

산·학·연 논단

식품산업에서의 투과증발의 응용

유종근 · 이준호^{*†} · 최용희^{**}

대상(주) 중앙연구소 전분당연구실, *대구대학교 식품생명화학공학부, **경북대학교 식품공학과

The Application of Pervaporation Technology in Food Industry

Jong Geun Yoo, Jun Ho Lee^{*†} and Yong Hee Choi^{**}*Starch & Sweetener Div., Daesang Corp. R&D Center, Ichon 467-813, Korea***Div. of Food, Biological & Chemical Engineering, Daegu University, Kyoungsan 712-714, Korea****Dept. of Food Sci. & Technology, Kyungpook National University, Daegu 702-701, Korea*

서 론

분리 공정(separation process)이란 기본적으로 분리 대상 물질의 크기 차이를 이용하여 액상 혹은 기체상의 혼합물로부터 둘 또는 그 이상의 물질들을 나누는 공정을 말한다. 초기에는 기체 또는 액상으로부터 섞이기 어려운 입자의 분리를 의미하였으나 현재의 막 분리 공정은 액상 또는 기체 상에 녹아있는 용질이 크기 차이뿐만 아니라 확산도, 전하, 온도, 압력, 용해도, 표면활성도 및 밀도차 등을 이용하여 분리 효율성을 높이는 분야에까지 확대되고 있다. 막의 1차적인 역할은 선택성(selective barrier)에 있으므로, 혼합물을 구성하고 있는 성분 중에서 몇몇 특정 성분들은 통과시키고 기타 성분들을 걸러내는데 있다. 막이라고 하면 우리들은 흔히 생체막(biological membrane)과 혼동하는 경우가 있다. 그러나 산업적으로 이용되는 대부분의 막은 인공막(artificial membrane)으로서 다양한 합성 고분자 재질로 사용되고 있다(1).

분리 공정 기술 중 가장 최근에 소개된 투과증발(pervaporation)은 액상 혼합물을 선택적 투과성이 있는 비다공성(nonporous) 막을 사이로 한쪽에는 분리하고자 하는 혼합 액체를 다른 한쪽은 진공에 의한 감압 또는 질소와 같은 불활성 기체를 흘려서 저증기압으로 유지하여 그 압력차이를 이용해 휘발성 유기용액을 낮은 압력 쪽으로 증발시킴으로서 분리하는 액체 혼합물 분리 기술이다(Fig. 1). 이는 분별증류로 분리하기 힘든 액체 혼합물, 이성체 혼합물 또는 옆에 민감한 액체 혼합물 등의 분리에 효과적인 막 분리 방법 중 하나이다. Fig. 2는 투과증발의 이해를 돋기 위해 다른 막분리 기술을 나타내었다.

투과증발에서 가장 중요하게 다루어지는 막은 초기엔

셀룰로즈를 이용하여 유기물 분리에 이용하였고, 점차 플렉스나 선택도를 높이기 위해 엘라스토머(elastomers)와 같은 종합재료를 사용하기에 이르렀다. 또한 최근엔 엘라스토머 중 하나인 PDMS(polydimethyl siloxane)에 소수성 재질인 zeolite나 silicalite를 코팅 처리해 유기물의 분리에 효과적으로 사용되고 있다(2-4).

1960년대 이후부터 적절한 막소재 개발 및 분리기구에 대한 연구 등을 중심으로 집중적인 실험이 진행되어지면서 투과증발을 이용한 분리공정은 현재 산업적으로 다양하게 응용되어 외국의 경우 유기물 농축 분야에 50여 개 이상의 실 플랜트가 운전되어지고 있다(5). 그러나 우리나라의 경우 파일롯 플랜트 규모 정도의 실험이 이루어지고 있으며, 실 플랜트 운전은 찾아보기 힘이 듈다. 이제까지의 투과증발 연구 예를 들면, 에탄올 농축을 위한 물탈수공정(6)과 고순도 IPA 농축공정(7), 초산에틸·아세톤 등의 유기용매 농축 공정(8,9), 폐수처리 시 유기물 농축공정(10-12), 이성질체의 분리 및 유기물질에서의 특정 유기물질의 분리 등에 초점이 맞추어졌다. 식품에서의 투과증발 응용은 주정 및 음료산업에의 적용은 불순물제거 및 아로마의 회수 측면에서 상당히 긍정적으로 평가되어지고 있다. 따라서 본 논문에서는 산업현장에서의, 특히 식품산업에서, 투과증발의 이해를 돋기 위해 투과증발의 기초자료 조사로서 투과증발의 역사와 작동원리, 이론적 배경 및 응용 등에 대하여 기술하고자 한다.

