

역삼투막 공정을 이용한 사과주스 농축시 겔층형성의 특성

허상선* · 주길재* · 장규섭** · 최용희

경북대학교 식품공학과, *경북대학교 농업과학기술연구소, **충남대학교 식품공학과

Characteristics of the Gel Layer Formation in the Concentration Process of Apple Juice with Reverse Osmosis Process

Sang-Sun Hur*, Gil-Jae Joo*, Kyu-Seob Chang** and Yong-Hee Choi

Department of Food Science & Technology, Kyungpook National University

*Institute of Agricultural Science and Technology Kyungpook National University

**Department of Food Science & Technology, Chungnam National University

Abstract

The effect of gel layer resistance based on Reynolds number, diffusion coefficient and mass-transfer coefficient, was analyzed in the concentration process of apple juice using the spiral-wound type reverse osmosis system. Pure water permeability increased linearly with increase of pressure. Fluid behaviors in the module were obtained in the both regions of laminar and turbulent flows. Diffusion and mass transfer coefficients increased linearly as temperature and flow rate increased. The gel layer resistance increased with increase of the operating pressure whereas it decreased with increase of the temperature and flow rate.

Key words: reverse osmosis system, gel layer resistance, mass transfer coefficient

서 론

막을 이용한 농축공정의 하나인 역삼투법은 유망한 농축공정의 하나로서 많은 산업에 있어서 기존 농축공정의 대체기술로 인식되면서 다양한 분야에서 이용이 시도되고 있다. 특히 식품산업에 있어 역삼투법에 의한 액상식품의 농축은 기존의 농축방법보다 농축제품의 품질을 향상시킬 수 있고 가공비용을 줄일 수 있어 새로운 가공기술의 개발 측면에서 급속히 대두되고 있다. 그러나 막분리공정에서 불가피하게 동반되는 막표면에서의 여과물질 축적으로 인한 농도 및 겔층 분극화와 이밖의 여과물질이 분리막을 오염시켜 분리성능을 저하시키는 현상은 가장 큰 공정의 문제점으로 이를 극복하기 위해 지난 수십년 동안 많은 연구를 수행하고 있으며 기술적인 해결방안이 요구되어지고 있다(Howell *et al.*, 1993; 전명석 등 1997).

이러한 연구중 하나는 막내부에서의 유체 흐름 배

카니즘을 규명하여 적절한 운전조건을 찾음으로써 막 오염을 최소화하여 플럭스를 향상 시키는 것이다(Field *et al.*, 1995). 즉 입자와 입자사이의 정전기적인 반발력을 고려한 새로운 역진달 메카니즘으로써 이는 입자가 막표면으로 전달되는 역진달 속도보다 작거나 같은 경우 입자가 막표면에 침강하지 않는 최대의 플럭스인 임계플럭스에서 공정을 운전함으로써 막오염이 발생하지 않아 플럭스를 일정하게 유지할수 있는 것이다. 그러나 대부분의 경우 이에 대한 연구는 실험적 고찰과 이론적 고찰이 별도로 진행되어 이론적으로 예측한 임계플럭스의 타당성을 확인하기 매우 어렵다는 문제점을 안고 있다(Cherkasov *et al.*, 1995; Howell, 1995).

한편, 또다른 방법은 관상 모듈내에서 흐름을 혼란시키거나 혹은 역삼투장치에 전자면을 끼워 투과유속이 저하되는 시점에 30 Kg/cm² 압력으로 압축가스를 역삼투장치내로 도입시켜 물리적인 힘을 가함으로써 겔층현상을 최소화하는 방법이다(Sheppard와 Thomas, 1969; Sheppard *et al.*, 1972; Kimura, 1974). 하지만 에너지 효율 및 품질면에서 아직 충분한 해결점을 찾지 못하고 있으며, 특히 식품의 경우 그 구성성분이 매우

Corresponding author: Yong-Hee Choi, Department of Food Science and Technology, Kyungpook National University, 702-701, Korea

다양하며, 또 서로 다른 성질을 갖고 있어 식품에 적합한 막기능을 유지할 수 있는 방법의 개발이 시급한 실정이다.

