

臭氧纳米气泡技术陶瓷膜清洗修复高回收率| ACS欧米茄

 pubs.acs.org/doi/10.1021/acsomega.3c08379

一、简介

文章部分

膜过滤是一种高效且通用的压力驱动分离技术，用于颗粒的机械和化学筛分。(1,2)在常用的膜材料中，陶瓷膜和聚合物膜脱颖而出，成为突出的选择。尤其是陶瓷膜，与聚合物膜相比具有几个明显的优势。陶瓷膜表现出卓越的机械强度、耐用性和对严酷化学清洗过程的耐受性。(3)此外，陶瓷膜非常适合高温环境，并能有效处理含有磨料悬浮材料的浆料。它们固有的抗生物恶化能力进一步增强了它们在各个行业的吸引力。这些膜在这些领域得到了广泛的应用，实现了高效的固液分离过程。(3-6)

不幸的是，膜污染是膜运行中遇到的持续挑战，特别是在水和废水处理中。由于膜技术在这些领域的广泛采用，这个问题引起了人们的广泛关注。(7)结垢现象主要是由于不需要的分子或颗粒在膜表面和孔上沉淀和沉积而发生的。(8)值得注意的是，污垢不仅减少了通过膜的水流流量，而且由于孔隙堵塞（尺寸排阻）、表面化学变化以及污染物的吸附，对膜的选择性产生重大影响。(2,9-12)

近年来，已经提出了多种技术来解决结垢问题。例如，原位和异位方法包括反洗、空气/气体保留、冲刷和化学清洗。然而，值得注意的是，这些方法通常存在不可忽视的缺点，例如能源密集型和对膜表面潜在有害。(7,13)例如，在反冲洗中，升高的压力和流速可能会损害膜的表面及其结构完整性。(3,13)此外，污垢（例如磨料）的性质在反洗过程中可能会损害膜。因此，迫切需要膜技术开发中可持续且有效的污垢缓解策略来解决这些问题。

研究人员目前专注于开发用于膜清洗的微泡（MB）和纳米泡（NB）技术。(3,14)与 MB 相比，NB 具有更高的传质和爆裂能量。特梅斯根等人。提出 NB 是尺寸小于 1 μm 的气泡，而 MB 的尺寸稍大，在 10-100 μm 范围内。(15)Dayarathne 等人报道，一些报告讨论了在 NB 中使用空气作为气相，考虑到氧含量。和加迪姆哈尼等人。达亚拉特尼等人。证明含有空气 MB 和空气 NB 的水可以破坏反渗透膜上形成的浓差极化层。(14)加迪姆哈尼等人。研究了使用空气-NB 清洗陶瓷膜，并观察其去除由 NaCl 和 MgCl_2 引起的合成污垢的有效性。(3)然而，空气不属于强氧化剂，在降解中起关键作用的活性氧（ROS）的产生只能通过水热解来实现。(16)因此，需要提供一种高效且有效的NBs形式的氧化剂。

考虑到高还原潜力，臭氧是 NB 系统中一种很有前途的氧化剂。此外，在臭氧-NB系统中，ROS不仅可以 通过水热解产生，还可以通过间接方式通过臭氧化反应产生。(16-18)纳米粒子充当物理屏障，有效地将污染层封装在其表面。(19-22)当污染物被包裹时，氧化剂会将其氧化。与较大的气泡相比，纳米气泡发生器产生的臭氧纳米气泡在水体中的寿命更长。(23)当溶解的臭氧与杂质相互作用时，处理后的水会保持饱和臭氧浓度，正如 Meegoda 和 Batagoda 所强调的那样(24)因此，纳米粒子在常压条件下在水体中可以保持其物理特性数月。胡塔加隆等人。研究了结合使用臭氧-NB 和高级氧化工艺来去除染料废水。研究结果表明，臭氧纳米粒子表现出明显更高的能力，与只有 40% 去除效率的大气泡相比，可去除 60% 的化学需氧量。(17)

田等人。据报道，连续鼓泡可有效减少污垢。此外，还发现气泡的大小会影响膜污染。(25)然而，臭氧-NB 中的这些参数对膜过滤清洁过程的具体影响尚未得到广泛探讨。为了弥补这一研究空白，本研究重点研究使用臭氧-NB 系统的清洁过程。实验中使用的污染膜是从一家染料过滤公司获得的。这项研究的主要目的是深入了解臭氧纳米粒子和陶瓷膜之间物理相互作用的基本机制以及清洁过程。通过研究这些方面，该研究旨在更好地了解臭氧纳米粒子在膜过滤系统中的有效清洁的利用。

2. 材料和方法

文章部分

2.1. 实验装置

我们的系统由三个连续的过程组成：NB生成、清洁和循环。清洗系统示意图如图1所示。很明显，被污染的陶瓷膜位于体积为3 m³的封闭水箱内。该膜被归类为孔径为 0.05 μm 的超滤器 (UF)。此外，该膜的直径约为 41 毫米，有 19 个 6 毫米的通道。膜过滤层的材料成分为TiO₂，支撑壳的成分为Al₂O₃。表 1列出了陶瓷膜的详细信息。

图1

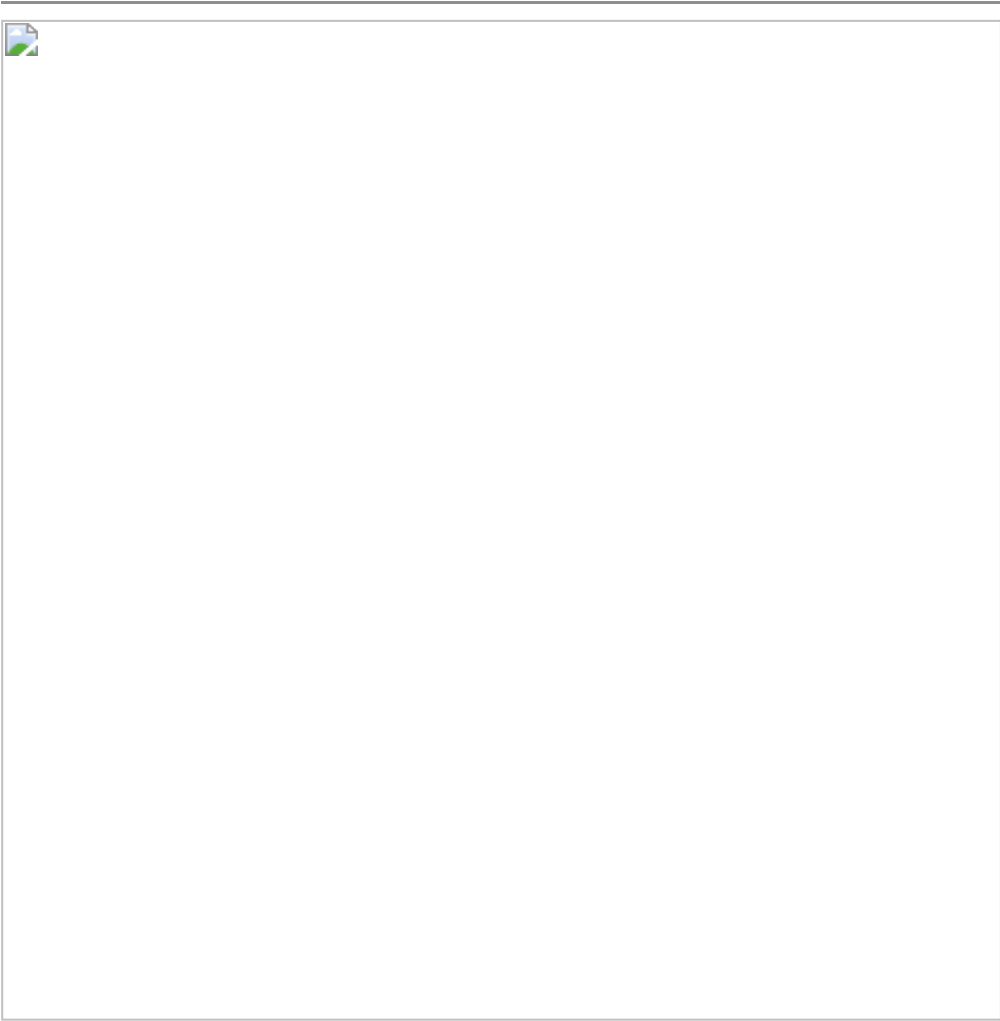


图1 实验装置示意图：(1) 水、(2) 陶瓷膜、(3) 水箱、(4) 阀门、(5) 分配泵、(6) 制氧机、(7) 臭氧发生器、(8)) 气体流量计、(9) NB发生器、(10) 转子流量计、(11) 温度指示器、(12) 压力指示器、(13) 氧气和(14) 臭氧。

