

正渗透技术浓缩苹果汁的工艺研究

薛健¹, 金丽梅^{1,2,3*}, 孟令伟¹, 孙清瑞¹, 隋世有⁴, 蒲娜娜¹, 张建强¹

(1. 黑龙江八一农垦大学 食品学院, 大庆 163319; 2. 黑龙江省农产品加工工程技术研究中心, 大庆 163319; 3. 国家杂粮工程技术中心, 大庆 163319; 4. 黑龙江八一农垦大学 图书馆, 大庆 163319)

摘要: 正渗透(FO)技术浓缩果汁具有能耗低且能有效保留果汁中营养成分和香气等优势。本研究以苹果汁为原料,在单因素实验的基础上开展 Box-Behnken 响应面实验,考察了汲取液种类和组分、料液流速、温度对 FO 浓缩过程中膜通量和反向溶质通量的影响,进行了工艺参数优化,并对比研究了不同化学清洗对膜通量恢复率的影响。结果表明:当使用苹果汁为原料液时,较优的 FO 浓缩工艺为:以葡萄糖和柠檬酸钾(体积比 3:1)混合溶液作为汲取液,料液流速为 12 L/h,温度为 27 °C,此时膜通量为 6.938 L/(m²·h),反向溶质通量为 0.235 mol/(m²·h)。采用 NaOH、NaClO、柠檬酸等化学清洗效果较好,其中 5%(质量分数)柠檬酸对苹果汁污染膜清洗效果最佳,此时膜通量恢复率为 83.67%。本研究旨在为 FO 技术在果汁浓缩领域的应用提供技术参考。

关键词: 正渗透膜; 两性离子; 苹果汁; 浓缩; 膜清洗

中图分类号: TQ028.8; TS209 **文献标志码:** A **文章编号:** 1007-8924(2025)05-0143-11

doi: 10.16159/j.cnki.issn1007-8924.2025.05.014

果汁中含有多糖、维生素、矿物质和多酚等生物活性物质,深受消费者喜爱,而浓缩果汁因其体积小、货架期长以及贮运成本低等优势,正逐渐成为果汁产品的主要形式^[1]。目前,果汁浓缩技术包括真空蒸发^[2]、冷冻浓缩^[3]和膜浓缩等^[4-6]。膜浓缩技术在维持果汁的营养成分及品质方面具有显著优势^[7-10],特别是正渗透(FO)浓缩无需外加压力,能耗低且操作简便、膜污染低^[11-12],同时对热敏性成分、香气和风味的破坏较小^[13-15],在果汁浓缩领域具有广阔的应用前景。

FO 浓缩果汁过程中,膜材料、汲取液种类及浓度、料液流速和温度等是影响浓缩效果的重要因素^[16]。Rastogi 等^[17]以 6 mol/L NaCl 溶液为汲取

液,使用 CTA-FO 膜对甜橙汁进行 24 h 浓缩,甜橙汁中可溶性固形物含量(SSC)由 11 °Brix 增至 50 °Brix。Kim 等^[18]以 2 mol/L 葡萄糖溶液为汲取液,使用 TFC-FO 膜对葡萄汁浓缩 100 h 后,其 SSC 值由 12 °Brix 增至 61.4 °Brix。任宋萍^[19]分别使用 TFC-FO 膜和 CTA-FO 膜用于苹果汁浓缩,结果表明上述两种膜的通量均在 12 L/(m²·h)左右,但前者的反向溶质通量是后者的 2 倍。Garcia-Castello 等^[20]分别以 2 mol/L 和 4 mol/L NaCl 溶液为汲取液对橙皮榨汁液进行浓缩,其浓度分别提升了 2.2 倍和 3.7 倍。Kim 等^[21]采用蔗糖为汲取液对木糖醇溶液进行浓缩,研究发现随着蔗糖浓度增加,溶质扩散速度减慢后引起内浓差极化现象,进

收稿日期: 2025-04-28; 修改稿收到日期: 2025-05-24

基金项目: 黑龙江省自然科学基金联合引导项目(LH2023B019)

第一作者简介: 薛健(1999-),女,硕士研究生,研究方向为农产品加工及贮藏。* 通讯作者, E-mail: jilinwa@126.com

引用本文: 薛健,金丽梅,孟令伟,等. 正渗透技术浓缩苹果汁的工艺研究[J]. 膜科学与技术, 2025, 45(5): 143-152, 161.

Citation: Xue J, Jin L M, Meng L W, *et al.* Research on the process of concentrating apple juice using forward osmosis technology[J]. Membrane Science and Technology(Chinese), 2025, 45(5): 143-152, 161.

而导致膜通量降低。此外,研究表明提高温度能够显著提升 FO 的透水性能和溶质扩散系数,但对汲取液溶质的截留能力下降^[22]。

目前,果汁浓缩领域中应用的膜材料主要有醋酸纤维素膜^[23]、薄层复合聚酰胺膜^[24]和聚丙烯中空纤维膜^[25]等。然而,果汁成分复杂,特别是糖和果胶等物质极易附在膜表面造成膜污染^[26]。两性离子膜作为一种新型膜材料,因其结构中阴、阳离子间存在的强库仑相互作用力^[27-28],能够与水分子形成牢固的静电结合,构建出稳定且致密的水化层^[29],从而表现出优异的抗污染性能,在水处理领域和果汁浓缩等食品加工领域都具有显著的应用潜力。

因此,本研究采用两性离子 FO 膜浓缩苹果汁,考察了汲取液种类及组分、温度和料液流速等参数对苹果汁浓缩过程的影响,优化了最佳浓缩工艺条件,并进一步优化膜清洗方案。本研究旨在为 FO 浓缩果汁工艺提供一定的技术参考。

1 材料与方 法

1.1 材料与仪器

实验室自制两性离子 FO 膜[以聚醚砜超滤膜为支撑膜,通过界面聚合在聚酰胺(PA)层引入柠檬酸甜菜碱];聚酰胺-胺(PAMAM)树状分子,威海晨源分子材料有限公司;无水哌嗪(PIP),上海麦克林生化科技股份有限公司;1,3,5-均苯三甲酰氯,

梯希爱化成工业发展有限公司;正己烷,上海麦克林生化科技股份有限公司;柠檬酸甜菜碱,上海阿拉丁生化科技股份有限公司;氯化钠、葡萄糖、氢氧化钠、苯甲酸钠,辽宁泉瑞试剂有限公司;柠檬酸钠,天津市众联化学试剂有限公司;柠檬酸钾、双乙酸钠,山东科源生化有限公司;无水碳酸钠,国药集团化学试剂有限公司;柠檬酸,天津市致远化学试剂有限公司;试剂均为分析纯。汇源苹果汁,大庆市售。

