



移动扫码阅读

曲立威,宋海亮,刘燕青,等.电耦合膜生物反应器中膜污染控制的研究进展[J].能源环境保护,2022,36(4):1-11.

QU Liwei, SONG Hailiang, LIU Yanqing, et al. Research progress of membrane fouling control in electrically coupled membrane bioreactor[J]. Energy Environmental Protection, 2022, 36(4): 1-11.

电耦合膜生物反应器中膜污染控制的研究进展

曲立威¹, 宋海亮², 刘燕青¹, 李嘉竹¹, 李先宁^{1,*}

(1.东南大学 能源与环境学院,江苏 南京 210096;2.南京师范大学 环境学院,江苏 南京 210023)

摘要:针对膜生物反应器(MBR)长期运行过程中的膜污染问题,阐述了MBR膜污染的成因及影响因素,分析了电耦合膜生物反应器(EMBR)减缓膜污染的机理,介绍了导电膜耦合EMBR和自生电场对膜污染的抑制作用。分析表明:EMBR可以通过电渗、电泳、电氧化、群体淬灭等电化作用原位控制膜污染;微生物燃料电池(MFC)的自生电场应用于EMBR,在减缓膜污染的同时以电能的形式回收部分能量;导电膜的应用优化了EMBR结构,自生电场的MFC-MBR耦合工艺具有较好的应用前景。

关键词:膜生物反应器;微生物燃料电池;电耦合膜生物反应器;膜污染;电化学;导电膜

中图分类号:X703

文献标识码:A

文章编号:1006-8759(2022)04-0001-11

Research progress of membrane fouling control in electrically coupled membrane bioreactor

QU Liwei¹, SONG Hailiang², LIU Yanqing¹, LI Jiazhu¹, LI Xianning^{1,*}

(1. School of Energy and Environment, Southeast University, Nanjing 210096, China;

2. School of Environment, Nanjing Normal University, Nanjing 210023, China)

Abstract: In view of the problem of membrane fouling in the long-term operation of membrane bioreactor (MBR), the causes and influencing factors of membrane fouling in MBR were described. The mechanism of reducing membrane fouling in electrically coupled membrane bioreactor (EMBR) was analyzed, and the inhibitory effects of conductive membrane and self-generated electric field on membrane fouling were introduced. The analysis shows that EMBR can control membrane fouling in situ through electrochemical actions such as electroosmosis, electrophoresis, electrooxidation and electrochemical quorum quenching. The application of the self-generated electric field of microbial fuel cell (MFC) in EMBR can reduce membrane fouling and recover part of energy in the form of electric energy. The application of conductive membrane optimizes the structure of EMBR. The MFC-MBR coupling process with self-generated electric field has a good application prospect.

Key Words: Membrane bioreactor; Microbial fuel cell; Electrically coupled membrane bioreactor; Membrane fouling; Electrochemistry; Conductive membrane

0 引言

膜生物反应器(MBR)将活性污泥工艺和膜过滤相结合,与传统活性污泥技术相比,具有出水

水质稳定、占地面积小、剩余污泥量少等优点,可以高效处理城市污水和工业废水,近年来受到越来越多的关注^[1]。然而,MBR的膜污染问题不仅影响出水水质还会缩短膜的使用寿命,增加MBR

收稿日期:2022-02-22;责任编辑:蒋雯婷

基金项目:国家自然科学基金项目(42077108);国家自然科学基金项目(51978148)

第一作者简介:曲立威(1997—),男,内蒙人,硕士研究生,研究方向为水污染控制。E-mail:220190576@seu.edu.cn

通讯作者简介:李先宁(1964—),男,江苏南京人,教授,博士生导师,主要研究方向为水处理技术及水环境生态修复技术。E-mail:lxnseu@163.com

的运行成本,从而限制了 MBR 的广泛应用。常见的膜污染控制技术有物理法、化学法和生物法^[2-3]。近年来,由于电化学技术的经济环保优势,研究人员尝试将 MBR 技术与电化学技术相耦合以控制膜污染。结果发现,这种耦合技术不仅可以显著控制膜污染,还能高效处理废水^[4]。研究人员将导电膜同时用做分离膜和工作电极,提高电耦合膜生物反应器(EMBR)的电能利用率,简化装置构型,导电膜耦合 EMBR 通过电泳^[5]、电氧化^[6]、气泡冲刷^[7]等作用可以有效减缓膜污染并提高出水水质。传统 EMBR 外加电场强度高、能耗大,而废水中有机物本身含有大量可转化为电能的能源。许多研究学者将微生物燃料电池(MFC)与 MBR 相结合,通过 MFC 自生电场有效控制膜污染^[8-10]。

本文阐述了 MBR 膜污染的成因及影响因素,介绍了 MBR 与其他技术相结合的膜污染控制效果,重点分析了电化学控制膜污染的机理,论述了导电膜的应用进展,综述了国内外 MFC 耦合 MBR 减缓膜污染的研究现状,最后提出了 EMBR 的研究建议,以期为 MBR 膜污染控制方面提供理论和技术参考。

表 1 部分参数对膜污染的影响

Table 1 The influences of some parameters on membrane fouling

参数类别	相关参数	对膜污染的影响	处理废水	参考文献
污泥混合液性质	SMP	SMP 增加,过滤阻力增加	市政污水	[14]
		SMP 增加,膜污染速率增加	市政污水	[15]
	EPS	EPS 增加,膜污染速率增加	市政污水	[16]
	MLSS	MLSS 存在最佳浓度范围 8~12 g/L	校园污水	[17]
	粒径分布	小絮体数量增加,过滤阻力增加	蒸发器冷凝水	[19]
膜自身性质	粗糙度	粗糙度高时,膜更易堵塞	市政污水	[21]
	孔径	膜孔径越大,膜越易堵塞	合成废水	[20]
	亲水性/疏水性	疏水性膜更易堵塞	合成废水	[23]
操作条件	HRT	HRT 减少,SMP、EPS 增加,SMP 中 PN/PS 下降,膜污染加剧	养猪废水	[24]
		HRT 减少,SMP 增加,膜污染加剧	石化废水	[25]
	T	T 降低,SMP、EPS 减少,膜污染速率增加	市政污水	[26]
	OLR	OLR 增加,SMP、松散结合态胞外聚合物(LB-EPS)增加,膜污染速率增加	市政污水	[28]
		OLR 增加,不可逆污染减少	制药废水	[29]
SRT	SRT 增加,不可逆污染减少	制药废水	[29]	
	SRT 增加,MLVSS 增加,絮状物粒径减小,不可逆污染增加	合成废水	[30]	
水动力条件		搅拌速度降低,膜污染速率增加	模拟废水	[31]

1.1.1 污泥混合液性质

胞外聚合物(EPS)和溶解性微生物产物(SMP)是目前广泛认可的造成膜污染的主要物

1 膜污染形成影响因素及控制技术

1.1 膜污染形成影响因素

MBR 处理废水的主要挑战是膜污染,膜被污染后水通量下降、压力损失增加、膜的清洁和更换频率增加,这些运行问题会导致更高的能耗、药耗和人工费,最终增加了 MBR 的运行和维护成本^[11]。膜污染是指颗粒物、胶体、可溶性有机物、无机物、微生物细胞等沉积在膜的表面和孔隙,使得膜孔径变小或者堵塞,从而造成膜通量降低和跨膜压差(TMP)升高的现象。根据污垢成分对膜污染的相对贡献,膜污染机制主要包括:(1)胶体颗粒的膜孔堵塞;(2)污泥絮体沉积在膜表面;(3)在膜表面形成滤饼层;(4)剪切力造成滤饼层脱落;(5)长期运行过程中滤饼层成分的时空变化(如滤饼层中细菌群落和生物聚合物成分的变化)^[12]。膜污染是由膜和污泥混合液之间的相互作用引起的,所以与膜和污泥混合液相关的参数都会影响膜污染,主要影响参数有污泥混合液性质、膜自身性质和操作条件。污泥混合液性质、膜自身性质直接影响膜污染,操作条件通过影响污泥特性间接影响膜污染^[13]。这些参数对膜污染的影响详见表 1。