表 1. 陶瓷膜规格

制造商	WTG 水处理有限公司
-----	-------------

膜型	管状
材料膜支撑壳	$\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$
膜过滤层材质	超滤： TiO_2
毛孔大小	50纳米
便携式水通量	1500 L/h/m ² (工作压力3 bar)
通道数	19
通道直径	6毫米
pH 操作工作范围	0 至 14

本研究中使用的污染膜是从一家名为 Perusahaan Umum Percetakan Uang Republik Indonesia 的公司获得的，该公司最初使用该膜来过滤染料溶液。因此，在本研究中，陶瓷膜的实验污染过程不是重点。使用错流膜通量测试仪测得污染膜的通量为608 L/h/m²(26)如图2所示。分配泵促进水在整个系统中的循环。然后将水流引导通过 NB 发生器并注入臭氧。臭氧气体以氧气为来源，使用臭氧发生器产生，采用电晕放电方法，以确保足够的臭氧产量。我们使用约 30 g/L 的臭氧和浓缩器（Yuwell 8F-3AW）产生的浓缩氧气，以达到超过 90% 的纯度水平。本研究中使用的 NB 发生器与先前研究中概述的孔板原理在概念上有相似之处。(17,27)板的尺寸为直径50.8毫米，一个单元由15组板组成。NB发生器由114个直径为2.35毫米、间距为1毫米的蜂窝状孔组成。

图2

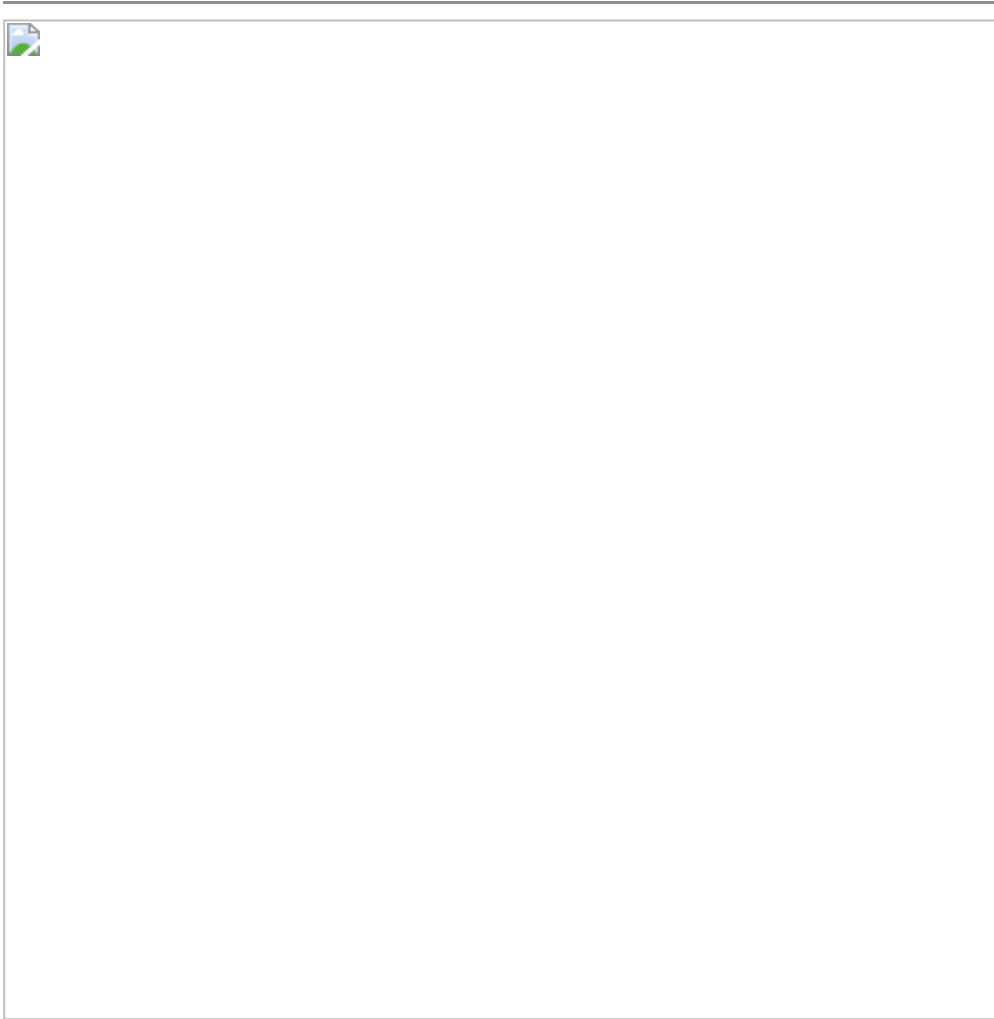


图2 错流膜通量装置示意图：(a) 压缩机，(b) 空气过滤器，(c) 阀门，(d) 压力指示器，(e) 水箱，(f) 水箱支架，(g)) 膜支架，(h) 膜，以及 (i) 质量平衡。

含有 NB 的进水被引导至装有污垢膜的水箱中，以促进污垢去除。随后，使用分配泵使水在系统中连续循环。在我们的研究中，这个过程的持续时间分别为 1、2、3 和 4 小时。值得一提的是，NB 技术的工作原理是基于气穴现象的发生，而气穴现象是由于流内压力显着下降而导致的。我们之前的研究表明，我们的系统实现了 0.909 左右的空化数 (C_v)。(17)根据 Saharan 等人的研究，空化现象通常发生在 $C_v \leq 1$ 时。(28–30)

2.2. 特性描述

使用原子力显微镜 (AFM, Park NX10) 和场发射扫描电子显微镜 (FE-SEM, Thermo Scientific Quanta 650) 等表面技术对陶瓷膜的形态和结构进行表征和分析。使用配备 FE-SEM 装置的能量色散光谱 (EDS) 分析来确认陶瓷膜表面存在的每种元素的百分比。膜表面的孔隙率是通过扫描电子显微镜 (SEM) 图像的二维计算确定的，遵循先前研究的方法。(31,32)在本实验中作为污染物来源的染料元素成分是通过在 Rigaku NEX OC+EZ 系列仪器 (序列号 QC1520) 上进行的 X 射线荧光 (XRF) 分析来确定的，该仪器在 3000 范围内运行–20,000 keV。通过傅里叶变换红外光谱 (FTIR, Thermo Scientific Nicolet iS10) 分析污染物中的化学键。

为了分析水中臭氧生成的 NB 的尺寸分布和 Zeta 电位，采用基于动态光散射法的粒度分析仪（Zetasizer Pro Blue，Malvern）。该仪器能够测定 0.3 nm–10 μm 范围内的气泡尺寸。

2.3. 膜通量测试

通过量化整个系统的输出膜通量来评估清洁性能，该通量是通过使用由液压压缩机、阀门、膜支架、压力调节器和分析天平组成的综合装置来评估的。膜通量系统如图2所示。膜通量的施加压力保持在大约 3 bar，模拟使用这些膜的操作条件。膜通量也称为水通量，精确定义为单位时间和单位面积通过被测膜的水量。(33)此外，其他一些传输特征（例如排斥或保留和选择性参数）可用于进一步表征结垢形成。然而，我们在这项调查中的重点特别与对水通量的重视有关，因为它在现有基础设施内是可行的。该通量值可以深入了解过滤过程的能量需求。该通量值可以深入了解过滤过程的能量需求。理想的过滤器应具有高水通量，这意味着过滤过程中的能耗较低。膜通量 (J) 可以使用以下公式计算，并考虑渗透物体积 (V)、膜表面积 (A) 和过滤时间 (t) 等参数。

$$J=Vt \cdot A$$
$$J=\text{在}t\cdot A$$

(1)

这里， V 代表渗透液的体积升(L)， A 代表膜表面积，单位为平方米(m^2)， t 代表过滤过程的持续时间，单位为小时(h)。

3. 结果与讨论

文章部分
跳到

3.1. 污垢的元素分析

在处理之前，我们使用 XRF 对作为污垢剂的染料进行了元素分析，如图3a所示。污染物的 XRF 分析揭示了元素成分的存在，即钙 (Ca)、锰 (Mn)、镍 (Ni)、铜 (Cu) 和锆 (Zr)。这些元素的识别是通过在分析过程中检测其特征峰来完成的。具体来说，观察到以下元素峰：(34,35)Ca在3.690 keV处出现峰值，记为Ca-Kα；Mn在5.896 keV处出现峰值，称为Mn-Kα；Ni在7.476 keV处呈现特征峰，记为Ni-Kα；Cu在8.046 keV处出现峰，鉴定为Cu-Kα；最后，Zr 在 15.771 keV 处显示出一个独特的峰，称为 Zr-Kα。

