

人工湿地-微生物燃料电池中电极研究进展

吴同喜¹, 张环林¹, 欧阳军胜¹, 张军¹, 何厚柱^{2*}, 杜致远², 彭小明²

(1. 中交七鲤古镇(赣州)文化旅游有限公司, 江西 赣州, 341000; 2. 华东交通大学土木建筑学院, 江西 南昌 330013)

摘要: 近年来利用人工湿地(CW)与微生物燃料电池(MFC)相耦合, 组成一种新型的生物电化学系统人工湿地-微生物燃料电池(CW-MFC), 并对其反应原理、组成结构和影响系统运行因素等方面进行了大量的研究。人工湿地-微生物燃料电池(CW-MFC)兼具人工湿地和微生物燃料电池的优势, 特别是其对污染物的降解性能和 MFC 的生物发电性能。本文总结了电极的功能特性和应用, 介绍了不同电极材料在废水处理过程中对污染物降解以及对发电效率的影响, 并剖析了电极在应用过程中存在的问题, 最后对其未来的研究方向提出了展望。

关键词: 人工湿地, 微生物燃料电池, 电极, 污水处理

中图分类号: X70

文献标志码: A

Research progress of electrodes in constructed wetlands-microbial fuel cells

WU Tongxi¹, ZHANG Huanlin¹, OU Yangjunshen¹, ZHANG Jun¹, HE Houzhu^{2*}, DU Zhiyuan², PENG Xiaoming²

(1.China Communications Construction Qili Ancient Town (Ganzhou) Cultural Tourism Company Limited, Ganzhou 341000, China; 2. School of Civil Engineering and Architecture, East China Jiaotong University, Nanchang ,330013, China)

Abstract: In recent years, a new bioelectrochemical system, constructed wetland microbial fuel cell (CW-MFC), has been formed by coupling constructed wetland (CW) with microbial fuel cell (MFC), and its reaction principle, composition structure and factors affecting the operation of the system have been extensively studied. Constructed wetland-microbial fuel cell (CW-MFC) has the advantages of both constructed wetland and microbial fuel cell, especially its ability to degrade pollutants and the biological power generation performance of MFC. This paper summarizes the functional characteristics and application of electrodes, introduces the influence of different electrode materials on pollutant degradation and power generation efficiency in wastewater treatment, analyzes the problems existing in the application of electrodes, and finally puts forward prospects for their future research directions.

Keywords: Constructed wetland; Microbial fuel cell; Electrode; Wastewater treatment

收稿日期: 2023-03-15

引言

随着国家工业化进程的飞速发展，随之排放的多类型污水的处理面临着新的挑战^[1]。研究者们关注开发出可持续、高收益和友好节约型的水处理技术，以解决传统水处理技术的成本高、资源利用率少等问题。

人工湿地（Constructed Wetland, CW）作为一种人为地将砂、石、土等基质按照特定的比例组合，并根据实际环境选择合适的植物种植的生态系统。人工湿地利用基质、植物和微生物共同作用下，经过物理、化学和生物反应净化污水^[2-3]。人工湿地相对于传统的水处理手段有着运行成本低、持久耐用、对外加能源需求少和简易操作等优势，非常适合中、小城镇的污水处理^[4]。但是由于其处理效率不高、处理时间长、占地面积大等缺点，限制其广泛使用。

微生物燃料电池（Microbial Fuel Cell, MFC）是微生物和电池技术相结合的产物，能够利用微生物作为催化剂净化废水的同时收获电能，受到人们广泛关注^[5-6]。微生物燃料电池利用产电活跃细菌作为生物催化剂，在厌氧环境中通过降解有机物产生电子和质子，电子首先到达阳极并通过导线输送至阴极，质子经过基质层到达阴极，并与氧气和电子在好氧的条件下生成水，完成有机物的去除^[7]。目前研究将 MFC 与序批式活性污泥法^[8-9]、生物膜电极反应器^[10]、电渗析和微生物脱盐电池技术^[11-13]相耦合用来提高系统的去除能力。目前由于其产电效率低、内阻高等原因，未能将此技术广泛运用，关于微生物燃料电池的研究主要还停留在实验室阶段。

