第63卷第4期
2023年7月

大连理工大学学报
Journal of Dalian University of Technology

Vol. 63, No. 4
July 2023

文章编号：1000-8608(2023)04-0351-08

电辅助缓解 MXene 膜污染及电化学清洗膜再生

余　慧，魏高亮，张　奇，陈　硕*

（大连理工大学 环境学院，辽宁 大连　116024）

摘要： 膜污染是膜分离技术在水处理应用中的突出问题. 利用 MXene($Ti_3C_2T_x$)高导电性的优势，构建电辅助 MXene 膜分离体系，在膜上施加负电压，以缓解膜分离腐殖酸过程中的膜污染及对污染后的膜进行清洗再生，并探究了其作用机理. 结果表明，膜分离腐殖酸过程中施加−2 V 电压在稳定阶段的膜通量比不加电时增加了 18.5%，在污染后的膜上施加−3 V 电压能够高效实现膜清洗再生，−3 V 处理 10 min 膜通量恢复率达到 92%以上，且不对膜造成损伤. 机理研究表明，低电压(−2 V 槽压)下道南效应增强，使膜对腐殖酸的静电斥力增大，缓解膜污染，高电压(−3 V 槽压)下增强的道南效应与析氢反应共同作用，大幅提升的静电斥力能够快速实现原位膜再生.

关键词： MXene 膜；水处理；膜污染；电化学清洗；再生

中图分类号： X52　　**文献标识码：** A　　**doi：** 10.7511/dllgxb202304004

0　引　言

膜分离技术由于节能高效、无相变、无须投加化学试剂、易与其他工艺集成等优点在水处理领域发挥了越来越重要的作用[1]. 但在水的深度处理中，为有效去除水中的有机物小分子，分离膜孔径需降至纳米级别，孔径减小不仅会造成运行压力升高，而且也会加剧膜污染问题. 频繁进行膜再生或新膜更换，势必会提高运行成本. 研发抗污染能力强、易于再生的高性能分离膜对利用膜分离技术去除水中痕量有机污染物具有重要意义.

新型纳米材料的发展为研发高性能分离膜提供了重要途径. 近年来新型二维纳米材料 MXene 由于优秀的物理化学性质在膜分离领域得到了广泛关注，在气体分离[2]、渗透蒸发[3]、水中染料[4]及有机物去除[5]等方面表现出了巨大的潜力[6]. MXene 具有刚性且高纵横比的二维片层，能够形成规则的层间孔道，使得 MXene 膜通量显著高于相似孔径的聚合物膜[5]，优异的亲水性和导电性使其更不易被污染物污染. 因此许多研究将 MXene 嵌入其他膜材料如聚砜膜、醋酸纤维素膜中以提高其抗污染性能[7-8]，但是目前研究少有涉及 MXene 膜污染及再生问题，如何增强 MXene 膜抗污染能力及实现膜清洗再生仍是亟待解决的问题.

传统膜清洗方法主要分为物理清洗和化学清洗. 物理清洗一般依靠水力[9]、超声波[10]、电场等外部能量作用；化学清洗一般依靠酸碱试剂、氧化剂及表面活性剂等化学试剂作用[11]. 实际应用中，二者通常结合使用，以达到更好的清洗效果. 由于 MXene 片层间结合并不牢固，且在水中分散性好，超声波清洗及水力清洗易导致其物理结构破坏，而化学试剂能与 MXene 表面官能团反应，从而破坏 MXene 膜表面化学结构，所以这些清洗方法均不适用于 MXene 膜. 目前对电场作用下分离膜电化学清洗的研究还较少，膜材料导电性限制及电场构造复杂是其主要阻碍[12]. 鉴于 MXene 具有优异的导电性，电化学清洗很可能是适合 MXene 膜再生的方法.

本研究利用 MXene($Ti_3C_2T_x$)的高导电性，以腐殖酸(humic acid，HA)模拟天然有机物，在错流过滤条件下构建电辅助 MXene 膜分离体系，

收稿日期： 2022-03-19；　**修回日期：** 2023-03-13.
基金项目： 国家自然科学基金资助项目(21976024).
作者简介： 余　慧(1997—)，女，硕士生，E-mail：3244919846@qq.com；陈　硕*(1974—)，女，教授，博士生导师，E-mail：shuochen@dlut.edu.cn.

研究膜分离过程中施加负电压对膜污染的影响及电化学清洗的有效性及可行性，并探究其中机理，为导电膜清洗方式提供参考.

1 材料与方法

1.1 实验材料与试剂

本研究使用的主要实验材料与试剂见表 1.