质,其生物降解性差,因此会在膜表面堆积,污泥中 SMP、EPS 浓度越高膜污染越严重^[14-16]。混合液悬浮固体浓度(MLSS)对膜污染的影响尚无定

论,可能是不利的、有利的或不受影响的^[17-18]。Lin 等^[19]研究表明污泥粒径越小越容易引起膜污染。膜生物反应器的膜污染过程中,膜表面会逐渐形成滤饼层,导致滤饼层过滤阻力增加,膜通量下降。滤饼层过滤阻力与污泥粒径有关,粒径越小,滤饼层孔隙率越小,阻力越大。

1.1.2 膜自身性质

膜的孔径、表面粗糙度以及亲/疏水性等膜自身特性也会影响膜污染程度。膜孔径越大,活性污泥中的污染物越易进入膜孔内堵塞膜孔,且研究表明,膜孔径越大,粒径大小对膜污染的影响越不明显^[20]。膜表面粗糙程度越大,膜比表面积越大,污染物质越易沉积在膜表面造成膜污染^[21]。亲水性膜的特点是存在能够与水形成氢键的活性基团,因此相较于疏水性膜,亲水性膜具有更好的润湿性。一般认为亲水性膜抗污染能力更强^[22-23]。

1.1.3 操作条件

影响膜污染的操作条件主要有水力停留时间(HRT)、温度(T)、有机负荷率(OLR)、污泥停留时间(SRT)和水动力条件。在低温或者较低的HRT冲击下,微生物会产生更多的SMP和EPS以保护自己免受不利环境的影响,导致活性污泥中SMP与EPS浓度增加,从而加剧了膜污染^[24-26]。目前的研究已经评估了SRT和OLR对MBR中膜污染的影响,但报告的结果相互矛盾。大量研究表明OLR与SMP和EPS浓度存在正相关关系,较高的有机负荷率容易造成膜污染。此外,当MLSS较低时,随着OLR增高,微生物进入对数增长期,污泥松散不易形成菌胶团,容易堵塞膜孔隙,也会加剧膜污染^[27-28]。然而Oghyanous等^[29]研究表明,适当提高OLR可以减少膜的不可逆污染。随着SRT的适当延长,MLSS增加,SMP浓度降低,膜污染有所缓解^[11,29]。Huang等^[30]研究表明,在最长SRT的条件下,MBR中MLSS和SMP浓度最高,这加速了滤饼层的形成。因此,MBR系统具有最优的SRT与HRT值。Qi等^[31]研究转速分别为60、120、180 r/min时膜污染的变化规律,研究发现低速搅拌时,污泥膨胀,凝胶层阻力的比例增加,膜污染更严重。

1.2 膜污染控制技术

研究人员利用膜污染控制技术恢复膜通量,主要包括物理、化学和生物法。物理法包括空气冲刷^[32]、反冲洗^[33]、动态膜技术^[34]、超声清洗^[35]

等。化学法通过添加酸(如HCl)、碱(如NaOH)、氧化剂(如NaClO或H₂O₂)、絮凝剂等^[36]改善污泥性质以控制膜污染。生物法^[37-39]如群体淬灭(QQ)、酶促破坏和能量解偶联在实验室或中试规模的MBR中具有有效的生物污垢控制潜力。物理化学清洗具有操作简便的优势^[40],但物理化学清洗控制膜污染有一定局限性,很难完全恢复膜通量,需要利用化学清洗去除大部分污染物。化学清洗可能引起膜材料的物理结构和化学性质变化,从而影响膜的分离性能^[41]。相对于传统物理化学法,生物法控制膜污染更经济可行,但详细的膜污染控制机制仍不清楚,污泥中的功能微生物或化学物质不稳定,尚不清楚生物法是否可以替代传统物理化学法。

近年来研究人员尝试通过MBR耦合其他技术,以期提高出水水质,延缓膜污染。渗透膜生物反应器(OMBR)是一种涉及正向渗透(FO)膜和活性污泥的混合工艺。与传统的MBR(CMBR)工艺相比,OMBR以渗透压为驱动力,水自发地从低浓度原料液侧通过膜到达高浓度汲取液侧,可有效减缓膜污染、提高出水水质并降低能耗^[42-43]。Phuntsho等^[44]构建OMBR系统,使用35 g/L NaCl作为汲取溶液,OMBR具有较高的初始水通量(6.3 LMH)和有机物去除效率。此外,在OMBR系统运行33 d期间,膜污染得到有效缓解,膜通量下降速度缓慢。长期运行导致生物反应器盐分的积累,改变了污泥特性,微生物活性下降,最终导致FO膜结垢加重^[45]。Moser等^[46]将超滤(UF)与OMBR相结合防止了生物反应器中盐度的积累,虽然超滤膜污染增加,但FO膜在没有化学清洗的情况下稳定运行超过215 d,有效减缓了膜污染。

移动床生物膜反应器(MBBR)是一种生物膜废水处理技术,在曝气池中添加自由漂浮的生物膜载体,旨在提高活性生物物质浓度^[47]。Luo等^[48]研究发现,与CMBR相比,MBBR-MBR体系不仅可以生物降解有效去除大部分污染物,还能改变MBR中EPS和SMP的特性,最终有效减缓膜污染。Deng等^[49]对比海绵改性生物载体的MBBR和传统MBBR两种技术对膜污染控制效果的差异,结果发现,前者不仅可以提高有机物的去除效率,还能改变污泥混合液性质,使污泥混合液中SMP中PN/PS增加,降低SMP浓度,进而降低滤饼层阻力,减缓膜污染。移动床生物膜反应器

具有生物量高、运行稳定可靠、剩余污泥产量低、硝化速率高等优点,已成为增强传统活性污泥工艺的另一有前景的工艺。

2 电耦合膜生物反应器减缓膜污染机理

以上耦合技术在控制膜污染方面展现了可喜的成果。但近年来,研究人员发现电化学工艺减缓膜污染方面更具优势。EMBR 通过电化学过程可以增强磷和微污染物的去除效率,提高出水水质,还能高效控制膜污染^[50]。相比于传统物化法,EMBR 膜污染控制效果好、无二次污染、成本低、出水水质好,是一种新兴原位膜污染控制技术。EMBR 电化学工艺减缓膜污染主要通过电渗、电泳、电氧化或者基于电化学的 QQ 协同控制污染物沉积于膜表面^[51]。