JD4000-2 型电子天平,沈阳龙腾电子有限公司;79-1 型磁力加热搅拌器,常州市金坛大地自动化仪器厂;WT3000-1JB-A 型齿轮泵,保定兰格恒流泵有限公司;JENCO 6350 型电导率仪,上海鑫嵩实业有限公司;LZB-10 型流量计,沈阳北星仪表制造有限公司;DK-98-II A 型电热恒温水浴锅,天津市泰斯特仪器有限公司;BGZ-76 型电热鼓风干燥箱,上海博迅医疗生物仪器股份有限公司。

1.2 实验装置

如图 1 所示,膜池的有效膜面积为 19.25 cm² (长 7.7 cm×宽 2.5 cm),该实验装置两侧设有矩形流道,分别为流动的汲取液和原料液的矩形流道,在齿轮泵作用下同速同向循环。待两侧流速稳定后,采用电子天平收集汲取液质量变化,并进行通量计算;通过电导率仪测定原料液的电导率变化,计算反向溶质扩散通量。

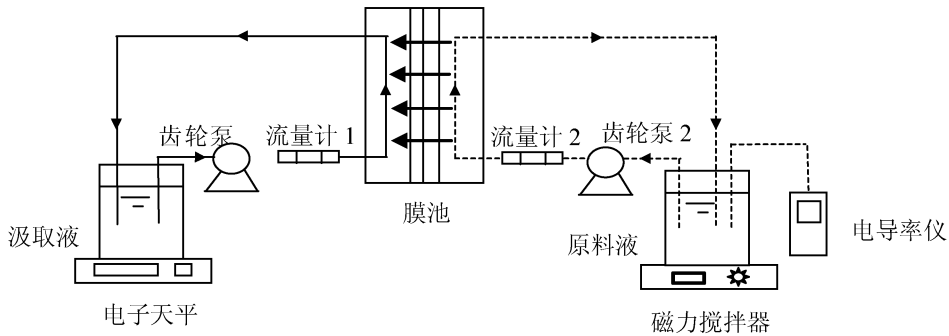


图 1 正渗透过程实验装置图

Fig. 1 Illustration of the experimental setup for the forward osmosis process

1.3 实验方法

1.3.1 两性离子正渗透膜制备

首先在超滤支撑膜表面通过界面聚合形成聚酰胺(PA)层,再在 PA 层上引入柠檬酸甜菜碱活性层,具体过程为:首先将聚醚砜超滤膜(MWCO 为 100 000)浸入 0.2%(质量分数)PAMAM 树状大分

子与 0.1%(质量分数)PIP 的混合水溶液中 2 min,取出沥干表面水分;随后,将膜片浸入含 0.3%(质量分数)TMC 的正己烷溶液中 90 s 完成界面聚合,取出室温晾干后将其浸入 0.2%(质量分数)柠檬酸甜菜碱溶液中 2 min,将膜片置于 80 °C 电热恒温干燥箱中处理 20 min 后用大量去离子水冲洗膜表面,

将上述 FO 膜保存于去离子水中备用。

1.3.2 两性离子 FO 膜性能测定

以纯水作为原料液,汲取液为 2 mol/L 的氯化钠溶液,控制料液流速为 16 L/h,室温条件下浓缩 30 min,将两性离子 FO 膜的活性层分别朝向原料液侧(FO 模式)和汲取液侧(PRO 模式)放置,对比不同膜方位的膜通量及反向溶质扩散通量。

1.3.3 汲取液种类筛选

将本研究制备的两性离子 FO 膜正面朝向原料液置于膜池中,在原料液侧放置 1 L 苹果汁(浓缩苹果汁与水 1:1 稀释),左侧分别使用浓度为 1mol/L 的氯化钠、碳酸钠、双乙酸钠、柠檬酸钾、柠檬酸钠、葡萄糖、苯甲酸钠溶液各 1 L 用于汲取液的筛选,其中两侧料液流速为 16 L/h,在温度为 22 ℃ 的条件下浓缩 30 min,对比不同种类汲取液的膜通量及反向溶质通量,筛选出适用于苹果汁浓缩的汲取液。

1.3.4 正渗透浓缩苹果汁单因素实验

在 FO 浓缩过程中,首先将 FO 膜正面朝向原料液侧夹在膜池中,以苹果汁(浓缩苹果汁与水 1:1 稀释)为原料,以葡萄糖和柠檬酸钾混合溶液为汲取液,分别研究汲取液的组成、料液流速、温度对苹果汁浓缩过程中的膜通量和反向溶质通量的影响。

其中汲取液组成对苹果汁浓缩效果的影响:固定料液流速 16 L/h,温度 26 ℃,调整葡萄糖与柠檬酸钾体积比分别为 1:1、2:1、3:1、4:1、5:1;料液流速对苹果汁浓缩效果的影响:固定葡萄糖和柠檬酸钾体积比 3:1,温度 26 ℃,调整膜两侧料液流速分别为 10、12、14、16、18 L/h;温度对苹果汁浓缩效果的影响:固定葡萄糖和柠檬酸钾体积比为 3:1,料液流速为 12 L/h,调整温度 18、22、26、30、34 ℃。在上述条件下,对苹果汁进行 30 min 浓缩,研究上述不同因素不同水平对膜通量和反向溶质通量的影响。

1.3.5 响应面实验

在上述单因素实验的基础上,以葡萄糖与柠檬酸钾体积比、料液流速、温度 3 个因素为自变量,以膜通量为响应值,采用 Box-Behnken 模型设计三因素三水平的响应面分析实验,优化正渗透浓缩苹果汁的最佳工艺,响应面实验安排见表 1。

1.3.6 膜清洗

将本研究制备的两性离子 FO 膜置于膜装置中,将其正面朝向原料液侧放置,在原料液侧放置 1 L 苹果汁(浓缩苹果汁与水 1:1 稀释),左侧以 1 L

1 mol/L 葡萄糖和柠檬酸钾混合溶液(体积比 3:1)为汲取液,在两侧料液流速为 12 L/h、温度为 26 ℃ 的条件下浓缩 4 h,测定膜通量。

将污染膜取出后分别在 0.05% (质量分数) NaOH、0.01 mol HCl、10% (体积分数) NaClO、5% (质量分数) 柠檬酸溶液中浸泡 5 min 和在 20% (质量分数) Na₂CO₃ 溶液中浸泡 10 min 后,用去离子水冲洗至 pH 为 7。然后将清洗后膜重新放置于膜池中,按未清洗前设置苹果汁浓缩条件,重复上述实验,浓缩 30 min 后测其膜通量。计算清洗后膜通量恢复率,筛选最优清洗方法。

