

Mikrofiltracija sa periodičnim povratnim ispiranjem kao alternativna tehnika za povećanje fluksa permeata

Tijana Urošević¹, Dragan Povrenović², Predrag Vukosavljević¹, Ivan Urošević¹

¹Poljoprivredni fakultet, Univerzitet u Beogradu, Beograd, Srbija

²Tehnološko – metalurški fakultet, Univerzitet u Beogradu, Beograd, Srbija

Izvod

U ovom radu je ispitan uticaj radnih parametara (transmembranski pritisak, temperatura, brzina strujanja retentata) na unakrsnu (*cross – flow*) mikrofiltraciju model rastvora voćnog soka i periodično povratno ispiranje vazduhom. U eksperimentima je korišćena keramička *Kerasesp W5* membrana sa granicom separacije od 0,2 µm. Određen je optimalni transmembranski pritisak, koji iznosi 2 bara. Optimalna temperatura procesa bistenja voćnih sokova mikrofiltracijom je 55°C. Više temperature se ne koriste zbog degradativnog efekta na hemijski sastav soka i dugog procesa mikrofiltracije. Sa porastom temperature retentata od 22°C do 55°C ostvaruje se porast fluksa permeata do 60 %. Povećanjem brzine strujanja retentata smanjuje se debljina formiranog sloja na površini membrane. Zbog ograničenja korišćene aparature i velike površine membrane, postignute specifične brzine strujanja retentata su male, pa efekat unakrsne filtracije izostaje. Periodičnim povratnim ispiranjem se nataloženi sloj na membrani podiže, fluks permeata je u visokoj zoni i sprečava se uspostavljanje stacionarnog stanja u zoni niskih flukseva. Vreme utrošeno na povratno ispiranje je malo u odnosu na povećanje sakupljene mase permeata. U svim eksperimentima sa povratnim ispiranjem sakupljena masa permeata je veća do 72,5 % u odnosu na eksperimente bez povratnog ispiranja. Povećanjem vremena trajanja povratnog ispiranja povećanje fluksa je do 5 %, što može biti značajno za mikrofiltraciju u industrijskim uslovima.

Ključne reči: mikrofiltracija, periodično povratno ispiranje, model rastvor voćnih sokova.

Dostupno na Internetu sa adrese časopisa: <http://www.ache.org.rs/HI/>

NAUČNI RAD

UDC 208.929.4:66:663.8

Hem. Ind. 72 (2) 59–68 (2017)

1. UVOD

Membranska tehnologija se primenjuje u mnogim granama industrije, uključujući i proizvodnju voćnih sokova. Iako membranska tehnologija ima korisnu primenu u industriji, u mnogim studijama su predstavljeni rezultati dobijeni uz pomoć laboratorijske ili pilot opreme. Testiranje sa malom opremom je prvi korak u razvoju industrijskog postupka. U brojnim istaživanjima su korišćene različite membrane, različita oprema i različiti operativni uslovi. Dobijeni rezultati istraživanja prikazuju uticaj membrana i operativnih uslova na membransku filtraciju, praktičnu primenu membranskih procesa, a tu spada i upoređivanje i tumačenje rezultata istraživanja.

Mikrofiltracija spada u grupu membranskih procesa, čiji je koncept separacija pojedinih komponenti tečne faze pod dejstvom razlike pritisaka kao pogonske sile. Membrane za mikrofiltraciju se koriste da bi uklonile čestice veličine od 0,1 – 10 µm suspendovane u rastvoru. Mikrofiltracija se između ostalog, primenjuje i u procesu bistenja voćnih sokova [1].

U poređenju sa tradicionalnim postupcima proizvodnje, mikrofiltracija ima sledeće prednosti: razdvajanje se može izvesti bez promene temperature ili pH rastvora, bez dodatka hemijskih aditiva, čime se smanjuju troškovi proizvodnje i rešava se problem tretmana otpada, poboljšava se kvalitet proizvoda i smanjuju se troškovi rada [2].

Neophodni postupci u tradicionalnom postupku proizvodnje voćnih sokova su dodavanje sredstava za bistenje, bistenje, taloženje i završna filtracija. Uz upotrebu membranske filtracije, svi ovi postupci se zaobilaze. Prednost ultrafiltracije i mikrofiltracije u odnosu na tradicionalni postupak proizvodnje je proizvodnja bistrog soka, pri čemu randman na polaznu količinu soka iznosi i do 99 %, u odnosu na randman od 93 – 94 % kod klasičnog bistenja. Znatno

Korespondencija: Tijana Urošević, Poljoprivredni fakultet, Nemanjina 6, Beograd, Srbija, (+381)11 4413202

E-mail: tijana@agrif.bg.ac.rs

Paper received: 14 August, 2017

Paper accepted: 15 December, 2017

<https://doi.org/10.2298/HEMIND170814021U>



je smanjeno vreme trajanja tehnološkog procesa proizvodnje, tj. vreme od ulaska voća u pogon, do finalnog proizvoda [1,2].

Membranska filtracija može biti kontinualan i automatizovan proces, čime se ostvaruje ušteda u radnoj snazi i energiji. Na primer, postrojenje koje preradi 20 t voća u koncentrat, može da uštedi na sirovini 6,3 %, na pomoćnom materijalu 93,5 %, na energiji 4,2 % i na radnoj snazi 16,6 %. Kada je reč o smanjenju troškova, kod membranskih procesa proizvodnje voćnih sokova nisu potrebni sudovi i uređaji za bistrenje i filtraciju, a nisu potrebna ni sredstva za bistrenje i filtraciju (kiselgur, filter ploče, želatin, bentonit i dr.). Takođe nema ni laboratorijskog određivanja potrebne količine sredstava za bistrenje. Nema opasnosti od nedovoljnog ili preteranog bistrenja [1, 3].

Što se tiče nedostataka membranskih procesa, mogu se navesti relativno visoki investicioni troškovi, koncentraciona polarizacija i fenomen prljanja membrana. Glavni problem pri mikrofiltraciji voćnih sokova je upravo koncentraciona polarizacija i fenomen prljanja membrana jer dovode do značajnog smanjenja fluksa permeata tokom vremena [3,4].

U cilju kontrolisanja i redukcije prljanja membrana i povećanja fluksa permeata, ispitivano je nekoliko metoda uključujući i periodično povratno ispiranje (*backwashing*) vazduhom ili azotom (N₂) [5-7], pulsacija pritiska i protoka iznad stacionarnih operativnih uslova [8], ubrizgavanje mehurića gasa u napojni tok [9,10], ugrađivanje promotora turbulencije unutar cevastih membrana [11], upotreba električnog polja [12,13] i primena različitih predtretmana soka, kao što je enzimski predtretman [14] ili tretman sa različitim pomoćnim filterima [15].