图3

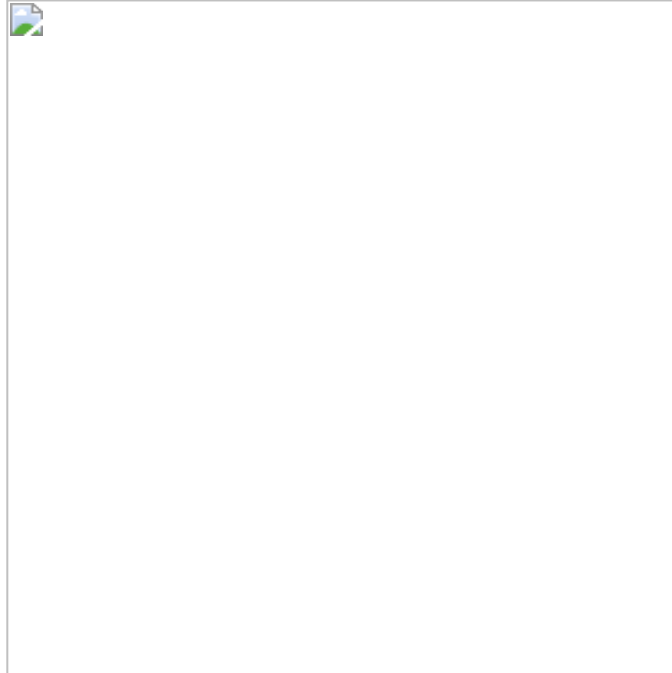


图 3. (a) 作为膜中污染物的染料的 XRF 图案，以及 (b) 作为膜中污染物的染料的 FTIR 光谱。

此外，FTIR 分析还提供了污垢功能组的振动详细输入，如图3b所示。 3281 cm^{-1} 处存在峰表明通常在 3650 至 3250 cm^{-1} 范围内发现氢键。FTIR 的另一个重要特征是 1639 cm^{-1} 处的峰。该峰与碳-碳双键 (C=C) 的伸缩振动有关。该峰的存在意味着不饱和碳化合物的存在。此外，污染物的 FTIR 光谱在 1555 和 1402 cm^{-1} 处显示峰值。 1555 cm^{-1} 处的峰对应于氮氧键的伸缩振动，这是芳香族化合物的特征。同时， 1402 cm^{-1} 处的峰表示硫-氧键的伸缩振动，特别是有机硫酸盐。(36)

3.2. 膜表面的元素分析

图 4a、b 描绘了污染膜和清洁膜表面的 SEM 图像。最初观察到的形态显示存在暗区，这是由于孔隙的存在，而白色区域可能与膜材料和污垢有关。此外，使用 EDX 分析进行元素组成，以提供详细的重量百分比信息。

图4

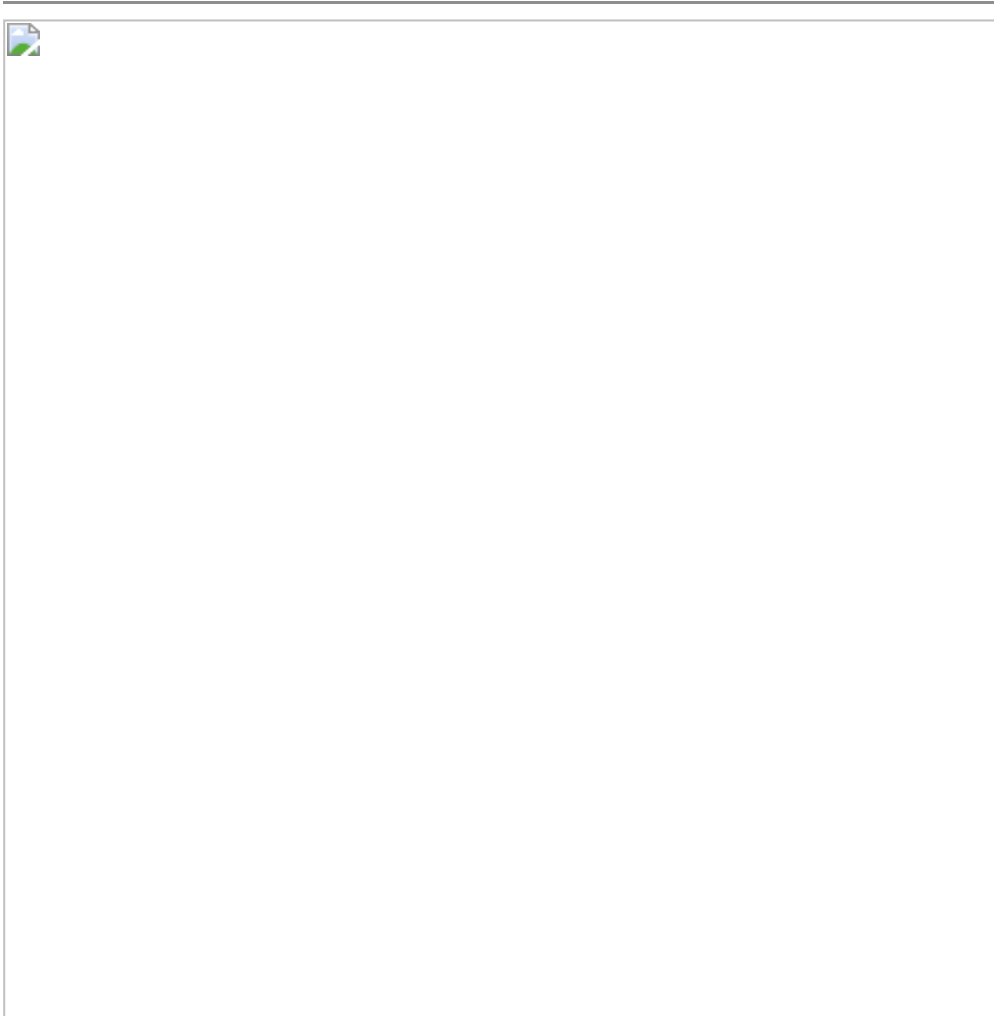


图 4. (a) 污染的膜表面和 (b) 清洁的膜表面以及 (c) 污染的膜和 (d) 清洁的膜的横截面积的 SEM 图像。

使用 EDS 进行的进一步研究表明，这些结构与之前通过 XRF 分析确定的贡献元素具有相似的化学成分，如表 2所示。值得注意的是，除了膜材料本身中存在的钛 (Ti) 和铝 (Al) 之外，某些元素，即 Zr、Mn、Ca 和 Ni，与污染物表现出很强的关联性。此外，在该分析中还检测到了水（尤其是地下水）中常见的微量元素硅（Si）。(37-39)此外，通过随后清洁程序的减少，成功地证明了造成污垢的关键成分，从而表明清洁过程在减轻污垢积聚方面的成功功效。除了污染物重量百分比的减少之外，膜组件也表现出增加。此外，采用 Abdullah 和 Khairurrijal 的表面孔隙率方法，(31)结果表明，与清洁状态（63.5%）相比，污染膜表现出较低的表面孔隙率（59.9%）。很明显，污垢可能导致孔隙率降低。这是因为污垢会堵塞膜中的孔隙，阻止水流过该膜。(40,41)然而，污垢被成功地从膜孔中去除，促进膜孔隙率的增量变化。

表 2. 污染膜和清洁膜表面积的 EDX 分析

状况	重量 (%)						
	的	铝	和	锆	锰	那	在
犯规	95.7	1.8	1.0	0.6	0.5	0.3	0.1
清洁过的	96.6	2.0	0.6	0.3	0.3	0.2	0.0

此外，还检查了膜的横截面形态，如图4c、d 所示。很明显，膜外边缘区域（对应于染料溶液的入口点）沉积的污垢减少了。最初，沉积污垢的厚度估计为 16 μm ，而清洁后的膜厚度仅为 13 μm 。该区域的氧化过程有效地减少了沉积污垢的存在。污染膜横截面积的EDX分析结果示于表3中。值得注意的是，在该分析中可以检测到钠 (Na)，这可能归因于污染物。Na的原子序数相对较低（11），这意味着Na发射的X射线具有较低的发射能量。这使得很难将 Na 信号与背景噪声分开。(42)因此，仅使用 XRF 检测该元素具有挑战性。

表 3. 污染膜和去污膜横截面积的 EDX 数据

状况	重量 (%)											
	氧	C	铝	的	和	已经	那	和	在	锰	锆	氯
犯规	46.03	25.56	15.24	10.79	0.97	0.50	0.35	0.08	0.01	0.30	0.00	0.17
去污的	51.00	16.79	18.49	13.73	1.04	0.38	0.29	0.00	0.00	0.00	0.00	0.08