表 1 响应面实验因素水平
Table 1 The factors and levels of response surface methodology

水平	因素		
	A 葡萄糖与 柠檬酸钾体积比	B 料液流速/ (L·h ⁻¹)	C 温度/ ℃
-1	2:1	10	22
0	3:1	12	26
1	4:1	14	30

1.4 指标测定及计算

1) 膜通量

FO 过程中根据汲取液侧质量的变化来计算膜通量,计算公式如下:

$$J_w = \frac{\Delta W}{S t}$$
 (1)

式中: J_w 为膜通量, L/(m²·h); ΔW 为汲取液质量的增量, kg; S 为膜的有效面积, m²; t 为运行时间, h。

2) 反向溶质通量

反向溶质通量^[30]的计算公式如下:

$$J_s = \frac{\Delta C \times V_t}{A t}$$
 (2)

式中: J_s 为反向溶质通量, mol/(m²·h); ΔC 为原料液侧溶质浓度的增加量, mol/L; V_t 为 t 时刻原料液的体积, L; A 为膜的有效面积, m²; t 为渗透时间, h。

3) 膜清洗效果评价

通量恢复率(%)用以下公式计算:

$$\text{通量恢复率} = \frac{J}{J_0} \times 100\%$$
 (3)

式中: J 为膜清洗后的膜通量, L/(m²·h); J_0 为清洗前的膜通量, L/(m²·h)。

1.5 数据处理

使用 Excel 2016 进行数据的统计与初步处理,通过 Design-Expert 13.0 进行响应面实验的设计与分析,采用 SPSS 26.0 进行显著性分析,利用 Origin 2021绘制实验的柱状图,所有实验数据均为 3 个平行测试的平均值。

2 结果与分析

2.1 两性离子 FO 膜性能测定

膜通量和反向溶质扩散通量常用于表征 FO 膜的分离性能,通常以反向溶质扩散通量与膜通量的比值(J_s/J_w)评价 FO 膜的渗透性能^[31]。两性离子 FO 膜在不同膜方位的膜通量、反向溶质扩散通量的测试结果如图 2 所示。由图 2 可知,两性离子膜在 FO 模式和 PRO 模式下的膜通量分别为 6.66 和 6.95 L/(m² · h),反向溶质扩散通量分别为 0.297 和 0.500 mol/(m² · h)。研究发现,在 FO 模式下膜通量略低于 PRO 模式,这是由于存在内浓差极化现象,导致两侧渗透压降低,进而膜通量降低^[32-33]。此外,PRO 模式下 J_s/J_w 比值是 FO 模式的 1.6 倍。这是由于在 PRO 模式下,溶质容易在膜表面及孔隙内富集并沉积,导致膜表面溶质浓度升高,从而加剧外浓差极化,进而促进溶质的反向扩散。综上所述,FO 模式与 PRO 模式膜通量接近,且 FO 模式下反向溶质通量较低,故后续实验以 FO 模式为主。

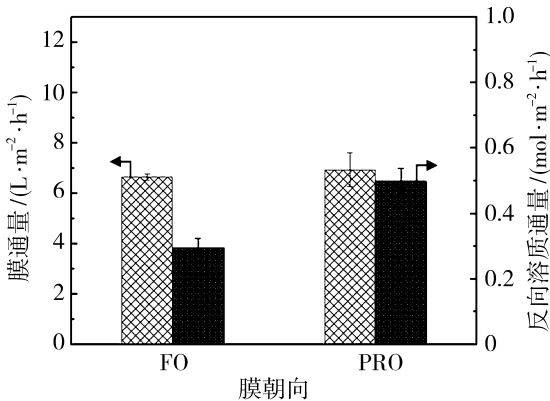
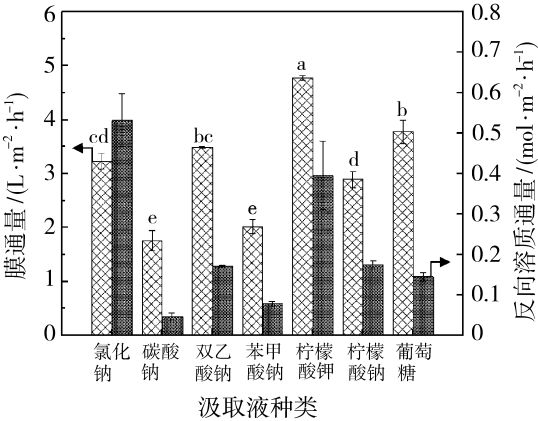


图 2 膜方位对两性离子 FO 膜性能的影响
Fig. 2 The effect of of membrane orientation on the performance of zwitterionic FO membranes

2.2 汲取液种类筛选

由图 3 和图 4 可知,在果汁浓缩过程中,以氯化钠、双乙酸钠和柠檬酸钾为汲取液时,膜通量分别为为 3.23、3.49 和 4.77 L/(m² · h),但反向溶质扩散



注:标有 a、b、c 的值有显著差异($P<0.05$),以下同
图 3 不同种类汲取液对苹果汁浓缩的影响
Fig. 3 The influence of different draw solutions on apple juice concentration

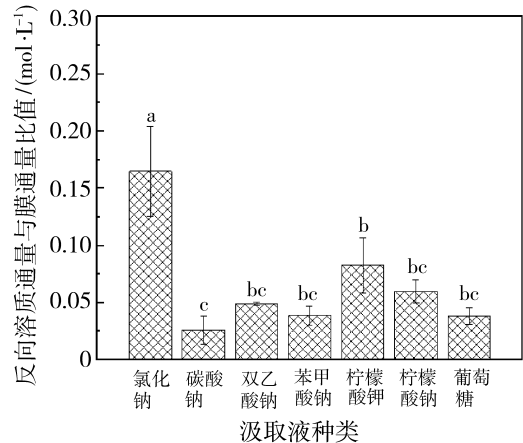


图 4 不同汲取液对 J_s/J_w 比值的影响
Fig. 4 The effect of different draw solutions on the J_s/J_w ratio

通量偏高,分别为 0.533、0.171 和 0.396 mol/(m² · h),同时氯化钠和柠檬酸钾的 J_s/J_w 比值较高,分别为 0.165 和 0.083 mol/L,这可能是由于无机盐类小分子容易通过反向扩散进入到苹果汁中,导致盐溶质在苹果汁中积累,进而降低果汁品质^[34]。而当有机物(葡萄糖)作为汲取液时,膜通量为 3.781 L/(m² · h),反向溶质扩散通量为 0.145 mol/(m² · h),其 J_s/J_w 比值为 0.038 mol/L。由此说明,与盐类汲取液相比,葡萄糖作为汲取液时具有较低反向溶质扩散现象,但由于两侧溶液渗透压较低,可能需要较高浓度才能达到理想的通量。但随着汲取液中糖浓度增加,大分子溶质在膜支撑层中的扩散过程较为困难,进而发生内浓差极化,膜通量降低^[35]。此外,碳酸钠和柠檬酸钠作为汲取液时, J_s/J_w 比值

