

DOI: 10.11918/202310002

电化学氧化技术在 MBR 中的膜污染控制 研究与应用进展

倪凌峰^{1,2,3,4}, 王沛芳^{1,2}, 王亚宜^{3,4}

(1. 河海大学 环境学院, 南京 210098; 2. 浅水湖泊综合治理与资源开发教育部重点实验室(河海大学), 南京 210098;
3. 同济大学 环境科学与工程学院, 上海 200092; 4. 污染控制与资源化研究国家重点实验室(同济大学), 上海 200092)

摘要: 膜生物反应器(MBR)已发展成为高效且成熟的市政和工业污水处理技术,基于 MBR 建成并投产的污水处理厂数量持续增加且规模不断扩大,但膜污染仍是 MBR 进一步推广和应用的瓶颈,开发高效率、低成本的膜污染控制方法是领域内的研究热点。作为一种典型的高级氧化工艺,电化学氧化(electrochemical oxidation, EO)在水环境中具有突出的净污和杀菌能力,可同步实现膜表面污染物的降解和细菌的灭活,在 MBR 中展现出巨大的抗膜污染潜力。近年来,基于 EO 的膜污染控制技术蓬勃发展,促进了 MBR 抗膜污染方法的创新,并引发了对抗膜污染机制的新思考。为了紧跟 MBR 快速发展的步伐,迫切需要对 EO 在 MBR 中膜污染控制的研究和应用进行全面总结和讨论。介绍了 EO 的工作原理并分析了电化学氧化 MBR (eMBR)中产生活性氧自由基并抑制膜污染的多种途径;根据国内外的最新研究进展,从电极装载方式、电极与滤膜的结合方式、电极的制备材料等角度系统讨论了 eMBR 的运行模式和抗膜污染效果;总结了 EO 抑制膜污染的影响因素及其实际应用的现存挑战;对 eMBR 的未来研究进行了展望,对其进一步优化与创新提出了建议。

关键词: 膜生物反应器; 电化学氧化; 膜污染控制; 抗污染机制; 污染物降解

中图分类号: X703.1

文献标志码: A

文章编号: 0367-6234(2024)10-0127-09

Research and application advances of electrochemical oxidation technology in MBR for membrane fouling control

NI Lingfeng^{1,2,3,4}, WANG Peifang^{1,2}, WANG Yayi^{3,4}

(1. College of Environment, Hohai University, Nanjing 210098, China; 2. Key Laboratory of Integrated Regulation and Resource Development on Shallow Lakes(Hohai University), Ministry of Education, Nanjing 210098, China;
3. College of Environmental Science and Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, China;
4. State Key Laboratory of Pollution Control and Resource Reuse(Tongji University), Shanghai 200092, China)

Abstract: Membrane bioreactor (MBR) has developed into efficient and mature technology for municipal and industrial wastewater treatment technologies. The wastewater treatment plants based on MBR are established and put into production all over the world with continuously increasing amount and expanding scale. As membrane fouling remains the bottleneck in wider spread and application of MBR, development of high-efficiency and low-cost methods for membrane fouling control has become a research hotspot in the field. As a typical advanced oxidation process, electrochemical oxidation (EO) is widely competent in pollutants decontamination and bacteria disinfection in aqueous environment, exhibiting attractive antifouling potential in MBR by simultaneous foulant degradation and bacteria inactivation on membrane surface. In recent years, the flourishing EO-based technologies for membrane fouling control have accelerated the innovation of antifouling methods in MBR and highlighted new thought on antifouling mechanism. To keep pace with the rapid development of MBR, comprehensive summarization and discussion of EO for antifouling research and application in MBR are urgently needed. This review firstly introduces the working mechanism of EO, and analyzes various ways involved in generation of reactive oxygen species and inhibition of membrane fouling in electrochemical oxidation MBR (eMBR). Based on the latest research progress both domestically and internationally, the operational modes and antifouling performance of eMBR were systematically discussed from the perspective of loading methods of electrode, combining methods of electrode and membrane, and fabricating material of electrode. The influencing factors of EO in inhibiting membrane fouling

收稿日期: 2023-10-07; 录用日期: 2023-11-14; 网络首发日期: 2024-03-18

网络首发地址: <https://link.cnki.net/urlid/23.1235.t.20240314.1030.002>

基金项目: 国家自然科学基金青年基金(52300044); 中国博士后科学基金面上项目(2023M730921); 江苏省科技计划专项资金(基础研究计划自然科学基金青年基金)(BK20230972); 博士后创新人才支持计划(BX20230107); 江苏省卓越博士后计划(2023ZB663)

作者简介: 倪凌峰(1992—), 男, 博士, 助理研究员; 王沛芳(1973—), 女, 教授, 博士生导师; 王亚宜(1977—), 女, 教授, 博士生导师

通信作者: 王沛芳, pfwang2005@hhu.edu.cn

and existing challenges for practical application were summarized. Finally, future research prospects in eMBR were discussed and suggestions on further optimization and innovation were provided.

Keywords: membrane bioreactor; electrochemical oxidation; membrane fouling control; antifouling mechanism; foulant degradation

作为生物处理法与膜分离单元的结合系统,膜生物反应器(membrane bioreactor, MBR)在国内外水处理领域备受关注,并在过去的三十多年中广泛应用于市政和工业污水处理^[1]。近年来,世界上已建成超过 60 座超大规模($>1 \times 10^5 \text{ m}^3/\text{d}$)的 MBR 设施,污水处理总量达 $1 \times 10^7 \text{ m}^3/\text{d}$ ^[2]。2020 年,全球 MBR 的市场估值约为 30.9 亿美元,且预计将以 7.02% 的复合年增长率于 2028 年增加至 54.8 亿美元^[3]。与传统污水处理系统相比,MBR 容积负荷更高、出水水质更稳定、占地面积更小、污泥滞留能力更强且产量更低,展现出显著的应用优势和广阔的发展前景^[4-5]。然而,作为 MBR 的应用瓶颈,膜污染往往会迅速降低膜通量、缩短膜的使用寿命、增加额外的能源消耗和运行成本,是 MBR 运行过程中难以回避的问题^[6]。因此,开发高效且经济的 MBR 膜污染控制策略已成为膜分离和污水处理领域的研究热点。

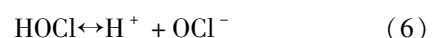
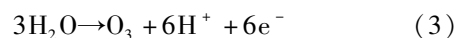
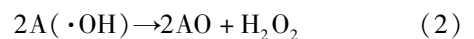
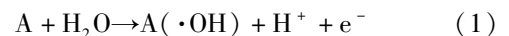
随着 MBR 工艺的不断发展,各种膜污染控制方法应运而生,国内外学者也对上述方法进行了归纳和总结。例如,Bagheri 等^[7]综述了 MBR 用于水和污水处理过程中的所有膜污染控制方法,并将其分为曝气、机械清洗、超声清洗、化学清洗、生物法、细胞固定、抗污染膜和电场等。Meng 等^[8]基于膜污染的原理和因素以及膜污染物的组成和特征,介绍了截至 2016 年用于 MBR 中的抗膜污染新技术,包括机械曝气冲洗、原位化学清洗、酶或细菌降解污染物、纳米材料改性膜和电场作用。随着抗污染方法的持续创新,电化学氧化(electrochemical oxidation, EO)技术在 MBR 中的抗膜污染研究与应用日益增加,但之前的文献都未对该技术在 MBR 中的抗膜污染表现及应用前景做详细总结。