투과증발의 역사

그 어원에서 보면 투과증발(pervaporation)은 투과(permeation)와 증발(evaporation)의 합성어이다. 1917년

¹Corresponding author. E-mail: leejun@biho.taegeu.ac.kr
Phone: 053-850-6535. Fax: 053-850-6539

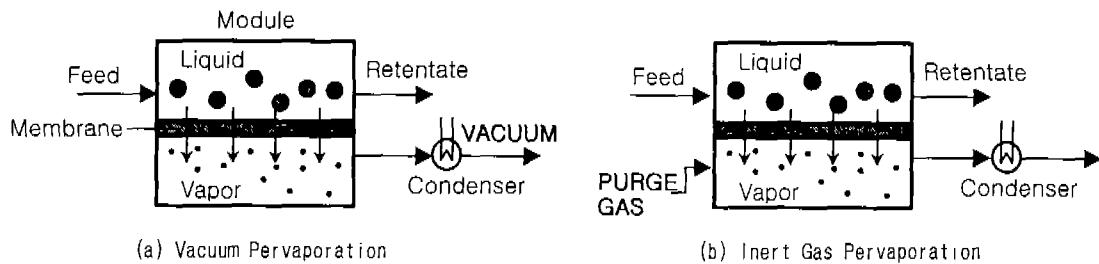


Fig. 1. Schematic diagram of the pervaporation process.

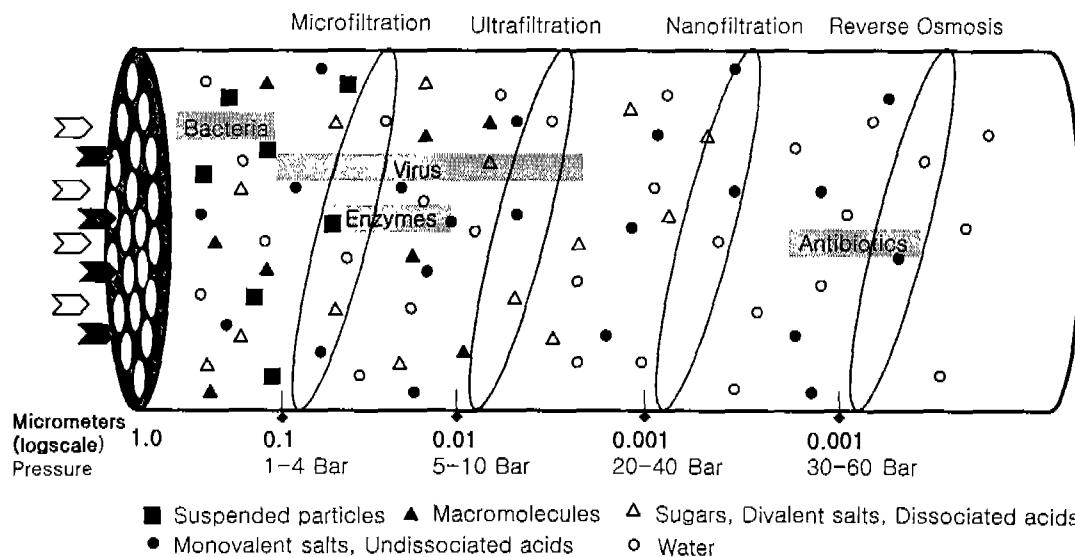


Fig. 2. Characteristics of membrane processes.

에 Kober에 의해 “pervaporation”이 소개되었으며 투석실험에서 대기 중에 부유된 collodion bag 사이로 물이 증발되는 것을 관찰하여, 이와 같은 액체가 증발되는 현상을 Kober는 “pervaporation”이라 명명하였다(13). 투과증발이 액체혼합물에 대한 공업적인 분리 공정으로 처음 제안된 것은 1956년 Binning이었지만 분리하고자 하는 투과플렉스가 현저히 적어 산업현장 응용은 부족했다. 그런데 1980년 초 독일의 GFT사가 다공성 재질(acrylonitrile)에 PVA(polyvinyl alcohol)를 가한 합성막을 개발하여 산업에 실질적으로 적용되기 시작함으로서 새로운 막분리 공정으로 주목받게 되었다(5,14).