此外，污垢的其他元素，即 Ca、Cu 和 Ni，也在该横截面积内进行了定量。清洁过程后，大多数这些元素的重量百分比有所下降。Na 和 Ca 最初的含量分别为 0.50 和 0.35%，现在分别降至 0.38 和 0.29%。同样，Cu、Ni 和 Mn 的重量百分比从 0.08、0.01 和 0.30% 降至 0%。然而，在该特定横截面区域中无法检测到Zr元素。相反，由于其他元素的减少，膜元素Ti、Al和O的重量和原子比例增加。染料溶液中与有机成分相关的碳 (C) 比例已显示出显着变化，表明氧化过程破坏了有机成分之间的化学键。同时，氧气的存在可归因于膜元件和污染物的有机成分。在 XRF 分析中，由于 C 和 O 元素表现出低能量荧光，这些元素的识别具有挑战性。(43,44)最后，EDX 分析数据中观察到的氯元素的出现可能与工厂内用于稀释染料的工艺水的利用有关。

3.3. 表面形貌分析

使用 AFM 进一步检查了污染和清洁膜表面的三维形态特征，如图 5所示。这些分析提供了对膜表面形貌的深入了解。清洗之前，膜表面表现出更光滑的外观，均方根 (rms) 粗糙度值为 ~93.65 nm。相比之下，清洁后的膜呈现出粗糙且起伏的表面，均方根粗糙度为~109.6 nm。结垢状态和清洁状态之间表面粗糙度的变化提供了有关膜表面结垢沉积的有价值的信息。

图5

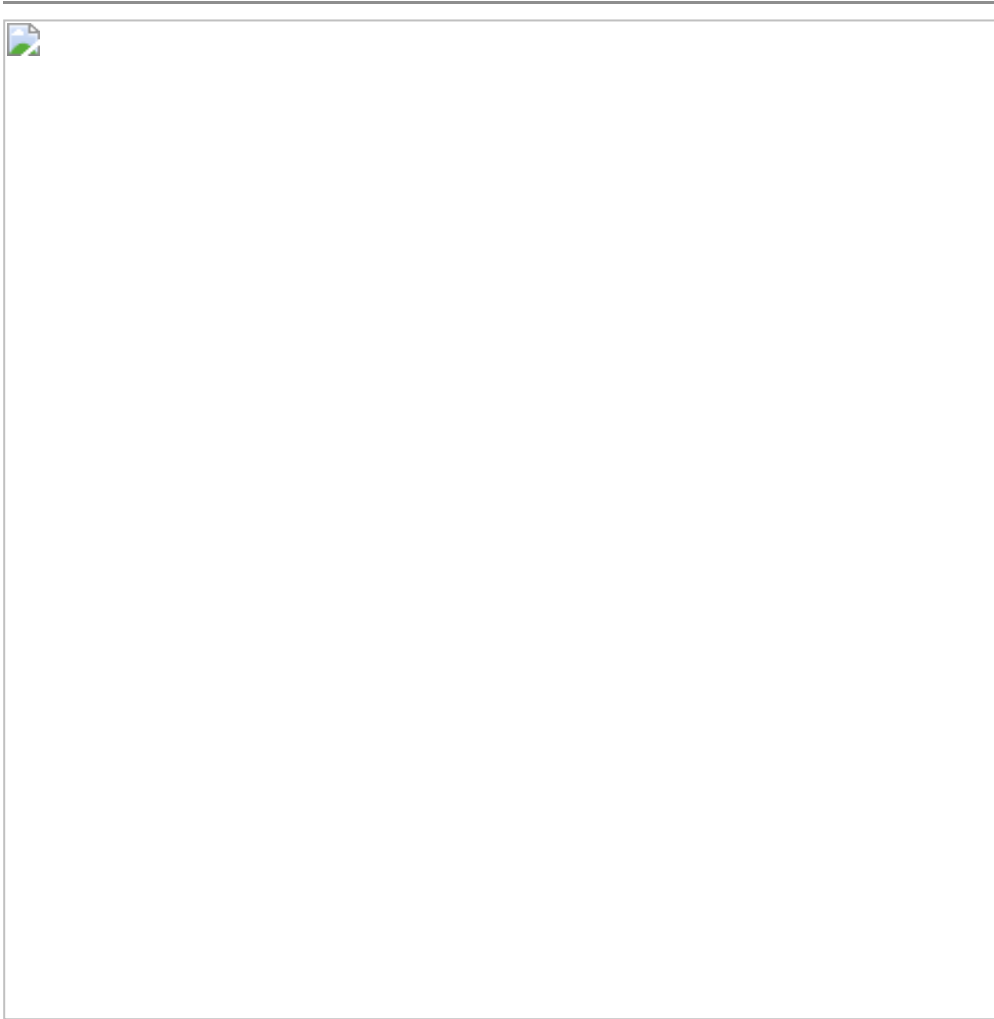


图 5. 膜表面的三维形貌 AFM 图像：(a) 污染的膜和 (b) 清洁的膜。

值得注意的是，污染物能够掩盖膜表面固有的起伏，从而在沉积后形成看似更光滑的表面。表面粗糙度可以在某些方面影响结垢率。粗糙的表面可以提供更多的表面积供污染物附着，并增加膜和流体之间的摩擦。(12,45,46)因此，这种现象阻碍了污染物从膜表面向上移动并促进其积累。清洗过程后，膜表面的粗糙度增加，这可归因于覆盖最初粗糙表面的污染物减少。

3.4. 清洗机构

图 6揭示了臭氧纳米粒子如何产生 ROS，以及陶瓷膜中后续的清洁过程如何发生。在清洁过程中提出了三个连续的路径，包括从氧化剂产生ROS，然后继续进行污染物封装和污染物降解。使用 NB 发生器中发生的流体动力空化过程对氧化剂进行改性。最初，按照先前研究中描述的方法将加压臭氧注入水流中。(17,27,47)由臭氧和水组成的多相流穿过NB发生器的蜂窝结构。当多相流穿过蜂窝结构时，流动的破坏导致随后形成臭氧纳米粒子。与 MB 相比，臭氧 NB 产品具有更高的表面接触性。

图6

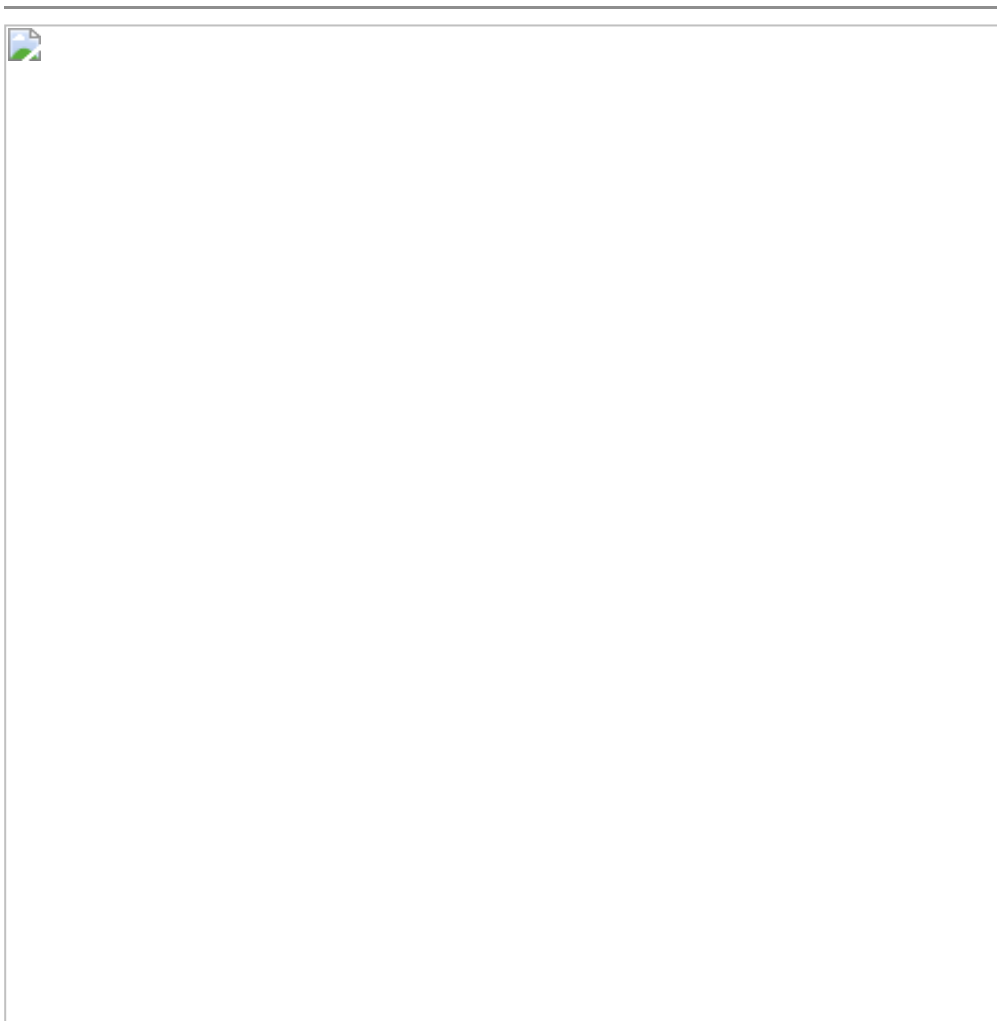


图 6.陶瓷膜清洗过程的拟议机制。

物理修饰显着影响ROS生成的进一步过程。(9-50)我们合理地认为，气泡破裂现象的传统热力学导致了臭氧的破坏。此外，该过程包括三个连续阶段，即启动、传播和终止。下面的杨-拉普拉斯方程解释了纳米粒子内气液界面的稳定性和行为。(51,52)

$$\Delta P = 2 \gamma / R$$

$$D_{\text{磷}} = 2C / \text{右}$$

(2)