表 1 实验材料与试剂

Tab. 1 The materials and reagents used in the experiments

材料与试剂	相关信息
Ti_3AlC_2	200 目，苏州北科新材料科技有限公司
氟化锂	分析纯，阿拉丁试剂(上海)有限公司
浓盐酸	分析纯，天津市科密欧化学试剂有限公司
腐殖酸(HA)	富里酸>90%，阿拉丁试剂(上海)有限公司
甲基橙(MO)	分析纯，天津市光复精细化工研究所
橙黄 G(OG)	分析纯，阿拉丁试剂(上海)有限公司
溴甲酚绿(BCG)	分析纯，天津大茂化学试剂厂
刚果红(CR)	分析纯，天津大茂化学试剂厂
PVDF(聚偏二氟乙烯)滤膜	直径 47 mm，孔径 0.1 μm，默克密理博公司

1.2 MXene 膜的制备

采用 HCl-LiF 法[13]刻蚀制备少层 MXene ($Ti_3C_2T_x$). 将 1.6 g LiF 溶于 20 mL 9 mol/L 的盐酸中，在冰浴条件下缓慢向上述溶液中加入 1.0 g MAX 相材料(Ti_3AlC_2)并不断搅拌，然后将反应器密封，于 45 ℃水浴搅拌反应 48 h. 将得到的沉淀物水洗至 pH 为 6～7 后重新溶于超纯水中，于 Ar 气氛中冰水浴超声 1 h，所得悬浊液在 5 000 r/min 转速下离心 30 min，离心得到的上层溶液即为少层 MXene[14]，向其中通入 Ar 气并密封冷藏保存，以备后续使用.

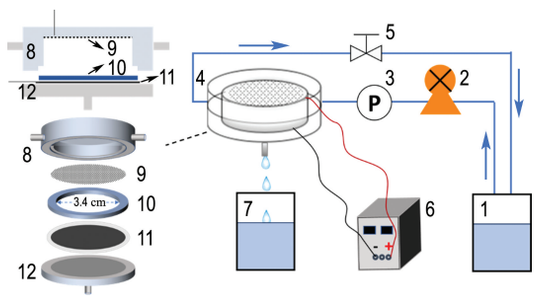
取 0.5 mg/mL MXene 溶液 5 mL，用超纯水稀释至 250 mL，将其真空抽滤到 PVDF 滤膜上[15]，室温下晾干，即得到 MXene 膜.

1.3 MXene 膜的表征和分析

本实验采用扫描电子显微镜(SEM，Hitachi S4800)表征材料及膜的表面形貌，采用四探针电导率仪(Keithley 2400)表征材料导电性，采用 X 射线衍射仪(XRD，Rigaku Ultima IV)分析物相，采用 X 射线光电子能谱仪(XPS，Thermo Scientific K-Alpha)和傅里叶变换红外光谱仪(FTIR，Bruker VERTEX 70)表征膜化学结构.

1.4 MXene 膜污染及清洗测试

采用自制的错流过滤装置对 MXene 膜的腐殖酸分离性能进行测试，如图 1 所示，实验体系由膜组件、进水瓶、出水瓶、蠕动泵、稳压电源、错流阀、压力表等组成. 电辅助 MXene 膜分离装置为两电极体系，MXene 膜为阴极，对电极为钛网，电极间距为 1.5 cm，硅胶密封圈内径为 3.4 cm，有效膜面积为 9.08 cm^2.



1 进水瓶；2 蠕动泵；3 压力表；4 膜组件；5 错流阀；6 稳压电源；7 出水瓶；8 膜组件上半部分；9 钛网；10 硅胶密封圈；11 MXene 膜；12 膜组件下半部分

图 1 实验装置示意图

Fig. 1 Schematic diagram of experimental device

(1)膜分离性能测试

(i)将 MXene 膜安装于膜组件中，用超纯水在 0.15 MPa 下将膜预压实 1 h，至超纯水膜通量趋于稳定后开始测试.

(ii)将浓度为 20 mg/L 的甲基橙、橙黄 G、溴甲酚绿、刚果红和腐殖酸通入反应器内测试截留性能，运行 120 min 后取样并测定污染物浓度.

4 种染料的浓度利用紫外可见分光光度计(上海光谱 SP-756P)进行测定，腐殖酸浓度利用总有机碳测试仪(Multi N/C 2100S)进行测定. 膜对其截留率根据以下公式计算：

$$R=\frac{c_0-c_1}{c_0}\times 100\%$$

式中：R 为膜对污染物的截留率，c_0 为污染物初始浓度，c_1 为过膜后出水中的污染物浓度.