鉴于 CW 系统自然分层的氧化还原梯度（基质下方厌氧和植物附近好氧）与 MFC 系统运行过程中阳极厌氧和阴极好氧环境高度拟合，为 CW 和 MFC 系统相耦合提供了可行性的条件^[4]。Yadav 在 2010 年的第十二届国际湿地系统水污染控制会议上首次报告了人工湿地-微生物燃料电池耦合系统（Constructed Wetland Coupled With Microbial Fuel Cell, CW-MFC），随后于 2012 年将耦合系统搭建并成功启动^[15]，用来处理偶氮染料浓度为 500-2000 mg/L 的合成废水。当进水中亚甲基蓝染料浓度为 500 mg/L，水力停留时间 96 h 时，可获得 93.13 % 的染料去除率；进水染料浓度 1000 mg/L 时，检测出最大功率密度和电流密度分别为 15.73 mWm⁻² 和 69.75 mA m⁻²，由此开启了关于 CW-MFC 除污产电的研究。

将两种处理手段创新性的集成，打破 CW 和 MFC 技术的局限性，并将集成系统的处理能力加强，可实现废水处理的同时产生电量，如图 1 所示为系统原理和优点。CW-MFC 系统作为一种新型废水处理技术，近年来得到研究学者的广泛关注，而针对 CW-MFC 系统中电极的研究较少。基于此，本文着重介绍 CW-MFC 中电极对系统除污能力和产电性能的影响及相关研究，同时对 CW-MFC 的应用前景进行了展望。

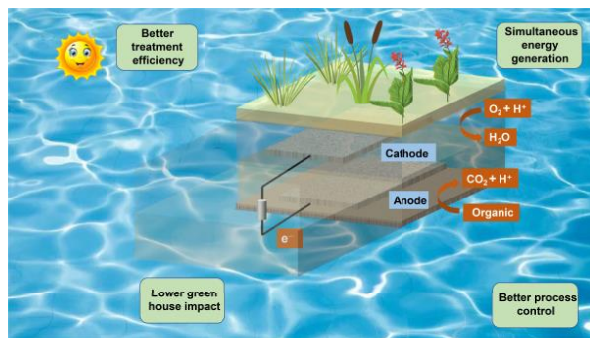


图 1 CW-MFC 反应原理和优点

Fig.1 Principle and advantages of CW-MFC

1 电极概述

电极的存在是区分 CW 和 CW-MFC 的重要依据，也是 CW-MFC 系统重要组成部分，在 CW-MFC 中分为处在厌氧环境的阳极和好氧环境的阴极。其中，阳极材料需要具有稳定性、对微生物无害且具备较好的导电性等^[16]。阳极附近会聚集大量厌氧微生物，这些是处理废水和产生电能的关键，阳极材料须拥有较大的表面积为它们提供附着的场所，因此阳极材料的构型也会对处理效果产生影响^[17]。阴极应选择氧化还原性能较强的材料，提升氧化还原反应速度，在基底负载催化剂可降低反应活化电势，进而提高反应速率^[18]。阴阳极材料的合理选择对于 CW-MFC 能否达到预期的水处理效果和产电能力有很大的影响。根据以往的研究，虽然金属电极的导电性好，但由于在 CW-MFC 中电极材料处在废水和富含微生物的基质中，金属易被腐蚀，会对电极周围的微生物产生消极影响，且金属材料的孔隙率很低，限制了微生物附着在其表面^[2]。鉴于以上原因，目前在 CW-MFC 中很少将纯金属当作电极材料。由于碳和石墨，具有较好的吸附能力、导电性良好、耐腐蚀、成本低廉且对微生物无毒等优点，常被用来制作电极的首选材料。此外，电极个数和埋深也会影响到 CW-MFC 系统的处理效果。