ΔP 是弯曲界面上的压差， γ 是液-气界面的表面张力， R 是界面的曲率半径。当纳米粒子形成时，由于液体的表面张力，它呈现出弯曲的界面。气泡内部的压力大于外部的压力，导致弯曲界面上产生压力差。这种压力差可以使用杨拉普拉斯方程 2来描述，该方程表明它与界面的曲率半径成反比。简单地说，与较大的气泡相比，曲率半径较小的较小气泡在其界面上会经历较高的压力差。(51-53)因此，NB 内部的压力可能明显高于周围压力。这种压力差有助于纳米粒子的结构稳定性，防止其快速溶解。升高的内部压力有助于平衡气泡收缩的趋势并在较长时间内保持其完整性。NB 内压力的增加对于维持其存在和延长其寿命至关重要。纳米粒子的塌陷导致高度局部压力和温度的产生，称为空化。(54)塌陷过程中经历的高温和高压导致活性氧（ROS）的形成，特别是羟基自由基（ $\cdot\text{OH}$ ）。(55-57)由于其高反应性，羟基自由基能快速与多种有机污染物发生反应，包括污染物、病原体和染料。(17,58,59)

图7a、b分别表示处理4小时后NB的尺寸和zeta电位。峰值分布值代表 100% 的臭氧-NB，大小约为 213.2 nm。值得注意的是，纳米粒子的数量和尺寸会显著影响其传质效率。我们建议生产大量具有大表面积的所需纳米粒子将增强清洁过程中的传质流。

图7

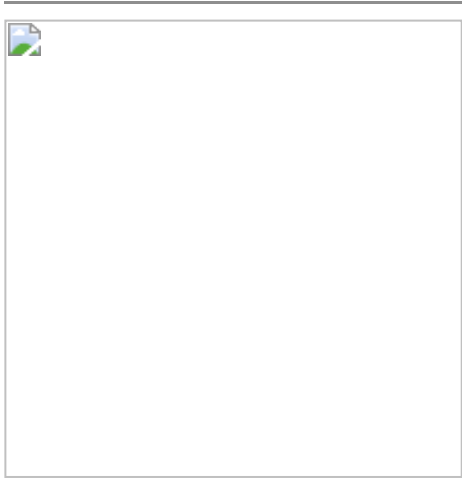


图 7. (a)以对数刻度绘制x轴上臭氧-NB 的粒径分布。(b) 4 小时处理后臭氧-NB 的 Zeta 电位值。(c) 在连续 4 小时过程中 zeta 电位的动态变化。

最终停留时间为 240 分钟时，测得 NB 的 zeta 电位约为 -20.26 ± 0.13 mV。相应的zeta电位分布如图7b所示。通过检查 zeta 电位从开始到 240 分钟的演变，可以明显看出，周转过程明显导致 zeta 值从正值转变为越来越负值，这表明将 ROS 引入到目标解决方案中。图 7c和表 S1显示了在整个连续 4 小时过程中 zeta 电位的变化。

纳米粒子的 zeta 电位在决定其在胶体系统中的稳定性和行为方面发挥着重要作用。(60,61)各种因素都会影响纳米粒子的 zeta 电位，包括表面电荷和周围液体介质的成分。(54,62)在这种情况下，ROS 的存在可能会影响胶体颗粒（包括纳米粒子）的 zeta 电位。ROS 与颗粒表面相互作用，导致表面电荷变化，从而影响 zeta 电位。这里观察到的负 zeta 电位归因于气泡界面处生成的 ROS 的存在，这有助于 NB 的稳定性。(7,21,63)值得注意的是，zeta 电位主要反映气泡的电荷，而不是其在水中的密度。纳米粒子的带电表面会导致颗粒相互排斥，从而防止气泡聚结或合并。这种静电斥力对于维持纳米粒子的稳定性并防止它们与周围介质中的其他气泡或颗粒聚集或凝结起着至关重要的作用。(63-65)

我们系统地改变清洁时间，以检查四种不同持续时间的修复恢复情况：1、2、3 和 4 小时，同时保持 3 巴的固定压力。对陶瓷膜的初始污染状态和清洁过程进行评估，然后与原始状态进行比较。图 8提供了清洁过程中陶瓷膜中观察到的变化的直观表示。最初，膜的污染部分是可见的，呈深蓝色，表明膜通道中存在沉积的污染物。随着清洁过程的进行，颜色逐渐变浅且更加均匀，表明污垢物质已被去除。在最后阶段，经过4小时的处理后，膜的外观变成浅蓝色，并且膜通道中没有发现可见的沉积物。与原始状态相比，4小时状态显示出相似的视觉状况。这一视觉证据证实了清洁过程在恢复陶瓷膜清洁度方面的有效性。

图8

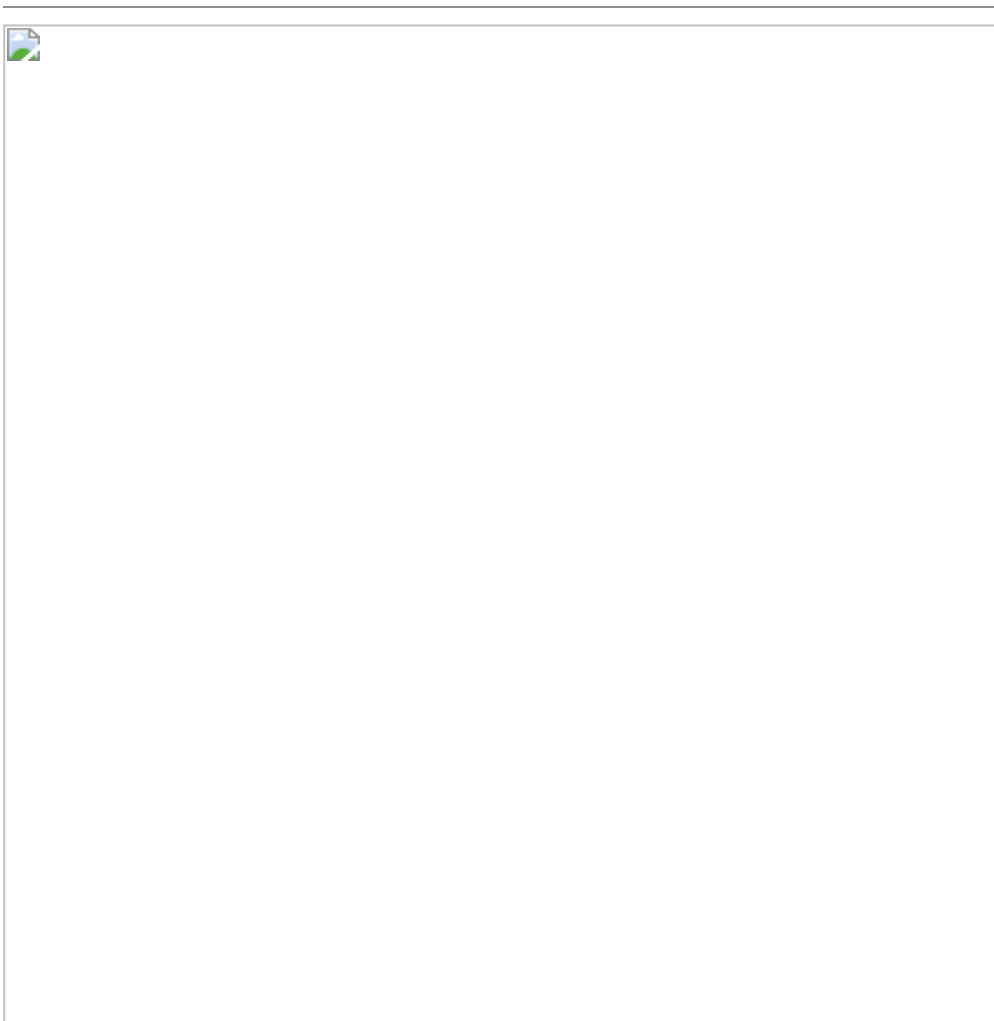


图 8. 与 (f) 原始状态相比，(a) 清洗前和 (b) 1、(c) 2、(d) 3 和 (e) 4 小时清洗过程
后膜状况的视觉变化。

此外，四种不同清洗时间下1、2、3和4 h的平均膜通量值分别为662、800、932和1050 L/h/m²。相比之下，结垢状态的膜通量为608 L/h/m²，而原始水通量为1500 L/h/m²。详细信息参见图 9和表 S2。