(2)电辅助缓解膜污染实验

预压实后，调节操作压力为 0.1 MPa，错流速率为 6.2 cm/s，在不同电压下将腐殖酸溶液过膜 120 min，每 10 min 记录一次膜通量，每 20 min 取样测定出水腐殖酸浓度. 为了避免原始膜通量不同带来的差异，以运行过程中膜通量 J_1 与原始膜

通量 J_0 的比即归一化膜通量(J_1/J_0)表示膜污染程度.

(3)电化学清洗再生实验

(i)MXene 膜经过预压实及不加电截留腐殖酸溶液 120 min 得到污染状态的膜.

(ii)停止运行进水泵,在实验体系中对膜施加不同大小的负电压清洗一定时间,清洗后立即测定膜通量.以清洗后的膜通量 J 与原始膜通量 J_0 的比(J/J_0)表示膜通量恢复率.

膜通量根据以下公式计算[16]:

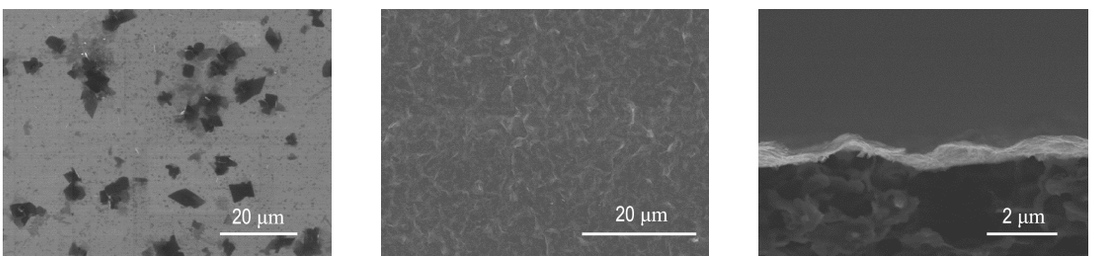
$$J=\frac{V}{Stp}$$

式中:J 为运行时间 t 内的膜通量;S 为膜有效面积,即 9.08 cm^2;t 为运行时间;p 为跨膜压力,实验中保持 0.1 MPa;V 为运行时间 t 内的过膜溶液体积.

2　结果与讨论

2.1　MXene 膜的表征

将制备的 MXene 纳米片置于硅片基底下进行扫描电镜观察,如图 2(a)所示,可见所制备的 MXene 片层较薄,横向尺寸在 5 μm 左右.膜表面及横截面形貌也通过扫描电镜表征(图 2(b)、(c)),膜表面可以看到片层堆叠比较均匀,横截面图测量得到膜厚度约为 50 nm.四探针电导率仪测试结果显示 MXene 电导率为 1 733 S/cm,说明膜具有优秀的导电性,为电辅助缓解膜污染和电化学清洗提供了必要前提.



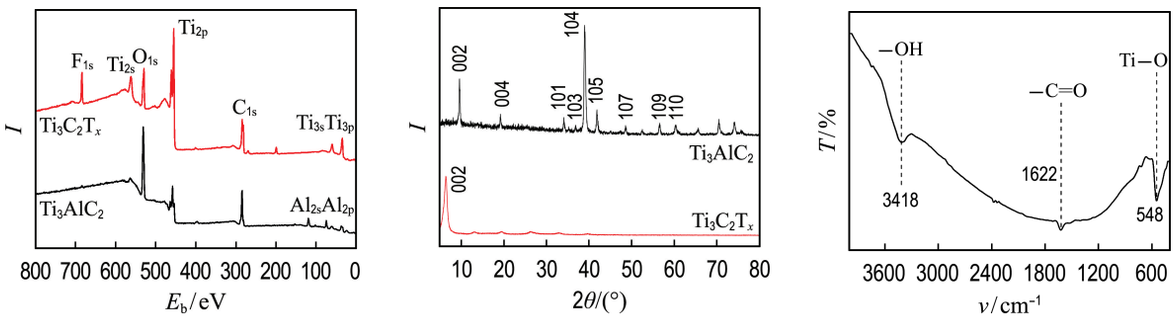
(a) $Ti_3C_2T_x$ 片层　　(b) 膜表面　　(c) 横截面

图 2　MXene 膜的 SEM 图

Fig. 2　SEM images of MXene membrane

XPS 图谱(图 3(a))表明刻蚀后 Al 峰消失、F 峰出现.由 XRD 图谱(图 3(b))可以观测到刻蚀后 MAX 相材料所对应的衍射特征峰(004、101、104、105 等)的消失及 002 峰从 9.62°左移至 6.38°,由此根据布拉格方程计算出制备的MXene 层间距为 1.38 nm,这些表征结果进一步证明了 MXene 的成功制备[16-17].

