〈一般研究課題〉	微生物燃料電池による自然環境からの殺菌剤					
	除去法の確立					
助成研究者	中部大学 後藤 裕子					



# 微生物燃料電池による自然環境からの殺菌剤 除去法の確立 <sub>後藤 裕子 (中部大学)</sub>

# Fungicide removal from water environment using microbial fuel cells Yuko Goto (Chubu University)

# Abstract :

In this study, the removability and effects of isoprothiolane (ISO), which is a type of fungicide, on exoelectrogens and electricity production in a microbial fuel cell (MFC) were investigated. First, electrochemical cultivation (EC) was carried out under anaerobic conditions at +200 mV (vs. Ag/AgCl) using a pesticide-free soil as a source of microorganisms for 8 days. EC produced a maximum current of 6.0  $\mu$ A/cm<sup>3</sup> from 6 mg-ISO/kg water, which was higher than that produced from 0 mg-ISO/kg water. After EC, 22% of ISO was removed from 6 mg-ISO/kg water. Next, for water treatment, MFCs, which use graphite felts as electrodes and pesticide-free soil as a source of microorganisms were polarized via an external resister of 10  $\Omega$  for 40 days at the following concentrations: 6 mg-ISO/kg and 0 mg-ISO/kg. The MFC produced an average of 0.23 mW/m<sup>2</sup>anode with 6 mg-ISO/kg, which was significantly higher than that produced with 0 mg-ISO/kg. Simultaneously, the MFC removed an average of 48% of the ISO present in the water samples. In contrast, the concentration of ISO in unpolarized water with 6 mg-ISO/kg did not decrease. Genus Geobacter, a type of exoelectrogen, was detected in the soil at less than 1% before using the MFC, and was increased by polarization to 6% in the MFC with 0 mg-ISO/kg. However, it was detected at 3% after polarization in the MFC with 6 mg-ISO/kg. These results indicate that MFCs can be efficiently used to promote the fungicide removal from water and produce electricity, even though the fungicide negatively affects the growth of the exoelectrogens.

#### 1. はじめに

汚染物質の中でも農薬は、労力の軽減や生産性の向上のために環境中へ意図的に放出される化学 物質である。現在使用されている農薬は、環境への影響を配慮して少量の散布でも有効な効果が得 られる低量化が進み、残留性、毒性とも低くなっている [1]。しかしながら、季節的に集中して使 用されるため、短期間に多量の農薬成分が環境中に放出されることになる。環境中に放出された農 薬は光や微生物によって分解を受け、分解を受けずに残った成分は大気や水系に移流するか、土壌 に残留する [2, 3]。

日本を含むアジアにおいては水田農業に伴う水利用が多く、途上国では農薬の過剰使用による水 環境の汚染が問題となっている [4]。また、還元的空間が生まれやすい湖沼などにおいては、低濃 度ではあるが農薬が1年以上残留することもある [5]。農薬による水環境の汚染によって、タラの 仲間やシシャモなどの水生生物から現在も使用されている複数の農薬やその代謝物が0.3-5.1 ng/ g-lipid wt.で検出された報告例もある [6]。そこで、本研究では農薬に汚染された水資源からの残留 農薬除去を促進する新たな手法の一つとして、微生物燃料電池(MFC)に着目した。

MFCは、微生物を触媒にして有機物を分解した際に出た電子を電極へと回収するデバイスであ り、化石燃料に代わる新しいエネルギーとして注目されている [7]。一般的なMFCは1つから2つの コンパートメントに正極と負極を備えた構造をとる。微生物による有機物の酸化により生じた電子 は負極から外部抵抗を介して正極へと移動し、正極でプロトンとともに大気中の酸素の還元に利用 される [8]。

MFCの排水処理への応用は1990年頃から注目されている [9]。近年の報告では、微生物が利用す る有機物源として人工透析廃水、蒸留施設や家庭からの実排水、もしくはその模擬排水をMFCに 用いて、水の入れ替えを半日から9日間隔で行いながら処理した場合、有機物が65-96%除去され、 同時に40-1500 mW/m<sup>2</sup>の電力および67-1990 mW/m<sup>2</sup>の最大出力密度 (Pmax) が得られたとの報告 がある [10-19]。有機物以外にも、9時間から260時間のMFC処理により、電力生産と同時に電気 めっき排水から重金属 (Cr<sup>6+</sup>) が99.5%、製菓排水からの色素が80%以上、畜産排水からの臭気成分 が99.8%で除去された報告がある [20-22]。