较低,分别为 0.026 和 0.06 mol/L,此时膜通量与反向溶质扩散程度相对较低,在一定程度上限制了苹果汁的浓缩效率。而苯甲酸钠作为常见的防腐剂,可能会反向扩散进入苹果汁中,进而影响苹果汁的品质。因此,本实验采用葡萄糖与柠檬酸钾混合溶液为汲取液,以减轻单一汲取液可能引起的通量降低以及反向扩散问题。

2.3 单因素实验

2.3.1 汲取液组分对果汁浓缩效果的影响

由图 5 和图 6 可知,在 FO 浓缩苹果汁过程中,随着葡萄糖比例增加,膜通量呈现先上升后下降的趋势, J_s/J_w 的比值呈先降低后升高的趋势。当汲取液为葡萄糖-柠檬酸钾(体积比 3:1)混合溶液时,膜通量达到最高值 5.731 L/(m²·h),反向溶质扩散通量为 0.137 mol/(m²·h),此时, J_s/J_w 的比值为 0.024 mol/L。研究发现,当汲取液为葡萄糖-柠檬酸钾(体积比 4:1)混合溶液时, J_s/J_w 的比值上升为 0.227 mol/L,增长了 8.5 倍。这可能由于随着汲取液中葡萄糖浓度增加,溶液两侧渗透压差增加,能有效增强渗透性能,从而促进了溶质的扩散,进而使膜通量及反向溶质扩散通量均增加。而随着汲取液中葡萄糖浓度过高时,汲取液黏度增加,导致溶质在膜表面的流动性变差,同时糖盐溶质会堵塞膜孔,这会导致浓差极化现象加剧,导致反向溶质扩散的阻力增加,进而降低了膜通量和反向溶质扩散通量^[36]。Kim 等^[21]使用过高浓度蔗糖作为汲取液对木糖醇溶液进行浓缩,会导致大分子溶质不易通过膜快速扩散,从而进一步加剧内浓差极化现象,这与本实验结果相一致。

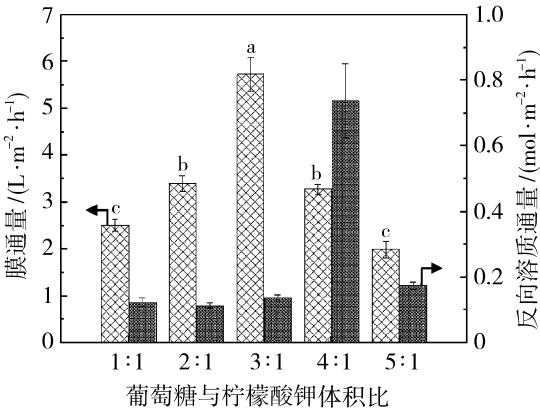


图5 葡萄糖与柠檬酸钾体积比对苹果汁浓缩的影响
Fig. 5 The effect of the volume ratio of glucose to potassium citrate on apple juice concentration

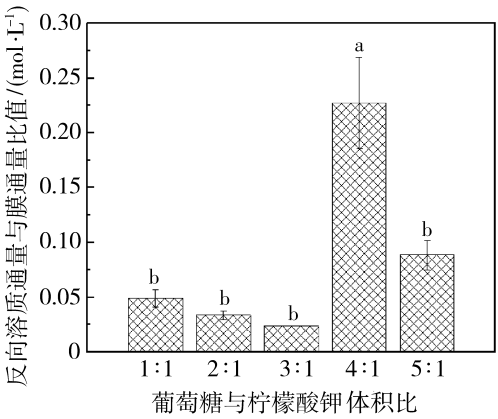


图6 葡萄糖与柠檬酸钾体积比对 J_s/J_w 比值的影响
Fig. 6 The effect of the volume ratio of glucose to potassium citrate on the J_s/J_w ratio

2.3.2 料液流速对果汁浓缩效果的影响

如图 7 和图 8 所示,随着料液流速增加,膜通量呈现先上升后下降的趋势, J_s/J_w 比值呈先下降后上升再下降趋势。结果表明,当料液流速为 12 L/h 时,膜通量最高,为 4.288 L/(m²·h),反向溶质扩散通量为 0.147 mol/(m²·h), J_s/J_w 比值为 0.034 mol/L。而当料液流速为 18 L/h 时,膜通量降至 1.65 L/(m²·h),反向溶质扩散通量为 0.052 mol/(m²·h), J_s/J_w 比值较 12 L/h 略微降低。这可能是由于当料液流速较低时,汲取液中的溶质较易附着在膜表面,导致溶质堆积堵塞膜孔,从而降低膜通量。而随着流速增加,汲取液中溶质在膜表面停留时间缩短,减少了溶质对膜表面的直接推力,从而减轻溶质扩散现象^[37],故 J_s/J_w 值降低。但过高流速也可能导致苹果汁中的糖、果胶等物质在膜表面形成较厚的滤饼层,加剧膜污染,进而降低膜通量。因

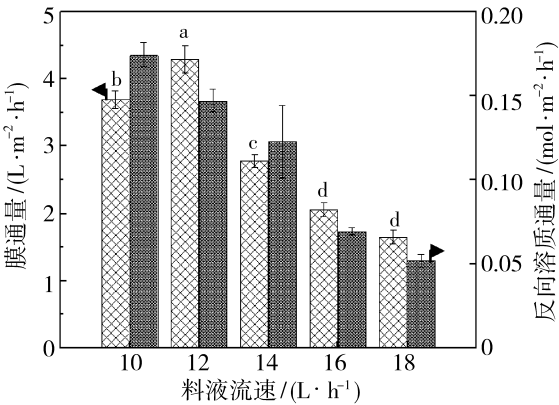


图7 料液流速对苹果汁浓缩的影响
Fig. 7 The effect of feed flow rate on apple juice concentration

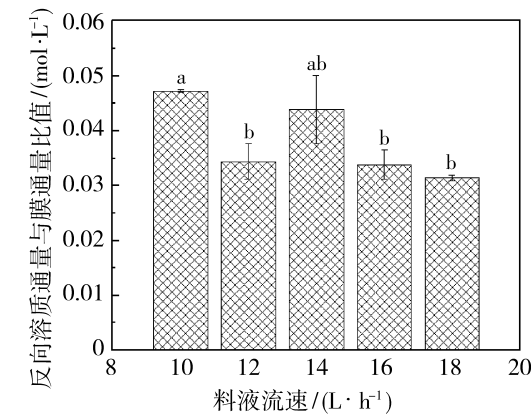


图 8 料液流速对 J_s/J_w 比值的影响

Fig. 8 The effect of feed flow rate on the J_s/J_w ratio
此,采用料液流速为 12 L/h 对苹果汁进行浓缩。

