直基因转移(VGT)和水平基因转移(HGT)传播,高电流则有望消除 ARB 和 ARGs。

关键词:抗生素;生物电化学系统;微生物燃料电池;微生物电解池;抗生素耐药基因

中图分类号:X703 文献标识码:A 文章编号:1006-8759(2022)03-0008-08

Research progress on removal of antibiotics by bioelectrochemical systems

WANG Shu¹, LIU Xingxiang¹, ZHANG Chenxi¹, XU Hongwei¹, YANG Ze¹, CHEN BIN¹, ZHANG Shuai^{1,2,3,*}

(1.School of Environmental Science and Engineering, Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044, China; 2.Jiangsu Key Laboratory of Atmospheric Environment Monitoring and Pollution Control (AEMPC), Nanjing 210044, China; 3.Collaborative Innovation Center of Atmospheric Environment and Equipment Technology (CIC-AEET), Nanjing 210044, China)

Abstract: The removal of antibiotics by bioelectrochemical systems (BES) was introduced. The effects of reaction processes on the performance of microbial electrolytic cell (MEC) and the electricity production of microbial fuel cells (MFCs) were summarized. The treatment efficiency of the BES coupling system was analyzed, and the fate of antibiotic resistance bacteria (ARB) and antibiotic resistance genes (ARGs) was discussed. The analysis shows that in MEC, the magnitude of applied voltage affects the degradation efficiency of antibiotics, and the cathode provides electrons and reduces antibiotics. The effective removal of antibiotics in BES mainly depends on the co-metabolic degradation or direct oxidation in the anode. Antibiotics can act as the only electron donor and the only carbon source for MFC power generation. Some coupling systems are more energy-saving and efficient in the removal of antibiotics without external power supply. During the degradation of antibiotics, low currents can facilitate the propagation of ARGs through vertical gene transfer (VGT) and horizontal gene transfer (HGT), while high currents are expected to eliminate ARB and ARGs.

Key Words: Antibiotics; Bioelectrochemical systems; Microbial fuel cells; Microbial electrolysis cells; Antibiotic resistance genes

收稿日期:2021-12-30;责任编辑:蒋雯婷
基金项目:江苏省自然科学基金(BK20200816)
第一作者简介:王舒(1998-),女,安徽蚌埠人,硕士研究生,研究方向为水环境抗性基因转移。E-mail:20201248142@nuist.edu.cn
通讯作者简介:张帅(1987-),男,安徽萧县人,博士,副教授,研究领域为水污染控制。E-mail:zhangshuai198702@163.com

0 引 言

抗生素被广泛应用于人类医药、畜牧业、农业和水产养殖业^[1],但由于其在人和动物肠道中不能被完全代谢,导致大量抗生素排放至城市污水中。污水处理厂(WWTP)、畜牧养殖场、水产养殖场和地表径流排出的抗生素会通过不同途径进入到自然水体中^[2]。即使低浓度的抗生素也会对人类和环境健康产生重大影响^[3]。不仅如此,水环境中的抗生素也可以诱导微生物产生耐药基因,进而产生耐药细菌(Antibiotic Resistant Bacteria, ARB)^[4]。近年来,世界卫生组织将 ARB 及抗生素耐药性基因(Antibiotic Resistance Genes, ARGs)的出现和传播列为公众健康的三大威胁之一^[5]。因此,亟需开展污水中抗生素及耐药性的去除研究。然而,现有研究证明污水处理厂是 ARGs 的污染源^[6]。不仅如此,污水中残留的抗生素持续施加选择压力可能有利于活性污泥中微生物间 ARGs 的水平基因转移(Horizontal Gene Transfer, HGT)^[7]。此外,由于抗生素对微生物群落具有致命的杀伤力,所以传统的生物处理很难有效地去除污水中的抗生素^[8]。

近年来,微生物燃料电池(Microbial Fuel Cells, MFCs)和微生物电解池(Microbial Electrolysis Cell, MEC)等生物电化学系统(Bioelectrochemical System, BES)作为一类新型生物技术^[9],被广泛应用于抗生素等难降解有机物的去除。MFC 是利用微生物进行氧化还原反应将有机物的

化学能转换为电能的装置,其基本运行原理为:阳极室保持厌氧的状态下,微生物利用有机物进行催化氧化反应产生电子、质子和二氧化碳;电子通过外电路传到阴极并形成电流,而质子通过质子交换膜传递到阴极;阴极一般维持在好氧状态,氧气与质子结合被还原成水。MEC 是在 MFC 的基础上外接电源,使阴极处于较低电位,以微生物作为反应主体,而阳极产生的电子在阴极参与还原反应产生氢气。研究人员表明, BES 可以通过氧化还原反应提高抗生素的去除率^[3]。MFC 在降解头孢曲松钠(Ceftriaxone sodium)的同时产生电能^[10]。Zhang 等人^[11]发现,在三维生物膜电极反应器中,200 $\mu\text{g/L}$ 磺胺甲恶唑(SMX)的降解率可达 90%^[12]。