2.1 电渗

如图 1(b) 所示,在外部电场作用下,EMBR 系统中液体进行的反向拖拽运动,即带正电的液体向阴极运动即为电渗^[52-53]。Ibeid 等^[54]构建浸没式 EMBR,在整个运行期间观察到结合水量仅为 6 g H₂O/g TSS,而 CMBR 中结合水量为 30 g H₂O/g TSS,施加直流电有利于降低滤饼层的含水量,电渗机制可以去除微生物絮体双电层中的结合水,从而降低污泥的过滤比阻,进一步控制膜污染。Liu 等^[55]研究发现电参与电解质相关,无电解质时,膜通量没有随着电压的增加而显著变化,当电解质浓度增加到 1 mmol/L 时,分别施加 10、30、50、70 V 电压,膜通量分别增加了 0、6%、10% 和 8%。电解质的存在会引起电渗作用,从而增加膜的通透性,当电解质浓度进一步增加到 0.005 mol/L 时,过高的电解质浓度导致膜表面产生更多气泡,气泡可能会粘附在膜表面降低膜表面的液-液传质面积,从而导致膜渗透性降低。

2.2 电泳

当滤膜与阴极距离较近时,阴极的强静电排斥会阻碍微生物(污泥)和 EPS(SMP)等带负电荷的污染物在膜表面的沉积,难以形成致密的滤饼层,同时促进电活性生物膜的生长并抑制污染物在膜表面的粘附从而减轻膜污染,如图 1(c) 所示。Jiang 等^[56]对 EMBR 施加 0.8 V/cm 场强,膜表面的结合 EPS 含量和 PN/PS 的降低表明污泥表面的负电荷增加,污泥表面疏水性降低,导致污泥与带负电荷的膜之间的静电斥力增加,易形成松散的滤饼层。Ding 等^[57]研究了不同电压对减

缓膜污染的影响,施加 0~1.2 V 外加电压,随着外加电压的升高,EMBR 反应器的膜污染速率逐渐减慢,膜污染周期可以从 60 h 延长到 98 h,而 COD 去除率呈先升后降的趋势,表明较高的电压会破坏细胞膜,导致细胞生长和代谢减慢,从而对微生物降解过程产生负面影响。外加高电压可以有效减缓膜污染,但能耗较高,且影响出水水质,因此需要综合考虑反应器性能、膜污染控制和经济成本等多种因素来选择合理的外加电压。

2.3 牺牲阳极电氧化-电絮凝

电絮凝指将低析氧电位材料(如 Al/Fe)作为 EMBR 系统的牺牲阳极,通过阳极电氧化生成混凝剂破坏污染物稳定性,形成较大粒径絮凝物,从而阻止污染物沉积于膜表面^[58-59],如图 1(d) 所示。Ibeid 等^[60]证明电絮凝降低 SMP 中 PN 和 PS 含量,膜污染速率降低了 4 倍,此外,构建以悬浮物浓度和 SMP 为自变量的多元回归模型可准确预测膜污染行为。高电流密度在单位时间内产生更多的混凝剂,从而增强了带负电荷的污染物的聚集。Borea 等^[61]构建 Al 阳极 EMBR,与 CMBR 相比,当电流密度分别为 0.3、0.5、1.15 mA/cm² 时,EMBR 中污泥絮体的平均直径分别从 73.57 μm 增加到 80.35、91.39、100.64 μm,EMBR 的膜污染率分别降低 24%、44% 和 45%。研究表明,相较于 Fe 阳极,Al 作为牺牲阳极时形成的絮状物呈现出更高的极化度,形成的滤饼层孔隙更多,具有更好的膜污染控制性能^[62]。电絮凝控制膜污染无需投加化学药剂,减少了二次污染,具有较好膜污染控制性能,但电极使用寿命短限制了电絮凝技术的发展。

2.4 非牺牲阳极电氧化

高析氧电位材料为阳极时(如 Ti、Pt)^[63],非牺牲阳极电氧化减缓膜污染包括直接氧化和间接氧化,如图 1(e) 所示。直接氧化是指在低电势条件下(低于析氧电势)电子从有机污染物转移至阳极表面。间接氧化是指在工作电位高于析氧电位时,阳极产生的活性氧(ROS)氧化阳极周围的污染物,如强氧化剂($\cdot\text{OH}$)和一些中/弱氧化剂(H₂O₂ 和 O₃)^[64-65]。此外,当阴离子如氯离子、磷酸根、硫酸根离子存在时,阴离子在阳极被氧化也可以生成氧化剂如活性氯、次氯酸、过硫酸根等,从而间接氧化阳极周围的污染物^[66]。Wang^[67]等自制碳纳米管(CNT)导电陶瓷膜,施加 3 V 电压,原位产生次氯酸和次氯酸根离子等氧化剂,1 min

近乎可完全恢复膜通量。虽然大部分电氧化反应是在阳极进行的,但在阴极通入氧气或空气时也可以生成 H_2O_2 ,降解生物污垢(SMP 和 EPS)或使细菌失活,从而减少生物污垢^[65,68],如图 1(e)所示。Shi 等^[69]研究表明随着电场强度从 0 上升到 1.75 V/cm,阴极 H_2O_2 的产生量逐渐增加,在外加电场为 1.75 V/cm 时, H_2O_2 的最高产量达到 1.96 mg/L,同时,膜污染时长由 85 h 延长至 190 h。非牺牲阳极电氧化减缓膜污染的同时可以增强污染物的去除效果。Chen 等^[50]构建了移动床电化学生物反应器(MEMBR),石墨板阳极可以将 H_2O 电解为 $\cdot OH$ 从而氧化磺胺甲恶唑,同时阴极可以产生 H_2O_2 进一步去除磺胺甲恶唑中间产物并减轻膜污染,与传统移动床膜生物反应器相比,MEMBR 的 TMP 增长率从 1.72 kPa/d 降到 1.06 kPa/d。

2.5 基于电化学的 QQ

QQ 是一种有前景的膜生物污染控制策略,它可以抑制微生物群体的感应(QS)程度,中断细菌之间的交流从而减少膜表面的滤饼层生物污染的

形成^[70]。QQ 抑制 QS 方法包括^[39]:(1)抑制信号分子的合成;(2)灭活或降解信号分子;(3)干扰信号受体;(4)增加 QQ 细菌的比例并抑制 QS 菌的活性。在 EMBR 中应用最多的 QQ 方法主要是灭活/降解信号分子^[37]。MBR 中主要针对生物污垢控制的信号分子是 N-酰基高丝氨酸内酯(AHLs)和自体诱导物-2,其中 N-己酰高丝氨酸内酯、N-辛酰基-L-高丝氨酸内酯(C8-HSL)和 N-(3-辛酰基)-L-高丝氨酸内酯被证明是导致膜生物污染的三种主要 QS 的信号物质^[71]。

基于电化学的 QQ 是指通过电化学产生 ROS 降解信号分子(如 AHL)从而抑制膜表面生物膜的生长^[72-73],如图 1(f)所示。Borea 等^[74]构建 EMBR 去除难降解有机物,结果发现阿特拉津和雌酮的去除效率均提高了 36%,同时发现 C8-HSL 信号分子减少了 76%,膜污染速率从 2.95 kPa/d 下降到 0.75 kPa/d,降低了 74.65%。随着电压的升高,AHL 被 H_2O_2 降解,膜表面生物聚合物降解属富集,生物膜形成属减少,从而降低了 EPS 含量并减缓了膜污染^[75]。