利用傅里叶变换红外光谱表征 MXene 表面官能团情况,如图 3(c)所示,MXene 在 3 418 cm^{-1} 和 1 622 cm^{-1} 处出现了明显的特征峰,表明了—OH 官能团和—C═O 官能团的存在[18],这些官能团使得 MXene 荷负电且具有优秀的亲水性.



(a) XPS　　(b) XRD　　(c) FTIR

图 3　MXene 的成分与结构表征

Fig. 3　Elemental and structural characterizations of MXene

2.2 MXene 膜的分离性能

MXene 膜对污染物的稳定截留率如图 4 所示，MO、OG、BCG、CR 和 HA 的截留率分别达到了 42.8%、84.0%、74.1%、98.1% 和 75.0%. 4 种染料中，MO、OG、BCG 和 CR 的相对分子质量分别为 324、497、698 和 697，总体上表现出相对分子质量越大截留率越高的趋势，其中，相对分子质量较小的 OG 截留率高于 BCG，是由于 OG 所带电荷量高于 BCG，从而膜分离 OG 过程中膜对污染物的静电斥力更强所致. 通过对多种污染物截留率的对比，可以推测 MXene 膜对相对分子质量约 700 的染料分子具有良好的截留效果. 进一步利用 BET 比表面积测试法[19]得到，MXene 膜的孔径分布集中于 1.6 nm 和 2.9 nm.

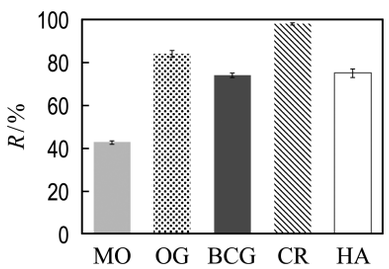


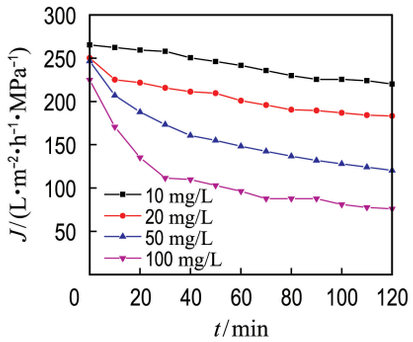
图 4 MXene 膜对污染物的截留率

Fig. 4 Retention rates of pollutants by MXene membrane

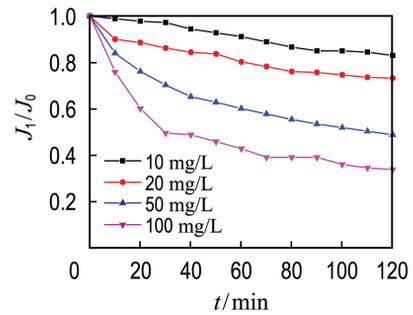
2.3 电辅助缓解 MXene 膜污染

通过截留浓度分别为 10、20、50 和 100 mg/L 的腐殖酸溶液，考察腐殖酸浓度对 MXene 膜污染状态的影响. 如图 5 所示，膜分离初期膜通量迅速下降，说明初期污染速度快，随着时间推移，膜污染速度逐渐放缓，由归一化膜通量(图 5(b))可得到，运行 120 min 后截留 10、20、50 和 100 mg/L 腐殖酸的膜通量分别下降至初始膜通量的 83.0%、73.3%、48.8% 和 33.8%，说明腐殖酸浓度越高，膜通量下降速度越快，即膜污染越明显. 为了实验对比明显，后续实验过程均采用浓度为 50 mg/L 的腐殖酸溶液.

MXene 膜分离体系分别在 0、−1 和 −2 V 外加电压下连续运行 120 min，考察外加电压对膜分离腐殖酸过程中污染情况的影响. 如图 6(a)所示，外加电压越大，膜分离过程中膜通量下降速率越慢，归一化膜通量结果显示，运行 120 min 后不加电条件下膜通量下降至原始膜通量的 46.0%，而外加电压 −1、−2 V 的归一化膜通量相对于 0 V 分别提高了 6.7% 和 18.5%，由此可见，在



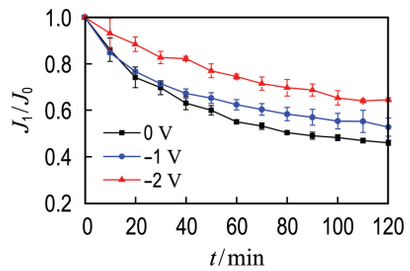
(a) 实际膜通量



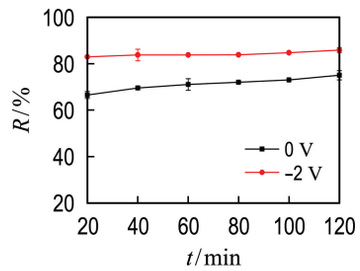
(b) 归一化膜通量

图 5 MXene 膜分离不同浓度腐殖酸过程中的膜通量变化

Fig. 5 Flux change of MXene membrane during separating humic acid with different concentrations