不同于传统的电场抗污染法(如电絮凝、电泳、微生物燃料电池),EO 作为典型的高级氧化技术(advanced oxidation process, AOP)可通过原位产生活性氧簇(reactive oxygen species, ROS)高效降解有机物并灭活细菌和病毒^[9]。因此,EO 可有效去除膜表面的污染物并通过杀灭膜上黏附的细菌延缓生物膜的形成,在膜污染(尤其是膜生物污染)抑制方面潜力巨大^[10]。近年来,基于 EO 技术的膜污染控制方法层出不穷,并在 MBR 中取得了显著的抗污染效果。本文综述了 EO 抑制 MBR 膜污染的机制、实

现途径和抗污染效果,总结了其在 MBR 实际应用中的挑战,并进一步展望了未来的研究和发展方向。

1 基于 EO 技术的膜污染控制机制

电化学反应是指在电解质溶液中,外加电势的作用使得电子在电极之间传递,从而引起化学反应的过程,当溶液中的阴阳两极间形成电场时,电化学反应可分为阳极的氧化反应(即 EO)和阴极的还原反应^[11]。与其他传统 AOP 相比,EO 能够高效分解各种难降解有机物,且具有无需外加药剂、反应条件温和、工艺简单、用途广泛、可控性强等明显优势^[12]。根据作用机制的不同,发生在阳极的 EO 反应可分为直接氧化和间接氧化(图 1)。直接氧化指有机污染物吸附在阳极表面,通过电子转移在阳极失去电子而发生氧化分解,转化为无毒、低毒或易生物降解的物质,甚至完全矿化,但该途径的氧化效率往往因电极污染和阳极表面钝化而持续降低^[13]。相比之下,间接氧化指阳极表面产生具有强氧化性的活性基团或高价态金属氧化物,从而氧化分解水中的有机污染物且避免阳极发生钝化^[13]。间接氧化是阳极氧化的主要形式,产生的活性基团扮演电子传递中间体的角色,主要包括由 H_2O 氧化(反应(1))在阳极表面(A)产生的具有强氧化性和无选择性的 $\cdot\text{OH}$ 、由 A($\cdot\text{OH}$)二聚化(反应(2))产生的具有弱氧化性的 H_2O_2 、由 H_2O 失电子(反应(3))产生的 O_3 和由氯离子(Cl^-)氧化(反应(4)~(6))产生的活性氯(图 1),反应过程如下^[14-15]:



EO 与 MBR 结合形成的电化学 MBR(eMBR)可通过上述直接和间接氧化的方式降解膜表面或膜孔深层的有机污染物并灭活膜上黏附的细菌,从而抑制 MBR 的膜污染^[16]。尽管大部分的氧化反应发生在阳极,在阴极由 O_2 获得电子后被还原得到的 ROS(如 $\cdot\text{OH}$ 、 $\cdot\text{O}_2^-$ 和 H_2O_2)也可有效去除膜污染物(图 1)^[17]。除了原位降解膜污染物外,通过 EO 或

生物电化学氧化反应改变混合液性质, 去除混合液中的有机污染物并降低其膜污染倾向, 也是 eMBR 抑制膜污染的重要机制^[18]。有研究表明, MBR 混合液中的群体感应信号分子含量与胞外聚合物 (extracellular polymeric substance, EPS) 浓度呈正相关, 且可促进膜生物污染的形成, 因此, 淬灭群体感应信号也是 EO 抑制 MBR 膜污染的有效手段^[19]。例如, Jiang 等^[20-21] 利用 EO 产生的 H_2O_2 降低 *N*-acyl-homoserine lactones (AHLs) 信号分子浓度后, eMBR 的跨膜压差 (trans-membrane pressure, TMP) 增长率明显下降。此外, EO 产生的 ROS 可提升导电膜电极的电化学活性和催化性能, 减少污染物在膜上的累积, 从而抑制膜污染^[22]。

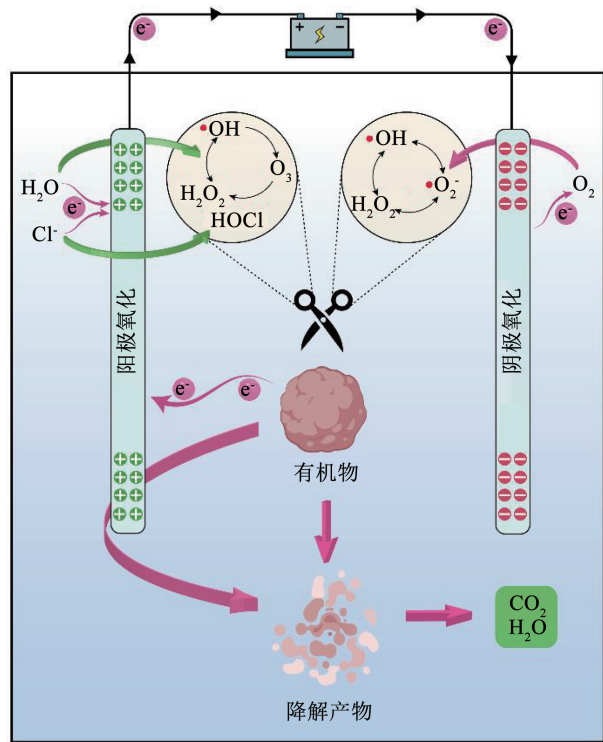


图 1 电化学氧化反应在 MBR 中的膜污染控制机制

Fig.1 Mechanism of electrochemical oxidation reactions in MBR for membrane fouling control

在利用电化学技术抑制 MBR 膜污染的过程中, EO 还会伴随着以下 5 种抗污染机制: 1) 电絮凝。阳极溶蚀后产生的金属阳离子经水解、聚合、氧化后形成微絮体, 使水中的有机污染物凝聚沉淀而分离, 降低混合液的膜污染倾向^[23]。2) 电泳。带负电荷的有机污染物在电泳效应作用下向带正电的阳极移动, 或在静电斥力的作用下远离带负电的阴极, 从而减少其在膜表面的黏附^[24]。3) 电渗析。活性污泥上附着的水在电渗析作用下被分离, 使污泥的比过滤阻力降低^[25]。4) 起泡作用。分别在阴极和阳极产生的 H_2 和 O_2 气泡抑制泥饼层的形成并减轻膜表面的浓差极化^[26]。5) pH 变化。阳极 (酸性) 和阴

极 (碱性) 的极端 pH 条件抑制膜上附着细菌的生长繁殖, 缓解膜生物污染^[27]。不同于 EO 过程, 上述 5 种抗膜污染机制主要通过限制污染物的移动或减少其在膜表面的沉积实现, 并非直接降解污染物。电化学技术在 MBR 中的膜污染控制过程得益于多种机制的协同作用, 以下主要针对 EO 在 MBR 中的抗膜污染表现及实现途径做详细讨论。

