



Élelmiszertudományi Kar

**MEMBRÁN- ÉS OZMOTIKUS DESZTILLÁCIÓ
ÉLELMISZERIPARI ÉS KÖRNYEZETVÉDELMI
VONATKOZÁSAI**

Doktori (PhD) értekezés tézisei

RÁCZ GÁBOR

Budapest

2015

A doktori iskola

megnevezése: Élelmiszertudományi Doktori Iskola

tudományága: Élelmiszertudományok

vezetője: Dr. Felföldi József
Egyetemi tanár, PhD
BUDAPESTI CORVINUS EGYETEM, Élelmiszertudományi Kar
Fizika-Automatika Tanszék

Témavezető: Dr. Vatai Gyula
Egyetemi tanár, DSc
BUDAPESTI CORVINUS EGYETEM, Élelmiszertudományi Kar
Élelmiszeripari Műveletek és Gépek Tanszék

Társtémavezető: Dr. Kovács Zoltán
Egyetemi docens, PhD
BUDAPESTI CORVINUS EGYETEM, Élelmiszertudományi Kar
Élelmiszeripari Műveletek és Gépek Tanszék

A jelölt a Budapesti Corvinus Egyetem Doktori Szabályzatában előírt valamennyi feltételnek eleget tett, az értekezés műhelyvitájában elhangzott észrevételeket és javaslatokat az értekezés átdolgozásakor figyelembe vette, ezért az értekezés nyilvános vitára bocsátható.

.....
Az iskolavezető jóváhagyása

.....
A témavezető jóváhagyása

.....
A társtémavezető jóváhagyása

1. A MUNKA ELŐZMÉNYEI, A KITŰZÖTT CÉLOK

A mai ember pazarló habitusával nemcsak saját jövőjét, hanem az egész földi bioszféra fennmaradását veszélyezteti, vagy legalábbis láthatóan jelentős hatást gyakorol rá. Mint ahogyan az élő szervezetek alapvető eleme a víz, így a bioszféra számára is elengedhetlen annak megfelelő állapota, hozzáférhető optimális mennyisége. Az ember által a történelem során feltárt fizikai jelenségeken alapuló ipari folyamatok megváltoztatták a bioszférában jelenlevő víztömeg tulajdonságait, ezzel közvetlen hatást gyakorolva az összes élőlényre. Így beláthatjuk, hogy az egyik legfontosabb – hanem a legfontosabb – feladatunk, kihívásunk olyan eljárások kidolgozása, azaz olyan termodinamikai utak feltárása, melyekkel nem tovább távolodunk, hanem inkább újra közelítünk az alapvetően holisztikus létezés „fenntarthatósága” felé. Úgy hiszem, hogy a membrándeztilláció technológiája jelentős részt vehet ki ennek a küldetésnek a beteljesítéséből.

Dolgozatomban bemutatom a membrán-és ozmotikus desztilláció legjellemzőbb tulajdonságait, egy átfogó irodalmi áttekintéssel azokat a mérnöki megfontolásokat, melyek segíthetnek e műveletek működésének mélyebb megértésében, így a további fejlesztési utak feltárásában. Majd dolgozatom első téziseként a membrán- és ozmotikus desztillációs műveletek során előállított termékek minősége szempontjából kiemelten fontos paraméter, az ún. folyadék behatolási nyomás (Liquid Entry Pressure - LEP) mérésének egy új, dinamikus módszerét mutatom be, összehasonlítva az irodalomban fellelhető statikus módszer eredményeivel. Második tézisként a nedvesedett membránpórusok vákuumos regenerálásának új lehetőségét mutatom be. Harmadik téziszemben olaj a vízben emulzió szétválasztásának vizsgálatában elért eredményeimet ismertetem, vákuum-membrándeztilláció konfigurációban. Bemutatom, továbbá az olaj koncentrációjának hatását az LEP értékére is, statikus és dinamikus mérési eljárással. Negyedik tézisként az ozmotikus desztilláció produktivitásának céljából új, eddig kevésbé vizsgált ozmotikus ágensek vizsgálatának eredményeit mutatom be. Ötödik és hatodik tézisként pedig zsályakivonat és meggylé kíméletes besűrítése során elért eredményeimet ismertetem, kapcsolt membrános eljárással, nyomon követve a termékek értékes komponens tartalmát.

1.1. A membránpórus-nedvesedés jelenségének vizsgálati membrándeztilláció esetén

A membrándeztillációs vizsgálataim első része a művelet egyik alapvető paraméterének, a folyadék behatolási nyomásnak (LEP_w) a meghatározásával foglalkozik. Abban az esetben, ha a membránpórusok már nedvesedtek, csak egy regenerálási eljárás elvégzése után lehetséges további membrándeztillációs műveletek elvégzése. Ez gyakorlatilag a nedvesség teljes eltávolítását jelenti a pórusokból, amit általában

csak a membrán berendezésből való elárolítása után lehet megfelelően elvégezni. A szakirodalomban gyakorlatilag nem lehet fellelni olyan publikációt, ami teljes egészében erre a problémakörre fókuszálna, illetve alternatívát nyújtana a gyors és hatékony regenerálási eljárásra.