투과증발의 원리

일반적으로 투과증발 공정의 반응기작은 수착-확산(sorption-diffusion) 모델로 설명된다. 이 모델에 의하면 투과현상은 액체분자들이 막을 통해 용해되어 들어가는 용해단계(solution-sorption)와 용해된 액체분자들이 고분자 막 내부를 통해 막 하부 쪽으로 확산되어 이동하는 확산단계(diffusion) 마지막으로 하부 쪽 막 표면으로 이

동한 투과 성분들이 막 표면에서 이탈되어지는 탈착단계(evaporation-desorption)의 세 단계로 이루어진다(Fig. 3). 이 중 탈착단계는 그 투과 저항이 작아 대부분 무시되므로 투과증발에서 투과현상은 용해단계와 확산단계가 그 속도를 결정하게 된다. 혼합용액에서 각 성분들간의 용해도와 확산도의 차이는 여러 가지 요인에 영향을 받으며 특히 투과성분과 막간의 화학친화도에 의한 상호인력에 크게 영향받는 것으로 알려져 왔다. 따라서 분리하고자 하는 물질과 막간의 친화도가 큰 것인 효과적인 분리에 유리

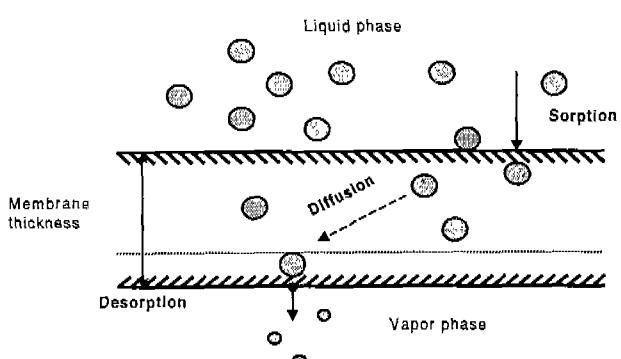


Fig. 3. Mechanism of liquid permeation through a membrane.

하다. Fig. 4는 투과증발장치의 모형을 나타내고 Fig. 5에 막 모듈의 형태를 참고로 나타내고 있다.

막에서의 물질 전달

연속저항모델(resistance-in-series)에서의 첫 단계는 공급액으로부터 막 표면까지의 물질전달이다. 투과물들은 공급액에서 막 표면으로 대류적으로 이동하지만 막의 선택성 때문에 흐름이 늦은 투과물(slower penetrant)의 순 흡수량은 흐름이 빠른 투과물(faster penetrant)의 순 흡수량보다 많지 않다. 이와는 달리 경계층에서는 확산물질전달이 이루어지는데, 흐름이 늦은 투과물은 흐름이 빠른 투과물과 비교해서 막에 의해 배제되어 경계층을 통한 확산 메카니즘에 의해 공급액으로 다시 되돌아간다. 이것은 막 표면으로 흐름이 늦은 투과물의 농도를 증가시키는 결과를 초래(농도분극)하는 반면 흐름이 빠른 투과물은 막에 의해 전달이 줄어들고 막과 똑같은 물질전달율을 유지할 수 없는 확산 메카니즘으로 경계층을 통하여 막쪽으로 이동한다. 결과적으로 흐름이 빠른 투과물의 농도는 막 표면 쪽으로 길수록 감소한다(Fig. 6). 따라서 경계층을 통한 전체 풀렉스는 막 표면 쪽에서 공급액의 대류적 이동

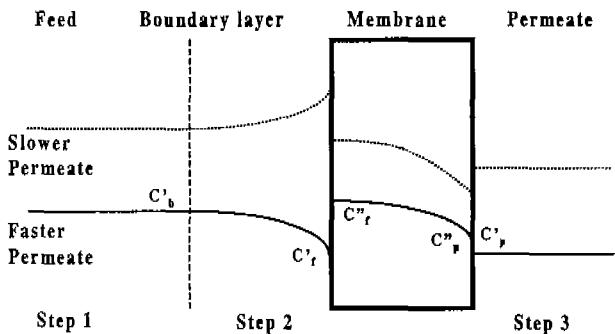


Fig. 6. Schematic concentration profile for the resistance-in-series model.