2 运行模式及膜污染控制表现

基于上述膜污染控制机制, EO 在 MBR 运行中展现出优异的抗膜污染潜力, 其研究与应用已扩展至由聚偏氟乙烯 (PVDF)、聚四氟乙烯、聚乙烯和陶瓷等材料制成的各类滤膜 (主要包括平板膜和中空纤维膜)^[11, 28-30], 且 eMBR 已广泛用于处理各类污水, 如市政污水、医药废水、禽畜养殖废水、养殖海水、印染废水、农药废水、垃圾渗滤液等^[31-35]。eMBR 的运行模式主要取决于电极的选择与设置, 根据电极装载方式、电极与滤膜的结合方式、电极的制备材料, 可分别将 eMBR 的构型分为外置/内置式电极、改性膜为阴极/阳极、非牺牲/牺牲式电极。

2.1 外置/内置式电极

EO 与 MBR 相结合构建的 eMBR 可分为电极外置式和内置式两种构型 (图 2)。Gharibian 等^[31] 开发了一种由 3D 打印的电化学流动槽组成的电氧化 MBR (EO-MBR), 该流动槽外置于装载有中空纤维膜 (HFMs) 组件的 MBR 出水再循环管线上; 在 160 mL/min 回流率和 24 h 水力停留时间 (HRT) 条件下, 该外置电极式 eMBR 不仅实现了对有机污染物的完全去除和对药类化合物的完全氧化, 还使膜的运行时间延长了 28 d; 电化学产生的 $\cdot OH$ 对富电子 EPS 进行的亲电子破坏是膜污染减轻的主要机制。Chen 等^[32] 将电-生物填料-MBR 系统与外置的 Fe-C 微电解技术耦合, 考察了 eMBR 在处理真实禽畜养殖废水时的污染物去除效果和抗膜污染表现; 尽管 eMBR 中的自生电场未显著促进污染物的去除, 但由于 EO 产物 (如 H_2O_2 和 $\cdot OH$) 对膜污染物的氧化分解以及带负电荷的膜污染物和细菌细胞受到的静电斥力, 系统的 TMP 增长速率下降了 89.7%, 展现出良好的抗膜污染效果。此外, Hu 等^[33, 36] 将中试规模的电化学厌氧 MBR (E-AnMBR) 的不锈钢网阴极和不锈钢网混合碳纤维阳极与膜滤单元完全分离, 将电极置于上流式厌氧污泥床 (UASB) 中对农药废水进行预处理; 在长期稳定运行过程中, 由于 EO 降低了混合液中的污泥产量、EPS 浓度、颗粒和胶体 COD (化学需氧量), E-AnMBR 的膜污染速率较对照反应器降低了 31% ~ 39%。

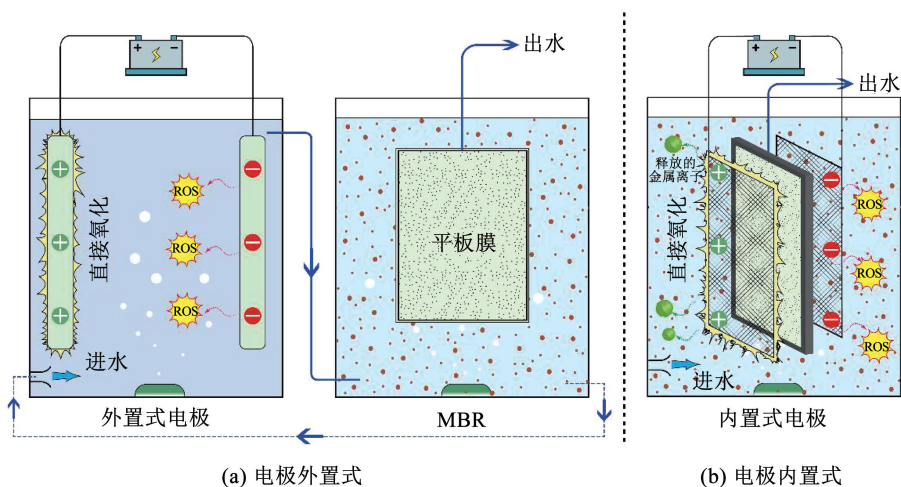


图 2 电极外置式和内置式 eMBR 的抗膜污染运行模式

Fig. 2 Antifouling operation modes of eMBR with external and internal electrodes

与电极外置式 eMBR(图 2(a))相比,电极内置式 eMBR 的紧凑性和可扩展性更强,更适于大规模应用(图 2(b))^[16]。早在 2013 年,Wang 等^[28]以不锈钢网为阴极并以石墨棒为阳极构建了一种管状浸没式 eMBR 用于减轻膜污染;在 60 d 运行过程中,eMBR 中的电化学反应使阴极产生了高活性的 H_2O_2 ,并使带负电的污泥和不锈钢网之间形成静电斥力,从而降低了膜污染速率。孙和喜等^[37]以多孔铝板为阳极、不锈钢网为阴极、聚乙烯 HFMs 为滤膜构建的浸没式 eMBR,不仅对印染废水具有较高的处理效率,还大幅提升了污泥的过滤性能,有利于减轻膜污染的发生。Huang 等^[38]将两片碳布和改性的导电分离膜分别作为阳极和阴极构建了一种浸没式 eMBR,由于 O_2 还原产生的 H_2O_2 对膜材料的原位清洗,以及阴极膜上增加的静电斥力,该 eMBR 在 2 V/cm 电场作用下的膜污染速率下降了约 50%。除了 ROS 以外,活性氯也是 EO 抑制 MBR 膜污染的重要氧化性基团。Chuang 等^[12,39-40]在进水中添加氯化物,利用内置式电极产生的活性氯的氧化作用减轻了机械不可逆污染,延缓了 TMP 的上升,降低了膜污染频率并延长了膜滤周期,显著抑制了 eMBR 的膜污染。与之类似,Song 等^[34]利用 eMBR 中原位产生的自由氯减轻了机械不可逆污染,并减少了有机污染物在膜孔中的疏水性富集,从而使阳极导电膜的过滤周期延长了 71.4%。除了对有机物的降解作用,EO 对微生物的灭活作用也是其抑制 MBR 膜污染的重要方式。Chen 等^[41]构建了以 $IrO_2-Ta_2O_5@Ti$ 为阳极、以 PVDF 膜覆盖的不锈钢网为阴极的 eMBR 用于处理含病毒的污水,长期运行后发现,电化学产生的 ROS 对膜上病毒和污染物的氧化作用以及增加的静电斥力使膜滤周期与对照相