一些传统的污水处理技术,如人工湿地(CW)、膜生物反应器(MBR)等与 MFC 相结合,分别发挥了各自的优势。人工湿地型微生物燃料电池(CW-MFC)是一项利用人工湿地底层厌氧环境构建阳极,并用人工湿地表层好氧环境作为阴极,用以处理抗生素等难降解废水并产生能量的新技术^[13]。MBR 是同时具有膜分离和生物处理单元的新型污水处理技术。MFC 和 MBR 系统的耦合具有抗生素处理效果好、污泥产量低和节能效果显著等优点^[14]。本文通过综述前人的研究成果,分析了 BES 及联用技术对抗生素的去除性能,探究了在抗生素去除的过程中对 MFC 产电及 MEC 性能的影响,讨论了 ARB 和 ARGs 在 BES 中的归趋。

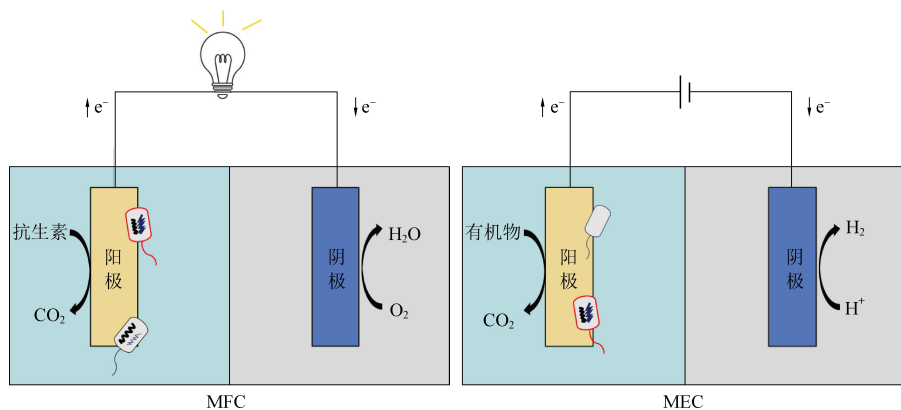


图 1 生物电化学系统装置原理图

Fig.1 Schematic diagram of the bioelectrochemical system

1 MEC 去除抗生素

1.1 去除抗生素的性能

近年来,MEC 在去除抗生素方面的性能受

到广泛关注(表 1)。自从 Harnisch 等人^[15]利用 MEC 降解磺胺类药物并得出显著成效,对使用 MEC 去除氯霉素(CAP)(92.5%~99%)、磺胺类抗生素(69%~88%)和四环素类抗生素

(TC) (>72%) 的研究也得到进一步加强(表 1)。使用如石墨纤维刷、活性碳纤维和金属泡沫电极等电极在 MEC 上的作用(表 1) 同样也受到普遍关注。此外,MEC 的运行温度也会对 CAP 的去除效果有一定的影响,温度从 25 ℃

降至 10 ℃ 时,CAP 的降解效率显著降低^[16],这可能是温度降低导致阴极电流减少所致。在低温下除了电极上的胞外电子对 CAP 的降解会受到抑制外,嗜阴微生物代谢葡萄糖也同样会受到抑制^[16]。

表 1 MEC 对抗生素去除的性能总结

Table 1 Summary of the performance of MEC in antibiotic removal

电极种类	抗生素种类及去除率	进样浓度/(mg · L ⁻¹)	时间/h	外加电压/V	ARGs	参考文献
石墨棒	磺胺 (69.0%)	0.006	168	0.20	/	[15]
碳布	氯霉素 (96.0%)	32	24	0.50	/	[17]
石墨纤维刷	氯霉素 (86.3%)	30	24	0.50	/	[18]
石墨纤维刷	氯霉素, 呋喃西林, 甲硝唑 (99.0%)	30	24	0.50	/	[16]
石墨纤维刷	氯霉素, 氟苯尼考 (98.0%)	50	9	1.25	/	[19]
活性碳纤维/钛网	四环素, 磺胺甲恶唑 (>88.0%)	0.2	40	0.80	<i>sulI, sulII, sulIII, tetA, tetC, tetO, tetQ, and tetW</i>	[20]
碳石墨毡	氯霉素 (>95.0%)	50	72	1.25	<i>floR and cmlA</i>	[21]
金属泡沫电极	氯霉素 (95.0%)	32	120	0.50	/	[22]
活性碳纤维/钛网	四环素, 磺胺甲恶唑 (>72.0%)	0.8	40	0.80	<i>sulI, sulII, sulIII, tetA, tetC, tetO, tetQ, and tetW</i>	[23]
碳石墨毡	氯霉素 (92.5%)	50	96	1.50	<i>cmlA, floR, tetC, sulI and intI1</i>	[24]
活性碳纤维	磺胺嘧啶 (80.0%)	160	24	/	<i>sulI, sulII, sulIII, and sulA</i>	[25]
碳布	红霉素 (99%)	20	48	0.90	<i>ermG, ermB, ermC, ermF and ermT</i>	[26]
碳布	磺胺甲恶唑 (92.5%)	30	72	0.60	<i>sulI, sulII, sulIII, and sulA, intI1, intI2</i>	[27]