Kapcsolódó feladatok pontokba szedve a következők:

- Kísérleti berendezés összeállítása és az LEP_w mérése a szakirodalom alapján – statikus módszer,
- Kísérleti berendezések összeállítása az új, dinamikus LEP_w mérési módszerek tesztelésére, hiszterézisgörbe kimérése,
- Regenerálási kísérletek: magas hőmérsékletű és vákuummal történő szárítás a membránpórusok nedvesedését követően.

1.2. Olaj-víz emulzió szétválasztása vákuum-membránesztilláció segítségével

Ha a betáplált oldat valamilyen felületaktív anyagot, illetve szerves fázist tartalmaz, az LEP értéke drasztikusan csökkenhet. A vizsgálataim során alacsony koncentrációjú model olaj a vízben (O/V) emulzió szétválasztását valósítottam meg vákuum-membránesztillációval.

Kapcsolódó feladatok pontokba szedve a következők:

- LEP érték változásának vizsgálata a model O/V emulzió összetételének függvényében, állandó hőmérsékleten, statikus és dinamikus módszerrel,
- O/V emulzió szétválasztásának vizsgálata vákuum-membránesztillációs berendezéssel,
- A művelet hatékonysága, az előállított desztillátum minőségének analitikai elemzése.

1.3. Többlépcsős membrános eljárás zsályahatóanyagok kinyerésére

A membránesztilláció egyik megvalósítási módjának, az ún. ozmotikus desztillációnak az élelmiszeripari alkalmazása egy fontos kutatási terület, a művelet alacsony hőmérsékleten való elvégzésének lehetősége miatt folyamatosan a kutatások tárgyát képezi. A zsályafélék családjának sok tagja ismert gyógy-és fűszernövény, magas antioxidánstartalommal bírnak, fogyasztják gyógyteaként, de egyéb gyógyhatású készítményként egyaránt. Az egészségre jótékony hatásának a megőrzése céljából egy új, kíméletes és hatékony tartósítási módszer kidolgozására törekedtem.

Kapcsolódó feladatok pontokba szedve a következők:

- Folyadékfázisú extraktum kinyerése a szárított görög zsálya (*Salvia Fruticosa* Miller) gyógynövény leveleiből,
- Az elkészített extraktum előszűrése mikroszűréssel, a mikroszűrés kritikus és limitáló paramétereinek megállapítása a desztillátumfluxus és a transzmembrán nyomáskülönbség tekintetében,
- Az előszűrt extraktum elősűrítése fordított ozmózissal, a kritikus paraméterek megállapítása,
- Az elkészített elősűrítmény végsűrítése ozmotikus desztillációval,
- A kiindulási extraktum és a termékek összes flavonoid, összes polifenol és antioxidáns kapacitás változásának nyomon követése spektrofotometriás eljárásokkal, valamint a jellemző polifenolok vizsgálata nagy teljesítményű folyadékkromatográfiás analitikai módszerrel.

1.4. Új ozmotikus oldatok vizsgálata

Szemben a számos előnnyel, az ozmotikus desztilláció nagyipari alkalmazásának egyik jelenlegi korlátja a viszonylag alacsony desztillátumfluxus, valamint a felhígult ozmotikus oldatok regenerálásának problémaköre. Kutatásom ennek kapcsán olyan ozmotikus ágensként felhasználható alapanyagok vizsgálata, melyek hatékonyabbak a jelenleg használatos CaCl_2 oldatnál, felhígult állapotban élelmiszer adalékanyagként, és/vagy műtrágyaként értékesíthetők.

- Új ozmotikus oldatok hatékonyságának vizsgálata desztillált vízfluxusra vonatkoztatva,
- A leghatékonyabb ozmotikus oldat felhasználásával, 2^p teljes faktoros analízissel vizsgáltam a kiindulási koncentráció, a betáplálás hőmérsékletének, és a hőmérséklet különbségnek a hatását a desztillátumfluxusra.

1.5. Meggsűrítmény előállítás kapcsolódó membrános művelettel, új ozmotikus oldatokkal

Meggy préselése során kinyert meggylé koncentrációját valósítottam meg többlépcsős membránművelettel. Vásznon történő előszűrés után a meggylevet mikroszűréssel tükrösítettem és hidegen csíráztattam, majd pedig kétfajta fordított ozmózisos eljárással elősűrítettem. Az így kapott elősűrített meggylevet négy különböző szerves sóból előállított ozmotikus oldattal sűrítettem végkoncentrációig.

Kapcsolódó feladatok pontokba szedve a következők:

- Meggylé mikroszűrése, a mikroszűrés ellenállásainak meghatározása,
- Elősűrités két fordított ozmózis konfiguráció végrehajtásával,
- Végűrités négyfajta ozmotikus oldat segítségével,
- A leghatékonyabb ozmotikus oldat anyagátadási jelenségeinek vizsgálata,
- Analitikai vizsgálatok az értékes anyagok vizsgálatára, statisztikai módszerekkel igazolva.