과 경계층에서의 확산 이동 둘 다 영향을 받는다. Psaume et al.(15)은 경계층을 통한 성분들의 일반적인 투과식을 아래와 같이 나타내었다.

$$J_{\text{tot}} = J_{\text{diff}} + J_{\text{conv}} \quad (1)$$

확산에 대한 저항은 일정한 두께를 갖는 정체 경막에서의 저항과 같다는 경막론(file theory)은 정상상태에서 경계층의 물질전달 해석을 돋는다. 또한 경계층의 정상상태 물질전달은 대류현상이 아닌 확산현상이다. 그러므로 정상상태에서 경계층에서의 확산물질전달에 영향을 미치는 것은 모듈형태나 유체의 점성 혹은 흐름형태, 성분의 확산성 그리고 투과증발 시스템의 형태 등이다. 따라서 경계층에서의 성분 i 의 확산물질전달 모델식은 농도 차이를 물질전달계수로 곱한 것과 같이 나타낼 수 있다.

$$J_i = k_{f,i} (C'_{b,i} - C'_{t,i}) \quad (2)$$

여기서, J_i 는 경계층을 통하는 성분 i 의 풀렉스, $k_{f,i}$ 경계층에서의 물질전달계수 즉, 단위농도 차이 당 단위면적 당 물질전달속도(m/s) 그리고 C 는 물분율이다. 경계층을 통한 확산물질전달을 위한 물질전달계수, $k_{f,i}$ 는 반 실험적인 Sherwood 상관관계로부터 얻을 수 있다. Crossflow 투과증발에서 이런 상관관계들은 일반적으로 다음과 같이 나타낼 수 있다(16,17).

$$Sh = b Re^c Sc^d \left(\frac{d_h}{L} \right)^e \quad (3)$$

여기서,

$$Sh = \frac{k_{f,i} d_h}{D_i} \quad (4)$$

$$Re = \frac{\nu d_h}{v} \quad (5)$$

$$Sc = \frac{\nu}{D_i} \quad (6)$$

Sherwood 상관관계식의 일부 계수 b, c, d 그리고 e 는 Table 1에 주어져 있다.

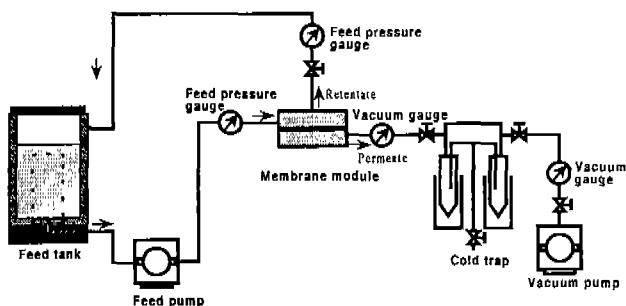


Fig. 4. Schematic diagram of a pervaporation system.

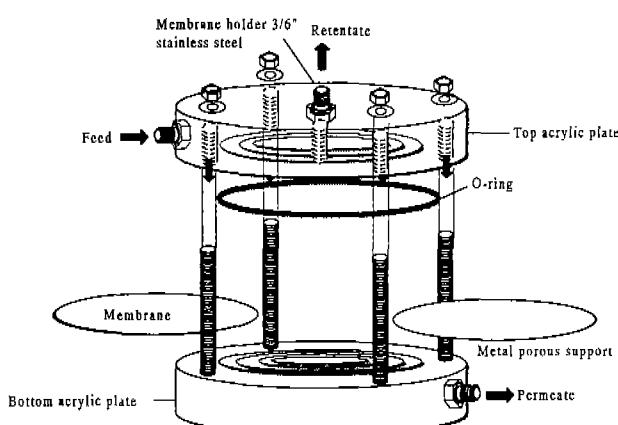


Fig. 5. Membrane module.

Table 1. Some examples of the coefficients in the Sherwood correlation^a

Flow regime	b	c	d	e	PV system
Laminar	1.62	0.33	0.33	0.33	crossflow
$Re < 2000$	1.85	0.33	0.33	0.33	crossflow
$10^4 < Re < 10^5$	0.34	0.75	0.33	0	crossflow
$Re < 10^5$	0.023	0.8	0.33	0	crossflow
Laminar	0.29	0.57	0.33	-	stirred cell
Turbulent	0.044	0.75	0.33	-	stirred cell

^a Adapted from Karlsson *et al.*(16).