2.3.3 温度对果汁浓缩效果的影响

如图 9 和图 10 所示,随着温度上升,膜通量呈现先上升后下降的趋势,而 J_s/J_w 比值呈现上升趋势。当系统温度为 26 ℃ 时,膜通量最高,为

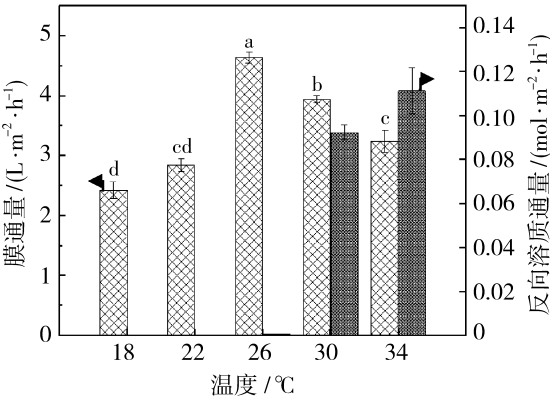


图 9 温度对苹果汁浓缩的影响

Fig. 9 The effect of temperature on apple juice concentration

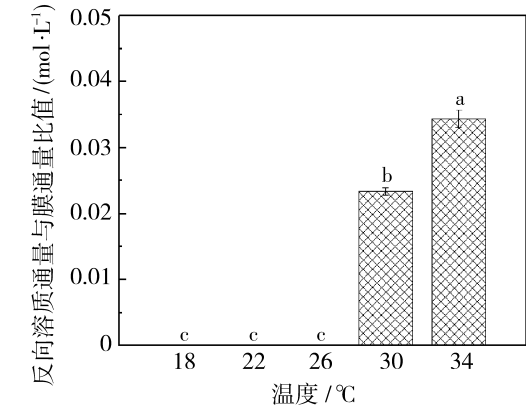


图 10 温度对 J_s/J_w 比值的影响

Fig. 10 The effect of temperature on the J_s/J_w ratio

4.64 L/(m²·h),反向溶质扩散通量为 5.65×10⁻⁴ mol/(m²·h),此时 J_s/J_w 的比值为 1.22×10⁻⁴ mol/L,而当系统温度为 34 ℃ 时, J_s/J_w 的比值增加至 0.034 mol/L,这是由于随着温度增加,FO 系统中两侧溶液的黏度降低,从而减少水分子透过膜表面的阻力,进而提高膜通量。同时,温度增加使分子运动速度加快,导致溶质扩散速率加快,进一步导致反向溶质扩散通量逐渐增加。Hawari 等^[38]研究表明当汲取液温度由 20 ℃ 增加到 26 ℃ 时,膜通量升高了 93.3%,然而当汲取液的温度超过 26 ℃ 时,膜通量逐渐下降。与本实验结果相似。此外,温度过高可能会导致苹果汁浑浊且品质下降。故当温度为 26 ℃ 时,苹果汁的浓缩效果最佳。

2.4 响应面实验

2.4.1 响应面设计与结果

在单因素实验的基础上,使用响应面分析法进一步优化果汁浓缩工艺参数。依据 Design-Expert 13.0 软件中的 Box-Behnken 实验设计原理,选取葡萄糖与柠檬酸钾体积比(A)、料液流速(B)、温度(C)3 个因素为自变量,以膜通量作为响应值,实验设计及实验结果见表 2 和表 3。

表 2 Box-Behnken 实验的设计及结果

Table 2 The design and results of Box-Behnken experiment

实验号	A 葡萄糖与 柠檬酸钾 体积比	B 料液流速/ (L·h ⁻¹)	C 温度/℃	膜通量/ (L·m ⁻² · h ⁻¹)
1	2	10	26	4.18±0.04
2	4	10	26	2.26±0.21
3	2	14	26	2.48±0.18
4	4	14	26	2.26±0.34
5	2	12	22	3.07±0.15
6	4	12	22	2.01±0.12
7	2	12	30	3.89±0.13
8	4	12	30	3.14±0.16
9	3	10	22	3.79±0.11
10	3	14	22	3.23±0.21
11	3	10	30	5.53±0.02
12	3	14	30	3.38±0.09
13	3	12	26	6.87±0.18
14	3	12	26	7.79±0.42
15	3	12	26	6.94±0.16
16	3	12	26	6.89±0.29
17	3	12	26	7.16±0.05

表 3 回归模型方差分析结果
Table 3 The results of the analysis of variance for the regression model

方差来源	平方和	自由度	均方差	F 值	P 值	显著性
模型	63.45	9	7.05	66.68	< 0.000 1	* *
A	1.94	1	1.94	18.32	0.003 7	* *
B	2.42	1	2.42	22.93	0.002 0	* *
C	1.86	1	1.86	17.57	0.004 1	* *
AB	0.717 7	1	0.717 7	6.79	0.035 1	*
AC	0.023 5	1	0.023 5	0.2221	0.651 8	
BC	0.631 1	1	0.631 1	5.97	0.044 5	*
A ²	29.51	1	29.51	279.15	< 0.000 1	* *
B ²	12.02	1	12.02	113.66	< 0.000 1	* *
C ²	8.95	1	8.95	84.61	< 0.000 1	* *
残差	0.740 1	7	0.105 7			
失拟项	0.142 8	3	0.047 6	0.318 8	0.812 6	不显著
纯误差	0.597 3	4	0.149 3			
总离差	64.19	16				

注：* 表示差异显著($P<0.05$)；* * 表示差异极显著($P<0.01$)。

各因素对膜通量的响应回归方程为 $Y=7.13-0.492\ 1A-0.550\ 5B+0.481\ 9C+0.423\ 6AB+0.076\ 6AC-0.397\ 2BC-2.65A^2-1.69B^2-1.46C^2$,从表 3 可以看出,该模型为极显著($P<0.01$),且失拟项不显著($P>0.05$),说明该模型用于 FO 浓缩苹果汁的工艺优化具有可靠性。由表 3 可以看出,影响正渗透浓缩苹果汁的因素主次顺序为 $B>A>C$,即料液流速>葡萄糖与柠檬酸钾体积比>温度。模型中 A、B、C、A²、B²、C² 对苹果汁浓缩影响极为显著($P<0.01$),对失拟项的各项数据结果表明该模型的失拟项不显著,这说明该模型与实验拟合度良好。