注:/表示未分析

1.2 影响抗生素去除效果的因素

外加电压是决定抗生素在 MEC 中降解效率的重要因素之一。当 MEC 的电压从 0 增加到 0.9 V 时,磺胺嘧啶 (SDZ) 的去除效率明显提高^[25]。这可能归因于电压刺激细菌活性并且加速了生物膜的形成。由于阴极电位可以提供足够电子来改变微生物群落^[21],当阴极电位为-1.25 V 时,CAP 的去除效率有提高的趋势。Wu 等人研究发现,当电压从 0.3 V 增加到 0.5 V 时,CAP 的去除效率有显著提高,这是因为在较高的外加电压下,阴极电位较低,电流密度较大^[22]。

1.3 生物阴极在去除抗生素中的作用

生物阴极是决定抗生素去除效果的重要因素。在 MEC 中,24 h 内生物阴极比非生物阴极对 CAP 的去除效率更高^[18]。断开生物阴极后,CAP 去除率降至 62.0%^[17]。尽管两个阴极的阴极电位相似,但生物阴极的初始电流是非生物阴极的 3.2 倍^[17]。生物阴极显示出较高的 CAP 去除率,可能是因为生物阴极微生物可以直接从阴极获得电子并参与 CAP 降解^[17]。阴极上的生物膜有助于电极和电解质之间的传质^[18]。除此之外,与典型的

金属电极相比,泡沫金属具有更大的比表面积和多孔壁,使得电极可以通过电化学沉积作用降解抗生素。Wu 等人以碳棒、泡沫镍和泡沫铜为阴极,对 MEC 中的 CAP 降解性能进行研究发现,泡沫铜对 CAP 具有完全降解的性能^[22],表明在 MEC 中,泡沫金属是一种很有前途的去除抗生素的阴极材料。

2 MFC 去除抗生素

2.1 MFC 去除抗生素的性能

表 2 总结了 MFC 处理抗生素的性能。双室 MFCs 和单室 MFC 经常用于抗生素的去除。研究报道,单室 MFC 对 β-内酰胺抗生素的去除率高达 98%,而双室 MFCs 对硝基咪唑、磺胺类、氯霉素、喹诺酮和四环素的去除率分别为 85%、90%、84%、99% 和 80%^[11,28-32] (表 2),由此可见,MFC 去除抗生素的效率较高。然而也有研究指出,MFC 运行几个月后,磺胺类抗生素的浓度变化趋于平缓。基于以上分析表明,微生物活性的提升是导致 MFC 中抗生素去除的主要原因^[3]。

2.2 MFC 阳极在去除抗生素中的作用

在传统的 MFC 中,阳极可以通过氧化降解抗

表 2 MFC 对抗生素去除的性能总结
Table 2 Summary of the performance of MFC in antibiotic removal

MFC 种类	抗生素种类及去除率	进样浓度/ (mg · L ⁻¹)	时间/h	最大电流密度/ (m · Am ⁻²)	最大电压密度/ (W · m ⁻³)	参考文献
单室	青霉素 (98.0%)	50	24	10.7	101.20	[31]
单室	头孢曲松钠 (91.0%)	50	24	14 800.0	113.00	[10]
单室	诺氟沙星 (65.5%)	4	/	/	1.50	[33]
双室	甲硝唑 (85.4%)	10	24	318.7	0.16	[29]
双室	磺胺甲恶唑 (70.0%)	200	24	/	/	[34]
双室	氯霉素 (61.0%)	80	48	408.0	0.86	[28]
双室	磺胺 (90.0%)	30	96	/	/	[35]
双室	磺胺甲恶唑 (85.0%)	20	12	/	/	[3]
双室	四环素 (80.0%)	50	168	578.7	2.50	[30]
双室	氯霉素 (84.0%)	50	12	/	/	[11]
双室	磺胺甲恶唑 (90.0%)	20	/	/	/	[36]
双室	诺氟沙星,磺胺嘧啶 (>99.0%)	(3~31)×10 ⁻³	/	/	5.80	[32]

注:/表示未分析

生素,而空气阴极很难降解抗生素。然而,传统的厌氧法很难高效降解抗生素。因此,MFC 对抗生素降解性能的提高可能是由于阳极发生氧化反应产生电子进而形成电流^[10]。Zhang 等人研究表明,电能的产生使得微生物降解头孢唑林钠(CFZS)的效率显著提高^[37]。阳极室中持续的电子转移使其成为厌氧末端电子受体,提高了功能性厌氧微生物的新陈代谢活动^[28]。一般来说,MFC 中微生物的 ATP 水平高于开路系统,这表明 MFC 中的微生物比对照系统中的微生物更活跃,这可能是通过 MFC 中抗生素的快速降解来实现的^[3]。