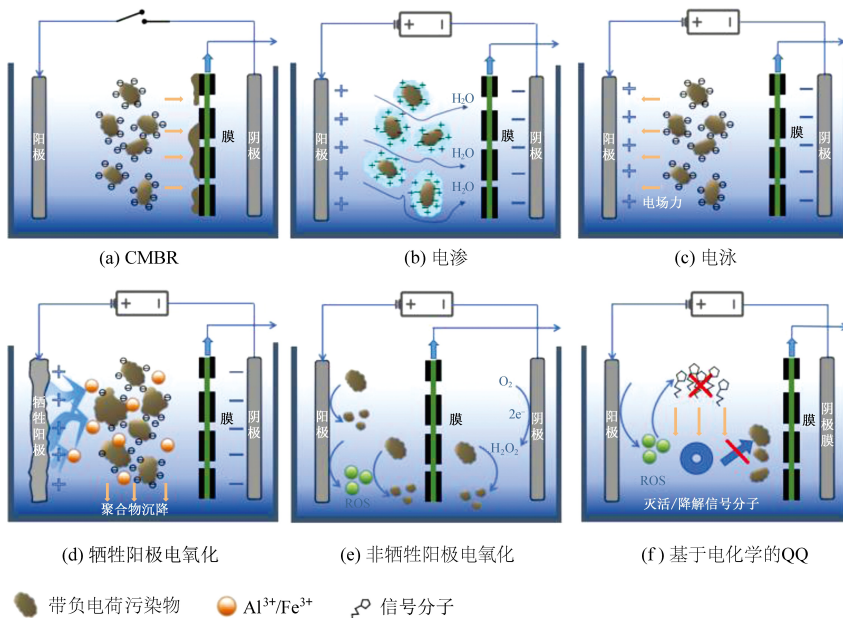


图 1 电化学策略缓解膜污染的机理图

Fig.1 Mechanisms diagrams of membrane fouling mitigation by electrochemical strategies

3 应用导电膜控制膜污染研究进展

简化 EMBR 工艺的一种有效方法是使用导电膜^[76]。研究人员发现将导电膜作为电化学系统的阳极和/或阴极,不仅可以大大简化装置结构,提高电能利用效率,还能显著控制膜污染。因此制备具有良好过滤性能及导电效果的微滤膜并将

其用于 MBR 污水处理系统,具有较为重要的理论和应用研究价值。研究发现给 MBR 导电膜施加直流电(DC)与交流电(AC)均可有效控制膜污染。

3.1 导电膜的制备

根据导电膜的制备材料,可将其分为无机导电膜和有机导电膜。与无机导电膜相比,有机导

电膜材料成本更低、制备工艺简单多样且材料来源广,在实际应用中占据绝对优势。导电膜的制备方法主要包括表面改性法和共混法,常用的导电材料有导电高分子聚合物(聚乙炔、聚苯胺、聚吡咯、聚噻吩等)、碳材料(CNT、石墨烯等)和金属等^[77]。

表面改性法制备导电膜在有机膜材料(PVDF、醋酸纤维素、聚砜、聚乙烯等)的基础上原位聚合导电材料。Yuan 等^[78]将 FeCl_3 溶液涂覆在 PVDF 膜面,然后采用气相聚合将 3,4-亚乙基二氧噻吩负载到膜表面,制备高导电性滤膜(薄层电阻 14.7 k Ω)。Hashaikh 等^[7]采用真空过滤法将多壁碳纳米管(MWCNTs)涂覆到 PVDF 表面,制备了电导率为 10 S/cm 的高导电性 MWCNTs-PVDF 导电膜。

共混法制备导电微滤膜是将导电材料掺入于铸膜液中,通过相转化法制备。Li 等^[79]将碳纳米颗粒和还原 Pd^{2+} 、 Co^{2+} 、 Fe^{3+} 、氧化石墨烯形成的催化剂添加到聚偏氟乙烯(PVDF)铸膜液中,并用刮刀将溶液浇铸在碳纤维布上,开发了一种具有高渗透率(5.98×10^4 LMH/bar)和高电导率(15.2×10^{-2} S/cm)的复合膜。Xing^[80]等在室温下将 PVDF 与离子液体(IL)1-丁基-3-甲基咪唑六氟磷酸盐进行熔融共混,成功获得了一种具有优异延展性、高透光率、良好抗静电性能的 PVDF/IL 导电膜。由于共混法中绝缘材料限制了膜的导电性,而表面改性技术可能会在膜的长期运行中导致导电材料脱落^[81],因此考虑表面改性法与共混法的结合应用,为制备耐用且导电性良好的导电膜提供新的思路。

3.2 外加 DC 控制膜污染

3.2.1 导电膜做阴极

研究发现导电膜做阴极时,给导电膜施加 DC,电泳作用可以抑制电负性的 EPS、SMP 沉积在膜表面。Cao 等^[82]通过在碳膜上电沉积 Pd 制备了阴极 Pd/C 导电膜,在 1.6 V 的直流电压辅助下实现了苯酚及其中间体的有效降解,并提高了膜的防污性能。Wang 等^[5]自制改性聚苯胺导电膜,相比于对照组,施加 2 V 外加电压的膜材料的污染物与膜之间的静电排斥力明显增强,导致污垢层更松散,减缓了膜通量的衰减。此外,氢离子在阴极表面发生还原反应生成 H_2 , H_2 的冲刷作用可以原位清洗沉积在膜表面的污垢。Hashaikh 等^[7]制备了 CNT-PVDF 导电膜作为电化学系统

的阴极,通过恒电位仪给阴极导电膜稳定施加 2 V 电压,探索阴极滤膜过滤酵母溶液和碳酸钙溶液时的防污性能,结果发现,外加电场可以促进膜表面形成微气泡,促使膜通量恢复率高达 80%。

3.2.2 导电膜做阳极

导电膜做阳极时,电化学氧化有助于污染物的降解并去除膜表面甚至膜孔深处的污垢,同时抑制生物膜的形成^[83]。Fan 等^[6]自制 CNT- Al_2O_3 阳极导电膜,相比于对照组,施加 1.5 V 电压后腐殖酸的去除率和膜渗透通量分别增加 3 倍和 1.6 倍。Yu 等^[84]在 AnMBR 中使用 CNT 膜作为阳极来防止膜污染。由于静电粘附,在阳极膜反应器的初始阶段膜污染加剧,通过阳极氧化分解滤饼层中过量的 EPS,阳极膜上的滤饼层变薄,并将污垢转化为网状动态生物过滤器,最终阳极膜上的污垢生长和分解达到了动态平衡,导电膜达到了永不堵塞的运行状态。

3.3 外加 AC 控制膜污染

研究发现给导电膜施加 AC 时,正负电的交替转化可结合导电膜单独做阴极或阳极的优势进而控制膜污染。当 AC 极化电极时,明显伴随着静电分离、电氧化和细菌失活。Thamaraiselvan 等^[85]对 CNT 导电膜施加极化电流,研究发现直接氧化和静电排斥作用协同控制膜污染,并且该研究人员发现,相比于给导电膜施加 DC,AC 展现出优异的抗生物污染能力。Lannoy 等^[86]对 CNT-聚醚砜纳米导电膜施加低频 AC(1.5 V 方波,16.7 mHz)可以在长期运行中抑制生物膜的形成,相比于对照系统,膜通量下降速率降低了 3 倍。Zhang 等^[87]以 120 s 为周期对 CNT-中空纤维导电膜施加 AC(+1.0 V/-1.2 V,方波)探索该膜的防污性能,结果发现导电膜的平均膜污染速率为 1.7 kPa/d,低于阴极 DC-MBR(2.1 kPa/d)、阳极 DC-EMBR(2.5 kPa/d)和 CMBR(2.9 kPa/d),并发现施加 AC 的膜不可逆污染低于施加 DC 的膜和不加电场的膜。

EMBR 体系可以有效减缓膜污染,但外加电场需要外部供电设施、能耗高甚至会导致细菌失活^[88]。因此,无需额外电能消耗和复杂的电力设施就可高效控制膜污染的自生电场,近年来受到研究人员的青睐。