MFCに有用である電流生産菌は100年以上前から報告されており [23]、Geobacterおよび Shewanella属細菌が代表的である [24]。しかしながら、農業排水中に含まれる農薬を有機物源とし てMFCに利用する場合には、農業排水中に含まれる農薬の一種である殺菌剤が電流生産菌に影響 を与えると推測される。そこで、本研究では、電気培養により嫌気的条件下での電流生産および殺 菌剤の除去を検討した後、MFC内の電流生産菌および電力生産性に殺菌剤が与える影響を明らか にして、MFCによる殺菌剤の除去の可能性について検討した。

# 2. 試料および実験方法

#### 2.1 対象とした殺菌剤

実験には殺菌剤であるイソプロチオラン (C<sub>12</sub>H<sub>18</sub>O<sub>4</sub>S<sub>2</sub>、ISO) を用いた。イソプロチオランは育苗 箱や水田にて現在も使用されており、リン脂質生合成阻害に基づく菌糸生育阻害作用による殺菌活 性を有する [25]。イソプロチオランの化学名と物性値を表1に示した [25]。イソプロチオランは加 水分解性、水中光分解性ともに安定であることから、水環境中での分解が遅い殺菌剤であると考え られた。

物性	ジイソプロピル-1,3-ジチオラン-2- イリデン-マロネート		
加水分解性(pH5、7、9)	安定		
水中光分解性(25℃、280-500 nm)	殆ど分解しない		
水溶解度(µg/L)	4.85×10 <sup>4</sup>		
オクタノール/水分配係数	2.8		
標準施用濃度(土壤深 10 cm、mg/kg)	6		

表1. 実験に使用した殺菌剤の物性

### 2.2 電気培養

湛水状態にした無農薬水田の畦畔土壌(有機物含量3.3%、pH 5.9)200 gを930 mL容のガラス瓶 に入れ、グラファイトフェルトと白金線からなる負極(直径8.5 cm、厚さ1 cm)を土壌に挟んだ。 その後、殺菌剤を含む純水を満水になるまで注ぎ、正極として白金線、参照電極としてAg/AgCl 電極を設置して密閉した。密閉後、ポテンショスタット(HA151B、北斗電工)により電極電位を参 照電極に対して+200 mVに設定し、電流値をデータロガー(T&D Corporation)により60分間隔で記 録した。試料水の殺菌剤濃度は土壌深10 cmの土壌に均一に散布した場合の標準施用濃度(6 mg/ kg)とし、電気培養後の試料水を殺菌剤濃度の測定に供した。対照として、殺菌剤を含まない水で も同様に電気培養を行った。どちらも培養期間は8日間とした。電流の計算は負極体積あたりに換 算して行った。

# 2.3 微生物燃料電池の構築および運転

微生物燃料電池を図1のように構築した。正 極、負極ともに、グラファイトフェルト(7.5× 12.5 cm)を使用した。微生物源として電気培養 に用いた土壌と同様の無農薬水田の畦畔土壌 200 gを930 mL容のプラスチックの水槽に負極 を挟むようにして入れ、殺菌剤を含む純水(670 mL)を注いだ。試料水の殺菌剤濃度は6 mg/kg とした。水試料液面に正極を浮かべ、10 Ωの 抵抗を介して40日間通電した。通電中はデータ ロガー(T&D Corporation)により60分間隔で電



圧を記録した。殺菌剤濃度を維持するため、週に1回、試料水400 mLを採水して同量の試料水と 入れ替えを行った。土壌なし、通電なしの標準施用濃度の試料水も水槽に入れ静置し、MFCと同 様に採水した。採水後の試料水は殺菌剤濃度の測定まで4℃で保存した。また、Pmaxを測定する ため、週に1回10-33000 Ωの抵抗をつなぎ変えて電圧を測定し、電流密度曲線を求めた。対照と して、殺菌剤を含まない水で無殺菌剤MFCを構築し、同様に通電および測定を行った。いずれの MFCでも通電から28日で正極の交換を行った。通電終了後にMFC内の土壌を採取して微生物群集 構造解析まで-20℃で保存した。電力の計算は負極面積あたりに換算して行った。