2.3 抗生素浓度和共存有机物的影响

MFC 进水中抗生素浓度也会影响其去除效果。Song 等人发现初始浓度为 50 mg/L 的甲硝唑初始去除率极低,24 h 后的去除率提升到 44%^[29]。Wang 等人研究发现当 MFC 中 SMX 的浓度从 20 mg/L 增加到 200 mg/L 时,去除 50% 的 SMX 的天数从 1 d 增加到 3 d^[34]。这些结果表明,较高的初始抗生素浓度会降低 MFC 对其的去除能力,可能是由于抗生素抑制了装置中微生物的活性^[3]。

微生物极易利用如葡萄糖和乙酸这类极易代谢的碳源,为 MFC 提供电能。然而抗生素并不是微生物必需的碳源,它的存在甚至可以抑制或杀死菌群^[32]。MFC 中经常要添加额外的碳源,以平衡微生物群落的共生和竞争关系。此前的研究主要集中在添加有机物和不添加有机物时抗生素的去除性能。例如,MFC 中头孢曲松钠的去除率为

91%,而在含有 50 mg/L 头孢曲松钠和 1 000 mg/L 葡萄糖的厌氧反应器中,头孢曲松钠去除率为 51%^[10]。Miran 等人研究发现,MFC 中加入浓度为 0.08 mmol 乳酸钠(COD500 mg/L)时,SMX 的去除效率高于 90%。更有研究指出 MFC 中,以醋酸为电子供体,CAP 的去除率得到显著提高^[11]。这些结果表明,抗生素的加速去除主要归因于以生物催化为基础的共代谢降解过程中氧化速度的提高^[36]。

未投加额外碳源的 MFC 在去除硝基芳香族抗生素氯霉素方面表现出极差的性能^[28]。以 SMX 为唯一有机物的 MFC 运行 10 个月后,20 mg/L SMX 在 12 h 内去除率约为 85%^[3]。这表明基于微生物催化的抗生素厌氧降解过程可能是阳极室内抗生素作为唯一电子供体直接氧化所致^[3]。

2.4 抗生素对 MFC 产电性能的影响

有研究发现,在 13 A/m² 的电流密度下,使用 50 mg/L 头孢曲松钠和 1 000 mg/L 葡萄糖的混合物,最大功率密度可达 113 W/m³,比只加 100 mg/L 葡萄糖的 MFC 的功率密度高 6 倍^[10]。青霉素浓度从 0 增加到 50 mg/L 时,由葡萄糖作为有机物的 MFC 的最大功率密度也会相应增加^[31]。微生物可代谢如青霉素、罗红霉素、磺胺嘧啶和诺氟沙星等抗生素,从而维持 MFC 的性能^[31]。当抗生素降解产物为氮源和碳源时,MFC 可能会对其进一步消耗^[3]。这些结果表明,产电量取决于抗生素的种类、浓度以及共代谢底物。

青霉素会增加细胞膜通透性,提高酶的释放量和活性^[38],从而提高膜外电子转移效率,进而提高 MFC 的性能^[31]。Zhang 等人^[37]研究表明,当 CFZS 浓度增加到 100 mg/L 时,电压下降到 0.1 V,而当 CFZS 浓度增加到 300 mg/L 时,并不会降低以 CFZS 浓度为 100 mg/L 的 MFC 长期运行的电压^[37],这表明抗生素可能驯化了更多种抗药性的微生物,从而提高 MFC 的抗生素耐药性。Sun 等人研究发现,在 MFC 的运行过程中,土霉素(OTC)的降解产物可有效促进电子从外源传递到阳极^[39]。除此之外,抗生素还能刺激阳极生物膜的生物电催化活性^[40]。有研究发现,MFC 在

50 mg/L TC 存在条件下运行 40 h 后,最大电压可达 157 mV,表明 TC 可以作为 MFC 唯一的发电底物^[30]。

3 BES 耦合系统去除抗生素

CW 和 MBR 系统等传统的废水处理技术作为独立运行单元去改善日益恶化的水环境是不够的。近年来,已经开发了许多用于去除抗生素的耦合 BES 系统:MFC 吸附系统、MFC 中的耦合光/电化学催化系统(MFC-PEC, MFC-EC)、MBR-MFC、CW-MFC 和 CW-MFC-MEC,各系统性能详见表 3。