(a) 归一化膜通量



(b) 腐殖酸的截留率

图 6 不同电压下 MXene 膜分离腐殖酸过程中的归一化膜通量及截留率

Fig. 6 Normalized flux of MXene membrane and retention rate of HA during separating HA with different voltages applied

MXene 膜上施加负电压能有效缓解膜分离腐殖酸过程中的膜污染情况. 同时对比了外加电压 −2 V 和 0 V 条件下膜分离腐殖酸过程中的截留率变化情况(图 6(b)),结果显示,施加 −2 V 电压时 MXene 膜对腐殖酸的截留率相对于无电压提高了 10.9%,说明施加 −2 V 电压不会降低膜分离性能,截留率的提升可能是由于外加电压下道南效应的增强使得膜对腐殖酸的静电斥力增大所致[20].

2.4　MXene 膜的电化学清洗再生

对于截留腐殖酸溶液后处于污染状态的 MXene 膜(膜通量 J 下降至原始膜通量 J_0 的 45.4%),分别采用 −2、−3 V 电压清洗 3、5、10、30 min,探究电压大小和清洗时间与膜通量恢复率之间的规律. 如图 7 所示,−2 V 和 −3 V 电化学清洗均能一定程度上恢复膜通量,且随着清洗时间的延长,膜通量恢复率也随之提高,−2 V 电化学清洗 30 min 膜通量只能恢复至 66.1%,而 −3 V 电化学清洗 10 min 膜通量恢复至 92.4%,30 min 膜通量恢复至 98.0%,说明电压越大,清洗时间越长,膜通量恢复率越高,−3 V 电化学清洗能快速恢复膜通量.

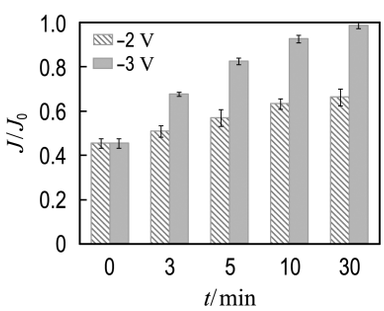
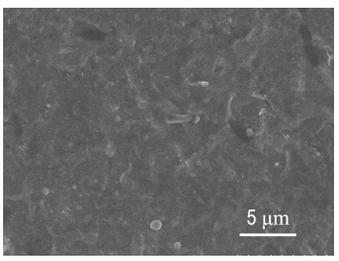


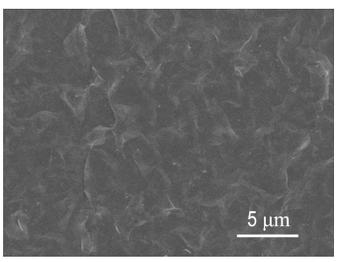
图 7　不同电化学清洗时间下 MXene 膜的归一化膜通量

Fig. 7　Normalized flux of MXene membrane with different electrochemical cleaning time

对 −3 V 电化学清洗 10 min 前后的 MXene 膜进行了扫描电镜表征,如图 8 所示,腐殖酸污染后膜表面被覆盖上了一层灰状物,表现出污染物堆积的痕迹,而电化学清洗后膜表面灰状物明显消失,MXene 片层堆叠的形状再次显现出来,与原始 MXene 膜相近,说明膜表面污染物得到了有效清除且膜表面结构仍保持完好,再次证明了 −3 V 电压对 MXene 膜清洗的有效性. 为了避免过大电压对 MXene 膜造成损伤,后续电化学清洗实验采用 −3 V 电压.



(a) 清洗前



(b) 清洗后

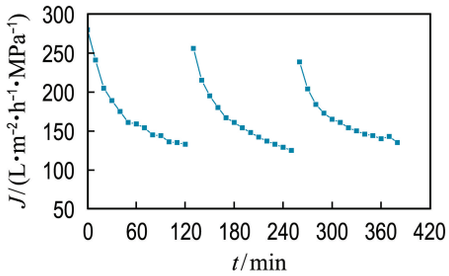
图 8　MXene 膜电化学清洗前后的表面 SEM 图

Fig. 8　SEM images of surface of MXene membrane before and after electrochemical cleaning