2 电极对 CW-MFC 的影响

电极作为 CW-MFC 系统中重要的标志，电极的材料、间距、面积及连接方式均会对系统的处理能力和产电效果产生影响，如表 1 为主要影响因素及产生的变化。

表 1 影响 CW-MFC 运行的相关因素及变化

Tab. 1 Relevant factors and changes affecting CW-MFC

| | Material | Distance between anode and cathode | Area and connection method |
|------------------|--|---|--|
| Influence factor | Carbon felt; Traditional electrode modification; Composite electrode | Anode burial depth; Cathode environment | Cathode area larger than anode; U-shaped cathode; Multiple anodes and cathodes; Series and parallel connection |
| Change | Surface area; Porosity; Microbial adsorption | Change internal resistance; Proton transport distance | Output voltage; Microbial adhesion area; Oxygen diffusion; Proton transfer |

2.1 电极材料

电极材料的选择会影响 CW-MFC 工艺的除污和生物产电性能，应首选导电性好、电化学稳定、微生物相容性强作为电极材料^[19]。理想的电极材料有足够大的表面积为微生物所附着，有效收集阳极产电菌所产出的电子，有利于 CW-MFC 系统处理效果^[20]。在 CW-MFC 研究中常用做为电极的材料有石墨棒(Graphite Rod, GR)、泡沫镍(Foam Nickel, FN)、颗粒活性炭(Granular Activated Carbon, GAC)、柱状活性炭(Columnar Activated Carbon, CAC)、粉末活性炭(Powdered Activated Carbon, PAC)、镁板(Magnesium Plate, MgP)、钛网(Titanium Mesh, TM)、不锈钢网(Stainless Steel Wire, SSM)、碳纤维毡(Carbon Fiber Felt, CFF)等。由于碳基材料相对于其他材料来说，具有良好的化学稳定性、高比表面积、多孔性和价格便宜，它们被广泛

应用于 CW-MFC 系统的电极中^[21]，但是碳基材料与金属材料相比会使系统的内阻变大，电导率下降将影响产电能力^[22]。

Liu 等^[23]人在上流式 CW-MFC 中比较了不锈钢网、碳布和颗粒活性炭三种电极材料的处理能力，其中 GAC-SSM 生物阴极取得了最好的处理效果，可达到的最大功率密度为 55.05 mWm^{-2} ，与其他电极材料相比其表面积和毛细管吸水率也更大。Wang 等^[24]构建了碳纤维毡、不锈钢网、石墨棒和泡沫镍的下流式 CW-MFC 系统，表 2 列出了实验结果，碳纤维毡和石墨棒能够获得更好的除污效果，碳纤维毡和泡沫镍检测出更好的产电效果，同时这两种材料上 Betaproteobacteria 和 Deltaproteobacteria 两种产电菌的相对丰度较高，综合考虑碳纤维毡更适合用作电极材料。

表 2 不同电极材料下 CW-MFC 污染物去除、产电特性和产电菌相对丰度^[24]

Tab. 2 Pollutant removal, electricity producing characteristics and relative abundance of electrogenerating bacteria of CW-MFC under different electrode materials^[24]

| Electrode material | Wetland plants | Pollutant removal efficiency;% | Voltage; mV | Maximum current density;mA/m ² | Maximum power density;mW/m ² | Relative abundance of two types of electricity producing bacteria |
|----------------------|----------------|--------------------------------|-------------|---|---|---|
| Carbon fiber felt | Canna | 49.52 | 97.7 | 17.30 | 1.05 | 65.77% |
| Stainless steel mesh | | 37.69 | 17.6 | 6.60 | 0.67 | 52.66% |
| Graphite stick | | 52.29 | 23.3 | 8.99 | 0.94 | 46.00% |
| Foam nickel | | 35.63 | 79.4 | 14.78 | 1.78 | 58.56% |