表 3 抗生素去除耦合系统的性能总结

Table 3 Summary of the performance of coupling systems in antibiotic removal

类型	抗生素种类及去除率	进样浓度/(mg·L ⁻¹)	时间/h	产生电能	ARGs	参考文献
MFC	四环素(99.7%)	50	12.5	0.75 W/m ²	/	[41]
CW-MFC-MEC	磺胺甲恶唑(95%)	30	21.0	/	/	[12]
CW-MFC	磺胺甲恶唑,四环素(>99%)	8	60.0	0.058 W/m ²	<i>tetA, tetC, tetO, tetQ, tetW, sulI, and sulII</i>	[42]
MBR-MFC	四环素,盐酸盐(>90.0%)	180	8.5	5.1 W/m ³	/	[14]
CW-MFC-MEC	磺胺甲恶唑(99%)	4	60.0	/	<i>sulI, sulII, and sulIII</i>	[43]
CW-MFC	磺胺甲恶唑(82.4%)	4	72.0	7.428 mW/m ²	<i>sulI</i>	[44]

注:/表示未分析

Yang 等人开发了一种新型的连续流 MFC 吸附系统来去除 TC,发现高 TC 浓度、高电解质浓度和低 pH 值可以提高 TC 的去除率。这项研究还表明,由于电流较大,增加串联的 MFC 数量可以加快 TC 的去除^[41]。在另一项研究中,构建了 MFC-PEC 和 MFC-EC 来降解阴极室中的 TC^[45]。与以 FeO/TiO₂为阴极的 MFC-EC 相比,生物电有助于氧的还原,FeO/TiO₂会形成活性氧物种(ROS),从而有效地促进 TC 的降解^[45]。此外,有研究还发现一种新型的 FeOOH/TiO₂颗粒活性炭(FeOOH/TiO₂/GAC),填充颗粒活性炭的 MBR-MFC 耦合系统可以减轻膜污染,盐酸去除率可达 90%以上^[14]。

CW-MFC 作为一种新兴的抗生素去除技术,近年来引起了人们的广泛关注。最近的一项研究中,TC 和 SMX 去除率十分可观,与 SMX 相比,TC 在 CW-MFC 中显示出更高的去除率^[42]。在闭路模式的 CW-MFC 中,出水 SDZ 浓度低于开路模式^[46]。该结果与基质吸收、电极吸附、微生物降解、所需的脱氢酶活性、植物吸收和水解等一系列生物和物理化学过程相一致,可以推断这些过程可能与 CW-MFC 中抗生素的去除有关^[42]。单一

的 CW-MFC 和 MEC 可以有效地去除抗生素,但使用这项技术时 ARGs 释放的风险几乎没有受到关注。在 CW-MFC-MEC 系统中,抗生素的降解是通过利用 CW-MFC 产生的生物电实现的,不需要外接电源。MEC 用于抗生素的预处理,其出水可作为 CW-MFC 的进水从而使抗生素被进一步降解。已有研究证明该耦合系统能降解高浓度的 SMX^[47]。这是由于 CW-MFC 提供相对稳定的电能,可以支持 MEC 进行有效的 SMX 预处理(>85.73%),随后 CW-MFC 可进一步降解 SMX^[47]。这些耦合系统在没有外接电源的情况下去除抗生素表现出节能高效的特点。

4 BES 中 ARB 和 ARGs 的归趋

厌氧 BES 产生的污泥相比污水处理厂较少,降低了 ARGs 在污泥处理过程中的增殖^[21]。虽然 BES 中抗生素的去除率极高,但很少有研究关注使用这项技术时释放 ARB 和 ARGs 的风险。因此,探究 BES 中 ARB 和 ARGs 的去向具有重要意义。阴极电位、阳极、抗生素及其浓度和溶解氧等操作参数都有可能影响 ARGs 和 ARB 的释放及其丰度^[20-21,48-49]。

4.1 ARB 在 BES 中的归趋

Yuan 等人研究结果表明,BES 对耐磺胺及四环素类大肠杆菌的平均去除率较高,当 BES 从大电流切换到开路模式时,大肠菌群含量显著增加^[49]。此外,在 BES 中,10 V 直流电压下 48 h 的菌浓度是对照组(电压为 0)的 1.48 倍^[48]。抗氯霉素耐药菌(CRB)在-1.25 V 时的浓度是-1 V 时的 6 倍甚至 18 倍以上,说明 CRB 的丰度随着负阴极电位的增加而增加,这是因为在阳极电极中外源电子排出后,ARGs 与宿主菌仍存在^[49]。在微量营养培养基中施加 25 mA 的电流,ARB 的去除率为 84.5%,这是由于 BES 在大电流下菌群发生应激反应产生大量 ROS 所致^[50]。这些结果表明,BES 处理残留抗生素的过程中施加适当的电流可以抑制 ARB 的产生。