比延长了 3 倍,膜污染控制效果显著。

2.2 改性膜为阴极/阳极

在电极内置式 eMBR 中,以导电材料改性的膜作为电极时,可使改性膜兼具滤膜和电极的功能,在该新兴的 eMBR 构型中,贴近或黏附于改性膜表面的有机污染物可被直接或间接氧化去除,进一步保证了膜污染抑制效率(图 3)。当使用改性膜为阴极时,膜表面经电化学生成的 H_2O_2 可有效降解生物污染物,如 EPS 和 SMP(溶解性微生物产物),并灭活膜上附着的细菌,膜附近的污染物及微生物会在电泳力作用下被持续推离膜表面,从而抑制膜生物污染(图 3(a))^[17]。在膜材料方面,碳纳米管(CNTs)基导电膜不仅透水性好,而且电阻力低,常作为阴极材料用于 eMBR 的膜污染控制中。例如,在 Qi 等^[42]构建的 CNT 改性导电膜为阴极、铂片为阳极的厌氧 eMBR 中,产生的 ROS 灭活了膜表面细菌,阴极产氢造成的极端 pH 条件抑制了生物膜的形成,改性膜上的生物污染被显著抑制。闫凯丽等^[43]和 Huang 等^[38]将不锈钢网嵌入聚合微滤膜中制备的复合导电膜也在 eMBR 中展现出明显的抗污染效果,在外加电场时,膜材料对带负电荷污染物的斥力作用以及原位产生的 H_2O_2 的氧化作用是膜污染减轻的主要原因。除了使用外加电场,Yin 等^[22]构建的以 Cu 纳米线改性膜为阴极、以石墨为阳极的 eMBR,可通过自生电场在阴极膜表面产生 H_2O_2 和 $\cdot OH$ 并对有机物进行降解,导致 eMBR 中膜表面的生物量低于对照 MBR,从而降低了 43%~52% 的膜污染速率。为了比较阴极改性膜与普通独立阴极材料的抗膜污染效果,Wang 等^[44]通过将碳纤维编织在 HFMs 表面并以该改性膜为阴极构建了表面电场厌氧 MBR(S-AnEMBR),在 100 d 运行过程中,

S-AnEMBR的膜污染速率(3.38 kPa/d) 低于装载独立不锈钢阴极的 eMBR(3.57 kPa/d) 和对照 MBR(7.69 kPa/d), 改性膜上有机物的氧化分解速率更快、酸化效率更高, 表明导电改性膜比传统二维电极在 eMBR 中具有更好的抗膜污染性能。

尽管以导电膜为 eMBR 阴极可结合 EO 和电化学排斥效应进一步提高抗膜污染效果(图 3(a)), 但在阴极由 O_2 被还原得到的 ROS 的氧化性较弱, 且已形成的膜污染很难通过静电排斥的方式去除^[28]。因此, 导电复合膜也可作为 eMBR 的阳极同时用于过滤和抑制膜污染(图 3(b))。Yang 等^[45]以 CNTs-HFMs 为阳极、以钛网为阴极建立的 eMBR 在 60 d 运行期只进行了 1 次膜清洗, 而未结合电化学技术的对照 MBR 进行了 5 次膜清洗; 良好的抗膜污染表现得益于阳极 EO 反应对 CNTs-HFMs 表面或膜孔内部深层污染物(主要为多糖和蛋白)的直接去除。类似地, Liu 等^[46]以 Fe 基导电膜为阳极、以碳毡为阴极构建了一种微生物燃料电池(MFC), 该生物电化学系统通过自生电流进行 EO 反应, 降解了阳极膜上的有机污染物(如 EPS 中的多糖), 减轻了 eMBR 的膜污染。虽然上述各种阳极导电膜上发生的 EO 反应具有明显的抗污染效果, 但该类改

性膜往往存在水通量低、用电效率低、易释放金属离子等缺点, 不仅会带来潜在的环境风险, 还增加了 MBR 的运行成本^[47]。此外, 阳极导电膜上的污染也会因其静电吸附作用而加剧。为了在阳极膜上达到 EO 与静电吸附之间的动态抗污染平衡, Yu 等^[48]构建了一种以 CNT 膜为阳极、以石墨棒为阴极的 eMBR, 运行过程中阳极膜上的 EO 反应比污染物的富集速率更快, 因而逐渐减轻了膜污染。通常, 当 eMBR 阳极仅连通直流电时, 随着阳极膜上 EO 反应的长期进行, 施加在改性膜上的正电压会逐渐并永久性缩短膜的使用寿命^[49]。因此, 可通过使用交变电流或电势, 将改性导电膜交替用作 eMBR 中的阴极和阳极, 克服恒流和单直流电在抗膜污染应用中的缺陷。例如, Quan 等^[50-51]的研究团队以 CNTs-HFMs 作为滤膜和电极、以钛网作为对照电极构建的 eMBR 展现出优良的抗膜污染效果; 通过变换电流电压, CNTs-HFMs 在阴极和阳极功能间不断转换, 使改性膜同时具备静电斥力和 EO 的性能^[50]; 运行期间, EO 不仅有效分解或矿化了污染物, 还灭活或损伤了膜上黏附的活细菌, 使其附着能力下降, 并最终从膜表面脱离, 减轻了膜生物污染^[51]。

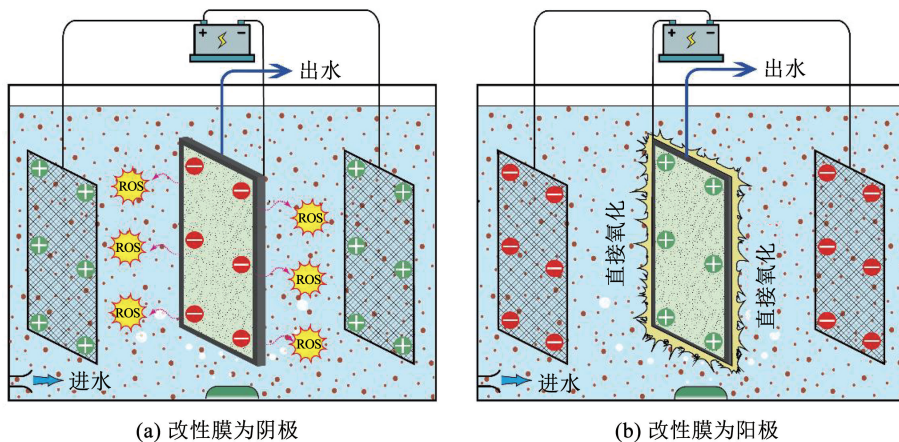


图 3 改性膜为阴极和阳极的 eMBR 抗膜污染运行模式

Fig. 3 Antifouling operation modes of eMBR with cathode and anode of modified membrane

2.3 非牺牲/牺牲式电极

eMBR 中的电极可分为非牺牲和牺牲电极, 非牺牲电极通常由惰性和高导电材料制成, 且不会在电化学反应中被消耗。在各种非牺牲电极材料中, 碳基材料因制造成本低廉被广泛应用于 eMBR 中。Ma 等^[52]以碳纤维为阴极、碳毡为阳极构建了一种高效低成本的 eMBR 用于低浓度污水处理, 在 15 ~ 20 °C 时, EO 对有机物的降解减少了 eMBR 中的污泥量, 使其膜污染周期(150 d) 延长至对照 MBR 的两倍。在以石墨毡为阴极和阳极的 eMBR 中施加

3 V 电压时, Du 等^[35]发现产生的活性氯和 H_2O_2 的 EO 作用和电极的电场力作用使 eMBR 的膜污染减轻了 70.8%。在 Zhen 等^[53]以碳毡和钛网为电极构建的 eMBR 中, 电化学调控不仅在污泥和餐厨垃圾共消化过程中促进了甲烷产生和能量回收, 还通过静电斥力和 EO 作用加速高分子有机物的矿化, 增强了 PVDF 膜的抗污染性能。Zhang 等^[50]以 CNTs-HFMs 和钛网交替作为非牺牲阴极和阳极用于可变换电流电压的 eMBR (AC-eMBR), 在 73 d 的运行中, AC-eMBR 的平均污染速率(1.7 kPa/d) 低于以