Wang^[25]等人在下行垂直流 CW-MFC 中阴阳极采用泡沫镍 FN 处理污水，COD 去除率达到 37%，相对于采用 SSM 作为电极材料 COD 去除率达到 47%，且 SSM 电极材料的微生物群落丰富度也高于 FN。但是考虑到其金属极佳的导电性，将金属与碳基材料相结合形成集成电极，一些研究将 SSM 制作成外壳里面填充 GAC 如图 2 所示，集成电极取得了极好的处理效果。在 SSM 内填充的活性炭，会由于活性炭的不同类型而产生不同的处理效果。Ji 等^[26]人通过 SSM 内填充 CAC 柱状活性炭(长 1-2 cm，直径 0.8 cm)、GAC 颗粒活性炭(直径 1-2 mm)，结果表明，在 CW-MFC 体系中填入 GAC 的环形阴极的最高电压为 458 mV，最大功率密度为 13.71 mWm^{-2} ，COD 去除率为 90%。填充颗粒活性炭具有更好的电子传递、更快速的电荷转移、更强的 ORR 动力学和更适宜微生物生长的环境，有利于生物发电性能的提高，因此未来的研究中应着重考虑使用颗粒活性炭作为电极材料。

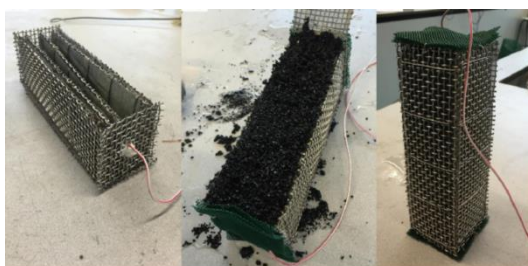


图 2 SSM-GAC 集成电极^[27]

Fig.2 SSM-GAC integrated electrode^[27]

2.2 阴阳电极间距

阴极为保持好氧环境，一般将其设置在液体-空气的交界处或植物根系周围，阴阳电极间距的改变，主要是阳极埋深的变化^[28]。阴阳极电极间距的改变直接影响质子的传输距离，系统的内阻也随之改变，进而影响系统的处理能力和产电效果^[29]。

Doherty 等^[30]人将阴阳极间距设置为 10 和 210 cm，阴极设计在空气-水界面处，以猪废水为处理对象，在阴阳极间距为 10 cm 时，上流-下流组合进水的 CW-MFC 中得到了 0.276 W/m² 的最大功率密度。Mu 等^[31]人设置 5、10、15 cm 电极间距处理含铬重金属废水，在间距 10 cm 处对六价铬和 COD 取得 93.4 % 和 88.3 % 最高去除率。

Ling 等^[32]人设计了阴阳极间距为 10 cm-40 cm 的四组 CW-MFC 反应器，研究发现系统产电能力在间距为 20 cm 时最佳，电压的大小随着阴阳极间距呈现先变大后变小的趋势。刘等人^[33]的研究也得到了相同的结果，设置电极间距分别为 12 cm、15 cm、18 cm 和 20 cm 用来处理污泥中的 Zn 和 Ni，间距为 12 cm 时，对 Zn、Ni 的最高去除率可达到 84.68 % 和 74.14 %，系统在间距为 15 cm 时取得最高的输出电压和功率密度。相关研究发现系统中离子和质子转移阻力和电极间距大小呈正相关关系，减小间距能降低转移阻力，系统内阻减小，进而获得更好的产电性能^[34]。

同样秦等^[35]通过调节阴阳极间距（10 cm、15 cm、20 cm、25 cm、30 cm 和 35 cm）处理高 COD 高氮污水，发现随着装置阴阳极间距的增加，污染物去除效率呈现先增加后减少的趋势，并在阴阳极间距为 25 cm 时达到最大值，对 COD 和氨氮的去除率达到 86.00 % 和 84.77 %，电极间距增大阳极会靠近上流进水口，进水中少量溶解氧更易于到达阳极层破坏厌氧环境导致处理效果变差。但阴阳极间距一旦过小，阴极附近的溶解氧会进入阳极附近，会破坏阳极适宜的厌氧环境，使阳极附近微生物受到不利的影 响，会降低产电菌的活性，导致产电能力下降，甚至出现短路等情况^[36]。

2.3 电极面积及连接方式

电极面积与处理水体的接触面积、系统中微生物的生存空间及电子转移之间的效率息息相关，是目前提高反应速率的热点方向之一。相关研究通过改变电极的形状、数量、阴极与空气之间的接触面积来改变电极的面积。