BES 中 ARB 含量的增加或减少可能是由电刺激下的氧化应激作用和三磷酸腺苷(ATP)的变化引起的。随着电流密度的增加,ARB 中 ROS 的产生量增加,表明 ROS 与电流呈正相关。与开路模式相比,当电流从 7 mA 增加 28 mA 时,乳酸脱氢酶(LDH)含量随之增加,表明电流增强了细胞膜的通透性^[48]。在强电压作用下,由于细胞膜性质的改变,抗生素可能进入细胞,导致没有 ARGs 的细菌死亡,从而选择性地增加 ARB 的丰度^[21]。此外,ATP 浓度随电流的增加而增加,因此 ARB 的丰度也相应增加^[48]。由此可得,适当的电刺激可提高 ARB 中 ROS 的生成、影响膜通透性和 ATP 水平。然而,当电流增加一个特定范围(>28 mA)时,过量的 ROS 产生导致 ARB 下降^[48]。

4.2 ARGs 在 BES 中的归趋

与 ARB 相比,BES 中 ARGs 的去向相当复杂。在 MEC 中,氯霉素抗性基因的表达随着负阴极电位的增加而降低^[21]。当电流从 0 增加到 25 mA 时,ARGs 的丰度降低约 90%^[50]。因此,将电流应用于 BES 处理抗生素污染废水是有益的。此前的研究表明电刺激会增加 ARGs 的丰度^[46]。当 MFC 断路运行时,*intI1*、*sulI* 和 *tet(E)* 的平均去除率提高了约 0.3 倍^[49]。同样,在 LB 培养基中,随着电压从 4 V 增加到 10 V,*sulII* 基因的表达水平呈现先上升后下降的趋势^[48]。因此,有研究推测低电流可以促进 ARGs 的丰度增加,高电流可能会消除 BES 中的 ARGs。Yuan 等人研究表明,ARGs 与宿主 ARB 同时存在,宿主 ARB 可通过利用 BES 中的电子受体和电子传递体而存活^[49]。

5 结 论

本文就 BES 在去除抗生素的性能和杀灭 ARGs 和 ARB 方面的潜在作用进行了综述。在 MEC 中,外加电压的大小影响降解抗生素的效率,阴极提供电子以还原抗生素。有效去除抗生素主要是依靠 BES 中的共代谢降解或者阳极直接氧化,其中在 MFC 中抗生素可以充当唯一电子供体并且作为 MFC 发电的唯一碳源。一些耦合系统在没有外接电源的情况下去除抗生素具有节能高效的特点。此外,降解抗生素的过程中,低电流可以促进 ARGs 通过垂直基因转移(Vertical Gene Transfer,VGT)和水平基因转移(HGT),高电流则有望消除 ARB 和 ARGs。BES 处理抗生素废水具有广阔的前景,其处理效率受多种因素影响,未来可从多种因素影响下对 BES 的应用进行研究,以进一步推动 BES 在控制抗生素和抗性基因污染方面的应用与发展。

参考文献

- [1] Cetecioglu Z, Ince B, Orhon D, et al. Anaerobic sulfamethoxazole degradation is driven by homoacetogenesis coupled with hydrogenotrophic methanogenesis [J]. Water Research, 2016, 90: 79-89.
- [2] Liu Y, Chen Y, Feng M, et al. Occurrence of antibiotics and antibiotic resistance genes and their correlations in river-type drinking water source, China [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2021, 28 (31): 42339-42352.
- [3] Wang L, Liu Y L, Ma J, et al. Rapid degradation of sulphamethoxazole and the further transformation of 3-amino-5-methylisoxazole in a microbial fuel cell [J]. Water Research, 2016, 88: 322-328.
- [4] Fernandes J P, Almeida C M R, Pereira A C, et al. Microbial community dynamics associated with veterinary antibiotics removal in constructed wetlands microcosms [J]. Bioresource Technology, 2015, 182: 26-33.
- [5] O'neil J. Antimicrobial resistance: Tackling a crisis for the health and wealth of nations [J]. The Review on Antimicrobial Resistance, 2014, 20: 1-16.
- [6] Guo X Y, Yan Z, Zhang Y, et al. Behavior of antibiotic resistance genes under extremely high-level antibiotic selection pressures in pharmaceutical wastewater treatment plants [J]. Science of the Total Environment, 2018, 612: 119-128.
- [7] Kim S, Yun Z, Ha U H, et al. Transfer of antibiotic resistance plasmids in pure and activated sludge cultures in the presence of environmentally representative micro-contaminant concentrations [J]. Science of the Total Environment, 2014, 468-469: 813-820.
- [8] Kummerer K, Alexy R, Huttig J, et al. Standardized tests fail