CNTs-HFMs 为固定阳极 (2.5 kPa/d) 和固定阴极 (2.1 kPa/d) 的 eMBR, 表明 AC-eMBR 中的静电斥力、EO 和平移运动行为的复合作用在电流变换过程中具有更优异的抗膜污染效果。除了碳基材料外, 非牺牲性的 Ti/IrO₂ 阳极和 Ti/Pt 阴极也可作为形稳性电极用于 eMBR 中, 且可通过电化学氯化过程多相氧化氯离子, 产生活性氯实现膜污染抑制^[12,30,39-40]。此外, 也有研究采用非牺牲性的 IrO₂-Ta₂O₅@Ti 三元金属复合材料作为 eMBR 的膜组件, 在 120 d 运行过程中通过产生 H₂O₂ 使膜污染速率降低了 44.4%^[54]。

牺牲电极通常由 Fe、Al、Mg、不锈钢等廉价易得的金属制成, 其在电化学反应中释放的大量阳离子可作为助凝剂促进污染物的去除(图 2(b)), 因此, 牺牲电极比非牺牲电极具有更高的抗膜污染效率^[30]。Chen 等^[32]以一片零价铁(Fe⁰) 盘为牺牲阳极、两个管状不锈钢膜组件为阴极通过盐桥构建了 eMBR 并形成了内部电流, 阳极牺牲的 Fe 不仅为阴极产生 ROS 提供了电子, 还阻碍了带负电污染物在膜表面的沉积, 有效减轻了 eMBR 的膜污染。在以 Al 为牺牲阳极、不锈钢为阴极的电移动床 MBR (eMB-MBR) 中, 随着·OH 的形成以及释放的 Al³⁺ 和 Al₆(OH)₁₅³⁺ 对污染物的吸附、中和、脱稳作用, eMB-MBR 的膜滤周期明显延长, 膜污染速率下降了 60%^[29]。类似地, 在以 Mg 为牺牲阳极、石墨为阴极的 eMBR 中, 阳极通过释放 Mg²⁺ 降低了泥水混合液的 Zeta 电位、黏性和 EPS 浓度, 使 eMBR 的膜污染减轻了 30%^[55]。虽然大多数牺牲电极为阳极, Chen 等^[54]将聚合物膜覆盖在 Fe 网上制备了阴极改性膜并将其作为牺牲电极用于 eMBR 的膜污染控制中, 伴随着 Fe 网的腐蚀和芬顿反应, 该阴极改性膜释放的氧化性 Fe(IV)O₂⁺ 和·OH 提升了系统的抗膜污染效果。尽管在 eMBR 中应用牺牲电极是抑制膜污染的有效措施, 但牺牲电极释放的金属离子对微生物活性的不利影响不可忽视^[16], 电极材料的持续牺牲与消耗也会不可避免地增加 MBR 的运行成本。Udomkittayachai 等^[56]计算发现, 牺牲 Fe 阳极抑制膜污染的过程中释放 Fe³⁺ 的消耗是 eMBR 运行的主要成本之一, 处理单位体积水的电极消耗速率和成本分别达到 0.035 kg/m³ 和 0.004 美元/m³^[56]。

3 EO 抑制 MBR 膜污染的影响因素

EO 在 eMBR 中的抗膜污染表现受多种因素的影响, 如过电压、电流和电极材料。通过考察电压在 eMBR 中对膜污染控制和苯酚污水处理的影响, Shi

等^[57]发现, 当电压由 0 增加至 1.75 V/cm 时, H₂O₂ 的产生逐渐增加且膜污染速率逐渐下降, 而苯酚的降解率在电压为 0~0.80 V/cm 时上升并在 0.80~1.75 V/cm 时下降。Gharibian 等^[31]也发现, 随着电压的上升, eMBR 中会产生更多的·OH 用于氧化有机分子并抑制膜污染, 过高的电压则造成了出水水质的波动并加快了阳极材料的损耗, 选择最佳的电压才能保证 eMBR 的高效和稳定运行。通过考察 eMBR 中阳极导电膜在不同阳极电势(1.2、1.4、1.6 V vs. SCE)下的抗污染机制, Song 等^[34]发现当电势从 0 增加至 1.4 V vs. SCE 时膜的抗污染性能逐渐提高, 并认为 1.4 V 的阳极电势为产生自由氯控制膜污染的最佳条件。此外, 电流密度也是影响 eMBR 抗污染过程的重要因素。吴香梅等^[58]构建了以钛丝改性的平板陶瓷导电膜为阴极、以石墨板为阳极的 eMBR, 用于处理海水冲厕水, 并探究了电流密度对其性能的影响, 结果发现, 在 2.0~2.6 A/m² 的范围内逐渐增大电流密度时, 改性膜的 TMP 增长率随之降低, 电化学产生的 H₂O₂ 和·OH 对膜上污染物的 EO 作用、电场斥力和污泥性质的改变(如 Zeta 电位降低、粒径增大)共同缓解了 eMBR 的膜污染。Mameda 等^[30]也发现, EO 的膜污染抑制效率在电流密度为 0~23 A/m² 的范围内逐渐提高, 但与装载的电化学电池数量无关。除了电压和电流, 阴/阳极材料的种类以及电极间的距离也会影响 eMBR 的抗膜污染效果。通过比较各种阴极和阳极材料在 eMBR 中的应用表现, Karimi 等^[11]发现膜污染的抑制率可在最佳条件下达到 77%, 该条件为: 阴极和阳极材料分别选用 Fe 和 Al, 电极间距为 1.5 cm、电压为 1 V。除上述各项因素外, 牺牲电极的损耗率、不必要副反应(如产 O₂ 和 H₂) 的发生等也是 eMBR 设计过程中不可忽视的影响因素。

4 现存的挑战

总结当前国内外在 MBR 中应用 EO 的表现与机制可发现, eMBR 的抗膜污染方式主要分为改性混合液和原位膜清洁两种方式, 前者通过降解泥水混合液中的有机物降低其膜污染倾向, 间接减轻膜污染, 后者通过在膜表面原位降解污染物或灭活细菌直接抑制膜污染的形成。虽然两种方式都可有效减轻膜污染, 但前者本质上为基于 AOP 的化学氧化法, 其去除有机污染物的成本必然高于 MBR 活性污泥中微生物对有机物的分解。因此, 从 MBR 运行成本的角度看, 通过 EO 实现原位膜清洁是更高效且经济的手段, 但其在实际 MBR 中的抗膜污染应用仍存在 3 项主要的挑战: 1) ROS 的氧化效果受限于淬

灭效应。泥水混合液中具有复杂成分的有机或无机物会消耗电化学产生的 ROS^[59],减少用于分解膜污染物的 ROS,从而降低抗污染效率。2) ROS 对 MBR 中微生物产生不利影响。电化学产生的无选择性的 ROS 不仅能杀灭膜上附着的细菌并分解微生物代谢物(如 EPS 和 SMP),还可能灭活污泥中的细菌,限制 MBR 中功能微生物的正常生长繁殖,从而导致水处理效率的下降^[60]。3) ROS 对聚合膜产生不利影响。氧化性的 ROS 与聚合膜长期接触时会导致滤膜的微观结构和材料性质发生变化,最终缩短膜的使用寿命、降低过滤效果、恶化出水水质、增加运行成本。