일반적으로 역삼투법에 의한 농축공정중 겔층현상이 발생하게 되면 막투과량은 극단적으로 순수 투과량의 약 2~10%정도에 지나지 않게 될 수도 있다. 따라서 역삼투 공정의 설계시 정확한 소요 막면적 및 용질 농축성능을 결정하기 위해서는 겔층형성에 대한 정량적 해석이 필수적으로 요구되고 있다.

이에 본 연구에서는 십자흐름(cross flow)의 나권형 역삼투 모듈을 사용하여 사과즙 농축시 추진력인 압력차와 도입사과즙 농도 변화에 따른 막투과량 및 막내부에서의 사과즙의 메카니즘을 측정하고, 막투과량에 미치는 겔층 저항을 정량적으로 해석하였다.

재료 및 방법

실험재료

본 실험에 사용된 시료는 "H"사에서 구입한 농축전의 사과즙 청징액으로서 농도는 11.2° Brix이다.

막 분리공정 시스템

역삼투막은 Film Tech.사에서 제조된 나권형 Aromatic polyamide 제질의 비대칭 막인 FT - 30 composite을 사용하였으며 막의 특성 및 제원은 Table 1에 나타내었다.

실험에 사용된 농축공정 시스템은 전보(Hur와 Choi, 1993)에 나타난 바와 같이 batch system으로 용액 도입부 및 배출부에서의 전이흐름(transient flow)의 영향이 없도록 설계·제작하여 사용하였다.

각 공정조건의 설정 및 막투과량의 실험은 막을 실험 최대 압력인 100 Kg/cm²에서 24시간 동안 압밀화시킨 후 압력차 변화에 따른 순수 투과량을 측정하고

추진력인 압력차는 30~60 Kg/cm²까지 10 Kg/cm² 간격으로 4단계로 변화시켰으며, 온도는 10°C에서 30°C까지 5°C 간격으로 유량은 2, 5, 10 L/min으로 일정하게 유지시켜 수행하였다.

정상상태의 실험값을 얻기위해 모든 막투과량은 실험 시작 후 약 30분 이상이 경과된 뒤에 측정하였으며, 정상상태의 각 공정이 끝난 후 0.1% NaOH 용액으로 시스템 전체를 세척하고 15~30분 동안 증류수로 다시 세척한 후 초기증류수와외 투과유속을 비교하였으며 그 결과 순수투과량을 97% 이상 일정하게 유지할 수 있었다.

물질전달계수

본 실험에 사용된 역삼투시스템의 도관 속을 흐르는 사과즙의 물질전달계수를 구하기 위해 식 (1)에 정의된 바와 같이 레이놀즈수(Reynolds Number, Re)의 함수식을 이용하였다. 유동의 형태를 분석한 후 층류인 경우 식 (2)에 나타난 바와 같이 Graetz와 Leveque식을, 난류인 경우 Dittus-Boelter의 식 (3)을 각각 이용하였다(Ishii와 Hasimoto, 1980).

$$Re = Dvp/\mu \tag{1}$$

$$Sh = 0.6641.62(Re \times DL)^{0.50}Sc^{0.33} \tag{2}$$

$$Sh = 0.023 Re^{0.80}Sc^{0.33} \tag{3}$$

한편 사과즙용액의 확산계수값은 식 (4)에 나타난 Wike - Chang 식(Blatt, 1978)을 이용하였다. 식 (4)에서 ϕ 인 association factor 값은 2.6으로 하였으며, V₁인 비등온도에서의 용질 분자부피를 구하기 위해

$$D_{AB} = 7.4 \times 10^{-12} (\phi M_B)^{1/2} T/\mu BV_A^{0.6} \tag{4}$$

사과즙의 수분의 중량 %을 87.2%로, 빙점온도를 -1.44°C로 하여 용액의 조성과 증기압관계를 양적으로 표시하는 식 (5)을 적용하여 사과즙의 유효분자량을 계산하였다. 사과즙의 유효분자량은 200.35이었다.