- to assess the effects of antibiotics on environmental bacteria [J]. *Water Research*, 2004, 38 (8): 2111–2116.
- [9] Kumar R, Singh L, Wahid Z A, et al. Exoelectrogens in microbial fuel cells toward bioelectricity generation: A review [J]. *International Journal of Energy Research*, 2015, 39 (8): 1048–1067.
- [10] Wen Q, Kong F Y, Zheng H T, et al. Simultaneous processes of electricity generation and ceftriaxone sodium degradation in an air–cathode single chamber microbial fuel cell [J]. *Journal of Power Sources*, 2011, 196 (5): 2567–2572.
- [11] Zhang Q H, Zhang Y Y, Li D P. Cometabolic degradation of chloramphenicol via a meta–cleavage pathway in a microbial fuel cell and its microbial community [J]. *Bioresource Technology*, 2017, 229: 104–110.
- [12] Zhang S, Yang X L, Li H, et al. Degradation of sulfamethoxazole in bioelectrochemical system with power supplied by constructed wetland–coupled microbial fuel cells [J]. *Bioresource Technology*, 2017, 244: 345–352.
- [13] Fang Z, Song H L, Cang N, et al. Electricity production from Azo dye wastewater using a microbial fuel cell coupled constructed wetland operating under different operating conditions [J]. *Biosensors & Bioelectronics*, 2015, 68: 135–141.
- [14] Li Y H, Liu L F, Yang F L. Destruction of tetracycline hydrochloride antibiotics by FeOOH/TiO₂ granular activated carbon as expanded cathode in low–cost MBR/MFC coupled system [J]. *Journal of Membrane Science*, 2017, 525: 202–209.
- [15] Harnisch F, Gmirkiewicz C, Bogunovic B, et al. On the removal of sulfonamides using microbial bioelectrochemical systems [J]. *Electrochemistry Communications*, 2013, 26: 77–80.
- [16] Kong D Y, Liang B, Lee D J, et al. Effect of temperature switchover on the degradation of antibiotic chloramphenicol by biocathode bioelectrochemical system [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2014, 26 (8): 1689–1697.
- [17] Liang B, Cheng H Y, Kong D Y, et al. Accelerated reduction of chlorinated nitroaromatic antibiotic chloramphenicol by biocathode [J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47 (10): 5353–5361.
- [18] Sun F, Liu H, Liang B, et al. Reductive degradation of chloramphenicol using bioelectrochemical system (BES): A comparative study of abiotic cathode and biocathode [J]. *Bioresource Technology*, 2013, 143: 699–702.
- [19] Kong D Y, Liang B, Yun H, et al. Cathodic degradation of antibiotics: Characterization and pathway analysis [J]. *Water Research*, 2015, 72: 281–292.
- [20] Zhang S, Song H L, Yang X L, et al. Effect of electrical stimulation on the fate of sulfamethoxazole and tetracycline with their corresponding resistance genes in three–dimensional biofilm–electrode reactors [J]. *Chemosphere*, 2016, 164: 113–119.
- [21] Guo N, Wang Y, Yan L, et al. Effect of bio–electrochemical system on the fate and proliferation of chloramphenicol resistance genes during the treatment of chloramphenicol wastewater [J]. *Water Research*, 2017, 117: 95–101.
- [22] Wu D, Sun F Q, Zhou Y. Degradation of chloramphenicol with novel metal foam electrodes in bioelectrochemical systems [J]. *Electrochimica Acta*, 2017, 240: 136–145.
- [23] Zhang S, Song H L, Yang X L, et al. Behavior of tetracycline and sulfamethoxazole and their corresponding resistance genes in three–dimensional biofilm–electrode reactors with low current [J]. *Journal of Environmental Science and Health Part A Toxic/Hazardous Substances & Environmental Engineering*, 2017, 52 (3–4): 333–340.
- [24] Guo N, Wang Y, Tong T, et al. The fate of antibiotic resistance genes and their potential hosts during bio–electrochemical treatment of high–salinity pharmaceutical wastewater [J], 2018, 133: 79–86.
- [25] Yang X L, Zhang S, Li H, et al. Effects of voltage on sulfadiazine degradation and the response of sul genes and microbial communities in biofilm–electrode reactors [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2018, 151: 272–278.
- [26] Hua T, Li S, Li F, et al. Degradation performance and microbial community analysis of microbial electrolysis cells for erythromycin wastewater treatment [J]. *Biochemical Engineering Journal*, 2019, 146: 1–9.
- [27] Xue W, Zhou Q, Li F. Bacterial community changes and antibiotic resistance gene quantification in microbial electrolysis cells during long–term sulfamethoxazole treatment [J]. *Bioresource Technology*, 2019, 294: 122170.
- [28] Guo W, Geng M J, Song H, et al. Removal of chloramphenicol and simultaneous electricity generation by using microbial fuel cell technology [J]. *International Journal of Electrochemical Science*, 2016, 11 (6): 5128–5139.
- [29] Song H, Guo W, Liu M L, et al. Performance of microbial fuel cells on removal of metronidazole [J]. *Water Science and Technology*, 2013, 68 (12): 2599–2604.
- [30] Wang J, He M F, Zhang D L, et al. Simultaneous degradation of tetracycline by a microbial fuel cell and its toxicity evaluation by zebrafish [J]. *Royal Society Chemistry Advances*, 2017, 7 (70): 44226–44233.
- [31] Wen Q, Kong F Y, Zheng H T, et al. Electricity generation from synthetic penicillin wastewater in an air–cathode single chamber microbial fuel cell [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2011, 168 (2): 572–576.
- [32] Zhou Y, Zhu N W, Guo W Y, et al. Simultaneous electricity production and antibiotics removal by microbial fuel cells [J]. *Journal of Environmental Management*, 2018, 217: 565–572.
- [33] Ondon B S, Li S, Zhou Q, et al. Simultaneous removal and high tolerance of norfloxacin with electricity generation in microbial fuel cell and its antibiotic resistance genes quantification [J]. *Bioresource Technology*, 2020, 304: 122984.
- [34] Wang L, Wu Y C, Zheng Y, et al. Efficient degradation of sulfamethoxazole and the response of microbial communities in microbial fuel cells [J]. *Royal Society Chemistry Advances*,