图9

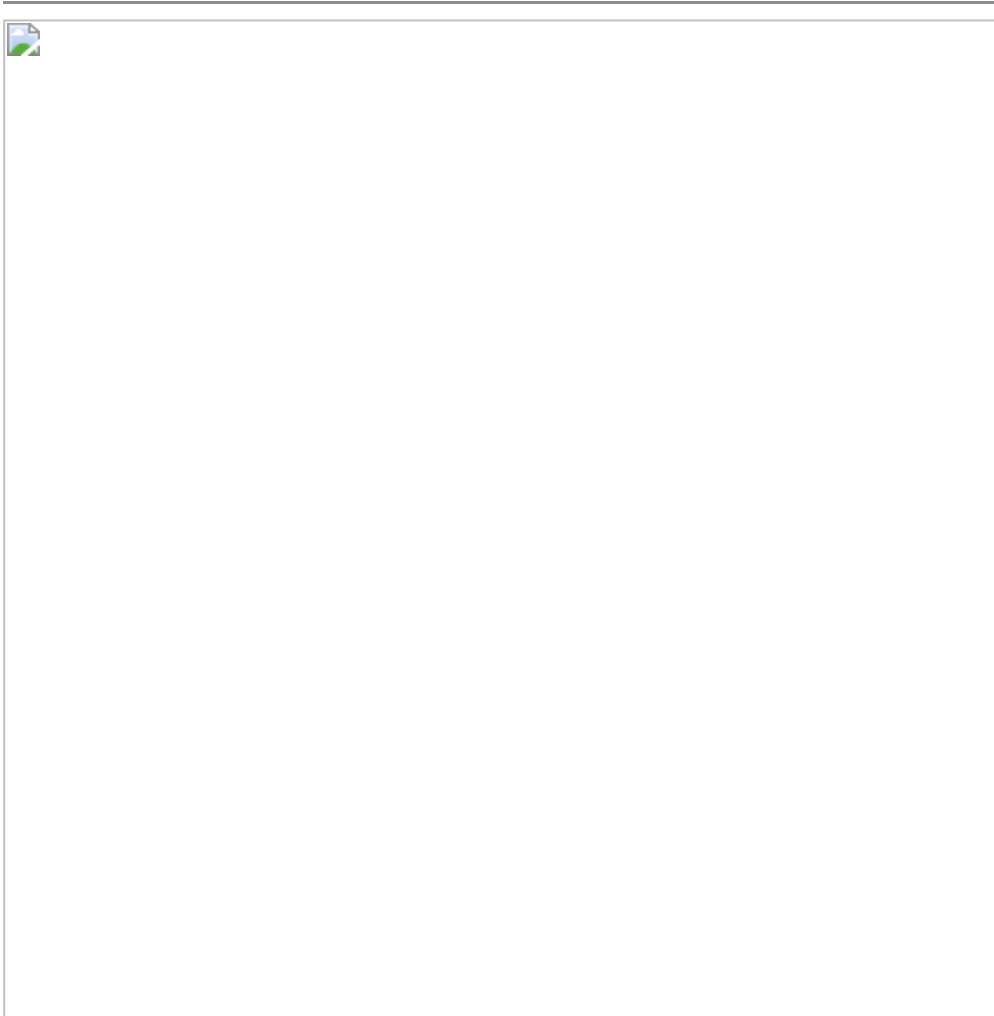


图9 陶瓷膜在不同处理时间下的膜通量：0 h（黑星）；1 小时（红色三角形）；2 小时（蓝色钻石）；3 小时（绿色三角形）；与原始状态（黄色方块）相比，在 3 bar 固定压力下 4 小时（紫色圆圈）。

值得注意的是，在4小时的清洗过程中，通量恢复率达到了50%，其通量与污垢状态相比几乎翻了一番。这一观察结果表明，如前所述，ROS 的积累对于有效减少膜表面的污垢起到了至关重要的作用。(3)在延长的清洗时间内，ROS的持续产生和积累可能有助于增强污染物的减少，从而提高膜的透水性。这些结果凸显了延长清洗周期对于实现更高的膜通量和提高陶瓷膜系统整体性能的重要性。

研究表明，经过臭氧-NB 清洗程序后，陶瓷膜的修复性能显着提高，膜通量从初始值609 L/h/m² 显着增加到1051 L/h/m² 就证明了这一点。膜在 4 小时内经历连续变化，从深蓝色（表明存在染料污染）转变为浅蓝色，表明膜表面染料污染减少。我们提出了源自臭氧-NB 空化过程中 ROS 生成的发现。这一假设得到了 DLS 分析的支持，zeta 电位结果为负值 (-20.26 ± 0.13 mV)。这表明水中主要存在与 ROS 特征相关的带负电的表面。此外，定量分析表明，在 4 小时的清洁期间，在水流中观察到 100% 的尺寸为 213.2 nm 的臭氧-NB。这一发现进一步证实了臭氧-NB的产生和存在，据信臭氧-NB对有效去除陶瓷膜上的污染物有很大贡献。总体而言，这种集成的臭氧-NB 系统作为一种创新和可持续的技术，在有效去除水处理应用中的污染物方面展现出巨大的潜力。

条款及条件

大多数电子支持信息文件无需订阅 ACS 网络版即可获得。此类文件可以按文章下载用于研究用途（如果有链接到相关文章的公共使用许可证，则该许可证可能允许其他用途）。可以通过 RightsLink 许可系统提出请求，从 ACS 获得许可用于其他用途：<http://pubs.acs.org/page/copyright/permissions.html>。

- 通讯作者

- Alfian Noviyanto -印度尼西亚纳米中心，Jl. Raya Serpong, 南唐格朗, 万丹 15314, 印度尼西亚; 梅尔库布阿纳大学工程学院机械工程系，Jl. Meruya Selatan, Kebun Jeruk, 雅加达 11650, 印度尼西亚;  <https://orcid.org/0000-0002-6371-6765>; 电子邮件：a.noviyanto@nano.or.id
alfian.noviyanto@mercubuana.ac.id
- 阿拉梅尔-印度尼西亚纳米中心，Jl. Raya Serpong, 南唐格朗, 万丹 15314, 印度尼西亚;  <https://orcid.org/0000-0003-4125-6099>; 电子邮件：arramel@nano.or.id

- Author Contributions

Ande Fudja Rafryanto: Investigation, Formal analysis, and Writing-Original Draft; **Zakia Dwi Puspa Ramadina**: Project administration, Resources; **Syarifa Nur'aini**: Investigation; **Bagas Haqi Arrosyid**: Investigation; **Akmal Zulfi**: Conceptualization, Methodology, Supervision; **Nurul Taufiqu Rochman**: Funding acquisition, Supervision; **Alfian Noviyanto**: Conceptualization, Validation, Writing-Review and Editing; **Arramel**: Validation, Supervision, Writing-Review and Editing.

- Notes

The authors declare no competing financial interest.

The authors would like to express their sincere gratitude to Nano Center Indonesia for their valuable support throughout this research. Additionally, the authors extend their appreciation to PT Nanotech Indonesia Global, Tbk. for providing the start-up research grant that contributed to the success of this study. The authors would also like to acknowledge the support received from Perusahaan Umum Percetakan Uang Republik Indonesia and PT NB Karya Indonesia.

This article references 65 other publications.