$$\lambda/R_g = (1/T_{A0} - 1/T_A) = \ln X_A \tag{5}$$

따라서 용질 분자부피는 아래식을 이용하여 각 온도에서의 용질 분자부피를 구할 수 있었다.

$$\rho T^2 = \frac{1}{\frac{X_1^w}{\rho_1} + \frac{X_2^w}{\rho_2}} \tag{6}$$

겔층형성의 분석

막분리공정에 있어서 용매가 막을 통해 선택적으로

Table 1. The specification of the membrane module used in reverse osmosis

Membrane	Spiral-wound module
Material	Aromatic polyamide (T.F.C.)
Recommended operating conditions	pH range: 2~11 °C: 0~60 Kg./cm ² : 0~100
Salt rejection	99.1%
Dimension (inch)	Diameter: 1.9 Length: 27.6

투과할 경우 시간이 지남에 따라 막면부근에 농도경계층이 발생하여 공급액의 농도에 비해 막면부근의 농도가 증가하는 농도분극현상이 나타난다. 이는 막 표면에서의 화학적 에너지가 증가하여 여과추진력을 감소시키는데 이러한 농도분극은 막투과속도에 대한 막 투과저항인 막저항 R_m 과 겔층저항 R_g 로 나타내 다음과 같이 표현할 수 있다(Anon, 1976).

$$J_v = (\Delta P - \Delta \pi) / (R_m / R_g) \quad (7)$$

따라서 순수한 증류수의 경우 $R_g=0$ 이므로 막저항 R_m 을 구한 후 막 자체에 부유물이 없을 경우 투과유속은 용액의 삼투압에 의해 조절되어 bulk 용액의 삼투압과 막표면의 삼투압이 거의 같다고 생각할 수 있으므로 각 공정조건에 따라 막모듈내에서의 겔층형성을 정량적으로 구할 수 있다.

결과 및 고찰

순수 투과 플럭스 변화

본 실험에 사용한 역삼투막의 투과계수를 구하기 위해 용해 - 확산형식을 이용하였다. 즉 순수한 증류수의 경우 $\Delta \pi=0$ 이므로 각 압력차를 변화시켜 막모듈 및 시스템 전부분에 새는 부분이 없는지를 확인하면서 총 부피 투과플럭스를 구함으로써 투과계수를 측정할 수 있었다.

Fig. 1에서 보는 바와 같이 막의 순수 투과 플럭스 변화는 압력차에 따라 직선적으로 증가 하였으며, 도입 유량의 변화에 따른 순수 투과플럭스의 변화는 없었다. 또한 직선의 절편이 0에 접근하므로 누수가 없

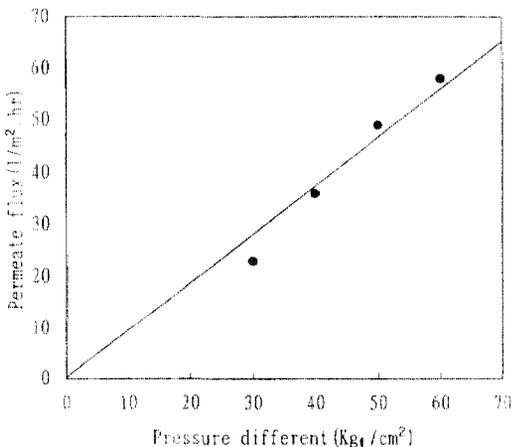


Fig. 1. Pure water permeate flux as a function of pressure.

음을 알 수 있었다.

모듈내에서의 유체 흐름 형태

나관형 모듈의 경계층 내부의 유동형태를 분석하고자 유동형태의 전환에 영향을 미치는 유속, 밀도와 점도, 모듈의 직경 등의 변수를 결합하여 구한 레이놀즈수를 Fig. 2에 나타내었다.