4 自生电场控制膜污染研究进展

MFC 能利用电活性微生物氧化污水中的有机

物,从废水中直接获取电能并自生电场,减少了处理污水时的能耗,是一种清洁能源技术和新兴可持续发展的污水处理技术^[89]。研究表明 MFC 产生的微电场可以满足 MBR 系统去除膜污染所需的电场强度,其电场强度可通过调整外接电阻来改变^[90-91]。因此,研究人员尝试构建自生电场 MFC-MBR 装置, MFC-MBR 耦合系统,这不仅为膜污染控制提供了新的选择,而且还有助于 MFC 的规模化和实际应用,是一项具有前景的新型废水处理技术。

MFC-MBR 主要通过自生电场改变污泥特性从而减缓膜污染。Tian^[92]等将中空纤维膜生物反应器与 MFC 相耦合,与 C-MBR 相比, MFC-MBR 膜污染速率降低了 56%,在低电流的长期作用下, MFC-MBR 中的污泥絮体更均匀,丝状细菌更少,污泥中 LB-EPS 减少, SMP 中 PN/PS 增加。Li 等^[8]研究表明 MFC-MBR 中污泥絮体表现出较低的疏水性和较少的表面负电荷,根据扩展的 DLVO 分析,在 MFC-MBR 中观察到污泥中 SMP 与清洁膜或 SMP 污染膜之间的粘附自由能降低。当接近干净的膜或 SMP 污染的膜时, MFC-MBR 中的 SMP 必须克服比 C-MBR 中更高的能量障碍, MFC-MBR 中 SMP 在膜表面的吸附受到抑制,该研究证实 MFC-MBR 可以降低污泥絮体的污染潜力。Wang 等^[93]研究了 MLSS 浓度对膜污染的影响,结果表明, MFC 在低有机负荷阶段(0.59 kg COD/(m³·d))膜污染加剧,而在高有机负荷阶段(2.00 kg COD/(m³·d))对有机物降解起积极作用,耦合系统在生物电场的作用下可显著抑制 SMP 和 LB-EPS 粘附于膜表面,进而减缓膜污染, MFC-MBR 依赖于阳极微生物氧化有机物产生电能抑制膜污染,所以 MFC-MBR 缓解膜污染需要在同时满足 MFC 和 MBR 需求的系统能量的情况下才能实现。为了进一步提高 MFC-MBR 系统减缓膜污染的能力,需要通过改善操作条件来提高发电,以便投入实际应用。Li 等^[94]将颗粒活性炭(GAC)应用于 MFC-MBR 阴极室中,流化态的 GAC 可能与阴极接触从而充当阴极电极的一部分, GAC 的存在使 MFC-MBR 产生的电流密度从 200.3 A/m³提高到 256.0 A/m³; GAC 的大表面积促进了生物膜的形成,从而减少了生物污垢附着在膜表面上,此外,流化 GAC 对膜表面的物理磨损可去除污垢,有助于缓解膜污染问题。

也有研究人员将导电膜应用于 MFC-MBR

中,导电膜作为 MBR 滤膜的同时还作为 MFC 的阴极,导电膜耦合 MFC-MBR 示意图如图 2 所示,厌氧条件下,阳极表面产电菌氧化有机物释放电子和质子,质子穿过质子交换膜到达阴极导电膜,电子通过外电路传输到阴极导电膜,阴极室中的氧化物(如氧气、铁氧化物和过氧化氢)与电子和质子发生还原反应,自生电场控制膜污染。导电膜耦合 MFC-MBR 主要通过静电排斥作用减缓膜污染。Huang 等^[10]采用浸渍-沉淀相转化的方法制备了还原氧化石墨烯(RGO)改性的阴极导电平板微滤膜,反应器中带负电的细菌(或污泥)与阴极膜之间存在静电排斥力,有利于减缓生物污染。此外, RGO 提高了滤膜的亲水性,减弱了污染物与膜之间的相互作用,进一步减轻了膜的不可逆污染。研究表明,当阴极导电膜表面产生 H₂O₂ 或 ·OH 时,原位清洁作用也可以协同控制膜污染。Xu 等^[95]将制备的聚吡咯/蒽醌-二磺酸盐导电膜作为双室 MFC 的阴极,通过 MFC 自生电场产生的静电斥力阻止污染物沉积于膜表面,同时利用阴极产生的 H₂O₂ 和 ·OH 氧化膜表面或者膜孔中的污染物,有效减缓膜污染。

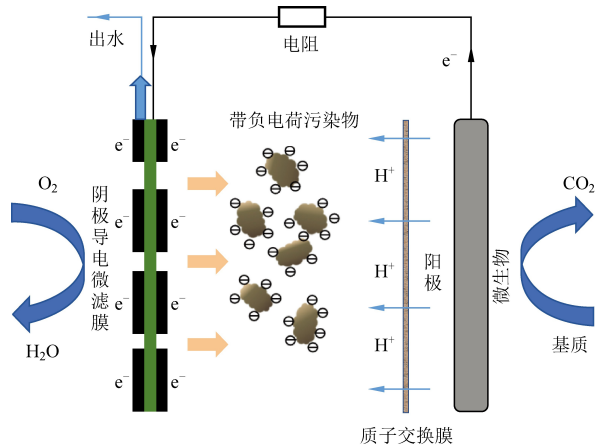


图 2 导电膜耦合 MFC-MBR 示意图

Fig.2 Schematic diagram of conductivemembrane coupling MFC-MBR

近年来,研究人员对 MFC-MBR 耦合系统不断进行改进,尝试优化导电膜材料来进一步减缓膜污染。高活性催化剂可以显著降低阴极极化电位,从而加快氧还原反应速率^[96]。Li 等^[91]在 PVDF/碳纤维布复合膜(PCCM)表面电沉积 Pd 和还原氧化石墨烯制备高催化性导电阴极膜,应用于 MFC-MBR,出水 COD 和 NH₄⁺-N 浓度稳定,去除率分别高达 90% 和 81%;结果发现该导电膜的最大功率密度为 1 210 mW/m³,比初始 PCCM

膜最大功率密度(312 mW/m^3)高了 3.8 倍;通量测试结果表明导电膜的通量稳定于 $128 \sim 130 \text{ L}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$,与无电场通量($66 \text{ L}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$)相比提高了约 1.9 倍,表明高催化性阴极导电膜耦合 MFC-MBR 在未来废水处理与减缓膜污染中具有巨大的发展空间和应用前景。

5 结论与展望

本文介绍了减缓膜污染的常用方法,并介绍了其他工艺耦合 MBR 减缓膜污染的工艺,其中电化学过程与 MBR 耦合的 EMBR 系统可以在不影响出水水质的情况下,通过电化学作用(电渗、电泳、电氧化、基于电化学的 QQ)有效减缓膜污染。导电膜的应用大大优化了 EMBR 结构,外加电场直接应用于 MBR 会导致高能耗,并可能对细菌活性产生负面影响,同时增加能源消耗。自生电场的 MFC-MBR 工艺的耦合将会在废水处理的可持续发展中发挥重要作用。

EMBR 是一种新兴的废水处理工艺,可在有效处理废水的同时控制膜污染,但其研究大多停留在实验室规模,需要大量的研究工作来扩大 EMBR 技术的规模。综合国内外相关研究与应用的态势,笔者认为,为了进一步优化耦合系统,还需要进一步研究以下几个方面:(1)制备导电性强并且耐用的导电膜应用于 EMBR 系统中,以优化 EMBR 系统;(2)交流电的减缓效果优于直流电,但仍需要深入研究其减缓机理;(3)为了增强耦合系统在不利条件下的适应性,应进一步探索耦合系统对难降解有机废水的应用效果;(4)MFC 在长期运行中很难保持稳定的电能输出,提高 MFC-MBR 系统的产电能力对于其实际应用具有重要意义。随着 EMBR 耦合技术的发展,EMBR 系统有望在未来作为新型污水处理技术在工业领域得到推广和应用。

参考文献

[1] Hamed H, Ehteshami M, Mirbagheri S A, et al. Current status and future prospects of membrane bioreactors (MBRs) and fouling phenomena: A systematic review [J]. *Canadian Journal of Chemical Engineering*, 2019, 97 (1): 32-58.