투과특성 변수

Table 2는 투과증발에 의한 총체적 물질전달에 영향을 미치는 요인들을 나타내었다. 투과증발 공정을 수행하기 위해 기술되는 매개변수는 주로 플럭스, 선택도(selectivity)인 separation factor(α) 혹은 enrichment factor(β)가 널리 이용되고 있다. 플럭스(flux, J)는 막 단위면적과 시간에 대한 양으로 표시되며, permeate의 성분조성을 알면 그 성분의 플럭스를 알 수가 있다. 또한 투과 플럭스는 막 두께와 함께 용질의 원래 투과능에 상당히 의존한다. 그래서 산업적으로 비정형적인 형태의 합성막으로 투과 능을 높이기 위해 막을 가능한 한 얇게 한다. Separation factor(α)와 enrichment factor(β)는 공급액 속의 i 나 j 두 물질을 분리해 내는 공정 능력을 나타내는데 막 선택성이라고도 한다. Separation factor(α)는 다음과 같이 물 분율로 정의되며, 두 성분의 분리능을 나타낸다.

$$\alpha_{ij} = \frac{W'_{p,i}/W'_{f,i}}{W'_{p,j}/W'_{f,j}} = \frac{W'_{p,i}/W'_{p,j}}{W'_{f,i}/W'_{f,j}} \quad (7)$$

여기서 W' 는 weight concentration을 나타내고 p 와 f 는 각각 permeate와 feed를 나타낸다. 또한 i 성분에 대한 enrichment factor(β_i)는 α 와는 달리 단순히 permeate와 feed에서의 주어진 한 성분에 대한 무게농도에 대한 관계만을 나타내는 것으로 다음과 같이 정의된다.

$$\beta_i = \frac{W'_{p,i}}{W'_{f,i}} \quad (8)$$

Table 2. Factors affecting overall mass transfer during pervaporation

Factors	Examples
Molecular interaction	<ul style="list-style-type: none"> ▶ Size, shape and polarity of molecule Hydrogen bondage Donor-acceptor interaction
State of aggregation of the membrane polymer	<ul style="list-style-type: none"> ▶ Glass transition temperature Ratio of amorphous and crystalline domains
Physical properties	<ul style="list-style-type: none"> ▶ Composition of feed Thickness of boundary Selective porosity Temperature of the membrane Temperatures of downstream and feed

때때로 묽은 용액에서 용매의 농도는 $W'_{p,j} \approx W'_{f,j} \approx 1$ 표현할 수 있으므로 separation factor는 enrichment factor가 된다($\alpha_{ij} \rightarrow \beta_i$).

투과증발 응용분야

중요한 투과증발 공정 응용분야를 요약하면 다음과 같다.

유기물로부터 물의 제거

공업적으로 투과증발을 응용한 최초의 예는 에탄올-물 분리이다. 유기물 즉, 유기산이나 유기염과 같은 화합물들은 공비(azeotrope)를 형성하기 때문에 투과증발에 의한 탈수 공정은 상당히 높이 평가되어진다. 예를 들어 화공분야에 중간체로 많이 쓰이는 아세트산의 경우 힘든 공비종류나 용매 추출로 회수되는 것에 비하면 투과증발은 경제적인 측면에서 상당히 효과적이다. 공급액에 혼합된 물의 탈수는 친수성의 막을 이용해서 효과적으로 분리해 낼 수 있다. Ray등은 여러 친수성 소재의 막을 사용하여 아세트산을 탈수시킨 결과 막 중합체에 친수성기가 많을수록 플럭스는 증가하였지만 선택도는 감소하고, 공급액의 아세트산의 농도가 증가할수록 선택도는 증가, 플럭스는 감소한다고 보고했다. Ray의 보고에서 hydroxy ethylmethacrylate acylonitrile의 공중합체가 플럭스와 선택도가 효과적이었다(18).

따라서 일반 단일 중류시스템과 같은 복잡한 여러 단계를 거치는 것 보다 Fig. 7과 같이 중류와 투과증발의 혼합된 형태를 이용 시스템을 이용할 경우, 발효에서 생산된 묽은 에탄올(예를 들어)을 일반 중류탑으로 중류하여 알코올 함량 90~95%를 얻고, 이 용액을 투과증발 시스템에 공급하여 순수한 99.9%의 에탄올을 얻을 수 있다.