1. 2

Meiramkulova, K.; Devrishov, D.; Zhumagulov, M.; Arystanova, S.; Karagoishin, Z.; Marzanova, S.; Kydyrbekova, A.; Mkilima, T.; Li, J. Performance of an Integrated Membrane Process with Electrochemical Pre-Treatment on Poultry Slaughterhouse Wastewater Purification. *Membranes* 2020, 10 (10), 256, DOI: 10.3390/membranes10100256
Google Scholar

2. 3

Ghadimkhani, A.; Zhang, W.; Marhaba, T. Ceramic Membrane Defouling (Cleaning) by Air Nano Bubbles. *Chemosphere* 2016, 146, 379– 384, DOI: 10.1016/j.chemosphere.2015.12.023
Google Scholar

3. **4**
Davoodbeygi, Y.; Askari, M.; Salehi, E.; Kheirieh, S. A Review on Hybrid Membrane-Adsorption Systems for Intensified Water and Wastewater Treatment: Process Configurations, Separation Targets, and Materials Applied. *J. Environ. Manage.* 2023, 335, 117577, DOI: 10.1016/j.jenvman.2023.117577
Google Scholar
4. **5**
Fu, H.; Li, Z.; Zhang, Y.; Zhang, H.; Chen, H. Preparation, Characterization and Properties Study of a Superhydrophobic Ceramic Membrane Based on Fly Ash. *Ceram. Int.* 2022, 48 (8), 11573–11587, DOI: 10.1016/j.ceramint.2022.01.014
Google Scholar
5. **6**
Park, S. H.; Park, Y. G.; Lim, J. L.; Kim, S. Evaluation of Ceramic Membrane Applications for Water Treatment Plants with a Life Cycle Cost Analysis. *Desalin. Water Treat.* 2015, 54 (4–5), 973– 979, DOI: 10.1080/19443994.2014.912162
Google Scholar
6. **8**
Gul, A.; Hruza, J.; Yalcinkaya, F. Fouling and Chemical Cleaning of Microfiltration Membranes: A Mini-Review. *Polymers* 2021, 13 (6), 846, DOI: 10.3390/polym13060846
Google Scholar
7. **9**
Doan, N. T. T.; Lai, Q. D. Ultrafiltration for Recovery of Rice Protein: Fouling Analysis and Technical Assessment. *Innovative Food Sci. Emerging Technol.* 2021, 70, 102692, DOI: 10.1016/j.ifset.2021.102692
Google Scholar
8. **11**
Hilal, N.; Ogunbiyi, O. O.; Miles, N. J.; Nigmatullin, R. Methods Employed for Control of Fouling in MF and UF Membranes: A Comprehensive Review. *Sep. Sci. Technol.* 2005, 40 (10), 1957– 2005, DOI: 10.1081/SS-200068409
Google Scholar
9. **12**
Yin, N.; Zhong, Z.; Xing, W. Ceramic Membrane Fouling and Cleaning in Ultrafiltration of Desulfurization Wastewater. *Desalination* 2013, 319, 92– 98, DOI: 10.1016/j.desal.2013.03.028
Google Scholar
10. **13**
Guillen-Burrieza, E.; Ruiz-Aguirre, A.; Zaragoza, G.; Arafat, H. A. Membrane Fouling and Cleaning in Long Term Plant-Scale Membrane Distillation Operations. *J. Membr. Sci.* 2014, 468, 360– 372, DOI: 10.1016/j.memsci.2014.05.064
Google Scholar
11. **14**
Dayarathne, H. N. P.; Choi, J.; Jang, A. Enhancement of Cleaning-in-Place (CIP) of a Reverse Osmosis Desalination Process with Air Micro-Nano Bubbles. *Desalination* 2017, 422, 1– 4, DOI: 10.1016/j.desal.2017.08.002
Google Scholar

12. **15**
Temesgen, T.; Bui, T. T.; Han, M.; Kim, T.; Park, H. Micro and Nanobubble Technologies as a New Horizon for Water-Treatment Techniques: A Review. *Adv. Colloid Interface Sci.* 2017, 246, 40– 51, DOI: 10.1016/j.cis.2017.06.011
Google Scholar
13. **16**
Naffrechoux, E.; Chanoux, S.; Petrier, C.; Suptil, J. Sonochemical and Photochemical Oxidation of Organic Matter. *Ultrason. Sonochem.* 2000, 7 (4), 255– 259, DOI: 10.1016/S1350-4177(00)00054-7
Google Scholar
14. **18**
Sotelo, J. L.; Beltran, F. J.; Benitez, F. J.; Beltran-heredia, J. Ozone Decomposition in Water: Kinetic Study. *Ind. Eng. Chem. Res.* 1987, 26 (1), 39– 43, DOI: 10.1021/ie00061a008
Google Scholar
15. **19**
Inoue, S.; Kimura, Y.; Uematsu, Y. Ostwald Ripening of Aqueous Microbubble Solutions. *J. Chem. Phys.* 2022, 157 (24), 244704, DOI: 10.1063/5.0128696
Google Scholar
16. **21**
Selihin, N. M.; Tay, M. G. A Review on Future Wastewater Treatment Technologies: Micro-Nanobubbles, Hybrid Electro-Fenton Processes, Photocatalytic Fuel Cells, and Microbial Fuel Cells. *Water Sci. Technol.* 2022, 85 (1), 319– 341, DOI: 10.2166/wst.2021.618
Google Scholar
17. **22**
Suvira, M.; Zhang, B. Effect of Surfactant on Electrochemically Generated Surface Nanobubbles. *Anal. Chem.* 2021, 93 (12), 5170– 5176, DOI: 10.1021/acs.analchem.0c05067
Google Scholar
18. **23**
Hu, L.; Xia, Z. Application of Ozone Micro-Nano-Bubbles to Groundwater Remediation. *J. Hazard. Mater.* 2018, 342, 446– 453, DOI: 10.1016/j.jhazmat.2017.08.030
Google Scholar
19. **25**
Tian, J. Y.; Xu, Y. P.; Chen, Z. L.; Nan, J.; Li, G. B. Air Bubbling for Alleviating Membrane Fouling of Immersed Hollow-Fiber Membrane for Ultrafiltration of River Water. *Desalination* 2010, 260 (1–3), 225– 230, DOI: 10.1016/j.desal.2010.04.026
Google Scholar
20. **28**
Saharan, V. K.; Rizwani, M. A.; Malani, A. A.; Pandit, A. B. Effect of Geometry of Hydrodynamically Cavitating Device on Degradation of Orange-G. *Ultrason. Sonochem.* 2013, 20 (1), 345– 353, DOI: 10.1016/j.ultsonch.2012.08.011
Google Scholar

21. **29**

Montalvo Andia, J. P.; Ticona Cayte, A. E.; Illachura Rodriguez, J. M.; López Belón, L.; Cárdenas Málaga, M. A.; Teixeira, L. A. C. Combined Treatment Based on Synergism between Hydrodynamic Cavitation and H₂O₂ for Degradation of Cyanide in Effluents. *Miner. Eng.* 2021, *171*, 107119, DOI: 10.1016/j.mineng.2021.107119

Google Scholar

22. **30**

Wang, J.; Chen, H.; Yuan, R.; Wang, F.; Ma, F.; Zhou, B. Intensified Degradation of Textile Wastewater Using a Novel Treatment of Hydrodynamic Cavitation with the Combination of Ozone. *J. Environ. Chem. Eng.* 2020, *8* (4), 103959, DOI: 10.1016/j.jece.2020.103959

Google Scholar

23. **32**

Nur'aini, S.; Zulfi, A.; Arrosyid, B. H.; Rafryanto, A. F.; Noviyanto, A.; Hapidin, D. A.; Feriyanto, D.; Saputro, K. E.; Khairurrijal, K.; Rochman, N. T. Waste Acrylonitrile Butadiene Styrene (ABS) Incorporated with Polyvinylpyrrolidone (PVP) for Potential Water Filtration Membrane. *RSC Adv.* 2022, *12* (52), 33751– 33760, DOI: 10.1039/D2RA05969J

Google Scholar

24. **33**

Abdelrazeq, H.; Khraisheh, M.; Hassan, M. K. Long-Term Treatment of Highly Saline Brine in a Direct Contact Membrane Distillation (DCMD) Pilot Unit Using Polyethylene Membranes. *Membranes* 2022, *12* (4), 424, DOI: 10.3390/membranes12040424

Google Scholar

25. **34**

Pashkova, G.; Chubarov, V.; Akhmetzhanov, T.; Zhilicheva, A.; Mukhamedova, M.; Finkel'shtein, A.; Belozerova, O. Total-Reflection X-Ray Fluorescence Spectrometry as a Tool for the Direct Elemental Analysis of Ores: Application to Iron, Manganese, Ferromanganese, Nickel-Copper Sulfide Ores and Ferromanganese Nodules. *Spectrochim. Acta, Part B* 2020, *168*, 105856, DOI: 10.1016/j.sab.2020.105856

Google Scholar

26. **35**

Purwadi, I.; Casey, L.; Ryan, C.; Erskine, P.; van der Ent, A. X-ray Fluorescence Spectroscopy (XRF) for Metallome Analysis of Herbarium Specimens. *Plant Methods* 2022, *18*, 139, DOI: 10.1186/s13007-022-00958-z

Google Scholar

27. **37**

Keesari, T.; Roy, A.; Pant, D.; Sinha, U. K.; Kumar, P. V. N.; Rao, L. V. Major Ion, Trace Metal and Environmental Isotope Characterization of Groundwater in Selected Parts of Uddanam Coastal Region, Andhra Pradesh, India. *J. Earth Syst. Sci.* 2020, *129* (1), 205, DOI: 10.1007/s12040-020-01467-0

Google Scholar

28. **38**

Khan, A.; Umar, R.; Khan, H. H. Significance of Silica in Identifying the Processes Affecting Groundwater Chemistry in Parts of Kali Watershed, Central Ganga Plain, India. *Appl. Water Sci.* 2015, 5 (1), 65– 72, DOI: 10.1007/s13201-014-0164-z
Google Scholar