此外,在 eMBR 中使用牺牲电极(如 Fe)时,在抗膜污染过程中会产生大量的金属泥(如成分为 Fe(OH)₂或 Fe(OH)₃的铁泥),不仅造成资源的浪费和二次污染,频繁的电极更换还会增加材料和人工成本^[32]。在抗膜污染效果方面,eMBR 中的电极会因金属氢氧化物在其表面的沉积覆盖而逐渐钝化,其电化学反应速率也会逐渐下降甚至完全停止。应用电场所需的能源消耗是 EO 抑制 MBR 膜污染的另一个问题,Huang 等^[38]监测了 eMBR 中应用电场的电量消耗,经计算,当使用的阴极导电膜面积为 1 m²时,处理每立方米污水所需的电量为 0.014 kW·h,该 eMBR 用于抗膜污染的电量消耗占典型污水处理能耗(0.6 kW·h/m³)的 2.3%。在 Udomkittayachai 等^[56]的研究中,用于驱动电化学反应的电量消耗以及用于产生金属离子的电极材料消耗使 eMBR 的总运行成本增加了 10%~30%,表明 EO 技术抑制 MBR 膜污染所需的额外成本不容忽视。另外,溶解氧是在 eMBR 中产生 ROS 并发生 EO 反应的必需条件,因此,基于 EO 技术的抗膜污染应用也受限于某些溶解氧缺乏的水环境,如厌氧或缺氧 MBR。

5 结论及展望

MBR 在污水处理领域中的应用日益成熟,但长期运行过程中产生的膜污染问题是 MBR 进一步推广的主要瓶颈。为了有效地控制膜污染,开发高效、稳定、环保、低成本的抗膜污染方法成为国内外学者的研究热点。随着 EO 技术的不断发展,EO 与 MBR 结合构建的 eMBR 展现出优异的抗膜污染潜力,基于电化学阴/阳极 EO 效应的抗膜污染机制已被证实,各种根据电极装载方式、电极与滤膜的结合方式、电极的制备材料等开发得到的新型 eMBR 运行模式层见叠出,EO 已成为膜污染控制领域的新兴手段。虽然该技术受电流、电压、电极材料等多种因素的共同影响,且面临 ROS 淬灭效应、产生金属盐沉

淀、耗电带来额外成本等挑战,EO 对膜表面污染物的原位高效去除性能使其在众多抗膜污染技术中脱颖而出。经历了仅十余年的发展,基于 EO 的膜污染控制理论与应用研究已取得了长足的进步,在未来,不断革新的 EO 技术将逐渐成为 MBR 污水处理过程中不可替代的膜污染控制方法。

根据近年来的研究现状,EO 技术在 MBR 膜污染控制中所面临的挑战可通过以下方式进一步改进和优化,从而推动膜滤技术在污水处理领域的应用和发展:

1) 电化学产生 ROS 的过程应控制在膜表面或膜孔中,使 ROS 优先用于膜表面的污染物降解及细菌的灭活,从而尽量降低混合液中复杂成分对 ROS 的淬灭效应;此时,ROS 与混合液的接触较少且寿命极短,其对 MBR 中功能微生物的不利影响可被最大程度降低。例如,以改性膜作为电极构建的 eMBR 可控制 ROS 产生于膜表面,但仍需进一步开发 EO 效率高且廉价的改性膜材料,从而降低 eMBR 的运行成本。

2) 在 eMBR 中使用抗氧化性强、化学稳定性高的滤膜(如陶瓷膜)以避免 ROS 对聚合膜的损伤,从而在长期抗膜污染过程中维持稳定的过滤效果,但膜材料的制备成本仍是开发和生产该类滤膜需要考虑的重要因素。

3) EO 产生的金属盐(如 Fe 盐)沉淀可通过酸化的方式回收,生产絮凝剂用于污水絮凝或生产脱水助剂用于污泥脱水,酸化及电量消耗带来的额外成本可通过产生絮凝剂和节约污泥脱水处置的成本进行补偿。

4) 在 EO 抑制 MBR 膜污染的过程中探索维持最佳抗污染效果和最低能量消耗的适宜电压;在保证泥水充分混合的前提下采用最小的电极间距,促进离子移动并降低电量消耗。

参考文献

- [1] 郝晓地,陈峤,李季,等. MBR 工艺全球应用现状及趋势分析[J]. 中国给水排水, 2018, 34(20): 7
HAO Xiaodi, CHEN Qiao, LI Ji, et al. Status and trend of MBR process application in the world[J]. China Water & Wastewater, 2018, 34(20): 7. DOI: 10.19853/j.zgjsps.1000-4602.2018.20.002
- [2] XIAO Kang, LIANG Shuai, WANG Xiaomao, et al. Current state and challenges of full-scale membrane bioreactor applications: a critical review[J]. Bioresource Technology, 2019, 271: 473. DOI: 10.1016/j.biortech.2018.09.061
- [3] NADEEM K, ALLIET M, PLANA Q, et al. Modeling, simulation and control of biological and chemical P-removal processes for membrane bioreactors (MBRs) from lab to full-scale applications: state of the art[J]. Science of the Total Environment, 2022, 809: 151109. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2021.151109