#### 2.3 農薬濃度の測定

水試料中の殺菌剤濃度の定量は以下の方法で行った。水試料4 mLをセルロース繊維ろ紙(孔径約 1 μm)でろ過後、固相カートリッジ(InertSep PLS-3、ジーエルサイエンス)に負荷し、夾雑物を除 去した。その後、アセトニトリルで溶出し、5 mLに定容した。この方法による回収率は90.4 ± 13.3%であった。

水試料中の殺菌剤濃度の定量には液体クロマトグラフィー質量分析計を用いた。液体クロマトグ ラフィーにはACQUITY UPLC SYSTEM(Waters社製)、分析カラムにはACQUITY UPLC BEH C18(内径1.0 mm、長さ100 mm)を用い、流量は0.1 mL/min、カラム温度は40℃とした。移動相に はA:0.01%ギ酸水溶液/アセトニトリル(9:1)およびB:0.02%ギ酸アセトニトリルを用い、グ ラジエント条件はA 100%→30%(0-10分)、A 30%→0%(10-13分)、A 100%(13-15分)で分析 を行った。質量分析装置にはAB SCIEX 4000 QTRAP(AB SCIEX社製)を用いた。対象物質は ESI法のポジティブモードで測定した。定量限界は1 ng/mLであった。

#### 2.4 微生物群集構造解析

採取した土壌の微生物群集構造を明らかにするため、ISOIL (Nippon gene)によりDNAを抽出した。抽出したDNAから古細菌および真正細菌の16S rRNA遺伝子のV4領域(約300塩基対)を標的にしたプライマー(5'-GTGCCAGCMGCCGCGGTAA-3'および5'-GGACTACHVGGGTWTCTAAT-3')を用いてMiSeq用にライブラリ調整を行った。調整したサンプルを250塩基対のペアエンド解析に供し、土壌試料中に含まれる微生物の種構成を推定した。

#### 3. 実験結果

#### 3.1 電気培養

#### 3.1.1 電流生産

電気培養中の電流生産を図2に示 した。標準施用濃度の試料水は培養 開始から5日間は無殺菌剤と同様の 電流生産であったが、5日以降は電 流生産が増加し、7日で最大値の6 μA/cm<sup>3</sup>に達した。無殺菌剤では培 養から8日目まで電流生産が緩やか に増加し、最大で3.5 μA/cm<sup>3</sup>に達 した。



#### 3.1.2 殺菌剤濃度

電気培養に使用した標準施用濃度の試料水のイソプロチオランの濃度の平均値は5 mg/Lであった。電気培養後のイソプロチオラン濃度は、標準施用濃度で3.9 mg/Lで、22%のイソプロチオランが除去された。1日当たりの除去濃度は標準施用濃度で0.14 mg/L/日で、1日あたり2.8%のイソプロチオランが除去された。

# 3.2 微生物燃料電池

# 3.2.1 電力生産

標準施用濃度MFC、無殺菌剤MFCの電力生産の経時変化を図3A、Bに示した。いずれのMFCも 通電直後は電流生産が見られなかったが、徐々に増加して、標準施用濃度MFCは9日、無殺菌剤 MFCは4日でそれぞれ最大出力である0.68 mW/m<sup>2</sup>に達した。標準施用濃度MFCではその後14日ま で電力生産が維持された。14日以降は出力が低下し、通電終了時には0.1 mW/m<sup>2</sup>以下まで低下し た。無殺菌剤 MFCでは8日まで電力生産が維持されたが、水交換のたびに出力が低下する傾向が 見られた。通電期間中の平均出力は標準施用濃度MFCで0.23 mW/m<sup>2</sup>、無殺菌剤MFCで0.22 mW/m<sup>2</sup>であった。通電期間中に正極に生物膜の生成が観察されたため、通電から28日で正極の交 換を行ったが、いずれのMFCでも出力の回復はわずかであった。



矢印(↓)は水交換、点線はMFC処理前の標準施用濃度試料水の平均値を示した。

電流密度曲線から得られたPmaxの経時変動を図3Cに示した。標準施用濃度MFCでは通電開始 から7日では1.4 mW/m<sup>2</sup>であったが、21日には5.9 mW/m<sup>2</sup>まで上昇した。その後Pmaxは1.5 mW/m<sup>2</sup>まで大きく減少した。一方、無殺菌剤 MFCでは通電開始から8日で2.7 mW/m<sup>2</sup>に達したが、 以降はPmaxの上昇は見られずほぼ一定であった。通電から28日で正極の交換を行ったが、いずれ のMFCでもPmaxは回復しなかった。