[2] Meng F G, Chae S R, Drews A, et al. Recent advances in membrane bioreactors (MBRs): Membrane fouling and membrane material [J]. *Water Research*, 2009, 43 (6): 1489-1512.

[3] Zsirai T, Buzatu P, Aerts P, et al. Efficacy of relaxation, back-flushing, chemical cleaning and clogging removal for an

immersed hollow fibre membrane bioreactor [J]. *Water Research*, 2012, 46 (14): 4499-4507.

[4] 于伯洋,苏帆,孙境求,等.电控膜生物反应器技术回顾与展望 [J]. *环境科学学报*, 2020, 40 (12): 4215-4224.

[5] Wang K P, Xu L L, Li K L, et al. Development of polyaniline conductive membrane for electrically enhanced membrane fouling mitigation [J]. *Journal of Membrane Science*, 2019, 570: 371-379.

[6] Fan X F, Zhao H M, Liu Y M, et al. Enhanced permeability, selectivity, and antifouling ability of CNTs/ Al_2O_3 membrane under electrochemical assistance [J]. *Environmental Science & Technology*, 2015, 49 (4): 2293-2300.

[7] Hashaikeh R, Lalia B S, Kochkodan V, et al. A novel in situ membrane cleaning method using periodic electrolysis [J]. *Journal of Membrane Science*, 2014, 471: 149-154.

[8] Li H, Xing Y, Cao T L, et al. Evaluation of the fouling potential of sludge in a membrane bioreactor integrated with microbial fuel cell [J]. *Chemosphere*, 2021, 262: 128405.

[9] Hou B, Liu X Y, Zhang R, et al. Investigation and evaluation of membrane fouling in a microbial fuel cell - membrane bioreactor systems (MFC-MBR) [J]. *Science of the Total Environment*, 2022, 814: 152569.

[10] Huang L H, Li X F, Ren Y P, et al. Preparation of conductive microfiltration membrane and its performance in a coupled configuration of membrane bioreactor with microbial fuel cell [J]. *Rsc Advances*, 2017, 7 (34): 20824-20832.

[11] Du X J, Shi Y K, Jegatheesan V, et al. A review on the mechanism, impacts and control methods of membrane fouling in MBR system [J]. *Membranes*, 2020, 10 (2): 24.

[12] Meng F, Chae S R, Drews A, et al. Recent advances in membrane bioreactors (MBRs): Membrane fouling and membrane material [J]. *Water Research*, 2009, 43 (6): 1489-1512.

[13] Lin H J, Peng W, Zhang M J, et al. A review on anaerobic membrane bioreactors: Applications, membrane fouling and future perspectives [J]. *Desalination*, 2013, 314: 169-188.

[14] Rosenberger S, Laabs C, Lesjean B, et al. Impact of colloidal and soluble organic material on membrane performance in membrane bioreactors for municipal wastewater treatment [J]. *Water Research*, 2006, 40 (4): 710-720.

[15] Trussell R S, Merlo R P, Hermanowicz S W, et al. The effect of organic loading on process performance and membrane fouling in a submerged membrane bioreactor treating municipal wastewater [J]. *Water Research*, 2006, 40 (14): 2675-2683.

[16] Wang Z W, Wu Z C, Tang S J. Extracellular polymeric substances (EPS) properties and their effects on membrane fouling in a submerged membrane bioreactor [J]. *Water Research*, 2009, 43 (9): 2504-2512.

[17] Zhang X M, Yue X P, Liu Z Q, et al. Impacts of sludge retention time on sludge characteristics and membrane fouling in a submerged anaerobic-oxic membrane bioreactor [J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2015, 99 (11): 4893-

- 4903.
- [18] Chang I S, Kim S N. Wastewater treatment using membrane filtration - effect of biosolids concentration on cake resistance [J]. *Process Biochemistry*, 2005, 40 (3-4): 1307-1314.
- [19] Lin H J, Xie K, Mahendran B, et al. Sludge properties and their effects on membrane fouling in submerged anaerobic membrane bioreactors (SAnMBRs) [J]. *Water Research*, 2009, 43 (15): 3827-3837.
- [20] Aslam M, Lee P H, Kim J. Analysis of membrane fouling with porous membrane filters by microbial suspensions for autotrophic nitrogen transformations [J]. *Separation and Purification Technology*, 2015, 146: 284-293.
- [21] Ozgun H, Dereli R K, Ersahin M E, et al. A review of anaerobic membrane bioreactors for municipal wastewater treatment: Integration options, limitations and expectations [J]. *Separation and Purification Technology*, 2013, 118: 89-104.
- [22] Kumar R, Ismail A F. Fouling control on microfiltration/ultrafiltration membranes: Effects of morphology, hydrophilicity, and charge [J]. *Journal of Applied Polymer Science*, 2015, 132 (21).
- [23] Guo Y F, Sun P C, Wei J F. New insight into the fouling behavior of hydrophobic and hydrophilic polypropylene membranes in integrated membrane bioreactors [J]. *Environmental Technology*, 2018, 39 (24): 3159-3168.
- [24] Niu Z H, Guo H Z, Zhou Y, et al. Unraveling membrane fouling in anoxic/oxic membrane bioreactors treating anaerobically digested piggery wastewater [J]. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 2021, 9 (1): 104985.
- [25] Zeirani T, Fallah N, Nasernejad B. Biological treatment of real petrochemical wastewater containing styrene using submerged membrane bioreactor: Effects of HRT [J]. *International Journal of Environmental Science and Technology*, 2019, 16 (7): 3793-3800.
- [26] Ma Z, Wen X H, Zhao F, et al. Effect of temperature variation on membrane fouling and microbial community structure in membrane bioreactor [J]. *Bioresource Technology*, 2013, 133: 462-468.
- [27] Chen L L, Cheng P J, Ye L, et al. Biological performance and fouling mitigation in the biochar-amended anaerobic membrane bioreactor (AnMBR) treating pharmaceutical wastewater [J]. *Bioresource Technology*, 2020, 302: 122805.
- [28] Han X M, Wang Z W, Ma J X, et al. Membrane bioreactors fed with different COD/N ratio wastewater: Impacts on microbial community, microbial products, and membrane fouling [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2015, 22 (15): 11436-11445.
- [29] Oghyanous F A, Etemadi H, Yegani R. The effect of sludge retention time and organic loading rate on performance and membrane fouling in membrane bioreactor [J]. *Journal of Chemical Technology and Biotechnology*, 2021, 96 (3): 743-754.
- [30] Huang Z, Ong S L, Ng H Y. Submerged anaerobic membrane bioreactor for low-strength wastewater treatment: Effect of HRT and SRT on treatment performance and membrane fouling [J]. *Water Research*, 2011, 45 (2): 705-713.
- [31] Qi C, Wang J N, Lin Y H. New insight into influence of mechanical stirring on membrane fouling of membrane bioreactor: Mixed liquor properties and hydrodynamic conditions [J]. *Bioresource Technology*, 2016, 211: 654-663.
- [32] Xia L J, Law A W K, Fane A G. Hydrodynamic effects of air sparging on hollow fiber membranes in a bubble column reactor [J]. *Water Research*, 2013, 47 (11): 3762-3772.
- [33] Wang Z W, Ma J X, Tang C Y Y, et al. Membrane cleaning in membrane bioreactors: A review [J]. *Journal of Membrane Science*, 2014, 468: 276-307.
- [34] Ersahin M E, Ozgun H, Dereli R K, et al. A review on dynamic membrane filtration: Materials, applications and future perspectives [J]. *Bioresource Technology*, 2012, 122: 196-206.
- [35] Ehsani M, Doan H, Lohi A. A comprehensive review of membrane fouling and cleaning methods with emphasis on ultrasound-assisted fouling control processes [J]. *Korean Journal of Chemical Engineering*, 2021, 38 (8): 1531-1555.
- [36] Deng L J, Guo W S, Ngo H H, et al. Effects of hydraulic retention time and biofloculant addition on membrane fouling in a sponge-submerged membrane bioreactor [J]. *Bioresource Technology*, 2016, 210: 11-17.
- [37] Liu Q, Ren J Y, Lu Y S, et al. A review of the current in-situ fouling control strategies in MBR biological versus physicochemical [J]. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 2021, 98: 42-59.
- [38] Malaeb L, Le-Clech P, Vrouwenvelder J S, et al. Do biological-based strategies hold promise to biofouling control in MBRs? [J]. *Water Research*, 2013, 47 (15): 5447-5463.
- [39] Lee K, Yu H R, Zhang X L, et al. Quorum sensing and quenching in membrane bioreactors: Opportunities and challenges for biofouling control [J]. *Bioresource Technology*, 2018, 270: 656-668.
- [40] Aslam M, Charfi A, Lesage G, et al. Membrane bioreactors for wastewater treatment: A review of mechanical cleaning by scouring agents to control membrane fouling [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2017, 307: 897-913.
- [41] Meng F G, Zhang S Q, Oh Y, et al. Fouling in membrane bioreactors: An updated review [J]. *Water Research*, 2017, 114: 151-180.
- [42] Cornelissen E R, Harmsen D, De Korte K F, et al. Membrane fouling and process performance of forward osmosis membranes on activated sludge [J]. *Journal of Membrane Science*, 2008, 319 (1-2): 158-168.
- [43] Viet N D, Cho J, Yoon Y, et al. Enhancing the removal efficiency of osmotic membrane bioreactors: A comprehensive review of influencing parameters and hybrid configurations [J]. *Chemosphere*, 2019, 236: 124363.
- [44] Tran V H, Phuntsho S, Han D S, et al. Submerged module of