레이놀즈수가 480~4600까지의 영역범위를 보이고 있었다. 즉 유동의 형태는 층류에서 난류까지의 다양한 유동형태를 나타내고 있었으며, 온도가 증가할수록 레이놀즈수는 증가함을 보이고 있으나 공정온도 10°C에서 25°C까지는 온도의 영향에 따라 큰 변화 없이 미소한 증가를 나타내다가 공정온도 30°C의 구간에서는 온도의 증가에 따라 레이놀즈수는 급격한 증가를 보이고 있었다.

전반적으로 유량이 클수록 온도가 높을수록 레이놀즈수는 증가하는 경향을 보였으며, 이는 유량(유속)의 변화에 더 큰영향을 받고 있는 것으로 나타났다.

사과즙스의 확산계수 예측

확산계수를 구하기 위해 앞서 식 (6)을 이용하여 용질 분자부피를 온도변화에 따라 구한 결과 117×10^3 (cm³/g·mol)로 온도의 증가에 따라 근소한 증가나 감소경향을 보이고 있으나 전반적으로 온도의 영향에 큰 변화없이 일정한 분자부피를 나타냄을 보였다. 이는 비등온도에서의 용질 분자부피는 다성분 용액속에 들어 있는 각 원자들의 수에 의해 분자부피가 결정되므로 온도 등의 외부적인 영향인자 보다는 다성분 용액속에 들어 있는 각 성분들의 구성비에 더 큰 영향을 받

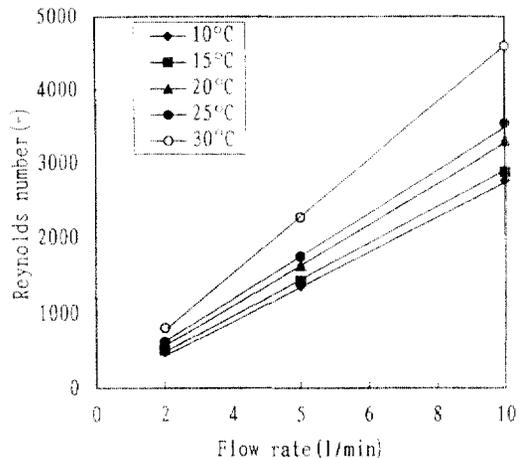


Fig. 2. Reynolds number as a function of flow rates in spiral wound module.

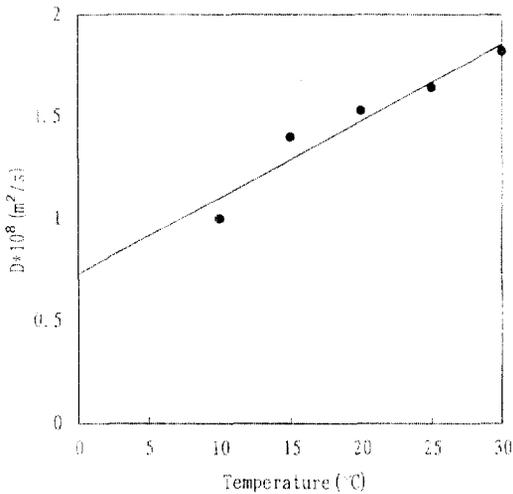


Fig. 3. Effect of temperature on the diffusion coefficient of apple juice in spiral wound module.

기 때문에 사료되어진다(Brodkey와 Hershey, 1988).