#### 3.2.2 殺菌剤濃度

MFC中の試料水のイソプロチオランの濃度を図3Dに示した。MFCおよび対照に使用した試料水 は電気培養に用いたものと同様で、イソプロチオランの濃度の平均値は5 mg/Lであった。標準施 用濃度MFCでは通電7日で70%が除去され、1.5 mg/Lにまで減少した。その後、標準施用濃度 MFCでは通電21日と28日で除去率が12-30%に低下した。通電中の平均除去率は標準施用濃度 MFCで48%であった。対照とした土壌なし、通電なしの標準施用濃度の試料水では、イソプロチ オランの減少は見られなかった。

### 3.2.3微生物群集構造解析

MFCに用いる前の土壌およびMFC(標準施用濃度、無殺菌剤)に用いた後の土壌から1%以上で 検出された微生物群集の構成を表1に示した。MFCに用いる前の土壌からは34の系統型が1%以上 で検出され、いずれも4%以下であった。無殺菌剤MFCの土壌からは23の系統型が1%以上で検出 された。10%以上で検出された系統型はBacteroidals科、Symbiobacterium属で、それぞれ15%、 20%であった。標準施用濃度MFCの土壌からは25の系統型が1%以上で検出された。10%以上で 検出された系統型はSporomusa属、Desulfosporosinus属で、それぞれ32%と13%であった。電流生 産菌として知られるGeobacter属は、MFCに用いる前の土壌では0.04%であったが、無殺菌剤MFC の土壌では6%で検出された。標準施用濃度MFCの土壌からはGeobacter属が3%で検出された。

#### 4. 考察

電気培養の結果、無殺菌剤の試料水では最大で3.5 μA/cm<sup>3</sup>の電流が生産された。これは、土壌 中の有機物から電流生産が行われたと推測された。標準施用濃度のイソプロチオランを含む試料水 では最大で6.0 μA/cm<sup>3</sup>の電流が生産され、有意差は見られなかったものの、イソプロチオランを 含む方が高い電流生産を示した。また、電気培養により標準施用濃度の試料水から8日間で22%の イソプロチオランが除去された。これらの結果から、嫌気的条件下での通電により電力生産および イソプロチオランの除去が可能であり、MFCにおいても同様の効果が期待できると考えられた。

標準施用濃度MFC、無殺菌剤MFCの通電期間中の電力生産はそれぞれ0.23 mW/m<sup>2</sup>、0.22 mW/m<sup>2</sup>で同程度であったが、比較すると標準施用濃度MFCの電力生産は有意に高い値となった(t検定、p < 0.05)。電気培養と同様に、無殺菌剤MFCは土壌中の有機物から電力生産が行われたと 推測され、イソプロチオランを含むMFCではイソプロチオランが電力生産に寄与した可能性が示 唆された。

標準施用濃度MFCでは21-28日に電力生産が低下した。これは標準施用濃度MFCで除去率の低い期間(21-28日前後)に一致した。この結果からも、除去されたイソプロチオランが電力生産に利用された可能性が示唆された。