2. ANYAG ÉS MÓDSZER

2.1. A membránpórus-nedvesedés jeleltségéhez kapcsolódó kísérleti módszerek

Membránesztilláció során a hidrofób membrán pórusainak nedvesedése nem kívánt, sőt, kifejezetten kerülendő jelenség, így az LEP_w értékének pontos ismerete a műveleti tervezés során kulcsfontosságú. Durapore™ GVPH lapmembrán (Merck Millipore Inc., Billerica, USA) LEP_w értékét határoztam meg statikus és új, általam kidolgozott dinamikus módszerrel, VMD konfigurációban. Továbbá az új, dinamikus módszert MD 020 CP 2N csöves modul (Microdyn-Nadir GmbH, Wiesbaden, Németország) LEP_w értékének meghatározására is teszteltem, DCMD elrendezésben.

A membránok vizsgálata két részletben történt: először az LEP_w meghatározása, majd pedig a már nedvesedett membrán hiszterézisének kimérése zajlott le. A közegek áramoltatását a DCMD eljárás alapján végeztem, hőmérsékletkülönbség nélkül, így desztillátum valójában nem keletkezett, de az áramló közegek viselkedését a membránpórus-nedvesítés szempontjából meg tudtam figyelni. VMD esetében vákuumot alkalmaztam a desztillátum oldalon, és túlnyomást a betáplálás oldalon. A mérések során a betáplálás oldali nyomást emeltem 0,20 bar nyomással, a nyomásszabályozó szelep 5 percenkénti fokozatos elzárásával. Abban a pillanatban, amikor a transzmembrán nyomáskülönbség elérte az LEP_w értékét, a betáplálási folyadékáram nedvesíteni kezdte a pórusokat és a desztillátum oldali vezetőképesség ugrásszerűen megnőtt, valamint a desztillátum tömege is el kezdett növekedni. Az ebben a pillanatban fenálló transzmembrán nyomáskülönbséget tekintettem az LEP_w értékének adott hőmérsékleten.

2.2. Nedvesedett membránpórusok regenerálásának lehetőségei

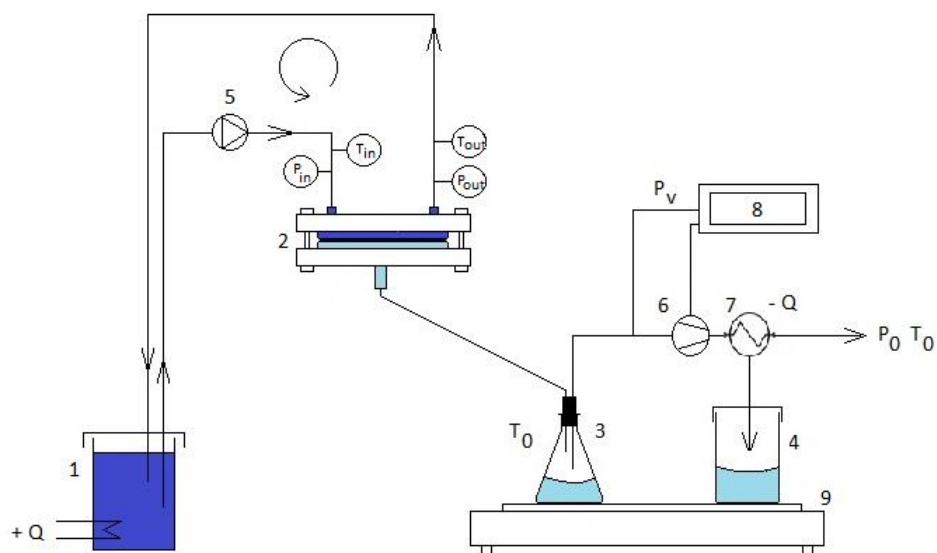
Az LEP_w meghatározása után a membránok pórusai teljes egészében átmedvesedtek a betáplálási folyadékárammal. Ahhoz, hogy a membránokat újra membránesztillációs célokra használhassuk, elengedhetetlenül szükséges a pórusokban levő nedvesség teljes eltávolítása. Ennek egyik kézenfekvő megvalósítási módja a hőmérséklet emelésével való nedvesség-elpárologtatás, szárítás. Mindkét vizsgált membrántípus (Durapore™ GVPH lapmembrán és a MD 020 CP 2N csöves membrán) esetében alkalmaztam ezt a módszert. Ahhoz, hogy az összes nedvességet a lehető leghatékonyabban távolíthassam el a pórusokból, vizsgáltam a nedvesedett membránok etanollal való kezelésének hatékonyságát is. Az etanol „kimossa” a pórusokból a vizet, és magasabb gőztenziója miatt könnyebb annak kihajtása. Mindkét esetben mértem az előállított desztillátum vezetőképességét, és ha ez az érték a műszer kimutathatósági értéke alatt volt ($0,01 \text{ mScm}^{-1}$), akkor a regenerálást sikeresnek tekintettem.

Vákuum segítségével is vizsgáltam a nedvesedett lapmembrán (Durapore™ GVPH) és csöves membrán modul (MD 020 CP 2N) pórusainak regenerálási lehetőségét, etanolos kezeléssel és kezelés nélkül egyaránt. A vákuummal megkísérelt nedvesség eltávolítás hatékonyságát annak függvényében is vizsgáltam, hogy a vákuumot a membrán melyik oldalán alkalmazzuk. Három összeállítás adódott: vákuum a betáplálás oldalról, vákuum a desztillátum oldalról, és vákuum mindkét oldalról, egyidőben alkalmazva.