Fig. 3은 Wike-Chang식을 이용하여 온도의 변화에 따른 모듈내에서의 확산계수를 나타낸 것으로 온도의 상승에 따라 확산계수가 선형적으로 증가함을 알 수 있었다. 이는 일반적으로 확산계수가 온도 및 농도의 증가에 따라 선형적인 관계를 나타낸다는 여러 연구 결과와 일치함을 보였으며(Geurts *et al.*, 1980; Drusas *et al.*, 1988; Conway *et al.*, 1983), 특히 다공성 물질에서의 확산에 있어 확산과정에 다공성 물질에 확산물질의 농도구배가 생기게 위해서는 장시간이 필요한데 이로 인해 물의 확산이동이 확산물질의 이동을 대체하게 되어 Swelling 현상과 Polymer matrix에 결합하는 Binding effect로 인해 확산물질의 농도에 대하여 비선형적 혹은 선형적인 관계를 나타나는 경우가 있다(Naesens *et al.*, 1981). 하지만 본 실험의 경우 막 자체에서 농도구배가 생기는데 단시간이 소요되며 binding effect의 경우 농도분극 및 겔층형성에서 고려되어 지므로 물의 이동에 의한 Swelling 현상 및 Binding effect은 무시될 수 있다고 사료되어 진다(Belton와 Wilson, 1982).

사과주스의 물질전달계수

물질전달계수를 온도와 유량에 따라 구해 Fig. 4에 나타내었다. 유량이 증가함에 따라 물질전달계수는 큰 차이로 변화하고 있으며, 특히 유량 10 L/min의 경우 공정온도 30°C에서 급격한 증가를 보이고 있었다. 이러한 이유는 모듈내의 유동의 흐름이 난류형태로 전환, 레이놀즈수가 다른 공정구간에 비해 상대적으로

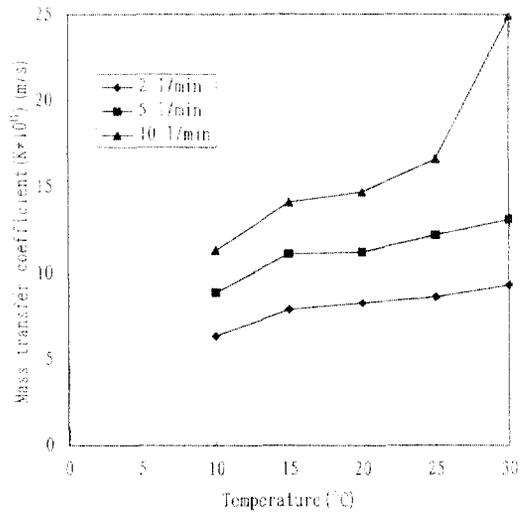


Fig. 4. Mass transfer coefficients of apple juice at different temperatures in spiral wound module.

로 증가함에 따른 것으로 추정되어진다.

아래에 나타난 막수송 투과식인 식 (8)에서 알 수 있듯이 J_v 가 크게 되면 C_w 의 값도 크게되어 용해-확산 모델식(Lonsdale *et al.*, 1983)인 식 (9)과 (10)의 J 의 값이 크게 되면서 결국엔 분리율이 나쁘게 되고 $\Delta\pi$ 의 값도 크게 되어 버린다.

$$J_v = \frac{C_w - C_p}{C_b - C_p} = \text{EXP} \left[\frac{J_v}{k} \right] \tag{8}$$

$$J_v = L_p (\Delta P - \Delta \pi) \tag{9}$$

$$J_s = BAC \tag{10}$$

따라서 이러한 현상을 막기 위해서는 물질전달계수 k 을 크게 해주어 될 수 있는 한 막면부근의 경계막을 얇게 해주어야 하며 이를 위해 막면부근의 교반을 심하게 하거나 액의 속도를 크게 해줄 필요가 있는데 이는 결과적으로 레이놀즈수를 증가해야 한다는 것을 의미한다고 할 수 있다.

모듈내에서의 압력에 따른 겔층형성

역삼투공정을 이용한 사과주스의 농축시 압력에 따른 겔층형성을 정량적으로 도식화하여 Fig. 5에 나타내었다.