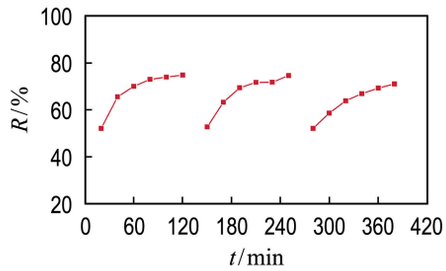
实验体系下,MXene 膜截留腐殖酸 120 min、−3 V 电化学清洗 10 min 交替进行,通过循环实验考察电化学清洗的稳定性. 如图 9(a)所示,两次电化学清洗后膜通量恢复率分别达到了91.4%和 92.9%,且清洗后膜分离腐殖酸过程的膜通量变化与初始膜较为一致,说明电化学清洗恢复膜通量具有良好的稳定性. 图 9(b)则表明在 3 次循环过程中,MXene 膜对腐殖酸截留率的变化规律一致,在运行 120 min 后截留率分别达到了 74.9%、74.7%和 71.1%,说明电化学清洗后 MXene 膜基本保持了原有的分离性能,截留率的略微下降可能是由于长时间运行后 MXene 片层产生了微小程度的膨胀. 综上,−3 V 电化学清洗 10 min 能够稳定有效地恢复膜通量,实现膜清洗再生,且不会造成膜分离性能的明显下降.

2.5　机理分析

MXene 膜荷负电,腐殖酸也具有负电性,在导电膜上施加同电性电压能够使膜与同电性污染物间的道南效应增强,从而对污染物产生更强的排斥作用[20-21]. 而在两电极体系中,外加电压足够高的情况下阴极会有析氢反应发生,微气泡脱离膜表面的同时也会产生对污染物的排斥作用. 因此,推测在电辅助过程中可能会有两种作用产生效果:(1)道南效应增强下膜对腐殖酸的静电排斥作用;(2)析氢反应产生微气泡对腐殖酸的排斥作用.



(a) 膜通量

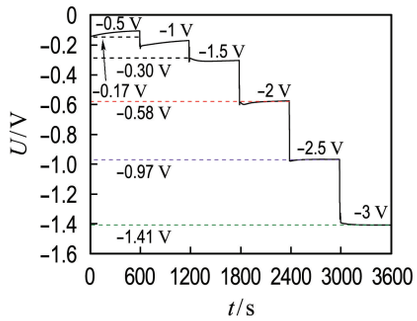


(b) 截留率

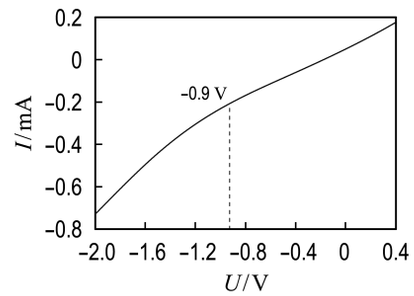
图 9 多次循环过程中 MXene 膜对腐殖酸的膜通量与截留率

Fig. 9 Flux of MXene membrane and retention rate of humic acid during multiple cycles

为了判断电化学清洗过程中的具体机理，测定了 MXene 膜的析氢电位及槽压对应的实际电势. 以 MXene 膜为阴极、钛网为阳极（Ag/AgCl 为参比电极），以 0.05 mol/L 硫酸钠为电解质，构建电化学测试体系，测量 MXene 膜在不同外加电压下对应的阴极电势，如图 10(a)所示，当槽压达到－1、－1.5、－2、－2.5 和－3 V 时，MXene 膜上阴极电势分别为－0.17、－0.30、－0.58、－0.97 和－1.41 V，而线性伏安曲线（图 10(b)）结果说明 MXene 膜析氢电位约为－0.9 V，即对应槽压为－2.0～－2.5 V. 因此，施加－2 V 槽压时 MXene 膜上并未发生析氢反应，说明此时在低电压下只有道南效应起作用，而施加－3 V 槽压时 MXene 膜上发生了析氢反应，说明高电压下道南效应与析氢反应会共同产生效果.



(a) 阴极电势



(b) 线性伏安曲线

图 10 MXene 膜的阴极电势及线性伏安曲线

Fig. 10 Cathode potential and linear voltammetry curve of MXene membrane

综上，低电压下，仅道南效应起作用，膜表面电荷密度增加，吸引更多正电粒子到膜上，使得膜与溶液体相间道南位差增大，导致膜与溶液中的离子之间产生更强的静电斥力，从而缓解了膜污染，但是仍难以将污染的 MXene 膜清洗干净. 高电压下，膜表面发生析氢反应，产生微气泡进一步增强了膜对腐殖酸的排斥力，因此增强的道南效应和析氢反应联合作用，实现了 MXene 膜的快速高效清洗，原理示意图如图 11 所示.