	88	<b>A</b>	<b>E</b> -1	E	上控	毎 秋苗 xilwrc	博進 佐田 澧 府MEC
46	11 Use and so of	到門 Line a stand d	17 <del>1</del>	1/26	上级	無权因为中心	振平池 而 废 及 m c
unassigned	Unassigned	Unassigned	unassigned	Unassigned	49/	1%	
l	crenarcnaeota	Indumarchaeota	Nitrososphaeraceae	unassigned	4%		-01
arcnaea	Euryarchaeota	Methanobacteria	metnanobacteriaceae	methanobacterium			1%
		Thermoplasmata	Methanomassiliicoccaceae	Unassigned			3%
	Chlorobi	Ignavibacteria	Ignavibacteriaceae	Unassigned		1%	3%
			Sphingomonadaceae	Kaistobacter	4%		
			Hyphomicrobiaceae	RhodopLanes	2%		
		Alphaproteobacteria	RhodospirilLaceae	Azospirillum		2%	
				Magnetospirillum		1%	
				Unassigned	1%		
	Proteobacteria			Unassigned-1		3%	1%
			Oxalobacteraceae	Unassigned_2		1%	1%
		Betaproteobacteria	Comamonadacoao	Unassigned	2%	2%	2%
			comunoridadcede	Mathul atagan	Z/6	2/0	2/6
			Methylophilaceae	metnylotenera		1%	
				Unassigned		3%	- 44
			Rhodocyclaceae	Unassigned		2%	1%
			Unassigned-1	Unassigned	1%		
			Unassigned-2	Unassigned	1%		
			Unassigned-3	Unassigned	1%		
			Unassigned-4	Unassigned	1%		
			Crenotrichaceae	Crenothrix		2%	
Bacteria		Gammaproteobacteria	Moraxellaceae	Perlucidibaca		1%	
			Unassigned	Unassigned		9%	
1			Geobacteraceae	Geobacter		6%	3%
1		Del tannotechactoria	Suntnonhohactoracoa	Upperigned	<b>2</b> °∕	0/6	5/6
1		per capi o ceobaccel·ta	Ungessigned	Unassigned	10/		
1		+	unussignea	unassigned	1%	2.0%	10/
			Symbiobacteriaceae	Symbiobacterium		20%	1%
			1	Clostridium			2%
			Clostridiaceae	Caloramator			3%
				Oxobacter			2%
		Clostridia	Gracilibacteraceae	Unassigned			2%
	Firmicutes		Mogibacteriaceae	Anaerovorax		1%	1%
			Peptococcaceae	Desulfosporosinus			13%
				Unassigned-1			1%
			Ruminococcaceae	Unassigned_2		1%	200
			Veillonellaceae	Sponomusa		1/6	2.7%
				Sporomusu			52/6
				Unassigned-1			1%
				Unassigned-2	. 44		1%
		Bacilli	Bacillaceae	Bacillus	1%		1%
	Actinobacteria	Thermoleophilia	Gaiellaceae	Unassigned	1%		
				Unassigned	1%		
		Actinobacteria	Unassigned	Unassigned			1%
	Planctomycetes	Planctomycetia	Gemmataceae	Gemmata	1%		
	Acidobacteria	Acidobacteriia	Koribacteraceae	Unassigned	1%		
		Solibacteres	Solibacteraceae	Unassigned	2%		
Bacteria		Unassigned-1	Unassigned	Unassigned	1%	1%	
			Unassigned-1	Unassigned	2%	2.0	
		Unassigned-2	Unassigned 2	Unassigned	1%		
			Unassigned 2	Unassigned	4/0		
			Unassigned a	und SSigned	5%		
			Unassigned-4	unassigned	5%		
			Unassigned-5	Unassigned	1%		
			Unassigned-6	Unassigned	1%		
			Unassigned-7	Unassigned	1%		
			Unassigned-8	Unassigned	1%		
			Unassigned-9	Unassigned	1%		
				Unassigned-1	1%		
			Unassigned-10	Unassigned-2	1%		
		Blastocatellia	Unassigned	Unassigned	2%		
	Bacteroidetes	Chitinophagia	Chitinophagaceae	Elavisolibacter	-/0	1%	
				Codiminihastorium		1%	
				Sea unun Luacterium	19/	1%	
				unassigned-1	1%	يەن.	
				Unassigned-2		1%	
		Flavobacteriia	Weeksellaceae	Chryseobacterium			1%
		Bacteroidia	BacteroidaLes	Unassigned-1		15%	1%
				Unassigned-2			2%
				Unassigned-3			1%
1			Lentimicrobiaceae	Lentimicrobium		2%	
1	Verrucomicrohia	Spartobacteria	Chthoniobacteraceae	Unassigned	3%		
1		.,		Unassigned-1	1%		
1	Nitrospirae	Nitrospira	Unassigned	Unassigned_2	1%		
Othons	1	1	1	onassigneu-z	±/0	26%	21%

表2.MFC使用前の土壌およびMFC内の土物	<b>嚢から検出された微生物</b>
------------------------	--------------------

微生物群集構造解析の結果、電流生産菌であるGeobacter属の割合はMFCに用いる前の土壌では 1%以下であったが、無殺菌剤MFCでは6%、標準施用濃度MFCでは3%で、MFC処理により Geobacter属の割合が増加した。しかしながら、無殺菌剤MFCに比べて標準施用濃度MFCでは Geobacter属が半減したことから、イソプロチオランの影響を受けたと考えられた。無殺菌剤MFC ではGeobacter属の割合が高いにも関わらず電力生産が低いことからも、イソプロチオランが電力 生産に寄与した可能性が示唆された。