2.3. Olaj-víz (O/V) emulzió szétválasztása vákuum-membrándesztilláció segítségével

Ha egy membrándesztillációs rendszerbe betáplált folyadékáram valamilyen szerves fázist, és/vagy felületaktív anyagot tartalmaz, az LEP értéke drasztikusan megváltozhat, és a membránpórusok nedvesedése alacsonyabb transzmembrán nyomáskülönbség mellett megtörténhet. LEP érték mérését csak a lapmembrán esetében vizsgáltam, változó olajkoncentráció mellett (0-3200 ppm).

A kapcsolódó vizsgálatokat VMD elrendezésben végeztem el, kiegészítve a rendszert egy gőzkondenzátorral, mely előállította az átdiffundált gőzfázisú desztillátum folyadék fázisát (1. ábra).

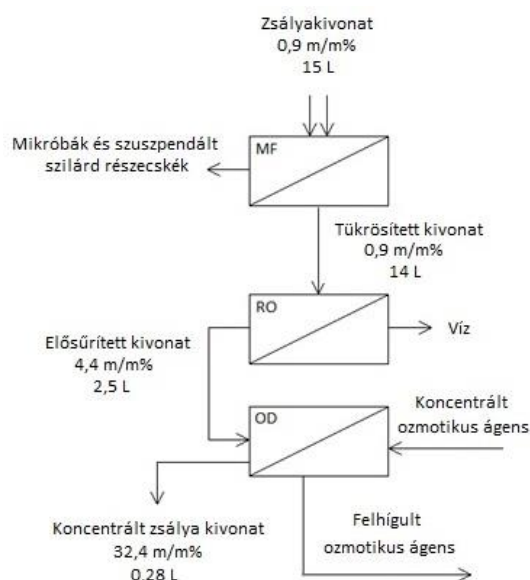


1. ábra VMD konfiguráció O/V emulzió szétválasztására (1. betáplált O/V emulzió, 2. szendvicsmodul a lapmembránnal, 3. elő-kondenzátumgyűjtő, 4. kondenzátum szedőedény, 5. perisztaltikus szivattyú, 6. vákuum szivattyú, 7. kondenzátor, 8. vákuumérték kijelző, 9. digitális mérleg)

2.3.1. Többlépcsős membrános eljárás zsályahatóanyagok kinyerésére

A folyamat három műveleti egységből épül fel: egy mikroszűrésből (MF), egy fordított ozmózisból (RO) és egy ozmotikus desztillációs eljárásból (OD). A mikroszűrés célja a hideg csíráatlanítás, illetve a visszamaradt kisebb növényi részek eltávolítása (2. ábra). A fordított ozmózissal egy elősűrítési lépést hajtottam végre, végül pedig az ozmotikus desztilláció célja volt a végsűrítmény előállítása.

Mind a mikroszűrés, mind pedig a fordított ozmózis méréseim során törekedtem arra, hogy meg tudjam határozni az ún. kritikus és limitáló fluxus értékeit, valamint az ehhez tartozó transzmembrán nyomáskülönbségeket, melyhez a következő módszert alkalmaztam. A betáplálás betöltése után „total-recycle” módban üzemeltettem a berendezéseket, ami azt jelentette, hogy a képződő szűrletet visszavezettem közvetlen a betáplálási tartályba. Így mértem különböző transzmembrán nyomáskülönbségek mellett a fluxust. Ez a módszer lehetővé teszi a fluxusértékek vizsgálatát úgy, hogy a növekvő betáplálás koncentráció hatását a folyamatos visszavezetéssel ki tudjuk küszöbölni, azaz állandó értéken tartani.



2. ábra Többlépcsős membrános eljárás zsályahatóanyagok kinyerésére

Az összes polifenol tartalom mérését a SINGLETON és ROSSI (1965) által használt, módszerrel végeztem el. A kapott értékeket galluszsav-egyenértékre határoztam meg (mg GSE/ml kivonat). Az összes flavonoid tartalom meghatározását CHANG és mtsai alapján történt. A minta abszorbanciáját 510 nm-en mértem meg, és a kapott koncentráció értéket (+) katechin egyenértékben fejeztem ki (mg (+)

KE/mL kivonat). BLOIS (1958) alapján az antioxidáns kapacitást a stabil DPPH gyök megkötésén alapuló módszer segítségével határoztam meg. A polifenolok vizsgálatát nagy teljesítményű folyadékkromatográfias analitikai módszerrel (HPLC) végeztem el.