2.4.2 响应面实验结果分析

进一步考察各因素交互作用对苹果汁浓缩膜通量的影响,并对其等高线图和响应面曲面图进行分析。如图 11(a)所示,葡萄糖与柠檬酸钾体积比及料液流速交互的等高线图接近椭圆,且其响应面图的倾斜度越大,说明两者交互作用越显著。综上所述,FO 浓缩苹果汁的最佳条件:葡萄糖与柠檬酸钾体积比 2.894 : 1、料液流速 11.602 L/h、温度 26.759 ℃,在此条件下得到 FO 浓缩苹果汁的膜通量为 7.259 L/(m² · h)。

2.4.3 最优方案实验

根据上述实验条件并考虑实际工艺条件,调整 FO 浓缩苹果汁的最佳工艺参数为:葡萄糖与柠檬酸钾体积比 3 : 1、料液流速 12 L/h、温度 27 ℃。在

此工艺下浓缩苹果汁,重复 3 次实验取平均值,实际测得膜通量为 6.938 L/(m² · h),反向溶质扩散通量为 0.235 mol/(m² · h),与预测值接近,说明响应面法优化 FO 浓缩苹果汁工艺具有可行性。

2.5 膜清洗

清洗后两性离子 FO 膜的通量恢复率如图 12 所示。由图 12 可知,使用 0.01 mol HCl 溶液和 20%(质量分数) Na₂CO₃ 溶液对污染膜清洗后的通量恢复率分别为 57.39%和 51.52%,清洗效果低于其他清洗剂,这可能是由于 0.01 mol HCl 溶液和 20%(质量分数)Na₂CO₃ 溶液对污染物的分解能力较弱,且 HCl 的酸性可能会对膜结构造成破坏,从而降低膜的通量恢复率^[39]。此外,使用 10%(体积分数)NaClO 溶液和 0.05%(质量分数)NaOH 溶液对污染膜清洗时,膜通量恢复率分别为 78.14%和 76.29%,这表明碱性溶液能够清洗膜表面吸附堆积的胶体类物质。隋世有等^[30]和缪畅等^[40]研究也发现使用 pH 为 10 的 NaOH 能够清洗掉吸附在膜表面及堵塞膜孔的蛋白质类和胶体类物质,与本研究结果相似。此外,实验结果表明,使用 5%(质量分数)柠檬酸溶液清洗污染膜时,清洗 5 min 时效果最佳,此时膜通量恢复率达到 83.67%,这是由于柠檬酸是弱酸,能够溶解膜表面附着的糖和果胶,但过高浓度可能会对膜造成损伤^[41]。因此,应选择合适浓度的柠檬酸清洗污染膜,不仅可以有效去除膜表面的污染物,还能保护膜完整性,从而延长膜的寿命。