물과 가스로부터 유기물 제거

유기물로부터 물의 제거와 반대되는 이것은 막으로 실리콘고무나 친유성 고분자를 사용하여 물로부터 휘발성 유기오염물(예를 들어, 염소화 용매나 가솔린)을 제거할 수 있다(19). 이를 유기오염물들은 수용액 중에서 활동도

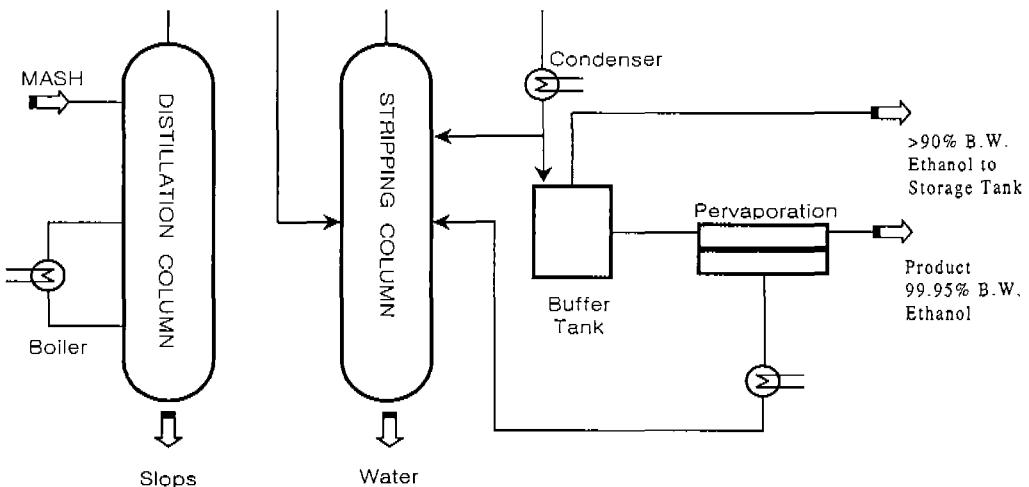


Fig. 7. Hybrid distillation/pervaporation system for ethanol production.

계수*가 비교적 높기 때문에 용액 중에 몇 ppm만 들어있어도 막에서의 평형농도는 커 회수 단계를 낮게 하여도 거의 완전히 제거할 수 있다. 20°C에서 실리콘 실관을 사용하여 trichloroethylene이 미량 들어 있는 물을 정제할 수 있음을 보였는데, 1단에서 trichloroethylene을 90%까지 제거할 수 있었다(15).

유기혼합물의 분리

화석연료를 여러 가지의 에너지로 분리하는 원리와 마찬가지로 유기혼합물의 분리는 까다로운 분리 절차를 필요로 한다. 식품산업에서, 특히 투과증발법을 이용한 유기 혼합물의 분리는 주정산업에서 찾아 볼 수 있을 것이다. 알코올 발효 과정에서 생산되는 유해 부산물인 acetaldehydes, esters 및 황화합물은 위스키나 소주 등과 같은 휘발성 액상 식품의 품질을 떨어뜨리는 가장 불필요한 화합물들이다. 또한 소주의 경우 대부분 고순도의 주정으로 희석하는 희석식 소주가 주류를 이루는데, 주 공정은 10 단계로 단계 중 종류단계는 매우 복잡하다. 특히 농축 공정은 단일 농축기 설치로 인해 소모되는 에너지가 전 공정의 45%를 차지할 만큼 크다. 따라서 농축하기 전 단계인 컬럼(column)에서 생산된 불순물이 많이 함유된 저농도의 알콜을 투과증발법을 이용할 경우, 재래식 주정생산 방법을 개선하고, 공정의 단순화 및 에너지 절감 그리고 장치설치비의 절감 등을 기대할 수 있다. 그러나 지난 몇십 년 동안 유기혼합물의 투과증발 응용은 에탄올의 탈수에 초점이 맞추어졌고, 순수 주정용 에탄올 생산은 실험실 규모로 시험되고 있을 뿐이다. Fig. 8은 실제 주정공장에서 생산된 주정으로 PDMS 1060과 1070막으로 투과증발 시킨 투과 플럭스의 비교를 나타낸 것이다.