S obzirom da dosadašnja ispitivanja periodičnog povratnog ispiranja, kao alternativne tehnike poboljšanja fluksa permeata nisu toliko brojna, a kako se mikrofiltracija široko primenjuje u proizvodnji voćnih sokova u domaćoj industriji, autori su se iz tog razloga odlučili za ispitivanja prikazana u ovom radu. Cilj ovog istraživanja je bio ispitivanje uticaja radnih parametara (kinetika procesa) i periodičnog povratnog ispiranja vazduhom na fluks permeata tokom mikrofiltracije model rastvora voćnog soka. Cilj je takođe bio i ispitivanje uticaja dužine trajanja periodičnog povratnog ispiranja na povećanje fluksa permeata model rastvora voćnog soka.

2. EKSPERIMENTALNI DEO

2.1. Materijal

Prva faza eksperimenta je obuhvatila pripremu model rastvora voćnih sokova. Za svaku seriju eksperimenata je pripreman nov model rastvor, sa koncentracijom šećera od 10°Brix, 0,3 % limunske kiseline (AD Prehrambena industrija "Aleva", Novi Kneževac, Srbija) i 0,3 % pektina (oznake WECJ – 3, jabučno citrusni, visokoesterifikovani, brzo želirajući pektin, Pektowin, Poljska). Dobijeni model rastvor voćnih sokova je korišćen u drugoj fazi.

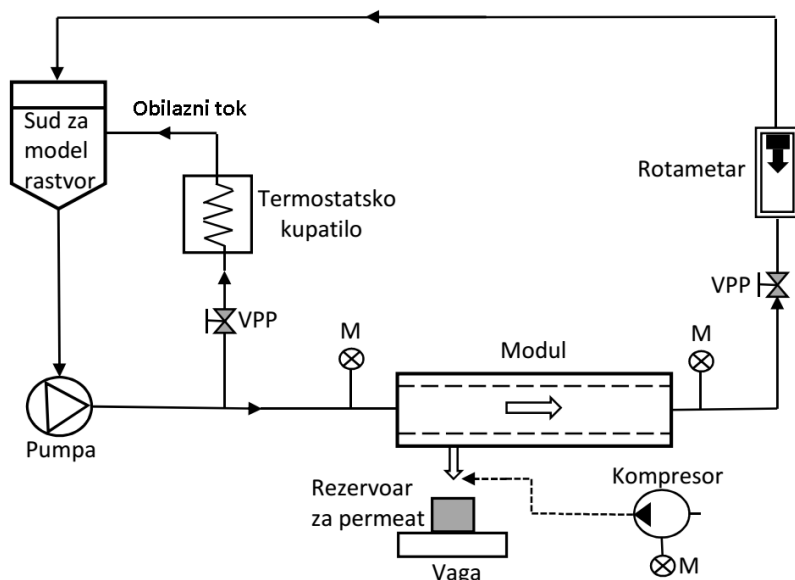
Druga faza je obuhvatila ispitivanje kinetike prenosa mase model rastvora voćnih sokova pri mikrofiltraciji. Esperimenti su izvedeni sa *Kerasesp W5* keramičkom membranom (Tech-Sep, Mirabel, Francuska) veličine pora od 0,2 µm, sa ciljem ispitivanja uticaja radnih parametara (zapreminskog protoka retentata, razlike pritisaka, temperature i periodičnog povratnog ispiranja) na kinetiku mikrofiltracije model rastvora. *Kerasesp* membrana je dužine 270 cm i sastoji se od 19 cilindričnih kanala, unutrašnjeg prečnika 4 mm. Ukupna aktivna površina membrane je 644 cm². Membrana je čišćena nakon svakog eksperimenta tj. nakon svakih 120 minuta rada. Membrana je demontirana sa uređaja i potapana u topao rastvor ($t = 50\text{ }^{\circ}\text{C}$) sastavljen od 2 mas.% rastvora NaOH i 1M rastvora NaOCl (VWR Chemicals, Francuska). Razlog za ispiranje rastvorom limunske kiseline je da se ne remeti uloga membrane u pogledu kiselosti sredine. Nakon pranja i ispiranja, mereni su početni standarni fluksevi destilovane vode kroz membranu, koji su takođe bili isti pred svaku seriju eksperimenata, što je ukazivalo da je membrana dobro oprana.

2.2.1. Opis eksperimentalne aparature za mikrofiltraciju

Laboratorijska aparatura za mikrofiltraciju konstruisana je tako da omogući jednostavan rad, kontrolu procesa i variranje ispitivanih parametara (zapreminski protok retentata kroz sistem, razliku pritisaka, temperaturu i periodično povratno ispiranje). Šematski prikaz eksperimentalne aparature upotrebljene za ispitivanje kinetike prenosa mase pri mikrofiltraciji model rastvora voćnih sokova, prikazan je na slici 1.

Rezervoar za model rastvor voćnog soka, na svom dnu sadrži perforiranu rešetku malog poroziteta, radi zadržavanja eventualno dospelih mehaničkih nečistoća, koje bi mogle da poremete rad membranske pumpe. Napojni rastvor (model rastvor voćnog soka), prebacuju se iz rezervoara u modul membranskom pumpom visokog pritiska (proizvođač DVS – Pančevo, Srbija), pri čemu se protok retentata prati laboratorijskim rotametrom. Temperatura u sistemu se podešava proticanjem napojnog rastvora kroz termostatsko kupatilo, a kontroliše se termometrom. Permeat se sakuplja u rezervoar, koji je smešten na digitalnoj tehničkoj vagi (model PCE – BS 3000, PCE - Instruments, Engleska), tačnosti $\pm 0,1$. Razlika pritisaka (Δp tj. TMP – transmembranski pritisak) i pad pritiska ($p_1 - p_2$) se kontrolišu ventilom povratnog pritiska u rasponu od 0,5 do 5 bar. Nadpritisci napojnog rastvora na ulazu i na izlazu iz modula

mereni su manometrima (Bourdonov manometer, proizvođač Borac Beograd, Srbija), koji imaju radni opseg od 0 do 5 bar, sa tačnošću od 0,05 bar. Pošto se permeat odvodi na atmosferskom pritisku, nadpritisak meren manometrima na ulazu i izlazu iz modula predstavlja razliku pritiska, $\Delta p = (p_1 + p_2) / 2$. Pad pritiska u modulu duž membrane predstavlja razliku pritiska koji pokazuju manometri na ulazu i izlazu, $p_1 - p_2$.