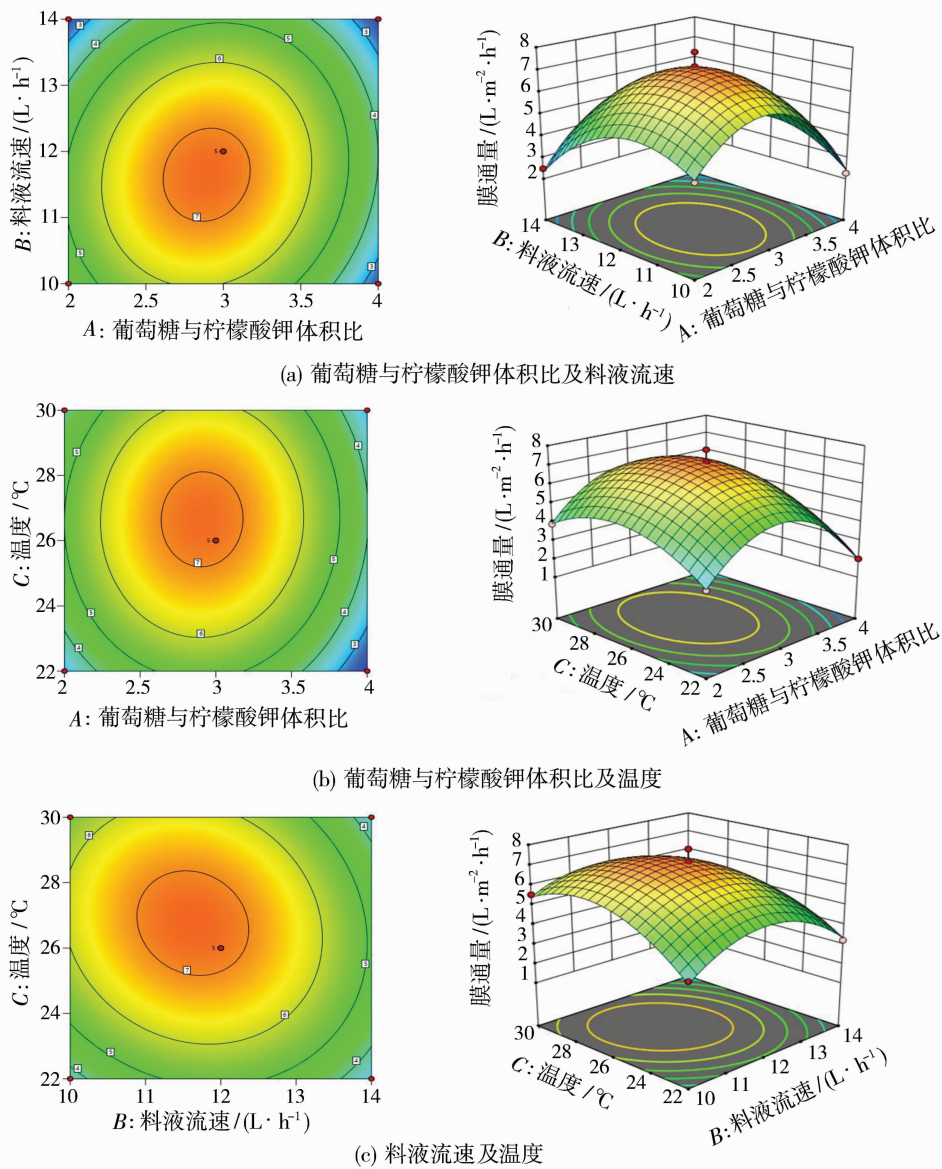


图 11 两因素交互作用对苹果汁浓缩的影响

Fig. 11 The effects of two-factor interactions on apple juice concentration

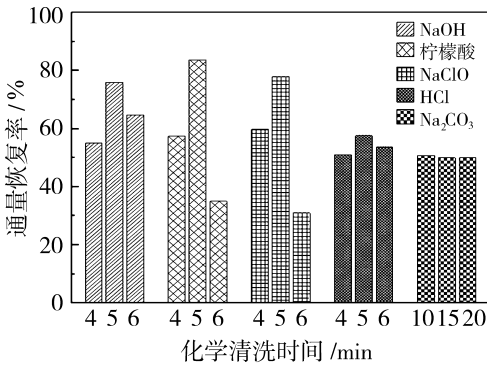


图 12 不同化学清洗方法的通量恢复率

Fig. 12 The flux recovery rates of different chemical cleaning methods

3 结论

本研究以苹果汁为原料,对 FO 浓缩过程中的汲取液组分、料液流速和温度等参数进行单因素和响应面实验优化,并进一步优化了膜清洗方法,所得结论如下:正渗透浓缩苹果汁工艺的影响因素主次顺序为料液流速>汲取液体积比(葡萄糖:柠檬酸钾)>温度。FO 浓缩苹果汁的最佳条件为浓缩温度 27 $^{\circ}C$ 、汲取液为葡萄糖和柠檬酸钾(体积比 3:1)混合溶液、料液流速为 12 L/h,膜通量为 6.938 $L/(m^2 \cdot h)$,反向溶质扩散通量为 0.235 $mol/(m^2 \cdot h)$ 。对比苹果汁浓缩后污染膜的清洗方法可知,使

用0.05%(质量分数)NaOH、10%(体积分数)NaClO和5%(质量分数)柠檬酸清洗效果较好,其中柠檬酸清洗5 min,污染膜通量恢复率高达83.67%。

参考文献:

- [1] Trishitman D, Negi P S, Rastogi N K. Concentration of pomegranate juice by forward osmosis or thermal evaporation and its shelf-life kinetic studies [J]. Food Chem, 2023, 399: 133972.
- [2] Roozitalab A, Raisi A, Aroujalian A. A comparative study on pomegranate juice concentration by osmotic distillation and thermal evaporation processes [J]. Korean J Chem Eng, 2019, 36: 1474-1481.
- [3] 秦贯丰,原姣姣. 苹果汁冷冻浓缩与真空蒸发浓缩的对比实验研究[C]. 中国食品科学技术学会第十五届年会论文集, 2018:311-312.
- [4] 白小鸣,王 华,曾小峰,等. 果汁浓缩技术概述[J]. 食品与发酵工业, 2014, 40(7): 131-135.
- [5] Ruby-Figueroa R, Morelli R, Conidi C, et al. Red fruit juice concentration by osmotic distillation: Optimization of operating conditions by response surface methodology [J]. Membranes, 2023, 13(5): 496.
- [6] 何靖柳,张秋霞,刘 杨,等. 浓缩果汁浓缩方法的研究现状及展望[J]. 南方农机, 2021, 52(24): 20-22.
- [7] Chu H, Zhang Z, Zhong H, et al. Athermal concentration of blueberry juice by forward osmosis: Food additives as draw solution [J]. Membranes, 2022, 12(8): 808.
- [8] Destani F, Naccarato A, Tagarelli A, et al. Recovery of aromatics from orange juice evaporator condensate streams by reverse osmosis[J]. Membranes, 2020, 10(5): 92.
- [9] Arend G D, Adorno W T, Rezzadori K, et al. Concentration of phenolic compounds from strawberry (*Fragaria × ananassa* Duch.) juice by nanofiltration membrane[J]. J Food Eng, 2017, 201:36-41.
- [10] 郭 智,张新妙,章晨林,等. 膜蒸馏过程强化及优化技术研究进展[J]. 化工进展, 2016, 35(4): 981-987.
- [11] 李海军,张捍民,杨凤林. 对称正渗透膜制备及膜性能表征[J]. 环境科学与技术, 2013, 36(12): 11-14.
- [12] 徐 伟,孙建国,陈 敏,等. 采用正渗透技术浓缩番茄汁[J]. 食品与发酵工业, 2013, 39(12): 128-130.
- [13] Ravichandran R, Ekambaram N. Assessment of factors influencing the concentration of betacyanin from *Opuntia ficus-indica* using forward osmosis: Concentration of betacyanin using forward osmosis[J]. J Food Sci Technol, 2018, 55(7): 2361-2369.
- [14] Vani B, Kalyani S, Pabba M. et al. Forward osmosis aided concentration of lycopene carotenoid from watermelon juice [J]. J Chem Technol Biotechnol, 2021, 96(7): 1960-1973.
- [15] Milczarek R R, Sedej I. Aroma profiling of forward-osmosis watermelon juice concentrate and comparison to fresh fruit and thermal concentrate [J]. Lwt-Food Sci Technol, 2021, 151: 112147.
- [16] 张梦轲,王 越,刘艳秋,等. 操作条件对正渗透分离性能的影响[J]. 化学工业与工程, 2018, 35(6): 32-40.
- [17] Chanukya B, Rastogi N K. Ultrasound assisted forward osmosis concentration of fruit juice and natural colorant[J]. Ultrason Sonochem, 2017, 34:426-435.
- [18] Kim D I, Gwak G, Zhan M. et al. Sustainable dewatering of grapefruit juice through forward osmosis: Improving membrane performance, fouling control, and product quality[J]. J Membr Sci, 2019, 578:53-60.
- [19] 任宋萍. 基于正渗透技术的苹果汁非热浓缩研究[D]. 西安:西北农林科技大学, 2019.
- [20] Garcia-Castello E M, Mccutcheon J R. Dewatering press liquor derived from orange production by forward osmosis[J]. J Membr Sci, 2011, 372(1/2): 97-101.
- [21] Kim D I, Choi J, Hong S. Evaluation on suitability of osmotic dewatering through forward osmosis (FO) for xylose concentration [J]. Sep Purif Technol, 2018, 191: 225-232.
- [22] 李 洁,王 军,白 羽,等. 温度对正渗透工艺性能的影响[J]. 环境工程学报, 2014, 8(10): 4168-4174.
- [23] Wang H, Zhang Y, Ren S, et al. Athermal concentration of apple juice by forward osmosis: Process performance and membrane fouling propensity [J]. Chem Eng Res Des, 2022, 177:569-577.
- [24] Mondal D, Nataraj S K, Reddy A V R, et al. Four-fold concentration of sucrose in sugarcane juice through energy efficient forward osmosis using sea bitters as draw solution [J]. Rsc Adv, 2015, 5(23): 17872-17878.
- [25] Zambra C, Romero J, Pino L, et al. Concentration of cranberry juice by osmotic distillation process [J]. J Food Eng, 2015, 144: 58-65.
- [26] Bhattacharjee C, Saxena V K, Dutta S. Fruit juice processing using membrane technology: A review[J]. Innovative Food Sci Emerg Technol, 2017, 43: 136-153.