- 2015, 5 (69): 56430-56437.
- [35] Guo W, Song H, Zhou L Y, et al. Simultaneous removal of sulfanilamide and bioelectricity generation in two-chambered microbial fuel cells [J]. *Desalination and Water Treatment*, 2016, 57 (52): 24982-24989.
- [36] Miran W, Jang J, Nawaz M, et al. Biodegradation of the sulfonamide antibiotic sulfamethoxazole by sulfamethoxazole acclimatized cultures in microbial fuel cells [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 627: 1058-1065.
- [37] Zhang E R, Yu Q L, Zhai W J, et al. High tolerance of and removal of cefazolin sodium in single-chamber microbial fuel cells operation [J]. *Bioresource Technology*, 2018, 249: 76-81.
- [38] Ramanavicius A, Ramanaviciene A. Hemoproteins indesign of biofuel cells [J]. *Fuel Cells*, 2009, 9 (1): 25-36.
- [39] Sun J, Xu W, Yang P, et al. Enhanced oxytetracycline removal coupling with increased power generation using a self-sustained photo-bioelectrochemical fuel cell [J]. *Chemosphere*, 2019, 221: 21-29.
- [40] Zhou L A, Li T, An J K, et al. Subminimal inhibitory concentration (sub-MIC) of antibiotic induces electroactive biofilm formation in bioelectrochemical systems [J]. *Water Research*, 2017, 125: 280-287.
- [41] Yang W L, Han H X, Zhou M H, et al. Simultaneous electricity generation and tetracycline removal in continuous flow electrosorption driven by microbial fuel cells [J]. *Royal Society Chemistry Advances*, 2015, 5 (61): 49513-49520.
- [42] 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]. *Royal Society Chemistry Advances*, 2016, 6 (98): 95999-96005.
- [43] Hua L, Hai Liang S, Xiao Li Y, et al. A continuous flow MFC-CW coupled with a biofilm electrode reactor to simultaneously attenuate sulfamethoxazole and its corresponding resistance genes [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 637-638: 295-305.
- [44] Dai M, Zhang Y, Wu Y, et al. Mechanism involved in the treatment of sulfamethoxazole in wastewater using a constructed wetland microbial fuel cell system [J]. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 2021, 9 (5): 106193.
- [45] Jiang C J, Liu L F, Crittenden J C. An electrochemical process that uses an Fe-O/TiO₂ cathode to degrade typical dyes and antibiotics and a bio-anode that produces electricity [J]. *Frontiers of Environmental Science & Engineering*, 2016, 10 (4): 8.
- [46] Song H-L, Li H, Zhang S, et al. Fate of sulfadiazine and its corresponding resistance genes in up-flow microbial fuel cell coupled constructed wetlands: Effects of circuit operation mode and hydraulic retention time [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2018, 350: 920-929.
- [47] Zhang S, Song H L, Yang X L, et al. A system composed of a biofilm electrode reactor and a microbial fuel cell - constructed wetland exhibited efficient sulfamethoxazole removal but induced sul genes [J]. *Bioresource Technology*, 2018, 256: 224-231.
- [48] Li H, Yang X L, Song H L, et al. Effects of direct current on *Klebsiella* spp. viability and corresponding resistance gene expression in simulative bio-electrochemical reactors [J]. *Chemosphere*, 2018, 196: 251-259.
- [49] Yuan H, Miller J H, Abu-Reesh I M, et al. Effects of electron acceptors on removal of antibiotic resistant *Escherichia coli*, resistance genes and class 1 integrons under anaerobic conditions [J]. *Science of the Total Environment*, 2016, 569: 1587-1594.
- [50] Li H, Zhang S, Yang X L, et al. Simulated wastewater reduced *Klebsiella michiganensis* strain LH-2 viability and corresponding antibiotic resistance gene abundance in bio-electrochemical reactors [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2018, 162: 376-382.