標準施用濃度MFCのみから13%で検出されたDesulfosporosinus属は、硫酸塩還元菌である。イソ プロチオラン(C<sub>12</sub>H<sub>18</sub>O<sub>4</sub>S<sub>2</sub>)は硫黄系化合物であり、Desulfosporosinus属が水試料からのイソプロチ オラン除去に寄与した可能性が考えられた。イソプロチオランを有機物源として酸化することによ り生じた電子による電力生産を想定していたが、電子がイソプロチオランの還元に利用されたこと で、電力生産と電子の利用が競合した可能性が考えられた。また、標準施用濃度MFCからはメタン生成に関わる古細菌(*Methanomassiliicoccaceae*科および*Methanobacterium*属)が4%で検出されたことから、電子が電力生産ではなくメタン生成にも利用された可能性が考えられた。

実排水や模擬排水を用いたMFCでは40-1500 mW/m<sup>2</sup>の電力生産が報告されているのに比べ、本 研究のMFCの電力生産は低値(0.2 mW/m<sup>2</sup>)を示した [12, 13, 17, 19]。MFCでの電力生産の影響要 因として微生物群集構造、負極の材質や構造、正極や電池の構造などが挙げられる [8]。本研究で は*Desulfosporosinus*属やメタン生成菌などの存在以外にも、用いた試料水に純水を利用したためイ オン強度が不足し、正極での酸化反応の律速となり電力生産が低くなった可能性が考えられた [26]。また、本研究では将来的に発展途上国などの現地で簡便に農薬除去を行うことを想定し、高 価なPtの使用や曝気、メディエーターの添加などを行わなかったため、電力生産が低くなったと 考えられた。

しかしながら、本研究により、標準施用濃度の殺菌剤が含まれる環境水の場合、電流生産菌は殺 菌剤により半減するが、MFCにより殺菌剤の除去を促進しながら電力生産ができる可能性が示唆 された。今後はMFCでの電力生産や殺菌剤除去の再現性を確認するとともに、実際の農業排水に は多種の農薬が含まれることから、複数の農薬を含む試料水や実排水でさらに試験を行い、電流生 産菌への影響および電力生産や農薬の除去との関係性を明らかにすることが課題である。将来的に 実際の環境でMFC処理を行うには、正極での生物膜の生成など、電力生産を低下させる要因への 対策も必要であると考えられる。

#### 参考文献

- R. H. Phipps and J. R. Park, Environmental benefits of genetically modified crops: global and European perspectives on their ability to reduce pesticide use, J. Anim. Feed Sci., 11, 1-18, 2002
- [2] M. Gavrilescu, Fate of pesticides in the environment and its bioremediation, Eng. Life. Sci., 5. 497-526, 2005
- [3] M. Arias- Estévez, E. López-Periago, E. Martínez-Carballo, J. Simal-Gándara, J. Mejuto, L. García-Río, The mobility and degradation of pesticides in soils and the pollution of groundwater resources, Agricult. Ecosys. Environ., 123, 247-260, 2008
- [4] D. Tilman, J. Fargione, B. Wolff, C. D'Antonio, A. Dobson, R. Howarth, D. Schindler, W.H. Schlesinger, D. Simberloff, D. Swackhamer, Forecasting agriculturally driven global environmental change, Science, 292, 281-284, 2002.
- [5] M. Sudo, T. Kawachi, Y. Hida, T. Kunimatsu, Spatial distribution and seasonal changes of pesticides in Lake Biwa, Japan, Limnology, 5, 77-86, 2004
- [6] A.D. Morris, D.C.G Muir, K.R. Solomon, R.J. Letcher, M.A. McKinney, A.T. Fisk, B.C. McMeans, G.T. Tomy, C. Teixeira, X. Wang, M. Duric, Current-use pesticides in seawater and their bioaccumulation in polar bear-ringed seal food chains of the Canadian Arctic Current-use pesticides in the Canadian Arctic, Environ. Toxicol. Chem., 35, 1695-1707, 2016
- [7] B. E. Logan, B. Hamelers, R. Rozendal, U. Schröder, J. Keller, S. Freguia, P. Aelterman, W.

Verstraete, and K. Rabaey, Microbial fuel cells: methodology and technology, Environ. Sci. Technol., 40, 5181-5192, 2006.