Slika 1. Šematski prikaz eksperimentalne aparature korišćene u ovom radu (VPP – ventil povratnog pritiska, M – manometar)
Figure 1. Experimental setup for cross-flow microfiltration (VPP – back pressure regulator, M – manometer)

U eksperimentima kada je izvedeno periodično povratno ispiranje, komprimovanim vazduhom, umesto membranske pumpe za prebacivanje model rastvora iz rezervoara u modul, korišćena je mono pumpa (Seitz, Nemačka). Pumpa je bila postavljena na izlazu permeata i to tako da se u toku izvođenja povratnog ispiranja, prekida odvođenje permeata. Pumpa je bila opremljena manometrima i ventilima za kontrolu pritiska.

Masa sakupljenog permeata model rastvora je merena sa tačnošću od $\pm 0,1$ g, svakih 60 sekundi u vremenskim intervalima od 120 minuta. Izvedeni eksperimenti obuhvataju varijaciju sledećih parametara: razlika pritiska, od 0,5 do 3 bar, zapreminski protok model rastvora kroz modul unutar cevi, od 0,5 do 5 l/min i temperatura, od 22 do 55°C. Periodično povratno ispiranje je izvedeno na svakih 10 minuta u trajanju od 1 i 3 minuta, komprimovanim vazduhom pritiska 0,5 bar.

2.2.2. Statistička obrada rezultata

Rezultati ispitivanja predstavljaju srednju vrednost tri ponavljanja i prikazani su grafički. Za statističku obradu rezultata korišćen je softverski paket MS Office Excel 2010.

Hidraulički otpor membrane prema čistom rastvaraču se može eksperimentalno odrediti na sledeći način [16,17]:

$$R_m = \frac{\Delta p A_m}{\mu Q_v} = \frac{\Delta p A_m \rho}{\mu Q_m} \quad (1)$$

gde su Δp – razlika pritiska sa obe strane membrane, μ – dinamički viskozitet vode, Q_v – zapreminski protok permeata, A_m – ukupna efektivna površina poprečnog preseka membrane, a Q_m – maseni protok permeata gustine ρ , koji se određuje na osnovu eksperimentalnih podataka, primenom metode najmanjih kvadrata:

$$Q_m = \frac{n \sum_{i=1}^n m_i \tau_i - \sum_{i=1}^n m_i \sum_{i=1}^n \tau_i}{n \sum_{i=1}^n \tau_i^2 - \left(\sum_{i=1}^n \tau_i \right)^2} \quad (2)$$

gde je m_i – masa permeata koja se sakupi za vreme τ_i , a n – broj eksperimentalnih tačaka.

Da bi odredili maseni protok permeata, Q_m , gustine ρ , neophodno je meriti kumulativnu zapreminu permeata (V) u funkciji vremena. Funkcija $V = f(\tau)$ je prava koja polazi iz koordinatnog početka i ima koeficijent pravca:

$$\operatorname{tg} \alpha = \frac{dV}{d\tau} = \frac{\Delta p A_m}{\mu R_m} \quad (3)$$

iz kojeg se može odrediti hidraulički otpor membrane, R_m .

Pri unakrsnoj mikrofiltraciji rastvora, u stacionarnim uslovima, dolazi do stvaranja sekundarnog sloja na membrani, koji predstavlja dodatni otpor za prenos mase, polarizacioni otpor, R_p . Ukupni otpor, R , u stacionarnim uslovima se određuje na osnovu nagiba prave $V = f(\tau)$ u stacionarnim uslovima. Ovaj nagib se određuje metodom najmanjih kvadrata:

$$\operatorname{tg} \alpha = Q_m = \frac{n \sum_{i=1}^n m_i \tau_i - \sum_{i=1}^n m_i \sum_{i=1}^n \tau_i}{n \sum_{i=1}^n \tau_i^2 - \left(\sum_{i=1}^n \tau_i \right)^2} \quad (4)$$

pri čemu je:

$$R = \frac{\Delta p A_m}{\mu_0 Q_v} = \frac{\rho_0 \Delta p A_m}{\mu_0 \operatorname{tg} \alpha} \quad (5)$$

gde je μ_0 – dinamički viskozitet permeata, a ρ_0 – eksperimentalno određena gustina permeata.

Nakon eksperimentalnog određivanja hidrauličkog otpora membrane, R_m i ukupnog otpora prenosu mase kroz membranu, R , polarizacioni otpor, R_p je moguće odrediti iz relacije :

$$R = R_m + R_p \quad (6)$$

Za ispitivanje kinetike unakrsne mikrofiltracije različitih rastvora, neophodno je utvrditi sve parametre koji utiču i na otpor membrane, R_m , i na polarizacioni otpor, R_p .

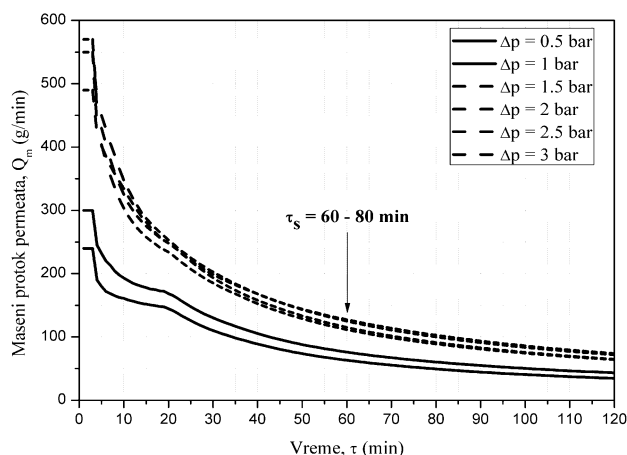
3. REZULTATI I DISKUSIJA

3.1. Uticaj razlike pritiska na kinetiku mikrofiltracije kroz Kerasep membranu

Porast stacionarnog masenog protoka model rastvora, Q_{ms} , sa porastom pogonske sile, Δp , je realan sve do onog trenutka kada pod dejstvom pogonske sile, polarizacioni otpor ne postane toliko visok, tako da dalje povećanje pogonske sile ne dovodi do povećanja fluksa kroz membranu. Dalje povećanje pogonske sile dovodi samo do »komprimovanja« gela na membrani i porasta polarizacionog otpora R_p . Ovo se manifestuje najčešće padom stacionarnog protoka permeata.