수용액의 농축

식품산업에서의 음료 생산은 농축된 원액을 이용하여

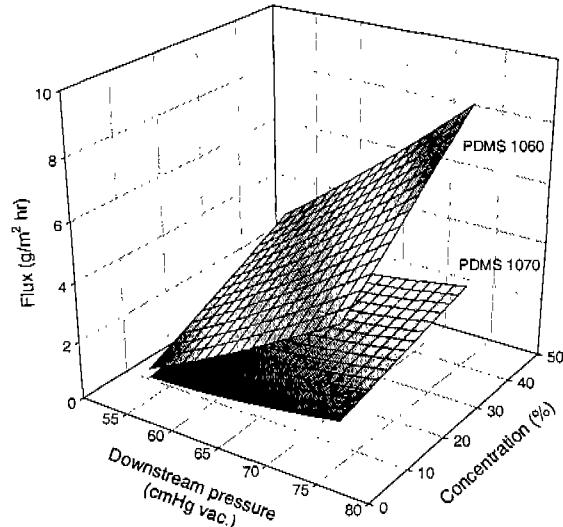
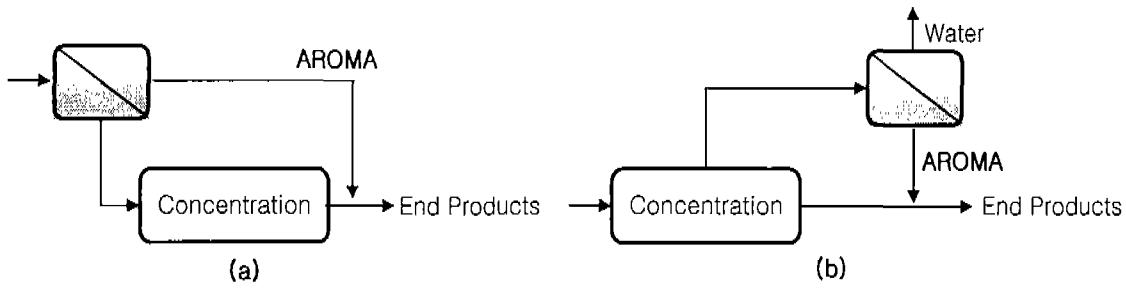


Fig. 8. The Permeation flux of spirits using PDMS 1060 and 1070 membranes.

레시피에 맞게 혼합한 형태가 주류를 이루고 있다. 특히 지금의 농축방법으로 농축원액 제조 시 상당량의 파일 아로마(aroma)들이 손실되며 이를 아로마를 줄이는 한 방법으로 투과증발을 응용할 수 있다. 이것은 농축 전에 열에 약한 아로마 성분을 회수한 뒤 농축 후 다시 주입하는 방법과, 농축 중에 열로 인해 발생하는 증기를 회수해서 그 증기로부터 아로마를 추출해 농축물에 다시 넣는 방법이 있다 (Fig. 9). Rajagopalan(1994b)등은 포도 아로마인 methyl anthranilate를 회수하고자 투과증발을 이용한 결과 초기 농도보다 약 10배 정도의 농축효과를 얻을 수 있었다. 이와 같이 아직까지 식품산업에서의 응용은 모델용액을 만들어 막 저항성이나 공정 변수에 의한 선택성 혹은 투과량의 예측을 위한 수학적인 해석 단계에 있다. Fig. 10은 PDMS 막으로 파일주스 모델 용액을 공급액의 농도에 대



(a) Aroma compound recovery before concentration. (b) Aroma compound recovery after concentration.

Fig. 9. Two methods of aroma recovery.

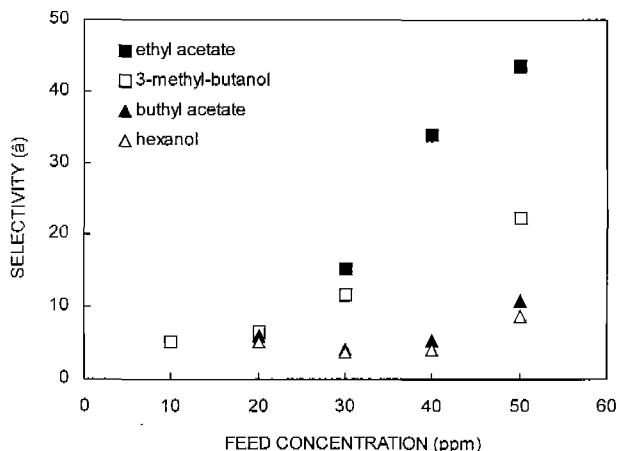


Fig. 10. Enrichment factor (β) vs feed concentration for the multicomponent aroma model solutions (Feed temperature of 45°C and downstream pressure of 60 cmHg vacuum).