2.4. Új ozmotikus oldatok vizsgálata

A vizsgálatok végrehajtásához szükséges szervesen sókat szilárd, kristályos formában szereztem be, majd készítettem belőle ioncserélt víz hozzáadásával telített oldatokat. Csöves membrán modul használtam a vizsgálatokhoz (MD 020 CP 2N). A következő vegyületek telített oldatait vizsgáltam: CH_3COOK , NH_4NO_3 , $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$, K_2CO_3 , CaCl_2 , NaNO_3 , $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$, KNO_3 , NaCl . Minden oldatból 1000 g mennyiséget állítottam elő, és ezeket vizsgáltam 30°C -on. A különböző ozmotikus ágensek által maximálisan kinyerhető desztillátumfluxus alapján kiválasztottam a leghatékonyabbat. Ezt követően ehhez kapcsolódóan kiválasztottam azokat a műveleti paramétereket, melyek az irodalom alapján a legnagyobb hatást fejthetik ki. Ezek a betáplálás hőmérséklete, az ozmotikus ágens koncentrációja, és a betáplálás-ozmotikus oldat hőmérsékletének különbsége. 2^p típusú teljes faktoranalízis kísérletterv alapján elvégzett mérések eredményeinek kiértékelésére regresszióanalízist alkalmaztam. A hatások vizsgálatához variancia analízist (ANOVA) is elvégeztem, mely lehetővé teszi a faktorszintek váltása következtében előállt szórásnak és a kísérlet szórásának az összehasonlítását.

2.5. Meggysűrítmény kéméletes sűrítése kapcsolt membrános eljárással

Az Oblacsinszka fajtájú meggyet Újfehértóról szállítottam, és préselés útján nyertem ki belőle a levét. A kimagozott és ledarált meggyet enzimes kezelés után egy átalakított szőlőpréssel kezeltem, és a kapott meggylevet ezután sűrű szövésű vásznon átszűrtem a durvább lebegő anyagok eltávolítása céljából. A kapott szűrletet kiporcióztam, majd pedig fagyasztva tároltam a vizsgálat napjáig. Felolvasztáskor 4°C -os hűtőbe tettem, és igyekeztem elkerülni a fényvel való érintkezés lehetőségét.

A meggysűrítés vizsgálatokat a zsályakivonat koncentráálásához felhasznált berendezésekkel végeztem el. A 2. ábrán bemutatott mérési elrendezésben a lapmembrán modul mellett egy spirál tekercs modul is vizsgáltam. Az alkalmazott recirculációs térfogatáram 500 Lh^{-1} , a műveleti hőmérséklet 30°C , és a transzmembrán nyomáskülönbség kiindulási 40 bar volt. Vízáktivitás méréseket végeztem egy Novasina LabMASTER- a_w (Novasina AG, Lachen, Svájc) műszerrel, különböző koncentrációjú CaCl_2 , CH_3COOK és meggylé vízáktivitásának, és abból gőznyomásának megállapításához. A dinamikus viszkozitások megállapítására Thermo Haake RotoVisco rotációs viszkoziméter segítségével történt a CaCl_2 , CH_3COOK és meggylé viszkozitásainak meghatározására.

A mikrobiológiai vizsgálatok során fel kívántam térképezni, hogy a mikroszűrés művelete milyen hatékonysággal távolítja el a meggylében előforduló mikroorganizmusokat, melyek ronthatják a termék minőségét, csökkenthetik eltarthatóságát, esetleg patogének. Ennek céljából ISO szabvány szerinti összecsíraszámot és ozmofil élesztő- és xerofil penészgombaszámot végeztem el tenyésztés és lemezöntéssel. A preparált mintákat aseptikus körülmények mellett vettem le, és a szabvány szerint inkubáltam 37°C-on 18-24 órát, majd 22°C-on 3-5 napot. A mosásra használt ioncserélt víz és a meggylé összecsíraszám meghatározását az MSZ ISO 4833:2003 szabványa alapján végeztem el. A mosásra használt ioncserélt víz és a meggylé ozmofil élesztő- és xerofil penészgombaszám tenyésztés lemezöntéssel (ISO 21527-2:2008) DRBC agaron.

A meggylé esetében összes polifenol tartalmat és antioxidáns hatást vizsgáltam. Az összes polifenol tartalmat a zsályakivonat vizsgálatánál megadott módszer alapján határoztam meg. A FRAP értékek meghatározása spektrofotometriásan ($\lambda=593$ nm) történt. Az eredményeket L-(+) aszkorbinsavval készített kalibrációs görbe segítségével értékeltem ki.

3. EREDMÉNYEK

Az általam kidolgozott dinamikus LEP mérési módszer az irodalomban fellelhető módszerrel szemben alacsonyabb értékeket eredményezett, ami nagyobb körültekintésre figyelmeztet bennünket az ipari megvalósítások tervezése és méretezése esetén. A VMD eljárás egy megfelelő alternatíva lehet olajos szennyvizek szétválasztására, habár ehhez a membránok intenzívebb fejlesztése elengedhetetlen lesz a jövőben. Az általam kidolgozott LEP mérési módszer pedig valós képet mutat az üzemeltetőknek arról, hogy milyen keretek között tudják hatékonyan működtetni a jövőben az ilyen rendszereiket, akár olajos fázist emulzió formájában tartalmazó betáplálások mellett is.

A zsályakivont értékes alkotóinak a koncentrációja többlépcsős membrános technikákkal (MF-RO-OD) megvalósítható. Munkában viszont fény derült arra, hogy a RO lépés kritikus az értékes komponensek megóvását tekintve. Zsályakivonat esetében az ozmotikus desztilláció egy megfelelő végsűritési eljárásnak bizonyult.