역삼투막 모듈내에서의 압력에 따른 포괄적인 농도 분극현상 즉, 막자체의 저항 분포는 Fig. 5에서 보는 바와 같이 공정압력이 상승할수록 막 경계층에서는 농도분극현상으로 인한 겔층저항이 심하게 일어남을 알 수 있었다. 즉 공정 압력 30 kg/cm²에서 압력 60

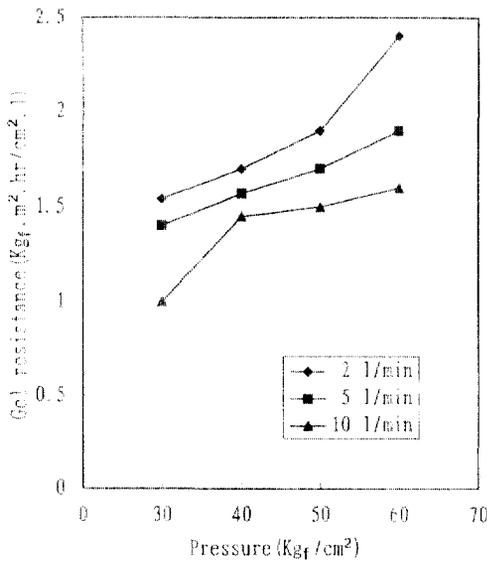


Fig. 5. Gel resistance as a function of the pressure in concentration of apple juice.

kg/cm²로 상승함에 따라 겔층저항은 32% 이상 증가함을 보여주고 있다.

압력의 상승에 따른 겔층저항은 전반적으로 상승을 하는데 이는 일반적으로 압력이 상승하면 압력의 영향에 의해 공정초기에 높은 투과유속이 일어나는데 이러한 수분의 높은 투과유속은 막부근에 배제액 용질의 침적현상을 급격하게 초래하여 경계층면을 두껍게 하는 결과로 인한 것으로 사료된다(Mcdonogh *et al.*, 1995).

모듈내에서의 온도에 따른 겔층형성

온도에 따른 겔층저항의 결과를 Fig. 6에 나타내었다. 전반적으로 온도의 상승에 따라 경계층면에서의 전반적인 겔층의 저항은 감소됨을 알 수 있었다. 특히 50, 60 kg/cm² 구간의 경우 온도의 상승에 따라 겔층저항은 급격한 감소를 나타내고 있으며, 30, 40 kg/cm² 구간의 경우에는 온도의 상승에 따라 겔층저항이 감소하나 압력의 상승에 따른 감소변화는 극히 미약하였다.

이상과 같이 온도에 따른 겔층영향은 온도가 상승할수록 겔층 저항이 감소하는 경향을 보였는데 고온에서 겔층저항이 감소하는 것은 유체역학적인 이유보다는 사과주스를 구성하는 성분의 Thermal diffusion에 의한 Back diffusion에 의한 것이 아닌가 사료되어진다.

모듈내에서의 유량에 따른 겔층형성

공정유량을 2, 5, 10 L/min.로 하여 모듈내에서의 겔

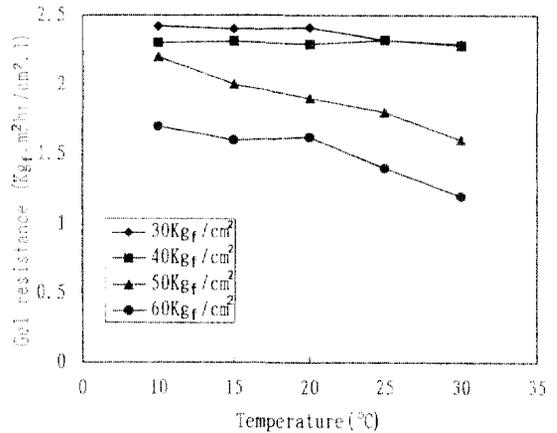


Fig. 6. Gel resistance as a function of the temperature in concentration of apple juice.