- [4] KRZEMINSKI P, LEVERETTE L, MALAMIS S, et al. Membrane bioreactors: a review on recent developments in energy reduction, fouling control, novel configurations, LCA and market prospects[J]. *Journal of Membrane Science*, 2017, 527: 207. DOI: 10.1016/j.memsci.2016.12.010
- [5] NEOH C H, NOOR Z Z, MUTAMIM N S A, et al. Green technology in wastewater treatment technologies: integration of membrane bioreactor with various wastewater treatment systems[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2016, 283: 582. DOI: 10.1016/j.cej.2015.07.060
- [6] 李莹, 刘强, 陈卫, 等. 胞外聚合物与膜污染的相关关系研究进展[J]. *中国给水排水*, 2021, 37(12): 25
LI Ying, LIU Qiang, CHEN Wei, et al. Advances of correlation between extracellular polymers and membrane fouling[J]. *China Water & Wastewater*, 2021, 37(12): 25. DOI: 10.19853/j.zgjsps.1000-4602.2021.12.005
- [7] BAGHERI M, MIRBAGHERI S A. Critical review of fouling mitigation strategies in membrane bioreactors treating water and wastewater[J]. *Bioresource Technology*, 2018, 258: 318. DOI: 10.1016/j.biortech.2018.03.026
- [8] MENG Fangang, ZHANG Shaoqing, OH Y, et al. Fouling in membrane bioreactors: an updated review[J]. *Water Research*, 2017, 114: 151. DOI: 10.1016/j.watres.2017.02.006
- [9] OTURAN M A, AARON J J. Advanced oxidation processes in water/wastewater treatment: principles and applications[J]. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology*, 2014, 44(23): 2577. DOI: 10.1080/10643389.2013.829765
- [10] LIU Qiang, REN Jiayao, LU Yongsheng, 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. DOI: 10.1016/j.jiec.2021.03.042
- [11] KARIMI L, HAZRATI H, GHARIBIAN S, et al. Investigation of various anode and cathode materials in electrochemical membrane bioreactors for mitigation of membrane fouling[J]. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 2021, 9(1): 104857. DOI: 10.1016/j.jece.2020.104857
- [12] CHUNG C M, TOBINO T, CHO K, et al. Alleviation of membrane fouling in a submerged membrane bioreactor with electrochemical oxidation mediated by in-situ free chlorine generation[J]. *Water Research*, 2016, 96: 52. DOI: 10.1016/j.watres.2016.03.041
- [13] 周雨珺, 吉庆华, 胡承志, 等. 电化学氧化水处理技术研究进展[J]. *土木与环境工程学报(中英文)*, 2022, 44(3): 104
ZHOU Yujun, JI Qinghua, HU Chengzhi, et al. Recent advances in electro-oxidation technology for water treatment[J]. *Journal of Civil and Environmental Engineering*, 2022, 44(3): 104. DOI: 10.11835/j.issn.2096-6717.2021.160
- [14] MARTINEZ-HUITLE C A, PANIZZA M. Electrochemical oxidation of organic pollutants for wastewater treatment[J]. *Current Opinion in Electrochemistry*, 2018, 11: 62. DOI: 10.1016/j.coelec.2018.07.010
- [15] GARCIA-SEGURA S, OCON J D, CHONG M N. Electrochemical oxidation remediation of real wastewater effluents: a review[J]. *Process Safety and Environmental Protection*, 2018, 113: 48. DOI: 10.1016/j.psep.2017.09.014
- [16] 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. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2020.140233
- [17] BRILLAS E, MARTINEZ-HUITLE C A. Decontamination of wastewaters containing synthetic organic dyes by electrochemical methods[J]. *Applied Catalysis B: Environmental*, 2015, 166: 603. DOI: 10.1016/j.apcatb.2014.11.016
- [18] ZHANG S, YANG K, LIU W, et al. Understanding the mechanism of membrane fouling suppression in electro-anaerobic membrane bioreactor[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2021, 418: 129384. DOI: 10.1016/j.cej.2021.129384
- [19] YEON K M, CHEONG W S, OH H S, et al. Quorum sensing: a new biofouling control paradigm in a membrane bioreactor for advanced wastewater treatment[J]. *Environmental Science & Technology*, 2009, 43(2): 380. DOI: 10.1021/es8019275
- [20] 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. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2020.137139
- [21] JIANG Bei, ZENG Qianzhi, LIU Jiabin, et al. Enhanced treatment performance of phenol wastewater and membrane antifouling by biochar-assisted EMBR[J]. *Bioresource Technology*, 2020, 306: 123147. DOI: 10.1016/j.biortech.2020.123147
- [22] YIN X F, LI X F, HUA Z Z, et al. The growth process of the cake layer and membrane fouling alleviation mechanism in a MBR assisted with the self-generated electric field[J]. *Water Research*, 2020, 171: 115452. DOI: 10.1016/j.watres.2019.115452
- [23] SU Fan, LIANG Yan, LIU Gang, et al. Enhancement of anti-fouling and contaminant removal in an electro-membrane bioreactor: significance of electrocoagulation and electric field[J]. *Separation and Purification Technology*, 2020, 248: 117077. DOI: 10.1016/j.seppur.2020.117077
- [24] YANG Yue, QIAO Sen, JIN Ruofei, et al. Fouling control mechanisms in filtrating natural organic matters by electro-enhanced carbon nanotubes hollow fiber membranes[J]. *Journal of Membrane Science*, 2018, 553: 54. DOI: 10.1016/j.memsci.2018.02.012
- [25] IBELD S, ELEKTOROWICZ M, OLESZKIEWICZ J A. Novel electrokinetic approach reduces membrane fouling[J]. *Water Research*, 2013, 47(16): 6358. DOI: 10.1016/j.watres.2013.08.007
- [26] KATURI K P, WERNER C M, JIMENEZ-SANDOVAL R J, et al. A novel anaerobic electrochemical membrane bioreactor (AnEMBR) with conductive hollow-fiber membrane for treatment of low-organic strength solutions[J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, 48(21): 12833. DOI: 10.1021/es504392n
- [27] WERNER C M, KATURI K P, HARI A R, et al. Graphene-coated hollow fiber membrane as the cathode in anaerobic electrochemical membrane bioreactors: effect of configuration and applied voltage on performance and membrane fouling[J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, 50(8): 4439. DOI: 10.1021/acs.est.5b02833
- [28] WANG Y K, LI W W, SHENG G P, et al. In-situ utilization of generated electricity in an electrochemical membrane bioreactor to mitigate membrane fouling[J]. *Water Research*, 2013, 47(15): 5794. DOI: 10.1016/j.watres.2013.06.058
- [29] MILLANAR-MARFA J M J, BOREA L, DE LUNA M D G, et al. Fouling mitigation and wastewater treatment enhancement through the application of an electro moving bed membrane bioreactor (eMB-MBR)[J]. *Membranes*, 2018, 8(4): 116. DOI: 10.3390/membranes8040116
- [30] MAMEDA N, PARK H J, CHOO K H. Membrane electro-oxidizer: a new hybrid membrane system with electrochemical oxidation for enhanced organics and fouling control[J]. *Water Research*, 2017, 126: 40. DOI: 10.1016/j.watres.2017.09.009
- [31] GHARIBIAN S, HAZRATI H. Towards practical integration of MBR with electrochemical AOP: improved biodegradability of real pharmaceutical wastewater and fouling mitigation[J]. *Water Research*, 2022, 218: 118478. DOI: 10.1016/j.watres.2022.118478
- [32] CHEN Fu, MA Jing, ZHU Yanfeng, et al. Biodegradation performance and anti-fouling mechanism of an ICME/electro-biocarriers-MBR system in livestock wastewater (antibiotic-containing) treatment[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2022, 426: 128064. DOI: 10.1016/j.jhazmat.2021.128064
- [33] HU Dongxue, LIU Lixue, LIU Wenyu, et al. Improvement of