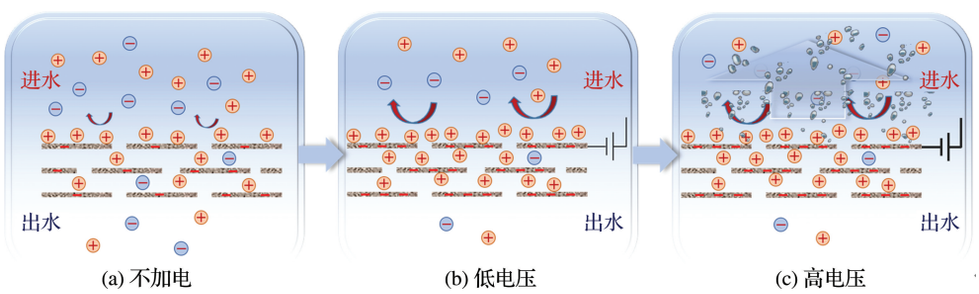


图 11 电辅助 MXene 膜再生机理图

Fig. 11 Mechanism diagram of MXene membrane regeneration process with electrical assistance

3 结　语

本研究证实了外加负电压能够有效缓解 MXene 膜分离腐殖酸过程中的膜污染，电化学清洗能在保持原有分离性能前提下有效实现膜再生. 膜分离腐殖酸 120 min 过程中施加－2 V 电压在稳定阶段的膜通量比不加电时增加了 18.5%，膜污染后施加－3 V 电化学清洗 10 min 能够有效清洗膜，使膜通量恢复率达到 92% 以上，且在 3 次循环实验中均能保持良好的稳定性. 机理分析表明，低电压（－2 V 槽压）缓解膜污染归因于道南效应的增强，而高电压（－3 V 槽压）实现膜再生是增强的道南效应与析氢反应联合作用的结果.

参考文献：

[1] 白　鹤，林亚凯，李宁宁，等. 面向市政污水深度处理用压力式超滤膜组件的设计与运行参数优化研究 [J]. 膜科学与技术，2021，**41**(5)：146-154.
BAI He, LIN Yakai, LI Ningning, *et al*. Optimization of design and operation parameters for pressurized ultrafiltration membrane modules in advanced municipal wastewater treatment [J]. **Membrane Science and Technology**, 2021, **41**(5): 146-154. (in Chinese)

[2] RASOOL K, PANDEY R P, RASHEED P A, *et al*. Water treatment and environmental remediation applications of two-dimensional metal carbides (MXenes) [J]. **Materials Today**, 2019, **30**: 80-102.

[3] LIU Guozhen, LIU Song, MA Kang, *et al*. Polyelectrolyte functionalized Ti_2CT_x MXene membranes for pervaporation dehydration of isopropanol/water mixtures [J]. **Industrial and Engineering Chemistry Research**, 2020, **59**(10): 4732-4741.

[4] ZHANG Shiyang, LIAO Songyi, QI Fangya, *et al*. Direct deposition of two-dimensional MXene nanosheets on commercially available filter for fast and efficient dye removal [J]. **Journal of Hazardous Materials**, 2020, **384**: 121367.

[5] LI Zhongkun, WEI Yanying, GAO Xue, *et al*. Antibiotics separation with MXene membranes based on regularly stacked high-aspect-ratio nanosheets [J]. **Angewandte Chemie-International Edition**, 2020, **59**(24): 9751-9756.

[6] LONG Qingwu, ZHAO Shuaifei, CHEN Jiexin, *et al*. Self-assembly enabled nano-intercalation for stable high-performance MXene membranes [J]. **Journal of Membrane Science**, 2021, **635**: 119464.

[7] SHEN Zhen, CHEN Wei, XU Hang, *et al*. Fabrication of a novel antifouling polysulfone membrane with in situ embedment of MXene nanosheets [J]. **International Journal of Environmental Research and Public Health**, 2019, **16**(23): 4659.

[8] ALFAHEL R, AZZAM R S, HAFIZ M, *et al*. Fabrication of fouling resistant $Ti_3C_2T_x$ (MXene)/cellulose acetate nanocomposite membrane for forward osmosis application [J]. **Journal of Water Process Engineering**, 2020, **38**: 101551.

[9] 王新乐，刘铭辉，于海军，等. 两性离子纳滤膜的制备及抗污染性能研究 [J]. 膜科学与技术，2021，**41**(6)：51-59.
WANG Xinle, LIU Minghui, YU Haijun, *et al*. Preparation of zwitterion nanofiltration membrane and its anti-fouling performance [J]. **Membrane Science and Technology**, 2021, **41**(6): 51-59. (in Chinese)

[10] AREFI-OSKOUI S, KHATAEE A, SAFARPOUR M, *et al*. A review on the applications of ultrasonic technology in membrane bioreactors [J]. **Ultrasonics Sonochemistry**, 2019, **58**: 104633.