- [8] K. Watanabe, Recent developments in microbial fuel cell technologies for sustainable bioenergy, J. Biosci. Bioeng., 106, 528-536, 2008.
- [9] W. Habermann, E.-H. Pommer, Biological fuel cells with sulphide storage capacity, Appl. Microbiol. Biotechnol., 35, 128-133, 1991
- [10] Y. Ahn, B.E. Logan, Effectiveness of domestic wastewater treatment using microbial fuel cells at ambient and mesophilic temperatures, Bioresour. Technol., 101, 469-475, 2010
- [11] H. Bermek, T. Catal, S. S. Akan, M. S. Ulutaş, M. Kumru, M. Özgüven, H. Liu, B. Özçelik, and A. T. Akarsubaşı, Olive mill wastewater treatment in single-chamber air-cathode microbial fuel cells, World J. Microbiol. Biotechnol., 30, 1177-1185, 2014
- [12] Y. Feng, X. Wang, B. E. Logan, H. Lee, Brewery wastewater treatment using air-cathode microbial fuel cells, Appl. Microbiol. Biotechnol., 78, 873-880, 2008
- [13] Y. Goto, N. Yoshida, Preliminary evaluation of a microbial fuel cell treating artificial dialysis wastewater using graphene oxide, AIP Conf. Proc., 1709, 020007, 2016
- [14] N. Lua, S. Zhou, L. Zhuang, J. Zhanga, J. Ni, Electricity generation from starch processing wastewater using microbial fuel cell technology, Biochem. Eng. J., 43, 246-251, 2009
- [15] S. Venkata Mohan, G. Mohanakrishna, S. Srikanth, P.N. Sarma, Harnessing of bioelectricity in microbial fuel cell (MFC) employing aerated cathode through anaerobic treatment of chemical wastewater using selectively enriched hydrogen producing mixed consortia, Fuel, 87, 2667-2676, 2008
- [16] G. Mohanakrishna, S. Venkata Mohan, P.N. Sarma, Bio-electrochemical treatment of distillery wastewater in microbial fuel cell facilitating decolorization and desalination along with power generation, J. Hazard. Mater., 177, 487-494, 2010
- [17] S.A. Patil, V. P. Surakasi, S. Koul, S. Ijmulwar, A. Vivek, Y. S. Shouche, and B. P. Kapadnis, Electricity generation using chocolate industry wastewater and its treatment in activated sludge based microbial fuel cell and analysis of developed microbial community in the anode chamber, Bioresour. Technol., 100, 5132-5139, 2009
- [18] J. Sun, Y. Hu, Z. Bi, and Y. Cao, Improved performance of air-cathode single-chamber microbial fuel cell for wastewater treatment using microfiltration membranes and multiple sludge inoculation, J. Power Sources 187, 471-479, 2009.
- [19] X. Wang, Y. J. Feng, and H. Lee, Electricity production from beer brewery wastewater using single chamber microbial fuel cell, Water Sci. Technol., 57, 1117-1121, 2008
- [20] Z. Li, X. Zhang, L. Lei, Electricity production during the treatment of real electroplating wastewater containing Cr<sup>6+</sup> using microbial fuel cell, Process Biochem., 43, 1352-1358, 2008
- [21] J. Sun, Y. Hu Z. Bi, and Y. Cao, Simultaneous decolorization of azo dye and bioelectricity generation using a microfiltration membrane air-cathode single-chamber microbial fuel cell, Bioresour. Technol., 100, 3185-3192, 2009

- [22] J.R. Kim, J. Dec, M.A. Bruns, B.E. Logan, Removal of odors from swine wastewater by using microbial fuel cells, Appl. Environ. Microb., 74, 2540-2543, 2008
- [23] M.C. Potter, Electrical effects accompanying the decomposition of organic compounds, Proc. R. Soc. Lond. B, 84, 260-276, 1911
- [24] D.R. Lovely Microbial fuel cells: novel microbial physiologies and engineering approaches, Curr. Opin. Biotech., 17, 327-332, 2012
- [25] 環境省、水産動植物の被害防止に係る農薬登録保留基準の設定に関する資料、2011(http:// www.env.go.jp/water/sui-kaitei/kijun/rv/a13\_isoprothiolane.pdf)
- [26] F. Zhao, F. Harnisch, U. Schröder, F. Scholz, P. Bogdanoff, I. Herrmann, Challenges and constraints of using oxygen cathodes in microbial fuel cells, Environ. Sci. Technol., 40, 5193-5199, 2006