Az ozmotikus desztilláció ipari méretekben való megvalósításához kapcsolódó eredményeim is biztatóak. Vizsgáltam ozmotikus ágensként olyan élelmiszer-adalékanyagokat és műtrágya alapanyagokat, melyek felhígulás után értékesíthetők lehetnek. Az új ozmotikus oldatok tekintetében egyértelműen pozitív képet mutat a CH_3COOK oldata, már az előkísérletek során ezeket sikerült a legnagyobb integrált desztillátumfluxust elérnem ($2,97 \text{ kgm}^{-2}\text{h}^{-1}$). Ez egy élelmiszeripari adalékanyag, így felhasználása nem jelent gondot az iparban, az emberi szervezetre ártalmatlan. Viszont ahhoz, hogy egy ozmotikus desztillációs rendszer jól tudjon működni elengedhetetlen, hogy mélyebb ismereteket szerezzünk az anyagátadási jelenségekről, melyek a művelet során lezajlanak.

Teljes faktoros analízissal bizonyítottam, hogy a vizsgált tartományon belül a hőmérséklet-különbségnek a betáplálás és ozmotikus oldal között nincs szignifikáns hatása a desztillátumfluxusra, míg az ozmotikus oldat telítettségi állapotának, és a betáplálási hőmérsékletnek van szignifikáns hatása. Munkámmal bizonyítottam, hogy ez az oldat magasabb telítettségi tartományban sokkal hatásosabb a megszokott CaCl_2 -hoz képest, ami az elérhető alacsonyabb gőznyomás értékeknek köszönhető, hatékonyabb meggyűritést sikerült kivitelezni ezzel az oldattal.

Többlépcsős MF-RO-OD meggyűritésre való felhasználását bizonyítottam; ezzel a műveleti kapcsolással megvalósítható a préselt meggylé sűritése, a használt mikroszűrés sikeresen csíráatlanította a meggylevet, majd pedig az RO-OD kapcsolás alkalmas volt a meggylé magas ($\sim 60^\circ\text{Brix}$) koncentráció tartományba való sűritésére. A mikroszűrést és a fordított ozmózis két módszerét tekintve, összes

antioxidáns kapacitásban nem okozott szignifikáns csökkenést, míg az összes polifenol tartalomban igen. Az ozmotikus desztilláció műveletei a különböző ozmotikus oldatokkal minden esetben szignifikáns csökkenést eredményeztek. Ezek közül viszont a legkisebb csökkenés a CH_3COOK esetén volt észrevehető, mely a rövidebb műveleti idővel van összefüggésben. Ezáltal megállapítottam, hogy a műveleti körülmények által az értékes komponensek oxidatív stresszt szenvednek el, így a levegő oxigénjétől való teljes elszigetelés, a rendszer teljes fénytől való elfedése, és a lehető legrövidebb műveleti idő fontos kritériumok a magas értékesanyag tartalmú sűrítmények előállítására szempontjából.

3.1. Új tudományos eredmények

I. Új, dinamikus mérési módszert dolgoztam ki a folyadék behatolási nyomás (LEP_w) mérésére közvetlen érintkezéssel (DCMD) és vákuummal megvalósított membrándesztillációs (VMD) konfigurációkban. Bizonyítottam, hogy a dinamikus módszer alkalmas az LEP_w meghatározására ezekben a konfigurációkban. Azt is bizonyítottam a VMD konfigurációt tekintve, hogy a dinamikus módszerrel megállapított LEP_w értéke alacsonyabb a statikus módszerhez képest, így a dinamikus módszer a desztillátum minősége szempontjából egy szigorúbb műveleti korlátot eredményez a statikus módszerrel szemben, amelynek tudatában magasabb desztillátum minőséget, ezáltal nagyobb műveleti üzembiztonság érhető el.

II. Új, vákuummal történő membránregenerálási eljárást dolgoztam ki lapmembrán esetére szendvics modulban elhelyezve, mely jelentősen megkönnyíti a pórusokban rekedt nedvesség eltávolítását anélkül, hogy a membránt a berendezésből el kellene távolítani.

III. Vákuum-membrándesztillációs (VMD) kísérleti berendezés segítségével bizonyítottam, hogy az olajkoncentrációnak nincs hatása a desztillátum fluxusára egy spontán nedvesedési pont eléréséig. Ez az érték a vizsgált membrán és műveleti körülmények esetében 250 ppm olajkoncentrációt jelentett. Továbbá itt is bizonyítást nyert az, miszerint a dinamikus módszerrel megállapított LEP értékek alacsonyabbak a statikus módszer segítségével megállapított értékektől.

IV. Új, eddig még kevésbé, vagy egyáltalán nem vizsgált ozmotikus oldatokat alkalmaztam az ozmotikus desztilláció intenzifikálásának céljából, és a CH_3COOK oldat bizonyult a leghatékonyabbnak. A következő regressziós modellt kaptam:

$$J = 0,8908 + 0,6019 \frac{C(\%) - 62,5}{37,5} + 0,1704 \frac{T(^{\circ}\text{C}) - 37}{5}$$

melynek érvényessége $T_{\text{betáp}}=32-42^{\circ}\text{C}$, $\Delta T=5-15^{\circ}\text{C}$, ozmotikus oldat telítettsége 25-100% tartományban.