Stacionarni fluks, odnosno stacionarni maseni protoci permeata, ne zavise od porasta pogonske sile (Δp) (slike 2 i 3). U stacionarnim uslovima, posle 60 minuta, sve serije pokazuju slične rezultate ($Q_{ms} = 21,30 - 51,92$ g/min) pa se izvodi zaključak da je u stacionarnim uslovima nebitno sa kojom pogonskom silom se radi. Međutim, do uspostavljanja stacionarnih uslova, pozitivan efekat koji daje porast pogonske sile, tj. razlike pritiska, suprotstavljen je negativnom efektu, koji izaziva povećanje polarizacionog otpora (R_p), kao posledica povećanja pogonske sile. Ovo dovodi do toga da se maksimalan fluks, odnosno protok permeata javlja pri razlici pritiska od $\Delta p = 2$ bara (slika 3). U industrijskim uslovima, uređaji za mikrofiltraciju rade više od 10 sati u kontinuitetu, pa ovaj efekat nije važan, jer se dešava u prvom satu rada uređaja. Navedeni rezultati dovode do zaključka da je pri mikrofiltraciji sokova kroz *Kerosep* membranu, vrlo praktično izvoditi periodično povratno ispiranje na svakih 20 – 30 minuta.

Odabir optimalnog transmembranskog pritiska u slučaju mikrofiltracije nije baš jednostavan zadatak. Gotovo da je nemoguće odrediti idealne operativne uslove za sistem sa mikrofiltracijom [18]. Pre 22 godine uveden je termin „kritičan fluks“ [19]. Navodi se da postoji kritični fluks kod procesa unakrsne mikrofiltracije, ispod koga prljanje membrana nema značajnog uticaja na proces filtracije, odnosno nema uticaj na opadanje fluksa permeata ili povećanje transmembranskog pritiska. Povećanje brzine strujanja napojnog rastvora (poboljšanje prenosa mase) dovodi do povećanja kritičnog fluksa [19]. U 2011. godini pojavljuje se pojam „graničnog fluksa“ koji je definisan u odnosu na brzinu prljanja membrane. Pri vrednostima manjim od graničnog fluksa, brzina prljanja membrane je mala i skoro konstantna, pa je moguće da se proces odvija bez problema u dužem vremenskom periodu [20]. Za ispitivanu keramičku *Kerosep* membranu, kritični ili granični fluks se manifestuje pri razlici pritiska od 2 bar.



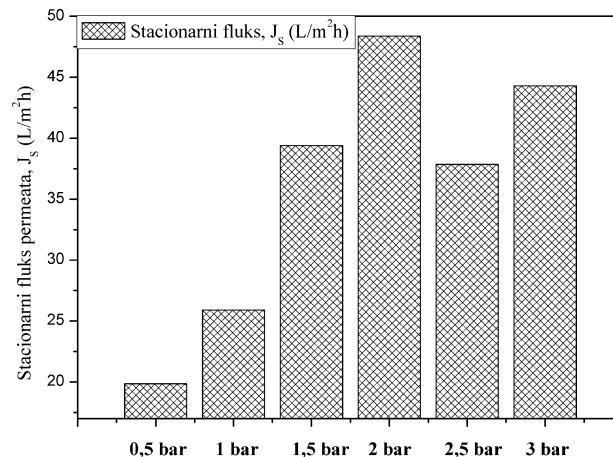
Slika 2. Zavisnost masenog protoka permeata model rastvora voćnog soka, Q_m , od vremena, τ , i razlike pritiska, Δp , za Kerasep keramičku membranu, pri zapreminskom protoku retentata, $Q_v = 1$ l/min i temperaturi $t = 22$ °C. Vreme uspostavljanja stacionarnih uslova, τ_s (min).

Figure 2. The variation of mass flow rate of permeate, Q_m with time, τ , at different transmembrane pressures, Δp , for the ceramic Kerasep membrane. The feed flow rate, Q_v and temperature, t , were 1 l/min and 22 °C, respectively. Time to establish stationary conditions is denoted, τ_s (min).

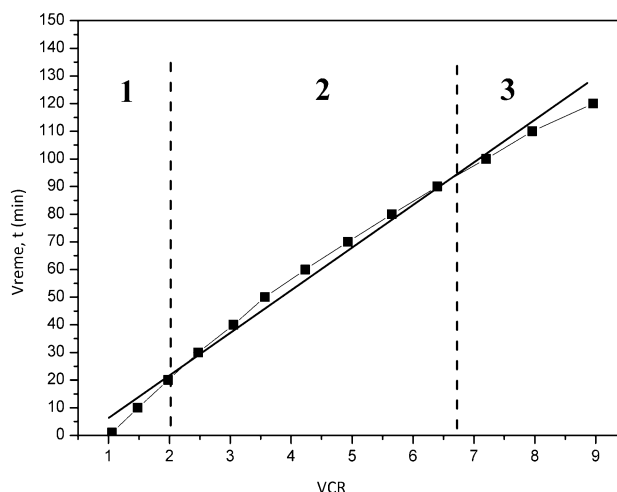
Kod Kerasep membrane hidraulički otpor membrane je mali ($R_m = 0,4960 \cdot 10^{12}$ 1/m), pa se može zaključiti da se njegova vrednost može zanemariti u stacionarnim uslovima. Do uspostavljanja stacionarnih uslova, polarizacioni otpor vrlo brzo raste tako da već posle par minuta predstavlja glavni otpor prenosu mase. U ukupnom otporu (R), polarizacioni otpor (R_p) učestvuje sa preko 96 %, odnosno, sva dešavanja u sekundarnom dinamičkom sloju na membrani predstavljaju kompletan otpor prenosu mase pri mikrofiltraciji sokova kroz Kerasep membranu.

Prilikom mikrofiltracije model rastvora voćnog soka, funkcija fluksa permeata sa faktorom zapreminskog koncentrisanja (VCR – volume concentration ratio) je opadajuća. Zavisnost opadanja fluksa može se podeliti u tri perioda [21]. Prvi, početni period se karakteriše naglim opadanjem fluksa permeata i tada je vrednost faktora zapreminskog koncentrisanja, $VCR = 1 - 2$. U drugom periodu, $VCR = 3 - 7$, fluks i dalje opada, ali u manjoj meri nego u prvoj fazi [4]. I treći period, $VCR > 7$, je karakterističan po veoma malom opadanju fluksa permeata, koje je toliko malo da se može definisati i kao stacionarno stanje (slika 4.). U prvom periodu polarizacioni otpor, R_p , jako brzo raste i vrlo brzo dostiže vrednost otpora membrane, R_m . U drugom periodu oba otpora imaju značajan uticaj na ukupni otpor. I na kraju, u trećem periodu polarizacioni otpor je dominantan. Granice između ovih perioda su vrlo specifične i određuju se posebno za svaki sistem istraživanja.

Sa slike 4. je uočljivo da prvi period korespondira do VCR nešto ispod 2, drugi period do VCR oko 6,5 – 7, a treći stacionarni period nakon toga. Ovaj treći stacionarni period je od praktičnog značaja za industriju. Prvi period visokog fluksa traje do VCR oko 2, tj. prvih 10 do 15 minuta. Zato je povratno ispiranje praktično najbolje izvoditi na svakih 10 minuta, naravno ako tehničko rešenje to dozvoljava. Eventualno bi se moglo povratno ispiranje izvoditi i pri kraju drugog perioda, pri $VCR = 7$ ili $\tau = 60$ min.