[11] 刘志龙，赵　民. 红霉素发酵液纳滤膜污染与再生 [J]. 膜科学与技术，2014，**34**(1)：116-120.
LIU Zhilong, ZHAO Min. Fouling and regeneration of nanofiltration membranes in erythromycin fermentative liquid [J]. **Membrane Science and Technology**, 2014, **34**(1): 116-120. (in Chinese)

[12] MENG Fangang, ZHANG Shaoqing, OH Y, *et al*. Fouling in membrane bioreactors: An updated review [J]. **Water Research**, 2017, **114**: 151-180.

[13] GHIDIU M, LUKATSKAYA M R, ZHAO Mengqiang, *et al*. Conductive two-dimensional titanium carbide 'clay' with high volumetric capacitance [J]. **Nature**, 2014, **516**(7529): 78-81.

[14] RAJAVEL K, YU Xuecheng, ZHU Pengli, *et al*. Exfoliation and defect control of two-dimensional few-layer MXene $Ti_3C_2T_x$ for electromagnetic interference shielding coatings [J]. **ACS Applied Materials and Interfaces**, 2020, **12**(44): 49737-49747.

[15] ZHANG Shixin, WU Xing, HUANG Zhen, *et al*.

The selective sieving role of nanosheets in the development of advanced membranes for water treatment: Comparison and performance enhancement of different nanosheets [J]. **Separation and Purification Technology**, 2021, **273**: 118996.

[16] DING Mingmei, XU Hang, CHEN Wei, *et al*. Construction of a hierarchical carbon nanotube/MXene membrane with distinct fusiform channels for efficient molecular separation [J]. **Journal of Materials Chemistry A**, 2020, **8**(43): 22666-22673.

[17] HAN Fei, LUO Shaojuan, XIE Luoyuan, *et al*. Boosting the yield of MXene 2D sheets via a facile hydrothermal-assisted intercalation [J]. **ACS Applied Materials and Interfaces**, 2019, **11**(8): 8443-8452.

[18] LI Wei, LI Xiaofeng, CHANG Wei, *et al*. Vertically aligned reduced graphene oxide/$Ti_3C_2T_x$ MXene hybrid hydrogel for highly efficient solar steam generation [J]. **Nano Research**, 2020, **13**(11): 3048-3056.

[19] KOH D Y, MCCOOL B A, DECKMAN H W, *et al*. Reverse osmosis molecular differentiation of organic liquids using carbon molecular sieve membranes [J]. **Science**, 2016, **353**(6301): 804-807.

[20] ZHANG Haiguang, QUAN Xie, FAN Xinfei, *et al*. Improving ion rejection of conductive nanofiltration membrane through electrically enhanced surface charge density [J]. **Environmental Science and Technology**, 2019, **53**(2): 868-877.

[21] HU Chengzhi, LIU Zhongtao, LU Xinglin, *et al*. Enhancement of the Donnan effect through capacitive ion increase using an electroconductive rGO-CNT nanofiltration membrane [J]. **Journal of Materials Chemistry A**, 2018, **6**(11): 4737-4745.

Fouling mitigation of MXene membrane with electrical assistance and its regeneration by electrochemical cleaning

YU Hui, WEI Gaoliang, ZHANG Qi, CHEN Shuo*

(School of Environmental Science and Technology, Dalian University of Technology, Dalian 116024, China)

Abstract: Membrane fouling is a prominent problem for the membrane separation technology in the water treatment. Taking advantage of high conductivity of MXene ($Ti_3C_2T_x$), an electrical assisted MXene membrane separation system is constructed, in which negative voltage is applied to the membrane to alleviate membrane fouling in the process of separating humic acid and regenerate the polluted membrane, and its mechanism is also explored. The results show that the stable membrane flux increases by 18.5% with −2 V voltage applied in the process of separating humic acid. Applying −3 V voltage on the polluted MXene membrane can effectively clean and regenerate the membrane, the membrane flux recovery rate reaches more than 92% with −3 V voltage applied for 10 min, and there is no damage to the membrane. The mechanism investigation shows that under a low voltage (−2 V cell voltage), the Donnan effect is enhanced, which increases the electrostatic repulsion between membrane and humic acid, alleviating the membrane fouling, whereas under a high voltage (−3 V cell voltage), enhanced Donnan effect and the hydrogen evolution reaction work together, greatly improving electrostatic repulsion, therefore quickly realizing in-situ membrane regeneration.

Key words: MXene membrane; water treatment; membrane fouling; electrochemical cleaning; regeneration