V. A meggy értékes komponenseinek vizsgálata során bizonyítást nyert, hogy az összes polifenol tartalom tekintetében a fordított ozmózis lapmembránnal és spiráltekercs modullal egyaránt szignifikáns értékesanyag-csökkenés vehető észre, az ozmotikus desztillációs kísérletek tekintetében szintűgy. Az antioxidáns kapacitás nem csökkent szignifikánsan sem a spirál, sem a lapmembrán alkalmazásával, de az ozmotikus desztilláció esetében itt is szignifikáns volt a csökkenés. Továbbá megállapítást nyert az is, hogy a csökkenés mértéke a CH_3COOK esetében a legkisebb, ami a legrövidebb műveleti idővel van kapcsolatban. Ennek oka feltételezhetően a különböző fizikai behatásokra és ezen behatások idejének hosszára vezethető vissza (fény, hőmérséklet, levegő oxigénjével való reakció).

VI. Töbllépcsős membrántechnikát végeztem el eddig még nem vizsgált zsályakoncentrátum sűrítésére. Munkám során bizonyítást nyert, hogy a kezdeti 0,9 m/m% oldott szárazanyag-tartalmat az MF-RO-OD műveleti kapcsolás 32,4 m/m% tudta sűríteni. A munkám során arra is fény derült, hogy a fordított ozmózis lépés 60%-ban tartotta vissza az értékes komponenseket, az ozmotikus desztilláció viszont több mint 90%-ban.

4. KÖVETKEZTETÉSEK ÉS JAVASLATOK

- I. A membránesztillációs műveletek esetében a kritikus LEP paraméter meghatározása dinamikus módszerrel, sokkal „valóságosabb” információt biztosít, mint a hagyományos, irodalomban fellelhető statikus módszer. Egy ilyen műveleti feladat első lépéseként ennek a paraméternek a meghatározása elengedhetetlen a magasszintű üzembiztonság feltételének teljesítéséhez, és a dinamikus módszer erre kiválóan alkalmas.
- II. A nedvesedett lapmembránpórusok vákuum segítségével regenerálhatóak, így elkerülhető a hosszadalmas és költséges szerelés, újra üzembe helyezés. Viszont érdemes lenne az eljárás további vizsgálata, mégpedig speciális átlátszó modulok segítségével, ahol szemügyre vehető, nincs-e olyan hely a modulban, ahol a nedvesség panghat, ezáltal kialakítható egy olyan módszer (vákuum érték, áramlási sebesség, stb.), amiben az etanol pozitív hatása megmutatkozhat.
- III. Olaj-víz emulziók szétválasztására a membránesztilláció alkalmas, viszont kritikus tényező a megfelelő modul kialakítás, és hogy a betáplált elegy olajtartalma egy meghatározott, ún. kritikus koncentráció alatt legyen, ezzel elkerülve a pórusok spontán nedvesedésének lehetőségét. Ennek elkerülésére célszerű a rendszert folyamatos üzemben vizsgálni, ahol a rendszer a kritikus LEP értéke alatt üzemel. Egy ilyen folyamatos rendszer laboratóriumi vizsgálata szükséges lenne a továbbiakban.
- IV. Zsályakivonat koncentrációja membrános műveletekkel egy ígéretes lehetőség, viszont a kritikus tényező a fordított ozmózis lépése, mely során jelentős értékes anyag csökkenés léphet fel. A megfelelő membrán és modul kialakítás felderítése további, részletesebb kísérletezést igényel.
- V. Az ozmotikus desztillációs kísérletek hatékony elvégzésére kiváló alternatíva lehet a CH_3COOK oldat. Élelmiszeripari felhasználása lehetséges, ezáltal kiváltható az oldat visszasűrítése, mivel termékként értékesíthető, vagy legalábbis csak egy részét szükséges regenerálni.
- VI. A vizsgált koncentráció tartományban a hőmérséklet-különbség alkalmazása szignifikánsan nem növeli az OD hatékonyságát. Érdemes lenne tovább vizsgálni, vajon van-e olyan tartomány, melyben megjelenik ennek a szignifikáns hatása.

- VII. A kapcsolt membránműveletek alkalmasak a meggylé sűrítésére, viszont a megfelelő fordított ozmózisos membránok megtalálása, és az ozmotikus desztilláció során fellépő értékesanyag csökkenés alapvető oka még ismeretlen. Fontos lenne annak kiderítése, hogy ennek az oka a műveleti körülményektől, azon belül is mely hatásoktól függ leginkább és hogyan lehet a negatív hatást elkerülni.