Slika 3. Zavisnost stacionarnog fluksa permeata, J_s , od razlike pritiska, Δp , za Kerasep keramičku membranu, pri zapreminskom protoku retentata $Q_v = 1$ l/min i temperaturi $t = 22$ °C. Figure 3. The steady flux of the permeate, J_s , as a function of the transmembrane pressure, Δp , for the ceramic Kerasep membrane. The feed flow rate, Q_v and temperature, t were 1 l/min and 22 °C, respectively.



Slika 4. Vremenski tok procesa u odnosu na VCR, pri optimalnoj razlici pritiska, $\Delta p = 2$ bar, zapreminskom protoku retentata, $Q_v = 1$ l/min i temperaturi $t = 22$ °C za Kerasep membranu. Figure 4. Process flow time versus VCR, at optimum pressure difference, $\Delta p = 2$ bar, at feed flow rate of $Q_v = 1$ l/min and a temperature $t = 22$ °C for Kerasep membrane.

3.2. Uticaj zapreminskog protoka i temperature na kinetiku mikrofiltracije kroz *Kerasesp* membranu

U ispitivanom opsegu radnih parametara, masa permeata model rastvora voćnog soka sakupljena posle određenog vremena (u stacionarnom stanju), se praktično ne menja u funkciji promene zapreminskog protoka napojnog rastvora. Iako je reč o primenjenoj tehnici unakrsne mikrofiltracije, ipak se ovde ne može govoriti da tangencionalna brzina smicanja gela na membrani ima uticaja. Razlog za to je, što se zbog ograničenja na samoj aparaturi i velikog broja kanala (velike površine) membrane, postižu jako male specifične brzine strujanja retentata, v_s . Maksimalna specifična brzina strujanja retentata koja se postiže iznosi 0,35 m/s. S obzirom da se efekat unakrsne filtracije postiže tek pri specifičnim brzinama strujanja retentata iznad 1 m/s, a posebno 5 m/s, nije se ni mogao očekivati značajniji efekat pri ovako malim brzinama [1,3,22,23].

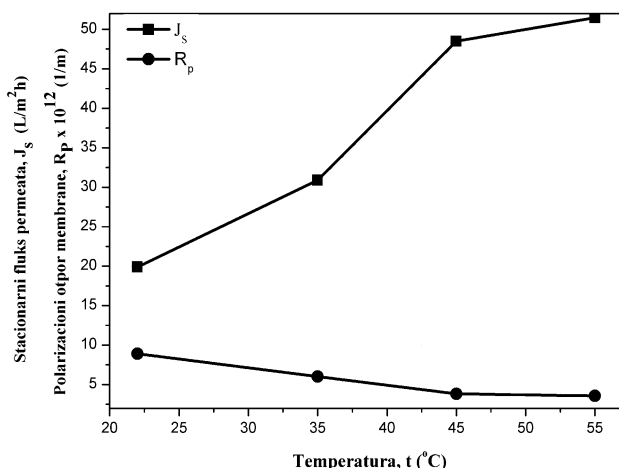
Na slici 5 je prikazana zavisnost stacionarnog fluksa permeata, J_s i polarizacionog otpora membrane, R_p od temperature za *Kerasesp* membranu. U tehnološkom procesu bistrenja voćnih sokova ne smeju se koristiti temperature koje su više od 55°C zbog degradativnog efekta visokih temperatura na hemijski sastav soka, kao i dugog procesa mikrofiltracije. Zato ova temperatura predstavlja i optimalnu temperaturu bistrenja voćnih sokova mikrofiltracijom [3]. Linearan porast fluksa sa temperaturom je posledica pada viskoznosti soka, pri čemu se primećuje i izvestan pad polarizacionog otpora. Sa porastom temperature model rastvora voćnog soka (napojnog rastvora) od 22°C do 55°C, ostvaruje se porast fluksa permeata od oko 60 %. Ovo povećanje se zapravo odigrava u prvih 60 minuta procesa, odnosno do vremena uspostavljanja stacionarnih uslova. To znači da produženjem mikrofiltracije posle 2 sata, neće se značajno povećati kapacitet mikrofiltracije. To dovodi do zaključka da je neophodno pribеći drugim tehnikama za smanjenje polarizacionog otpora, kao na primer periodičnom povratnom ispiranju.

3.3 Uticaj periodičnog povratnog ispiranja na kinetiku mikrofiltracije kroz *Kerasesp* membranu

U mikrofiltraciji različitih napojnih rastvora, povećanje brzine strujanja retentata se najčešće koristi kako bi se smanjila debljina formiranog sloja sa površine membrane, odnosno koncentraciona polarizacija. Pad pritiska napojnog rastvora je zbog toga prilično visok. U praksi, izvršiti periodično povratno ispiranje, odnosno podići nataloženi sloj sa površina membrana je idejno znatno bolje rešenje. Ova tehnika ima niz prednosti. Nema uspostavljanja stacionarnog stanja pri jako niskim fluksevima, već je fluks stalno u zoni maksimalnog fluksa permeata [1,3,7]. Time je i ukupna sakupljena masa permeata znatno veća. Kratkotrajno povratno ispiranje na svakih 10 minuta u trajanju od 1 i 3 minuta, komprimovanim vazduhom pritiska 0,5 bara nije tehnički komplikovano rešenje. Nema nikakvih utrošaka energije koje ekonomski opterećuju proces. Proces je jednostavno voditi bez mnogo dodatnog manuelnog rada. Vreme koje se gubi za povratno ispiranje je jako malo u odnosu na povećanje sakupljene količine permeata, čime se ukupno vreme mikrofiltracije znatno skraćuje.

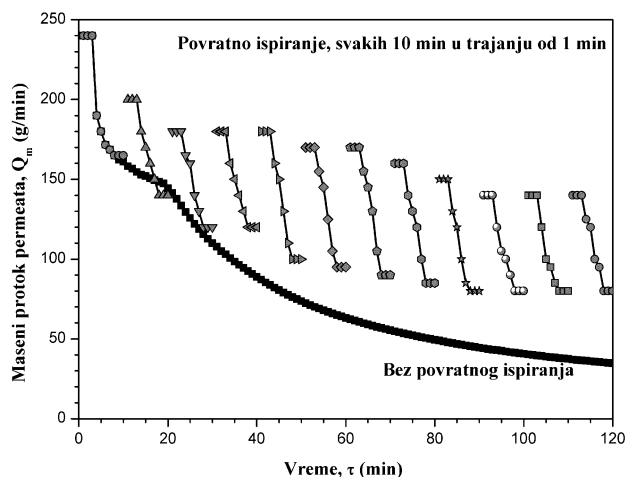
Prvi period visokog fluksa traje do vrednosti VCR oko 2, tj. prvih 10 – 15 minuta procesa, kao što je već navedeno (slika 4). Iz tog razloga je u eksperimentima, čiji su rezultati prikazani u ovom radu, povratno ispiranje izvođeno na svakih 10 minuta u trajanju od 1 i 3 minuta, tokom celog eksperimenta (svih 120 minuta).