- outer selective hollow fiber membrane for effective fouling mitigation in osmotic membrane bioreactor for desalination [J]. *Desalination*, 2020, 496: 114707.
- [45] Luo W H, Phan H V, Xie M, et al. Osmotic versus conventional membrane bioreactors integrated with reverse osmosis for water reuse: Biological stability, membrane fouling, and contaminant removal [J]. *Water Research*, 2017, 109: 122–134.
- [46] Moser P B, Bretas C, Paula E C, et al. Comparison of hybrid ultrafiltration–osmotic membrane bioreactor and conventional membrane bioreactor for oil refinery effluent treatment [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2019, 378: 121952.
- [47] Patsios S I, Kontogiannopoulos K N, Pouliou N, et al. Performance of a membrane bioreactor and a moving bed biofilm reactor–membrane bioreactor treating table olive processing wastewater: A comparative study [J]. *Journal of Chemical Technology and Biotechnology*, 2021, 96 (4): 1030–1039.
- [48] Luo Y L, Jiang Q, Ngo H H, et al. Evaluation of micropollutant removal and fouling reduction in a hybrid moving bed biofilm reactor–membrane bioreactor system [J]. *Bioresource Technology*, 2015, 191: 355–359.
- [49] Deng L J, Guo W S, Ngo H H, et al. New functional biocarriers for enhancing the performance of a hybrid moving bed biofilm reactor–membrane bioreactor system [J]. *Bioresource Technology*, 2016, 208: 87–93.
- [50] Chen M, Xu J, Dai R B, et al. Development of a moving–bed electrochemical membrane bioreactor to enhance removal of low–concentration antibiotic from wastewater [J]. *Bioresource Technology*, 2019, 293: 122022.
- [51] Bani–Melhem K, Elektorowicz M. Performance of the submerged membrane electro–bioreactor (SMEBR) with iron electrodes for wastewater treatment and fouling reduction [J]. *Journal of Membrane Science*, 2011, 379 (1–2): 434–439.
- [52] Ibeid S, Elektorowicz M, Oleszkiewicz J A. Electro–conditioning of activated sludge in a membrane electro–bioreactor for improved dewatering and reduced membrane fouling [J]. *Journal of Membrane Science*, 2015, 494: 136–142.
- [53] Fan X F, Zhao H M, Quan X, et al. Nanocarbon–based membrane filtration integrated with electric field driving for effective membrane fouling mitigation [J]. *Water Research*, 2016, 88: 285–292.
- [54] Ibeid S, Elektorowicz M, Oleszkiewicz J A. Novel electrokinetic approach reduces membrane fouling [J]. *Water Research*, 2013, 47 (16): 6358–6366.
- [55] Liu L, Li K L, Zhao S Y, et al. The effects of electrophoresis, bubbles and electroosmosis for conductive membrane performance in the electro–filtration process [J]. *Journal of Membrane Science*, 2021, 620: 118955.
- [56] Jiang B, Zeng Q Z, Liu J X, et al. Enhanced treatment performance of phenol wastewater and membrane antifouling by biochar–assisted EMBR [J]. *Bioresource Technology*, 2020, 306: 123147.
- [57] Ding A Q, Fan Q, Cheng R, et al. Impacts of applied voltage on microbial electrolysis cell – anaerobic membrane bioreactor (MEC–AnMBR) and its membrane fouling mitigation mechanism [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2018, 333: 630–635.
- [58] Ensano B M B, Borea L, Naddeo V, et al. Applicability of the electrocoagulation process in treating real municipal wastewater containing pharmaceutical active compounds [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2019, 361: 367–373.
- [59] Hong H C, Peng W, Zhang M J, et al. Thermodynamic analysis of membrane fouling in a submerged membrane bioreactor and its implications [J]. *Bioresource Technology*, 2013, 146: 7–14.
- [60] Ibeid S, Elektorowicz M, Oleszkiewicz J A. Impact of electrocoagulation of soluble microbial products on membrane fouling at different volatile suspended solids’ concentrations [J]. *Environmental Technology*, 2017, 38 (4): 385–393.
- [61] Borea L, Ensano B M B, Hasan S W, et al. Are pharmaceuticals removal and membrane fouling in electromembrane bioreactor affected by current density? [J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 692: 732–740.
- [62] Zhao K, Sun J Q, Hu C Z, et al. Membrane fouling reduction through electrochemically regulating flocs aggregation in an electro–coagulation membrane reactor [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2019, 83: 144–151.
- [63] Ouarda Y, Tiwari B, Azeis A, et al. Synthetic hospital wastewater treatment by coupling submerged membrane bioreactor and electrochemical advanced oxidation process: Kinetic study and toxicity assessment [J]. *Chemosphere*, 2018, 193: 160–169.
- [64] Moreira F C, Boaventura R A R, Brillas E, et al. Electrochemical advanced oxidation processes: A review on their application to synthetic and real wastewaters [J]. *Applied Catalysis B–Environmental*, 2017, 202: 217–261.
- [65] Martinez–Huitle C A, Panizza M. Electrochemical oxidation of organic pollutants for wastewater treatment [J]. *Current Opinion in Electrochemistry*, 2018, 11: 62–71.
- [66] Asif M B, Maqbool T, Zhang Z H. Electrochemical membrane bioreactors: State–of–the–art and future prospects [J]. *Science of the Total Environment*, 2020, 741: 140233.
- [67] Wang X X, Sun M, Zhao Y M, et al. In situ electrochemical generation of reactive chlorine species for efficient ultrafiltration membrane self–cleaning [J]. *Environmental Science & Technology*, 2020, 54 (11): 6997–7007.
- [68] Brillas E, Martinez–Huitle C A. Decontamination of wastewaters containing synthetic organic dyes by electrochemical methods. An updated review [J]. *Applied Catalysis B–Environmental*, 2015, 166: 603–643.
- [69] Shi S N, Xu J, Zeng Q Z, et al. Impacts of applied voltage on EMBR treating phenol wastewater: Performance and membrane antifouling mechanism [J]. *Bioresource Technology*, 2019, 282: 56–62.
- [70] Waheed H, Xiao Y Y, Hashmi I, et al. Insights into quorum quenching mechanisms to control membrane biofouling under changing organic loading rates [J]. *Chemosphere*, 2017,