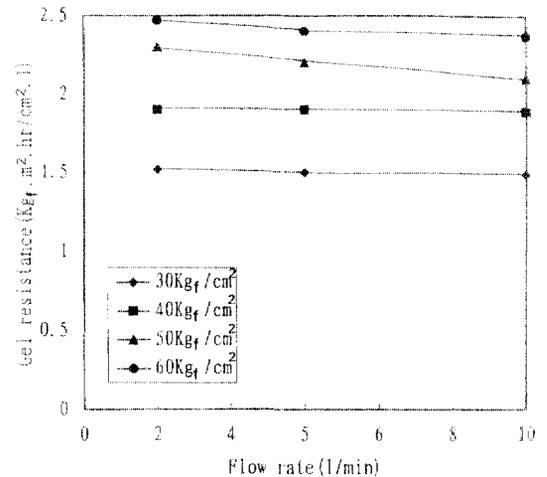


Fig. 7. Gel resistance as a function of the flow rate in concentration of apple juice.

층저항의 분포를 추정하여 Fig. 7에 나타내었다. 유량의 증가에 따른 겔층저항의 변화는 Fig. 7에서 보는 바와 같이 아주 적은 변화율을 나타내면서 감소하는 경향을 보였으며, 전반적으로 유량의 변화에 따른 겔층저항은 평균 1.6배정도 감소율을 나타내었다.

요 약

Aromatic polyamid 막재질로 내경 5 cm, 길이 70 cm인 나뉜형 역삼투 모듈을 사용하여 사과주스농축시 각 공정조건이 압력은 30~60 Kg/cm²까지 10 Kg/cm² 간격으로, 온도는 10~30°C 범위에서 5°C 간격으로, 유량은 2, 5, 10 L/min에서의 변화에 따른 모듈내에서의 겔층형성을 정량적으로 구하였다. 전반적으로

공정압력이 높을수록 겔층저항이 급격하게 증가하였으며, 온도와 유량에 따라서는 이들 두 변수값이 증가할수록 겔층저항이 감소되는 경향을 나타내었다. 이는 공정압력이 상승 할수록 공정초기에 높은 투과유속의 영향으로 막 부근에 배제액 용질의 침적현상을 초래하여 겔층형성이 급격하게 형성되는 경향을 나타내는 것으로 사료되어 진다. 따라서 겔층형성에 따른 투과유속의 저하에 가장 큰 영향을 미치는 공정인자는 압력임을 알 수 있어 압력의 과다한 증가는 피하는 것이 합리적이라 생각되어 진다.

감사의 글

본 연구는 농림부에서 시행한 첨단기술개발 사업의 지원으로 수행된 연구결과의 일부로 이에 감사드립니다.

기호설명

- C_b : concentration in feed solution (kg/m^3)
- C_m : concentration on membrane surface (kg/m^3)
- C_p : concentration in permeate (kg/m^3)
- AC: concentration different across the membrane (kg/m^3)
- D : module diameter (m)
- DAB: diffusivity (m^2/s)
- L : module length (m)
- L_p : pure water permeability coefficient ($\text{cm}^2 \cdot \text{L/m}^2 \cdot \text{kg} \cdot \text{sec}$)
- J_s : permeation flux of solution ($\text{L/m}^2 \cdot \text{sec}$)
- J_s : solute flux ($\text{L/m}^2 \cdot \text{sec}$)
- ΔP : difference of pressure (kg/cm^2)
- M_B : molecular weight of solvent
- R : gas constant
- Re: reynolds number
- R_m : resistance of membrane ($\text{kg} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{hr}/\text{cm}^2 \cdot \text{L}$)
- R_g : resistance of gel layer ($\text{kg} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{hr}/\text{cm}^2 \cdot \text{L}$)
- Sc: Schmidt number
- Sh: Sherwood number
- $T_{\Delta 0}$: freezing point of pure liquid ($^{\circ}\text{K}$)
- T_{Δ} : freezing point of solution ($^{\circ}\text{K}$)
- V_A : solute molar volume at normal boiling point ($\text{cm}^3/\text{g} \cdot \text{mol}$)
- v : flow velocity in the module (m/s)
- X_A : molar fraction of liquid in solution (mol)
- X_w : mass fraction of water (mol)

- X_w : mass fraction of apple juice solute (mol)
- λ : molar latent heat of fusion (kcal)
- μ_B : viscosity (cp)
- ρ_f : total density of apple juice (kg/m^3)
- ρ_1 : density of water (kg/m^3)
- ρ_2 : density of apple juice solute (kg/m^3)
- φ : association parameter
- $\Delta\pi$: difference of the osmotic pressure (kg/cm^2)

문헌

전명석, 김재진, 장문석. 1997. 화학공업과 기술, **15**: 196-203.