Fluks permeata, odnosno maseni protok permeata, pri upotrebi periodičnog povratnog ispiranja na svakih 10 minuta, je stalno u visokoj zoni (slike 6 i 7). Pri tome se stacionarno stanje nikada ne uspostavlja. U svim eksperimentima u kojima je primenjeno periodično povratno ispiranje sakupljena masa permeata je veća od 71 do 74,5 % u odnosu na eksperimente sa istim radnim uslovima, samo bez primenjenog periodičnog povratnog ispiranja. Bez primene periodičnog povratnog ispiranja, optimalni transmembranski pritisak iznosi 2 bara (do stacionarnog stanja). Povišenjem pritiska iznad 2 bara dolazi do većeg uticaja negativnog efekta koncentracione polarizacije (komprimovanja gela na membrani i naglog porasta polarizacionog otpora) u odnosu na pozitivan uticaj porasta pogonske sile na fluks permeata. Primenom periodičnog povratnog ispiranja uklanja se negativni efekat



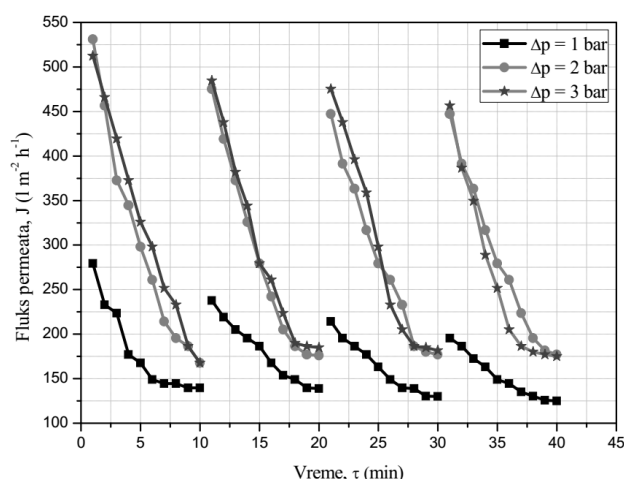
Slika 5. Zavisnost stacionarnog fluksa permeata, J_s i polarizacionog otpora membrane, R_p , od temperature, t za *Kerasesp* membranu, pri razlici pritiska od $\Delta p = 0,5$ bar i zapreminskom protoku retentata od $Q_v = 1$ l/min.

Figure 5. The steady flux of the permeate, J_s and polarization resistance of the membrane, R_p , as a function of the temperature, t for the *Kerasesp* membrane. The transmembrane pressure, Δp and feed flow rate, Q_v were 0.5 bar and 1 l/min, respectively.



Slika 6. Zavisnost masenog protoka permeata, Q_m , od vremena, τ , i primene periodičnog povratnog ispiranja (na svakih 10 min u trajanju od 1 min), za Kerasep membranu, pri različiti pritiscima od $\Delta p = 0,5$ bar, zapreminskom protoku retentata od $Q_v = 1$ l/min, temperaturi $t = 22^\circ\text{C}$ i VCR = 1.

Figure 6. The variation of mass flow rate of permeate, Q_m with time, τ and with air backwashing for 1 min every 10 minutes, for the Kerasep membrane. The transmembrane pressure, Δp , the feed flow rate, Q_v , the temperature, t and VCR were 0.5 bar, 1 l/min, 22°C and 1, respectively.



Slika 7. Promena fluksa permeata, J , u zavisnosti od vremena, τ , na tri različita transmembranska pritiska, pri periodičnom povratnom ispiranju na svakih 10 minuta u trajanju od 1 minuta, za Kerasep membranu, pri zapreminskom protoku retentata od $Q_v = 1$ l/min i temperaturi $t = 22^\circ\text{C}$.

Figure 7. The variation of permeate flux with time at three different transmembrane pressures, with gas backwashing for 1 min every 10 min, for the Kerasep membrane, at the temperature of $t = 22^\circ\text{C}$ and the feed flow rate of $Q_v = 1$ l/min.

komprimovanja gela na površini membrane, pri višim pritiscima, čime se stimuliše pozitivan efekat povišenja pogonske sile na fluks permeata (slika 7).

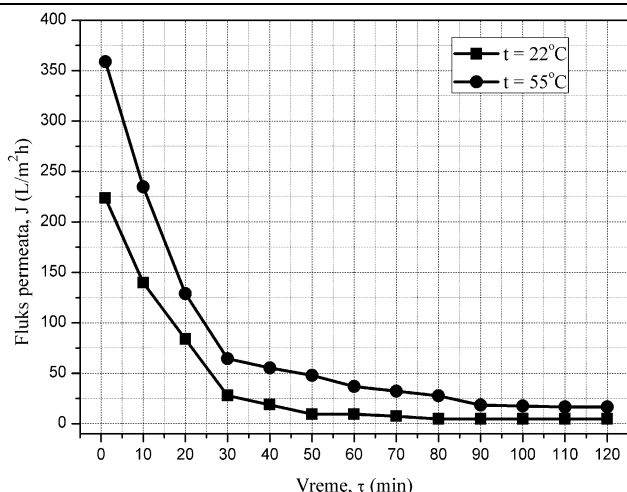
Fluks permeata, u eksperimentima bez periodičnog povratnog ispiranja, u stacionarnim uslovima je pri temperaturi retentata od 55°C veći nego na ispitivanih 22°C oko 2,5 puta (slika 5). Međutim, do stacionarnih uslova u kojima se i odvija periodično povratno ispiranje, fluks permeata je na temperaturi od 55°C veći za oko 20 % od fluksa permeata pri temperaturi od 22°C (slika 8). Iz navedenog se može zaključiti da će se pri temperaturi retentata od 55°C i sa primenjenim periodičnim povratnim ispiranjem, fluks permeata model rastvora voćnog soka povećati još za oko 20 %. Ovakvo povećanje fluksa permeata je značajno za industrijska postrojenja, jer može olakšati kontinualnost linije za proizvodnju koncentrata svih voćnih vrsta. Česti problem mikrofiltracionih postrojenja je ograničen kapacitet u odnosu na uređaje za koncentrisanje posle mikrofiltracije. Napori pumpi za postizanje visoke turbulencije retentata više nisu neophodni, jer specifična brzina napojnog rastvora više nije primarno bitna.