29. **39**

Turner, C.; Donose, B. C.; Kezia; Birkett, G.; Pratt, S. Silica Fouling during Groundwater RO Treatment: The Effect of Colloids' Radius of Curvature on Dissolution and Polymerisation. *Water Res.* 2020, 168, 115135, DOI: 10.1016/j.watres.2019.115135
Google Scholar

30. **40**

Sanaei, P.; Cummings, L. J. Flow and Fouling in Membrane Filters: Effects of Membrane Morphology. *J. Fluid Mech.* 2017, 818, 744– 771, DOI: 10.1017/jfm.2017.102
Google Scholar

31. **41**

Virtanen, T.; Rudolph, G.; Lopatina, A.; Al-Rudainy, B.; Schagerlöf, H.; Puro, L.; Kallioinen, M.; Lipnizki, F. Analysis of Membrane Fouling by Brunauer-Emmett-Teller Nitrogen Adsorption/Desorption Technique. *Sci. Rep.* 2020, 10 (1), 3427, DOI: 10.1038/s41598-020-59994-1
Google Scholar

32. **42**

Chen, H.; Rogalski, M. M.; Anker, J. N. Advances in Functional X-Ray Imaging Techniques and Contrast Agents. *Phys. Chem. Chem. Phys.* 2012, 14 (39), 13469– 13486, DOI: 10.1039/c2cp41858d
Google Scholar

33. **43**

Otaka, A.; Hokura, A.; Nakai, I. Determination of Trace Elements in Soybean by X-Ray Fluorescence Analysis and Its Application to Identification of Their Production Areas. *Food Chem.* 2014, 147, 318– 326, DOI: 10.1016/j.foodchem.2013.09.142
Google Scholar

34. **44**

Ravansari, R.; Wilson, S. C.; Tighe, M. Portable X-Ray Fluorescence for Environmental Assessment of Soils: Not Just a Point and Shoot Method. *Environ. Int.* 2020, 134, 105250, DOI: 10.1016/j.envint.2019.105250
Google Scholar

35. **45**

Guo, J.; Zhang, Y.; Chen, F.; Chai, Y. A Membrane with Strong Resistance to Organic and Biological Fouling Using Graphene Oxide and D-Tyrosine as Modifiers. *Membranes* 2022, 12 (5), 486, DOI: 10.3390/membranes12050486
Google Scholar

36. **46**

Li, W.; Ling, G.; Lei, F.; Li, N.; Peng, W.; Li, K.; Lu, H.; Hang, F.; Zhang, Y. Ceramic Membrane Fouling and Cleaning during Ultrafiltration of Limed Sugarcane Juice. *Sep. Purif. Technol.* 2018, 190, 9– 24, DOI: 10.1016/j.seppur.2017.08.046
Google Scholar

37. **47**

Levitsky, I.; Tavor, D.; Gitis, V. Generation of Two-Phase Air-Water Flow with Fine Microbubbles. *Chem. Eng. Technol.* 2016, 39 (8), 1537– 1544, DOI: 10.1002/ceat.201500492
Google Scholar

38. **48**

Liu, Y.; Wang, S.; Shi, L.; Lu, W.; Li, P. Enhanced Degradation of Atrazine by Microbubble Ozonation. *Environ. Sci.* 2020, 6 (6), 1681– 1687, DOI: 10.1039/D0EW00227E
Google Scholar

39. **49**

Ogata, S.; Murata, Y. Disinfection of Escherichia Coli by Mixing with Bulk Ultrafine Bubble Solutions. *Fluids* 2022, 7 (12), 383, DOI: 10.3390/fluids7120383
Google Scholar

40. **50**

Yu, X.; Wang, Z.; Lv, Y.; Wang, S.; Zheng, S.; Du, H.; Zhang, Y. Effect of Microbubble Diameter, Alkaline Concentration and Temperature on Reactive Oxygen Species Concentration. *J. Chem. Technol. Biotechnol.* 2017, 92 (7), 1738– 1745, DOI: 10.1002/jctb.5173
Google Scholar

41. **51**

Xue, S.; Zhang, Y.; Marhaba, T.; Zhang, W. Aeration and Dissolution Behavior of Oxygen Nanobubbles in Water. *J. Colloid Interface Sci.* 2022, 609, 584– 591, DOI: 10.1016/j.jcis.2021.11.061
Google Scholar

42. **54**

Foudas, A. W.; Kosheleva, R. I.; Favvas, E. P.; Kostoglou, M.; Mitropoulos, A. C.; Kyzas, G. Z. Fundamentals and Applications of Nanobubbles: A Review. *Chem. Eng. Res. Des.* 2023, 189, 64– 86, DOI: 10.1016/j.cherd.2022.11.013
Google Scholar

43. **55**

Soyluoglu, M.; Kim, D.; Zaker, Y.; Karanfil, T. Stability of Oxygen Nanobubbles under Freshwater Conditions. *Water Res.* 2021, 206, 117749, DOI: 10.1016/j.watres.2021.117749
Google Scholar

44. **56**

Liu, S.; Oshita, S.; Kawabata, S.; Makino, Y.; Yoshimoto, T. Identification of ROS Produced by Nanobubbles and Their Positive and Negative Effects on Vegetable Seed Germination. *Langmuir* 2016, 32 (43), 11295– 11302, DOI: 10.1021/acs.langmuir.6b01621
Google Scholar

45. **57**

Takahashi, M.; Shirai, Y.; Sugawa, S. Free-Radical Generation from Bulk Nanobubbles in Aqueous Electrolyte Solutions: ESR Spin-Trap Observation of Microbubble-Treated Water. *Langmuir* 2021, 37 (16), 5005– 5011, DOI: 10.1021/acs.langmuir.1c00469
Google Scholar

46. **58**

Vallejo, M.; Fresnedo San Román, M.; Ortiz, I.; Irabien, A. Overview of the PCDD/Fs Degradation Potential and Formation Risk in the Application of Advanced Oxidation Processes (AOPs) to Wastewater Treatment. *Chemosphere* 2015, *118* (1), 44– 56, DOI:

10.1016/j.chemosphere.2014.05.077

[Google Scholar](#)

47. **59**

Guo, X.-H.; Yang, Y.; Deng, Z.-Y. Filtrates with Hydroxyl Radicals Prepared Using Al + Acid + H₂O₂ for Removing Organic Pollutants. *ACS Omega* 2021, *6* (22), 14182– 14190, DOI:

10.1021/acsomega.1c00801

[Google Scholar](#)

48. **60**

Calgaroto, S.; Wilberg, K. Q.; Rubio, J. On the Nanobubbles Interfacial Properties and Future Applications in Flotation. *Miner. Eng.* 2014, *60*, 33– 40, DOI: 10.1016/j.mineng.2014.02.002

[Google Scholar](#)

49. **61**

Wu, J.; Zhang, K.; Cen, C.; Wu, X.; Mao, R.; Zheng, Y. Role of Bulk Nanobubbles in Removing Organic Pollutants in Wastewater Treatment. *AMB Express* 2021, *11* (1), 96, DOI: 10.1186/s13568-021-01254-0

[Google Scholar](#)

50. **62**

Kim, J. Y.; Song, M. G.; Kim, J. D. Zeta Potential of Nanobubbles Generated by Ultrasonication in Aqueous Alkyl Polyglycoside Solutions. *J. Colloid Interface Sci.* 2000, *223* (2), 285– 291, DOI:

10.1006/jcis.1999.6663

[Google Scholar](#)

51. **64**

Meegoda, J. N.; Aluthgun Hewage, S.; Batagoda, J. H. Stability of Nanobubbles. *Environ. Eng. Sci.* 2018, *35* (11), 1216– 1227, DOI: 10.1089/ees.2018.0203

[Google Scholar](#)

52. **65**

Satpute, P. A.; Earthman, J. C. Hydroxyl Ion Stabilization of Bulk Nanobubbles Resulting from Microbubble Shrinkage. *J. Colloid Interface Sci.* 2021, *584*, 449– 455, DOI:

10.1016/j.jcis.2020.09.100

[Google Scholar](#)

[下载PDF](#)

推荐文章

- 异常温度引起的氧化锰纳米颗粒粒径减小ACS欧米茄
- 纳米气泡技术为改善水处理提供了机会化学研究报告
- 低维离子液体无铅杂化钙钛矿中局域小极化子的光谱证据ACS 应用材料与接口公司
- 利用电纺发泡聚苯乙烯废料纳米纤维进行高效水过滤ACS欧米茄
- 了解表面电荷在粒子与粒子相互作用过程中纳米气泡毛细管桥联的作用朗缪尔



Sponsored Content

Brought to you by Microsoft

Accelerating Materials Discovery with HPC and AI

Explore one of Microsoft's latest computational discoveries that was accelerated using Azure Quantum Elements.