电极的形状决定 CW-MFC 系统中电极的有效反应面积和微生物生存的有效附着点^[37]。Tang 等^[38]在研究初期使用水平放置的阴极，但由于阴极被生物膜覆盖，造成阴极上的生物污染，导致实验结果不理想。在后期研究中通过改为 U 型电极，发现 U 型阴极比水平放置在水面上的阴极更有利于生物电的产生。原因是水平放置的阴极上由于过度生长的生物膜，将阴极完全覆盖，显著抑制了氧向电极的扩散，阴极被迫处于厌氧环境，并降低了阴极电势，而 U 形阴极可以避免上述问题并加速了质子转移，从而加强了系统的处理能力，如图 3a,b 所示。同样为增加阳极电极面积，范^[39]利用 CW-MFC 研究去除罗丹明 B 染料，将 SSM 折叠成如图 3c 所示的波浪形，外部由塑料匝带固定 5 mm 厚的碳纤维毡，在实验中对罗丹明 B 染料平均去除率为 88.25±5.95 %。

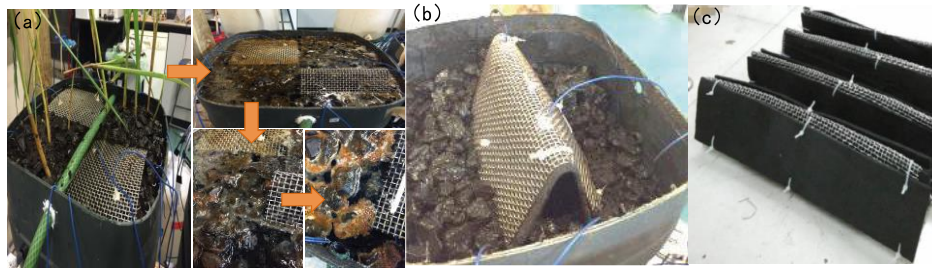


图 3 (a) 阴极电极表面大量生物膜过度生长.(b)U 型阴极电极^[38] .(c)波浪形电极^[39]

Fig.3 (a) Excessive biofilm growth on the surface of cathode electrode. (b) U type cathode electrode^[38] . (c)Wavy electrode^[39]

阴阳极面积比的改变也会对系统产生影响, 李等^[40]通过研究阴阳极面积比为 1、1.6、1.9 和 2.25 的四组 CW-MFC 系统发现, 出现了和电极间距变化规律相同的结果, 系统电压在阴阳极面积比增加到 1.9 之前, 一直呈现上升趋势, 面积比增加到 1.9 后, 系统的产电量逐渐减少。在阳极面积保持不变的情况下, 阴极面积增加到一定的范围内, 提供微生物的有利生存环境, 极大地丰富微生物生物量, 会促进阴极附近反应, 加速消耗来自阳极的质子, 进而解决阳极附近质子积累的现象, 利于系统对污染物的去除和产电能力的提升^[41]。因此在以后的研究中需要根据不同 CW-MFC 系统的特点选择最适合的阴阳极面积比。

为了获得更高的水处理能力、电输出功率, 可以通过增加阴阳极数量来增加电极表面积从而为微生物提供更多的附着位点。Huang 等^[42]通过增加阳极和阴极的数量来对 CW-MFC 进行改进, 多阳极的配置具有较大的活化表面积, 增加了系统中 H^+ 和 e^- , 实现了更高的功率输出。Xu 等^[43]验证了在 CW-MFC 中多阴极的可行性, 系统内阻大小和阴极电极的个数呈现负相关关系, 阴极个数增加会造成内阻减少, 从而系统还原能力增强, 实现了高电子传输和加强氮去除。为充分利用下层基质的厌氧环境, 在 CW-MFC 中可引入多阳极的结构。Zhang 等^[44]进行了 172 d 的双阳极潮汐流 CW-MFC 研究, 对 COD、TN、TP 分别能取得 97.4 %、83.4 % 和 89.0 % 的去除率。多阳极的设计应注意最上层阳极与植物之间距离, 湿地植物根系随着时间逐渐深入下方基质, 植物根系泌氧会破坏周围厌氧环境, 导致系统处理效果变差。Yang 等^[45]人设置 10 和 20 cm 埋深的并联阳极, 发现 10 cm 埋深的阳极因为植物根系过度生长会导致产电情况差于更深层的阳极。同时要注意多阳极会增加电子产量, 阴极没有足够的电子受体接受阳极产生的电子, 应考虑在阴极处设置曝气提供足够氧气作为电子受体^[44]。