Primenom povratnog ispiranja na svakih 10 minuta u trajanju od 1 minuta, procenat povećanja sakupljene mase permeata je do 72,5 % u odnosu na ekperimente bez primenjenog povratnog ispiranja (slika 6). A ako se uporede eksperimenti u kojima je primenjeno periodično povratno ispiranje, u trajanju od 1 i 3 minuta, procenat povećanja sakupljene mase permeata iznosi do 5 % u eksperimentima u kojima je povratno ispiranje trajalo 3 minuta. Ovo povećanje od oko 5 %, takođe može imati značajnog uticaja na mikrofiltraciju u industrijskim uslovima (slika 9).

Fluks permeata model rastvora voćnog soka pri povratnom ispiranju koji na svakih 10 minuta procesa, traje 3 minuta, je veći za oko 2 % od fluksa permeata, kada povratno ispiranje traje 1 minut (slika 9). To povećanje nije značajno, ali je već napomenuto da u slučaju sakupljene mase permeata, dužina trajanja povratnog ispiranja utiče pozitivno, odnosno procenat povećanja sakupljene mase permeata ide do 5 %, što može biti značajno u industrijskim postrojenjima.

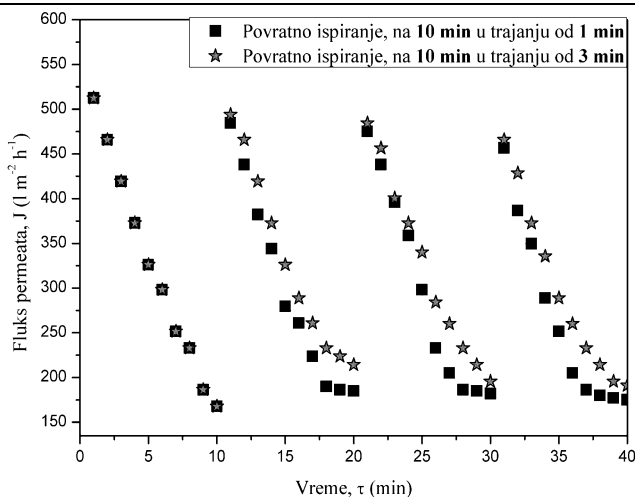
4. ZAKLJUČAK

Rezultati eksperimenata u kojima su korišćeni različiti transmembranski pritisci su pokazali da stacionarni fluks, odnosno stacionarni maseni protoci permeata, u stacionarnim uslovima, posle 60 minuta, imaju slične vrednosti ($Q_{ms} = 21,30 - 51,92$ g/min). S toga se može izvesti zaključak da je u stacionarnim uslovima nebitna vrednost primenjene pogonske sile. Međutim, do uspostavljanja stacionarnih uslova, pozitivan efekat koji daje porast pogonske sile, suprotstavljen je negativnom efektu, koji predstavlja povećanje polarizacionog otpora, kao posledica povećanja pogonske sile. Kao rezultat, maksimalan fluks, odnosno protok permeata se javlja pri različiti pritiscima od $\Delta p = 2$ bara.



Slika 8. Promena fluksa permeata, J , u zavisnosti od vremena, τ , pri različitim temperaturama, t , za Kerasep membranu, pri zapreminskom protoku retentata od $Q_V = 1$ l/min i razlici pritiska od $\Delta p = 0,5$ bar.

Figure 8. The variation of permeate flux with time at different temperatures for the Kerasep membrane, at the feed flow rate of $Q_V = 1$ l/min and transmembrane pressure of $\Delta p = 0.5$ bar.



Slika 9. Promena fluksa permeata, J , u zavisnosti od vremena, τ , pri periodičnom povratnom ispiranju na svakih 10 minuta u trajanju od 1 i 3 minuta za Kerasep membranu, pri zapreminskom protoku retentata od $Q_V = 1$ l/min, temperaturi $t = 22^\circ C$ i razlici pritiska od $\Delta p = 3$ bar.

Figure 9. The variation of permeate flux, J , with time, τ and with gas backwashing for 1 and 3 min every 10 min, for the Kerasep membrane, at the feed flow rate of $Q_V = 1$ l/min, temperature of $t = 22^\circ C$ and transmembrane pressure of $\Delta p = 0.5$ bar.

Kod primenjene Kerasep membrane hidraulički otpor membrane je mali ($R_m = 0,4960 \cdot 10^{-12}$ 1/m), pa se njegova vrednost može zanemariti u stacionarnim uslovima. Do uspostavljanja stacionarnih uslova, polarizacioni otpor brzo raste. U ukupnom otporu prenosu mase, polarizacioni otpor učestvuje sa preko 96 %, što znači da sva dešavanja u sekundarnom dinamičkom sloju na membrani predstavljaju kompletan otpor prenosu mase pri mikrofiltraciji sokova kroz Kerasep membranu.

Rezultati ispitivanja variranja zapreminskog protoka retentata su pokazali da on nema uticaj na fluks permeata. Iako je u pitanju unakrsna filtracija, specifične brzine strujanja retentata koje se postižu su jako male, svega 0,35 m/s, pa efekat unakrsne tehnike izostaje. Razlog za to je ograničenje korišćene aparature i velika površina membrane.

Optimalna temperatura bistrenja voćnih sokova mikrofiltracijom je $55^\circ C$. Sa porastom temperature model rastvora voćnog soka od $22^\circ C$ do $55^\circ C$, ostvaruje se porast fluksa permeata od oko 60 %.

Uvođenjem periodičnog povratnog ispiranja sprečava se uspostavljanje stacionarnog stanja pri vrlo niskim fluksevima permeata. Stacionarno stanje se uspostavlja posle jednog sata, pa dalji rad mikrofiltera zahteva višečasovno bistrenje sokova pri niskim fluksevima. Sa povratnim ispiranjem skraćuje se vreme bistrenja, a time i svi prateći troškovi. Kratkotrajnim povratnim ispiranjem na svakih 10 minuta, moguće je ostvariti procenat povećanja sakupljene mase permeata do 72,5 %. A povećanjem vremena trajanja povratnog ispiranja sa 1 na 3 minuta, moguće je postići povećanje fluksa permeata od oko 2 %. Samim tim ovu tehniku je svakako preporučljivo primeniti pri mikrofiltraciji u proizvodnji voćnih sokova.