- sludge characteristics and mitigation of membrane fouling in the treatment of pesticide wastewater by electrochemical anaerobic membrane bioreactor[J]. *Water Research*, 2022, 213: 118153. DOI: 10.1016/j.watres.2022.118153
- [34] SONG J, YIN Y M, LI Y H, et al. In-situ membrane fouling control by electrooxidation and microbial community in membrane electro-bioreactor treating aquaculture seawater [J]. *Bioresource Technology*, 2020, 314: 123701. DOI: 10.1016/j.biortech.2020.123701
- [35] DU Z, JI M, LI R Y. Enhancement of membrane fouling mitigation and trace organic compounds removal by electric field in a microfiltration reactor treating secondary effluent of a municipal wastewater treatment plant[J]. *Science of the Total Environment*, 2022, 806: 151212. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2021.151212
- [36] LIU Lixue, LIU Wenyu, YU Liqing, et al. Optimizing anaerobic technology by using electrochemistry and membrane module for treating pesticide wastewater: chemical oxygen demand components and fractions distribution, membrane fouling, effluent toxicity and economic analysis [J]. *Bioresource Technology*, 2022, 346: 126608. DOI: 10.1016/j.biortech.2021.126608
- [37] 孙和喜, 李小进, 杨峰, 等. 浸没式膜电化学生物反应器处理印染废水的研究[J]. *中国给水排水*, 2013, 29(13): 32
SUN Hexi, LI Xiaojin, YANG Feng, et al. Treatment of printing and dyeing wastewater by submerged membrane electro-bioreactor [J]. *China Water & Wastewater*, 2013, 29(13): 32
- [38] HUANG Jian, WANG Zhiwei, ZHANG Junyao, et al. A novel composite conductive microfiltration membrane and its anti-fouling performance with an external electric field in membrane bioreactors [J]. *Scientific Reports*, 2015, 5: 9268. DOI: 10.1038/srep09268
- [39] CHUNG C M, YAMAMOTO K, CHO K. A submerged membrane bioreactor under unprecedentedly short hydraulic retention time enabled by non-woven fabric pre-filtration and electrochemical membrane cleaning[J]. *Journal of Membrane Science*, 2019, 592: 117355. DOI: 10.1016/j.memsci.2019.117355
- [40] CHUNG C M, YAMAMOTO K, CHO K. A mechanistic study on electrolytic free chlorine for fouling control in submerged membrane bioreactors[J]. *Electrochimica Acta*, 2019, 301: 145. DOI: 10.1016/j.electacta.2019.01.137
- [41] CHEN M, LEI Q, REN L H, et al. Efficacy of electrochemical membrane bioreactor for virus removal from wastewater: performance and mechanisms [J]. *Bioresource Technology*, 2021, 330: 124946. DOI: 10.1016/j.biortech.2021.124946
- [42] QI S Y, GROSSMAN A D, RONEN A, et al. Low-biofouling anaerobic electro-conductive membrane bioreactor: the role of pH changes in bacterial inactivation and biofouling mitigation [J]. *Journal of Membrane Science*, 2022, 662: 120960. DOI: 10.1016/j.memsci.2022.120960
- [43] 闫凯丽, 郑君健, 王志伟, 等. 缺氧/好氧电化学膜-生物反应器强化脱氮效果及抗污染性能研究[J]. *中国环境科学*, 2016, 36(11): 3329
YAN Kaili, ZHENG Junjian, WANG Zhiwei, et al. Enhanced nitrogen removal and anti-fouling behaviours in anoxic/oxic electrochemical membrane bioreactor [J]. *China Environmental Science*, 2016, 36(11): 3329
- [44] WANG Lutian, WU Yun, FU Yangfan, et al. Low electric field assisted surface conductive membrane in AnMBR: strengthening effect and fouling behavior [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2022, 431: 133185. DOI: 10.1016/j.cej.2021.133185
- [45] YANG Yue, QIAO Sen, JIN Ruofei, 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. DOI: 10.1016/j.watres.2018.12.012
- [46] LIU Y Q, GAO X T, CAO X, et al. Study on the performance and mechanism of bio-electrochemical system to mitigate membrane fouling in bioreactors [J]. *Bioresource Technology*, 2022, 365: 128163. DOI: 10.1016/j.biortech.2022.128163
- [47] VATANPOUR V, AGTAS M, ABDELRAHMAN A M, et al. Nanomaterials in membrane bioreactors: recent progresses, challenges, and potentials [J]. *Chemosphere*, 2022, 302: 134930. DOI: 10.1016/j.chemosphere.2022.134930
- [48] YU Qilin, ZHANG Yaobin. Fouling-resistant biofilter of an anaerobic electrochemical membrane reactor [J]. *Nature Communications*, 2019, 10: 4860. DOI: 10.1038/s41467-019-12838-7
- [49] SUN X H, WU J, CHEN Z Q, et al. Fouling characteristics and electrochemical recovery of carbon nanotube membranes [J]. *Advanced Functional Materials*, 2013, 23(12): 1500. DOI: 10.1002/adfm.201201265
- [50] 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. DOI: 10.1016/j.chemosphere.2021.130240
- [51] YANG Y, ZHANG K Y, QIAO S, et al. Performance of alternating-current-enhanced anaerobic membrane bioreactor: membrane fouling, wastewater treatment, and CH₄ production [J]. *ACS Sustainable Chemistry & Engineering*, 2021, 9(47): 15973. DOI: 10.1021/acsschemeng.1c06321
- [52] MA Jinxing, WANG Zhiwei, HE Di, et al. Long-term investigation of a novel electrochemical membrane bioreactor for low-strength municipal wastewater treatment [J]. *Water Research*, 2015, 78: 98. DOI: 10.1016/j.watres.2015.03.033
- [53] ZHEN G, PAN Y, HAN Y, et al. Enhanced co-digestion of sewage sludge and food waste using novel electrochemical anaerobic membrane bioreactor (EC-AnMBR) [J]. *Bioresource Technology*, 2023, 377: 128939. DOI: 10.1016/j.biortech.2023.128939
- [54] CHEN Mei, REN Lihui, QI Kangquan, et al. Enhanced removal of pharmaceuticals and personal care products from real municipal wastewater using an electrochemical membrane bioreactor [J]. *Bioresource Technology*, 2020, 311: 123579. DOI: 10.1016/j.biortech.2020.123579
- [55] ZHANG Yuhan, GU Kanghui, ZHAO Kai, et al. Enhancement of struvite generation and anti-fouling in an electro-AnMBR with Mg anode-MF membrane module [J]. *Water Research*, 2023, 230: 119561. DOI: 10.1016/j.watres.2022.119561
- [56] UDOMKITTAYACHAI N, XUE W C, XIAO K, et al. Electroconductive moving bed membrane bioreactor (EcMB-MBR) for single-step decentralized wastewater treatment: performance, mechanisms, and cost [J]. *Water Research*, 2021, 188: 116547. DOI: 10.1016/j.watres.2020.116547
- [57] SHI Shengnan, XU Jin, ZENG Qianzhi, et al. Impacts of applied voltage on EMBR treating phenol wastewater: performance and membrane antifouling mechanism [J]. *Bioresource Technology*, 2019, 282: 56. DOI: 10.1016/j.biortech.2019.02.113
- [58] 吴香梅, 金春姬, 张思敏, 等. 电流密度对电强化 MBR 性能的影响 [J]. *环境工程学报*, 2022, 16(6): 1968
WU Xiangmei, JIN Chunji, ZHANG Simin, et al. Effect of current density on the performance of electrically enhanced membrane bioreactor [J]. *Chinese Journal of Environmental Engineering*, 2022, 16(6): 1968. DOI: 10.12030/j.cjee.202202110
- [59] YANG X, ROSARIO-ORTIZ F L, LEI Y, et al. Multiple roles of dissolved organic matter in advanced oxidation processes [J]. *Environmental Science & Technology*, 2022, 56(16): 11111. DOI: 10.1021/acs.est.2c01017
- [60] LACOMBE S, PIGOT T. Materials for selective photo-oxygenation vs. photocatalysis: preparation, properties and applications in environmental and health fields [J]. *Catalysis Science & Technology*, 2016, 6(6): 1571. DOI: 10.1039/c5cy01929j