多电极的引入会使电极之间存在并联与串联两种连接方式, 连接方式的不同会产生不同的处理结果。Tang 等^[38]发现 CW-MFC 中阳极并联的处理效果优于阳极串联, COD 最高去除效果为 91.7 %、氨氮为 97.3 %、同时输出功率最高可达 7.99 mW/m^2 。在对多阳极的研究中, 多阳极并联比多阳极串联连接效果好, 因为并联降低了系统的内阻并扩大了电流密度, 如图 3 所示并联时可使阳极处于有利的工作状态从而产生更多的能量, 使电流密度进一步提高^[46]。

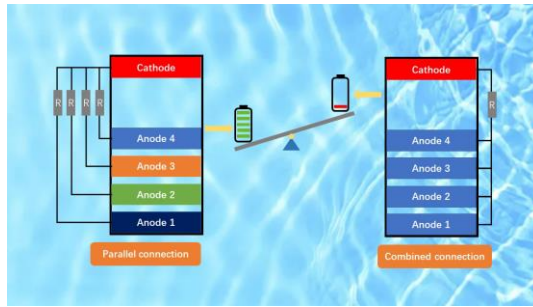


图 4 多阳极并联产电多于多阳极串联

Fig.4 Multi anode combined power generation is more than multi anode series

3 结论与展望

本文对电极在 CW-MFC 系统中的研究现况进行了总结归纳，并从电极材料、电极数量、电极间距和电极面积及面积比等角度对 CW-MFC 处理效果的影响进行了阐述。

在 CW-MFC 系统中，由生物、化学、物理的共同作用下降解污染物和生物产电。近年来，该耦合系统在处理污水的研究逐渐展开并取得了一定的成果。对未来 CW-MFC 研究，应以新技术新方法为手段，重点开展以下几个方面的研究：

- 1) 针对去除不同污染物探究出最适合的电极材料及其他运行参数，突破现在小试研究模式，推广中试实验，为尽快运用到工程实际提供理论基础；
- 2) 对 CW-MFC 系统释放的温室气体与系统组成和运行方式开展研究，找出降低温室气体排放量的影响参数；
- 3) 加强如不锈钢网包裹活性炭的复合电极材料的研究，找出复合电极与其他单一电极的优势之处并找出处理机理。
- 4) 未来的 CW-MFC 研究须关注提高污染物去除率和电力输出，尤其是解决高有机物浓度下 CW-MFC 处理效果不佳和低有机物浓度下电力输出低的问题。

参考文献

- [1] STUERMER M. Industrialization and the demand for mineral commodities [J]. *Journal of International Money and Finance*, 2017, 76:16-27.
- [2] 石玉翠, 罗昕怡, 唐刚, 等. 人工湿地-微生物燃料电池耦合系统的研究进展及展望 [J]. *环境工程*, 2021, 39:25-33.
- [3] 聂发辉, 刘荣荣, 刘占孟. 富营养化景观水体的处理技术及相关研究进展 [J]. *华东交通大学学报*, 2014, 31(02):72-78.
- [4] SHUBIAO W, TAO L, YAQIAN Z, et al. Rethinking Intensification of Constructed Wetlands as a Green Eco-

Technology for Wastewater Treatment [J]. *Environmental science & technology*, 2018, 52(4):1693-1694.

[5] PRIYA A K, SUBHA C, KUMAR P S, et al. Advancements on sustainable microbial fuel cells and their future prospects: A review [J]. *Environmental Research*, 2022, 210:112930.

[6] RAMYA M, KUMAR P S. A review on recent advancements in bioenergy production using microbial fuel cells [J]. *CHEMOSPHERE*, 2022, 288

[7] 刘远峰, 张秀玲, 张其春, 等. 微生物燃料电池中阳极产电菌的研究进展 [J]. *精细化工*, 2020, 37:1729-1737.