REFERENCES

- [1] Baker RW. *Membrane Technology and Applications*. 2nd ed. New York, NY: John Wiley & Sons; 2004.
- [2] Vasiljšin L, Grubačić M. The effect of different ways clarification on the quality of concentrated apple juice. *J. Yugoslav Pomology*. 2003; 163-167.
- [3] Girard B, Fukumoto LR. Membrane processing of fruit juices and beverages: a review. *Crit. Rev. Food Sci. Nutr.* 2000; 40: 91-157.
- [4] Mondor M, Girard B, Moresoli C. Modeling flux behaviour for membrane filtration of apple juice. *Food Res. Int.* 2000; 33: 539-548.
- [5] Su SK, Liu JC, Wiley RC. Cross-flow microfiltration with gas backwashing of apple juice. *J. Food Sci.* 1993; 58: 638-641.
- [6] Padilla-Zakour O, McLelln MR. Optimization and modelling of apple juice cross-flow microfiltration with ceramic membrane. *J. Food. Sci.* 1993; 58: 369-388.
- [7] Vladislavljević GT, Vukosavljević P, Veljović MS. Clarification of red raspberry juice using microfiltration with gas backwashing: A variable strategy to maximize permeate flux and minimize a loss of anthocyanins. *Food Bioprod. Process.* 2013; 91: 473-480.

- [8] Gupta BB, Blanpain P, Jaffrin MY. Permeate flux enhancement by pressure and flow pulsations in microfiltration with mineral membranes. *J. Membr. Sci.* 1992; 70: 257-266.
- [9] Laorko A, Li Z, Tongchitpakdee S, Youravong W. Effect of gas sparging on flux enhancement and phytochemical properties of clarified pineapple juice by microfiltration. *Sep. Purif. Technol.* 2011; 80: 445-451.
- [10] Fouladitajar A, Zokaee F, Rezaei H, Kargari A. Gas sparging to enhance permeate flux and reduce fouling resistances in cross-flow microfiltration. *J. Ind. Eng. Chem.* 2014; 20: 624-632.
- [11] Pal S, Ambastha S, Ghosh TB, De S, Gupta SD. Optical evaluation of deposition thickness and measurement of permeate flux enhancement of simulated fruit juice in presence of turbulence promoters. *J. Membr. Sci.* 2008; 315: 58-66.
- [12] Sarkar B, De S, Gupta SD. Pulsed electric field enhanced ultrafiltration of synthetic and fruit juice. *Sep. Purif. Technol.* 2008; 63: 582-591.
- [13] Sarkar B, Gupta SD, De S. Cross-flow electro-ultrafiltration of mosambi (*Citrus Sinensis* (L.) Osbeck) juice. *J. Food Eng.* 2008; 89: 241-245.
- [14] Rai P, Majumdar GC, Gupta SD, De S. Effect of various pretreatment methods on permeate flux and quality during ultrafiltration of mosambi juice. *J. Food Eng.* 2007; 78 (2): 561-568.
- [15] Youn KS, Hong JH, Bae DH, Kim SJ, Kim SD. Effective clarifying process of reconstituted apple juice using membrane filtration with filter-aid pretreatment. *J. Membr. Sci.* 2004; 228: 179-186.
- [16] Vladislavljević GT. Ispitivanje ultrafiltracije koloidnih rastvora na modelu nekih neorganskih oksida. Magistarska teza. TMF, Beograd. 1992. (in Serbian)
- [17] Simonović D, Vuković D, Cvijović S, Končar S. *Tehnološke operacije I – Mehaničke operacije*. TMF, Beograd. 1989. (in Serbian)
- [18] Wagner J. *Membrane Filtration Handbook, Practical tips and hints*. 2nd ed. Osmonics Inc. 2001.
- [19] Field RW, Wu D, Howell JA, Gupta BB. Critical flux concept for microfiltration fouling. *J. Membr. Sci.* 1995; 100: 259-272.
- [20] Field RW, Pearce GK. Critical, sustainable and threshold fluxes for membrane filtration with water industry applications. *Adv. Coll. Int. Sci.* 2011; 164: 38-44.
- [21] Constenla DT, Iazano JE. Hollow fibre ultrafiltration of apple juice: Macroscopic approach. *Lebensm. Wiss. U. Technol.* 1997; 30: 373-378.
- [22] Bruijn J, Bórquez R. Analysis of the fouling mechanisms during cross-flow ultrafiltration of apple juice. *LWT.* 2006; 39: 861-871.
- [23] Fukumoto LR, Delaquis P, Girard B. Microfiltration and ultrafiltration ceramic membranes for apple juice clarification. *J. Food. Sci.* 1998; 63: 845-850.

SUMMARY

MICROFILTRATION WITH PERIODIC GAS BACKWASHING AS AN ALTERNATIVE TECHNIQUE FOR INCREASING PERMEATE FLUX

Tijana Urošević¹, Dragan Povrenović², Predrag Vukosavljević¹, Ivan Urošević¹

¹*Faculty of Agriculture, University of Belgrade, Belgrade, Serbia*

²*Faculty of Technology and Metallurgy, University of Belgrade, Belgrade, Serbia*

(Scientific paper)

In this paper, the influence of operating parameters (transmembrane pressure, temperature, the flow rate of retentate) on the cross - flow microfiltration of synthetic fruit juice and periodic backwashing with air was examined. In the experiments, the Kerasep W5 ceramic membrane with a separation limit of 0.2 μm was used. The results of experiments in which different transmembrane pressures were used showed that stationary fluxes, at stationary conditions, after 60 minutes, have similar values. So, it can be concluded that the value of the driving force is irrelevant at steady state conditions. However, until the steady state conditions are established, a positive effect of the increase in the driving force is opposed to the negative effect of the increased polarization resistance, as a result of the driving force increase. Thus, the optimal transmembrane pressure was determined amounting to 2 bars. The optimum temperature of the process of clearing the fruit juices by microfiltration is reported as 55 °C. Higher temperatures are not used due to a degrading effect on the chemical composition of the juice and a long microfiltration process. With an increase in the temperature of retentate from 22 °C to 55 °C, the permeate flux increased up to 60 %. Increasing the flow rate of retentate reduces the thickness of the formed layer on the surface of the membrane. Due to limitations of the experimental setup and the large surface area of the membrane, the specific velocity of the retentate was low, so that the effects of cross-flow filtration were absent. The use of cross-flow filtration is one of the main requirements for increasing permeate flux, but in the present case it was in overall insufficient, so we have applied periodic air backwashing for improving fruit juice flux during membrane clarification. With this technique, the deposited layer on the membrane is lifted and the permeate flux is maintained at high levels preventing establishment of the steady state in the low flux zone. The time spent for the periodic backwashing was low as compared to the benefits of the increase in the collected permeate quantity. In all experiments with periodic backwashing with air, the collected permeate quantity is higher for up to 72.5 % as compared to experiments without backwashing. By increasing the backwashing duration, the flux increase is up to 5 %, which can be significant for microfiltration at industrial scale. Therefore, this technique is certainly recommended for microfiltration in the production of fruit juices.

Keywords: microfiltration • backwashing with air • synthetic fruit juice