AZ ÉRTEKEZÉS TÉMAKÖRÉBEN MEGJELENT KÖZLEMÉNYEK

Szakcikk nemzetközi, impakt faktorral rendelkező folyóiratban:

Rácz G, Kerker S, Schmitz O, Schnabel B, Kovács Z, Vatai Gy, Ebrahimi M, Czermak P, Experimental determination of liquid entry pressure (LEP) in vacuum membrane distillation for oily wastewaters, Membrane water treatment, 2015, IF= 0,436 (2013) (*elfogadva közlésre*)

Rácz G, Kerker S, Kovács Z, Vatai Gy, Ebrahimi M, Czermak P, Theoretical and experimental approaches of liquid entry pressure determination in membrane distillation processes, Polytechnica periodica, Vol 58, No 2 (2014), pp. 81-91, DOI: 10.3311/PPch.2179 IF= 0,130 (2013)

Rácz G, Alam M.R., Arekatte Ch. K, Albert K, Papp N, Stefanovits-Bányai É, Russo P, Di Matteo M, Vatai Gy, Potassium acetate solution as a promising option to osmotic distillation for sour cherry juice (*Prunus Cerasus L*) concentration (2014) Acta alimentaria Volume 43, Supplement 1, P: 114-123 DOI 10.1556/AAlim.43.2014.Suppl.17 IF= 0,427 (2013)

Torun M, **Rácz G**, Fogarassy E, Vatai Gy, Dinçer C, Topuz A, Özdemir F, Concentration of Sage (*Salvia fruticosa* Miller) extract by using integrated membrane process, Separation and Purification Technology, (2014); 132:244–251. DOI: 10.1016/j.seppur.2014.05.039 IF= 3,065 (2013)

Szakcikk hazai folyóiratban:

Rácz G, Kozák Á, Műveleti paraméterek hatásának kísérleti vizsgálata modell oldatok ozmotikus desztillációja esetén, Membrántechnika, 2009, ISSN 2061-6392. Nyilv. szám: 76.206/1997, p.: 41-54.

Szakcikk nemzetközi folyóiratban:

Rácz G, Papp N, Hegedűs A, Szabó Z, Nyéki J, Szabó T, Stefanovits-Bányai É, Vatai Gy, Concentration of ‘Oblachinska’ sour cherry juice using osmotic distillation, International Journal of Horticultural Science 2012, 18 (1): 31–34.

Hazai konferencia összefoglaló:

Rácz G, Papp N, Értékes anyagokban dús meggyűrítmény előállítása ozmotikus desztillációval, 2011. Keszthely XVII. Ifjúsági Tudományos Fórum, ISBN 987-963-9639-42-3

Rácz G, Fogarassy E, Vatai Gy, Torun M, Sahin H, Özdemir F, Zsályakivonat koncentrációja többlépcsős membrántechnikai eljárással. Műszaki Kémiai Napok, Veszprém 2011, ISBN 978-615-5044-07-6, p.:189.

Rácz G, Kozák Á, Műveleti paraméterek hatása a membrán és ozmotikus desztilláció folyamatára, MTA-AMB Kutatási és Fejlesztési Tanácskozás, 2010, Gödöllő ISBN 978-963-269-165-7, p.:22.

Nemzetközi konferencia összefoglaló:

Rácz G, S. Kerker, Z. Kovács, M. Ebrahimi, P. Czermak: The Perspectives of membrane distillation in produced water treatment. Műszaki Kémiai Napok 2013, Veszprém, ISBN 978-615-5044-79-3, p.:119.

Galkó Á, **Rácz G**, Galambos I, Vatai Gy, Microfiltration intensification (0.1 um) using static mixer and aeration in case of whey filtration, Élelmiszertudományi Konferencia 2013, 2013, Budapest, ISBN 978-963-503-550-2, p.:121-124.

Rácz G, Papp N, Vatai Gy, Concentration of sour cherry juice, XXVIII Membrane Summer School EMS, 2011, Smardzewice, Poland, ISBN 978-83-7789-027-1, p.:63.

Rácz G, Fogarassy E, Vatai Gy, Torun M, Dincer C, Sahin H, Özdemir F, Effects of the concentration treatments on sage (*Salvia fruticosa*) extract, 1st International Congress on Food Technology, 2010, Antalya, Turkey ISBN: 978-975-00373-3-7 p.:486, p.:189.

Rácz G, Fogarassy E, Vatai Gy, Torun M, Sahin H, Özdemir F, Concentration of Sage (*Salvia Fruticosa*) extract by using multistep membrane separation processes. Permea 2010, 2010, Tatranké Matliare, Slovakia, ISBN: 978-80-227-3339-7, p.:129.

Nemzetközi konferencia teljes anyag:

Rácz G, Kerker S, Hild J, Schmitz O, Schnabel B, Kovács Z, Vatai Gy, Ebrahimi M, Czermak P, Promising vacuum membrane distillation treatment for oil-in-water emulsion as model produced water purification, Élelmiszertudományi Konferencia 2013, 2013, Budapest, ISBN 978-963-503-550-2, p.:137-140.

Rácz G, Md Rizvi Alam, Albert K, Papp N, Koris A, Di Matteo M, Vatai Gy, Estimation of overall mass transfer coefficient in osmotic distillation for gentle sour cherry juice concentration, Élelmiszertudományi Konferencia 2013, Budapest, ISBN 978-963-503-550-2, p.: 93-96.

Rácz G, Papp N, Hegedűs A, Bányai É, Vatai Gy, Concentration of Sour Cherry Juice Using Osmotic Distillation, Chinese-European cooperation for a long-term sustainability, 2011, Budapest, Corvinus University of Budapest