Anon. 1976. Reverse osmosis today's. *Process Biochem.*, **11**: 32-41.

Belton, P.S. and R.H. Wilson. 1982. An experimental simple method for measuring diffusion in food gel. *J. Food Technol.*, **17**: 531-540.

Blatt, W.F. 1976. Principles and practice of ultrafiltration. Elsevier Scientific Publishing Co., pp.810-839.

Brodkey, R.S. and H.C. Hershey. 1988. *Transport Phenomena. Macgraw-Hill Book Comp.*, pp210-247.

Cherkasov, A.N., S.V. Tsareva and A.E. Polotsky. 1995. Selective properties of ultrafiltration membranes from the standpoint of concentration polarization and adsorption phenomena. *J. Membranes Sci.*, **104**: 157-164.

Coaway, J., F. Castaigne., G. Picard and X. Vovan. 1983. Mass transfer consideration in the osmotic dehydration of apple can. *Inst Food Sci. Technol.*, **16**: 25-29.

Drusas, A., G.K. Vagenas and G.D. saravacos. 1988. Diffusion of sodium chloride in green olives. *J. Food Eng.*, **7**: 211-216.

Field, R.W., D. Wu., J.A. Howell and B.B. Gupta. 1995. Critical flux concept for microfiltration fouling. *J. Membranes Sci.*, **100**: 259-272.

Geurts, T.J., P. Walstra and H. Mulder. 1980. Transport salt and water during salting of chesse. *Milk Dairy J.* **28**: 102-107.

Howell, J.A. 1995. Sub-critical flux operation of microfiltration. *J. Membranes Sci.*, **107**: 165-171.

Howell, J.A., V. Sanchez and R.W. Field. 1993. *Membranes in Bioprocessing.* Blackie Academic & Professional, London, UK, pp.210-248.

Hur, S.S. and Y.H. Choi. 1993. Studies on the Efficient Concentration Process of Apple Juice With Reverse Osmosis Process. *Korean J. Food Sci. Technol.*, **25**(4): 321-326.

Ishii, K. and H. Hasimoto. 1980. Lateral migration of a spherical particle in flows in a circular tube. *J. Phys. soc. Jpn.*, **48**: 2144-2150.

Kimura, S. 1974. Process design of reverse osmosis process. *Nippon Kaisui Gakukai-Shi.* **27**(5): 295-307.

Lonsdale, H.U., Merten and R. Riley. 1986. Transport properties of cellulose acetate osmotic membranes. *Desalination.* **59**: 105-111.

McClonogh, R.M., H. Bauser., N. Stroh and U. Grauschoph.

1995. Experimental in situ measurement of concentration polarisation during ultra-and micro-filtration of bovine serum albumin and dextran blue solution. *J. Membrane Sci.*, **104**: 51-63.
- Nassens, W., G. Bresseleers and P. Tobback. 1981. A method for the determination of diffusion coefficients of food component in low-and in intermediate moisture system. *J. Food Sci.*, **46**: 1446-1449.
- Sheppard, J.D. and D.G. Thomas. 1969. Control of concentration polarization and arrest of fouling of cellulose acetate hyperfiltration membranes by high axial velocity. *Appl. Polym. Symp.*, (13): 121-139.
- Sheppard, T.D., D.G. Thomas and K.C. Channabsappa. 1972. Membrane fouling IV parallel operation of four tubular hyperfiltration modules at different velocities with feeds of high fouling potential. *Desalination*. **11**(3): 385-391.