[8] SAEED T, YADAV A K, MIAH M J. Landfill leachate and municipal wastewater co-treatment in microbial fuel cell integrated unsaturated and partially saturated tidal flow constructed wetlands [J]. *Journal of Water Process Engineering*, 2022, 46:102633.

[9] TAO Z, JING Z, TAO M, et al. Recycled utilization of ryegrass litter in constructed wetland coupled microbial fuel cell for carbon-limited wastewater treatment [J]. *Chemosphere*, 2022, 302:134882.

[10] 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.

[11] ALTAEE A, MILLAR G J, ZARAGOZA G. Integration and optimization of pressure retarded osmosis with reverse osmosis for power generation and high efficiency desalination [J]. *Energy*, 2016, 103:110-118.

[12] REZK H, SAYED E T, AL-DHAIFALLAH M, et al. Fuel cell as an effective energy storage in reverse osmosis desalination plant powered by photovoltaic system [J]. *Energy*, 2019, 175:423-433.

[13] 卢家磊. 微生物脱盐电池阳极产电微生物优选及处理含盐暂养水效果研究 [D]; 上海海洋大学, 2021.

[14] SUPRIYA G, PRATIKSHA S, A. P S, et al. A comprehensive review on emerging constructed wetland coupled microbial fuel cell technology: Potential applications and challenges [J]. *Bioresource Technology*, 2021, 320(Pt B):124376.

[15] 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.

[16] 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(07):6-11.

[17] KONG S T, ZHAO J T, LI F, et al. Advances in Anode Materials for Microbial Fuel Cells [J]. *ENERGY TECHNOLOGY*, 2022, 10(12)

[18] GUO F, MA W, LIU Y, et al. Heterotrophic anodic denitrification improves carbon removal and electricity recovery efficiency in microbial fuel cells [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2019, 370:527-535.

[19] XIAO H, CHONGSEN D, WEIYAN D, et al. Role of electrode materials on performance and microbial

characteristics in the constructed wetland coupled microbial fuel cell (CW-MFC): A review [J]. *Journal of Cleaner Production*, 2021, 301:126951.

[20] PALANISAMY G, JUNG H-Y, SADHASIVAM T, et al. A comprehensive review on microbial fuel cell technologies: Processes, utilization, and advanced developments in electrodes and membranes [J]. *Journal of Cleaner Production*, 2019, 221:598-621.

[21] LI Y, STYCZYNSKI J, HUANG Y, et al. Energy-positive wastewater treatment and desalination in an integrated microbial desalination cell (MDC)-microbial electrolysis cell (MEC) [J]. *Journal of Power Sources*, 2017, 356:529-538.

[22] SRIVASTAVA P, YADAV A K, MISHRA B K. The effects of microbial fuel cell integration into constructed wetland on the performance of constructed wetland [J]. *Bioresource Technology*, 2015, 195:223-230.

[23] LIU S, SONG H, WEI S, et al. Bio-cathode materials evaluation and configuration optimization for power output of vertical subsurface flow constructed wetland — Microbial fuel cell systems [J]. *Bioresource Technology*, 2014, 166:575-583.

[24] WANG J, SONG X, WANG Y, et al. Effects of electrode material and substrate concentration on the bioenergy output and wastewater treatment in air-cathode microbial fuel cell integrating with constructed wetland [J]. *Ecological Engineering*, 2017, 99:191-198.

[25] WANG J, SONG X, WANG Y, et al. Microbial community structure of different electrode materials in constructed wetland incorporating microbial fuel cell [J]. *Bioresource Technology*, 2016, 221:697-702.

[26] BIN J, YAQIAN Z, YANG Y, et al. Insight into the performance discrepancy of GAC and CAC as air-cathode materials in constructed wetland-microbial fuel cell system [J]. *Science of the Total Environment*, 2022, 808:152078.

[27] 唐成. 阴极结构和运行方式在微生物燃料电池-人工湿地系统中的作用 [D]; 长安大学, 2020.