- [27] Leng C, Sun S, Zhang K, *et al.* Molecular level studies on interfacial hydration of zwitterionic and other antifouling polymers in situ[J]. *Acta Biomater*, 2016, 40:6-15.
- [28] Yassari M, Shakeri A, Karami P, *et al.* Hydrophilic antifouling thin-film nanocomposite forward osmosis membranes; Effect of zwitterion-functionalized carbon nanofiber modification[J]. *Ind Eng Chem Res*, 2023, 63(1): 566-578.
- [29] 闫树鹏, 张 冲, 吕 华. 两性离子聚合物的研究进展[J]. *功能高分子学报*, 2020, 33(1): 1-14.
- [30] 隋世有, 金丽梅, 朱成成, 等. 正渗透膜污染的影响因素及清洗效果研究[J]. *食品工业科技*, 2022, 43(10): 64-72.
- [31] 徐梦思, 马广翔, 易夏文, 等. 内嵌碳纳米管层的导电正渗透膜制备及其缓解有机污染的研究[J]. *膜科学与技术*, 2021, 41(3): 8-15.
- [32] 杨晓璇. 抗生素分离与藻酸盐浓缩脱水正渗透实验研究[D]. 北京: 北京建筑大学, 2020.
- [33] 吴思邈, 孟 姣, 祝玲玲, 等. 利用模拟苹果汁体系探究正渗透浓缩技术[J]. *食品与发酵工业*, 2022, 48(1): 203-210.
- [34] 薛 健, 金丽梅, 孙清瑞, 等. 正渗透技术在浓缩果汁中的研究现状及进展[J/OL]. *食品工业科技*, 1-18[2025-03-16]. <https://doi.org/10.13386/j.issn1002-0306.2024090211>.
- [35] Werten I G, Khoiruddin K, Reynard R, *et al.* Advancement of forward osmosis (FO) membrane for fruit juice concentration[J]. *J Food Eng*, 2021, 290: 110216.
- [36] 边丽霞, 方彦彦, 王晓琳. 正渗透过程中水与溶质的传递现象[J]. *化工学报*, 2014, 65(7): 2813-2820.
- [37] 吴思邈, 陈建明, 王爱廉, 等. 正渗透技术浓缩苹果汁过程中反向溶质扩散的研究[J]. *食品工业科技*, 2021, 42(24): 172-180.
- [38] Hawari A H, Kamal N, Altaee A. Combined influence of temperature and flow rate of feeds on the performance of forward osmosis [J]. *Desalination*, 2016, 398: 98-105.
- [39] 肖 萍, 邹瑜斌, 段淑璇, 等. 某自来水厂超滤膜污染物成分及化学清洗效果案例分析[J]. *环境工程学报*, 2020, 14(5): 1404-1411.
- [40] 缪 畅, 邱运仁. NF-RO 组合膜处理大豆乳清废水[J]. *中南大学学报(自然科学版)*, 2010, 41(4): 1623-1627.
- [41] 李 臻. 柠檬酸替代 EDTA 清洗对反渗透膜海藻酸钙污染的研究[J]. *安全、健康和环境*, 2022, 22(7): 34-37, 48.

Research on the process of concentrating apple juice using forward osmosis technology

XUE Jian¹, JIN Limei^{1,2,3}, MENG Lingwei¹, SUN Qingrui¹,
SUI Shiyou⁴, PU Nana¹, ZHANG Jianqiang¹

(1. College of Food Science, Heilongjiang Bayi Agricultural University, Daqing 163319, China;
2. Agri-Food Processing and Engineering Technology Research Center of Heilongjiang Province, Daqing 163319, China; 3. National Coarse Cereals Engineering Research Center, Daqing 163319, China;
4. Library, Heilongjiang Bayi Agricultural University, Daqing 163319, China)

Abstract: Forward osmosis (FO) technology has the advantages of low energy consumption and effective retention of nutrients and aroma in fruit juice. In this article, a Box-Behnken response surface experiment was conducted to investigate the effects of draw solution type and composition, feed solution flow rate, and temperature on membrane flux and reverse solute diffusion flux during FO concentration based on single-factor experiments with apple juice as raw material. Process parameters were optimized, and the effects of different chemical cleaning methods on membrane flux recovery rate were compared. The results showed that when apple juice was used as the feed solution, the optimal FO concentration process was as follows: a mixed solution of glucose and potassium citrate (volume ratio 3 : 1) was used as the draw

(下转第 161 页)

membrane fouling and microbial community of a wastewater[J]. Process Saf Environ, 2024, 191(Part
membrane bioreactor treating sludge dewatering A): 466-477.

Impact of solid-phase media addition on membrane fouling
and microbial community in MBR systems

WU Wei¹, LI Ming², ZHANG Pengfei³, GAO Fei², WU Wei³

- (1. Hefei Water Environment Construction Investment Co., Ltd., Hefei 230000, China;
2. School of Environmental Science and Engineering, Tiangong University, Tianjin 300387, China;
3. Shanghai Municipal Engineering Design Institute (Group) Co., Ltd., Shanghai 200092, China)

Abstract: Membrane bioreactor (MBR) is widely used in wastewater treatment, but membrane fouling restricts their long-term stable operation. This study innovatively introduced fiber Bragg grating (FBG) technology into the MBR flow field, and systematically explored the action mechanisms of three media, namely activated carbon, PVA sponge and silica, on the flow field characteristics and community succession of the reactor. The results showed that increasing aeration intensity significantly enhanced the flow field shear force on the surface of the three media. Among them, the PVA sponge, due to its three-dimensional network structure, led to the most significant increase in flux, followed by activated carbon particles and silica. The PVA sponge provided suitable attachment sites for microorganisms, which could significantly improve intracellular enzyme activity, while activated carbon particles and silica had limited effects on enhancing enzyme activity. Activated carbon accelerated the proliferation of pollution-degrading microbial communities; the PVA sponge drove the film formation of microorganisms to reduce the deposition of biological products; silica controlled pollution relying on shear force and had a weak impact on the community structure. This study provides a theoretical basis for optimizing MBR membrane fouling control strategies.

Key words: membrane bioreactor (MBR); membrane fouling; solid-phase medium; microbial community; shear force

(上接第 152 页)

solution, the feed solution flow rate was 12 L/h, and the temperature was 27 °C. At this time, the membrane flux was 6. 938 L/(m² · h), and the reverse solute diffusion flux was 0. 235 mol/(m² · h). Chemical cleaning with NaOH, NaClO and citric acid had good effects, among which 5% (mass fraction) citric acid had the best cleaning effect on the apple juice-contaminated membrane, with a membrane flux recovery rate of 83. 67%. This article aims to provide technical references for the application of FO technology in the field of fruit juice concentration.

Key words: forward osmosis membrane; zwitterionic; apple juice; concentration; membrane cleaning