- 182: 40–47.
- [71] Yeon K M, Lee C H, Kim J. Magnetic enzyme carrier for effective biofouling control in the membrane bioreactor based on enzymatic quorum quenching [J]. *Environmental Science & Technology*, 2009, 43 (19): 7403–7409.
- [72] Stuckey D C. Recent developments in anaerobic membrane reactors [J]. *Bioresource Technology*, 2012, 122: 137–148.
- [73] Ren T T, Li X Y, Yu H Q. Effect of N-acy-L-homoserine lactones-like molecules from aerobic granules on biofilm formation by *Escherichia coli* K12 [J]. *Bioresource Technology*, 2013, 129: 655–658.
- [74] Borea L, Naddeo V, Belgiorno V, et al. Control of quorum sensing signals and emerging contaminants in electrochemical membrane bioreactors [J]. *Bioresource Technology*, 2018, 269: 89–95.
- [75] Jiang B, Zeng Q Z, Hou Y, et al. Impacts of long-term electric field applied on the membrane fouling mitigation and shifts of microbial communities in EMBR for treating phenol wastewater [J]. *Science of the Total Environment*, 2020, 716: 137139.
- [76] Ensano B M B, Borea L, Naddeo V, et al. Combination of electrochemical processes with membrane bioreactors for wastewater treatment and fouling control: A review [J]. *Frontiers in Environmental Science*, 2016, 4: 57.
- [77] Formoso P, Pantuso E, De Filipo G, et al. Electro-conductive membranes for permeation enhancement and fouling mitigation: A short review [J]. *Membranes*, 2017, 7 (3): 39.
- [78] Yuan Y C, Tian C, Liu J D. PEDOT surface modified PVDF filtration membrane for conductive membrane preparation and fouling mitigation [J]. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 2021, 9 (3): 39.
- [79] Li Y H, Liu L F, Yang F L. High flux carbon fiber cloth membrane with thin catalyst coating integrates bio-electricity generation in wastewater treatment [J]. *Journal of Membrane Science*, 2016, 505: 130–137.
- [80] Xing C Y, Zhao M M, Zhao L P, et al. Ionic liquid modified poly (vinylidene fluoride): Crystalline structures, miscibility, and physical properties [J]. *Polymer Chemistry*, 2013, 4 (24): 5726–5734.
- [81] Lee X J, Show P L, Katsuda T, et al. Surface grafting techniques on the improvement of membrane bioreactor: State-of-the-art advances [J]. *Bioresource Technology*, 2018, 269: 489–502.
- [82] Cao Z P, Li S S, Zhang J L, et al. An electro-microbial membrane system with anti-fouling function for phenol wastewater treatment [J]. *Journal of Chemical Technology and Biotechnology*, 2017, 92 (3): 693–699.
- [83] Yang Y, Qiao S, Jin R F, et al. A novel aerobic electrochemical membrane bioreactor with CNTs hollow fiber membrane by electrochemical oxidation to improve water quality and mitigate membrane fouling [J]. *Water Research*, 2019, 151: 54–63.
- [84] Yu Q L, Zhang Y B. Fouling-resistant biofilter of an anaerobic electrochemical membrane reactor [J]. *Nature Communications*, 2019, 10 (1): 1–10.
- [85] Thamaraivelan C, Ronen A, Lerman S, et al. Low voltage electric potential as a driving force to hinder biofouling in self-supporting carbon nanotube membranes [J]. *Water Research*, 2018, 129: 143–153.
- [86] De Lannoy C F, Jassby D, Gloe K, et al. Aquatic biofouling prevention by electrically charged nanocomposite polymer thin film membranes [J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47 (6): 2760–2768.
- [87] Zhang K Y, Yang Y, Qiao S, et al. Alternating current-enhanced carbon nanotubes hollow fiber membranes for membrane fouling control in novel membrane bioreactors [J]. *Chemosphere*, 2021, 277: 130240.
- [88] Wei V, Elektorowicz M, Oleszkiewicz J A. Influence of electric current on bacterial viability in wastewater treatment [J]. *Water Research*, 2011, 45 (16): 5058–5062.
- [89] Logan B E, Hamelers B, Rozendal R A, et al. Microbial fuel cells: Methodology and technology [J]. *Environmental Science & Technology*, 2006, 40 (17): 5181–5192.
- [90] Yin X F, Li J, Li X F, et al. Self-generated electric field to suppress sludge production and fouling development in a membrane bioreactor for wastewater treatment [J]. *Chemosphere*, 2020, 261: 128046.
- [91] Li Y H, Cheng C J, Bai S, et al. The performance of Pd-rGO electro-deposited PVDF/carbon fiber cloth composite membrane in MBR/MFC coupled system [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2019, 365: 317–324.
- [92] Tian Y, Li H, Li L P, et al. In-situ integration of microbial fuel cell with hollow-fiber membrane bioreactor for wastewater treatment and membrane fouling mitigation [J]. *Biosensors & Bioelectronics*, 2015, 64: 189–195.
- [93] Wang Y F, Jia H, Wang J, et al. Impacts of energy distribution and electric field on membrane fouling control in microbial fuel cell-membrane bioreactor (MFC-MBR) coupling system [J]. *Bioresource Technology*, 2018, 269: 339–345.
- [94] Li J, Luo S, He Z. Cathodic fluidized granular activated carbon assisted-membrane bioelectrochemical reactor for wastewater treatment [J]. *Separation and Purification Technology*, 2016, 169: 241–246.
- [95] Xu L, Zhang G Q, Yuan G E, et al. Anti-fouling performance and mechanism of anthraquinone/polypyrrole composite modified membrane cathode in a novel MFC-aerobic MBR coupled system [J]. *Rsc Advances*, 2015, 5 (29): 22533–22543.
- [96] Zaman S, Huang L, Douka A I, et al. Oxygen reduction electrocatalysts toward practical fuel cells: Progress and perspectives [J]. *Angewandte Chemie-International Edition*, 2021, 60 (33): 17832–17852.