[28] RUI L, YCA C, JW A, et al. In situ COD monitoring with use of a hybrid of constructed wetland-microbial fuel cell [J]. *Water Research*, 2022, 210:117957.

[29] WANG H-C, CUI D, YANG L-H, et al. Increasing the bio-electrochemical system performance in azo dye wastewater treatment: Reduced electrode spacing for improved hydrodynamics [J]. *Bioresource Technology*, 2017, 245:962-969.

[30] DOHERTY L, ZHAO X, ZHAO Y, et al. The effects of electrode spacing and flow direction on the performance of microbial fuel cell-constructed wetland [J]. *Ecological Engineering*, 2015, 79:8-14.

[31] CHUNXIA M, LIN W, LI W. Performance of lab-scale microbial fuel cell coupled with unplanted constructed wetland for hexavalent chromium removal and electricity production [J]. *Environmental science and pollution research international*, 2020, 27(20)

-
- [32] LI X, SONG H, XIANG W, et al. Electricity generation during wastewater treatment by a microbial fuel cell coupled with constructed wetland [J]. *Journal of Southeast University (English Edition)*, 2012, 28(2):175-178.
- [33] 刘婷婷, 徐大勇, 王璐, 等. 电极间距对 CW-MFC 处理污泥中 Zn 和 Ni 的效果及其产电性能的影响 [J]. *化工进展*, 2021, 40:4074-4082.
- [34] 王艳芳, 刘百仓, 郑哲, 等. 电极面积和电极间距对立方体型 MFCs 产电能力的影响 [J]. *可再生能源*, 2013, 31:68-74.
- [35] 秦歌, 陈婧, 余仁栋, 等. 人工湿地-微生物燃料电池对高碳氮废水的强化净化和产电研究 [J]. *湿地科学与管理*, 2021, 17:12-17.
- [36] DOHERTY L, ZHAO Y, ZHAO X, 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.
- [37] ÇAĞDAŞ S, CENGİZ T, CAN T O, et al. Effect of vegetation type on treatment performance and bioelectric production of constructed wetland modules combined with microbial fuel cell (CW-MFC) treating synthetic wastewater [J]. *Environmental science and pollution research international*, 2018, 25(9):8777-8792.
- [38] TANG C, ZHAO Y, KANG C, et al. Towards concurrent pollutants removal and high energy harvesting in a pilot-scale CW-MFC: Insight into the cathode conditions and electrodes connection [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2019, 373:150-160.
- [39] 范智仁. 人工湿地—微生物燃料电池去除罗丹明 B 染料 [D]; 长安大学, 2017.
- [40] 李薛晓, 程思超, 方舟, 等. 湿地基质及阴极面积对人工湿地型微生物燃料电池去除偶氮染料同步产电的影响 [J]. *环境科学*, 2017, 38:1904-1910.
- [41] 程思超, 方舟, 李薛晓, 等. 共基质对人工湿地型微生物电池脱色染料并产电的影响 [J]. *水处理技术*, 2016, 42:44-48+57.
- [42] HUANG S, ZHU G, GU X. The relationship between energy production and simultaneous nitrification and denitrification via bioelectric derivation of microbial fuel cells at different anode numbers [J]. *Environmental Research*, 2020, 184(10):109247.
- [43] LEI X, ZHAO Y, WANG X, 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.
- [44] KE Z, SIQIAO Y, HONGBING L, et al. Enhancement of nitrogen removal and energy recovery from low C/N ratio sewage by multi-electrode electrochemical technology and tidal flow via siphon aeration [J]. *Chemosphere*, 2022,

299:134376.

[45] YANG Y, ZHAO Y, TANG C, et al. Dual role of macrophytes in constructed wetland-microbial fuel cells using pyrrhotite as cathode material: A comparative assessment [J]. *Chemosphere*, 2020, 263:128354.

[46] ESTRADA-ARRIAGA E B, HERNÁNDEZ-ROMANO J, GARCÍA-SÁNCHEZ L, et al. Domestic wastewater treatment and power generation in continuous flow air-cathode stacked microbial fuel cell: Effect of series and parallel configuration [J]. *Journal of Environmental Management*, 2018, 214:232-241.