한 선택도(β) 관계를 나타낸 것이다. 그림에서 전반적으로 공급액의 농도가 30에서 50 ppm으로 증가하면서 선택도가 증가하였으며, 끓는점이 77°C로 가장 낮은 ethyl acetate의 선택도의 범위가 7에서 43으로 가장 높았다(21). 특히 Jenny 등은 사과주스 모델용액의 투과증발에서 알콜류들은 막의 저항에 있어 물질 전달을 위한 공급액 경계층 저항에 크게 영향을 미치며 ethyl acetate와 같은 에스터류는 반대 경향을 나타낸다고 보고했다.

투과증발 전망

투과증발 시스템은 복잡하고 설치하기가 힘든 일반 종류시스템에 보다 비교적 단순한 조작으로 높은 생산성과 에너지 효율적 측면에서 상당히 긍정적으로 평가된다. 또한 entrainer를 방출하지 않음으로써 환경 친화적이다. 향후 10년은 음용 산업에 전기를 가할 것이다. 국내에서 공급되는 물은 그 수요에 미치지 못해 물의 재사용은 보편화 될 것이다. 이미 국내에 들여다 놓은 분리막은 많은 정수기에 설치 보급되었고, 그 시장 또한 많은 부분을 차지한다. 그러나 이들 분리막(MF, UF 혹은 RO)의 경우 단순한 불

순물의 제거에는 효과가 있지만 염화탄화수소나 방향족 탄화수소와 같은 휘발성 유기 용제를 분리해 내는 것은 어렵다. 종종 하천으로 불법으로 방류되는 휘발성 유기 용제들은 일차적으로 활성탄에 의한 흡착이나 공기주입(air stripping)으로 일부 제거되고 있지만 무극성 혹은 휘발성이 높은 용제에 사용되어야 하는 제한점을 가진다. 물론 투과증발 막은 투과률이 좋으면 선택도가 낮아지는 단점을 가진다. 그러나 최근 많은 연구자들이 막의 활성층을 더 얇고 선택도가 좋은 폴리머들을 코팅 처리하거나 비대칭적인 형태의 막구조를 도입하므로 투과증발의 효율적 사용을 제시하고 있다. 또한 막에서의 물질전달, 경계층에서의 농도분극 그리고 공중사막 사용 시 압력의 상승 등 더 많은 부분이 연구되어져야 한다. 그리고 투과증발은 용매회수가 가장 큰 문제인 제약분야나 순도가 비교적 높은 과일을 주원료로 하는 주정분야에도 넓게 사용되리라 기대된다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부·한국과학재단 지정 대구대학교 농산물 저장·가공 및 산업화 연구센터의 지원에 의한 것입니다.

기호 설명

<i>b</i>	constant (-)
<i>c</i>	constant (-)
<i>d</i>	constant (-)
<i>e</i>	constant (-)
<i>f</i>	constant (-)
<i>C</i>	volumetric concentration (-)
<i>J</i>	volumetric flux (m/sec)
<i>L</i>	length (m)
<i>W</i>	weight concentration (-)
<i>Sc</i>	Schmidt number (-)

- Sh* Sherwood number (-)
Re Reynolds number (-)

Greek letters

- α separation factor (-)
 β enrichment factor (-)
 δ membrane thickness (m)

Subscripts

- b* bulk
conv convective
diff diffusive
f feed or feed side
 i,j notation for liquid components in a liquid mixture
p permeate or permeate side
tot total

Superscripts

- ' outside the membrane
" inside the membrane

참 고 문 헌

8. Rajagopalan, N. and Cheryan, M. and Matsuura, T. : Recovery of diacetyl by pervaporation. *Biotechnology Techniques*, **8**, 869-872 (1994a)
9. Ray, S.K., Sawant, S.B., Joshi, J.B. and Pangarkar, V.G. : Dehydration of acetic acid by pervaporation. *J. Membr. Sci.*, **138**, 1-17 (1998)
10. Boddeker, K.W. and Bengtson, G. : Pervaporation of low volatility aromatics from water. *J. Membr. Sci.*, **53**, 143-158 (1990)
11. Schnabel, S., Moulin, P., Nguyen, Q.T., Roizard, D. and Aptel, P. : Removal of volatile organic components(VOCs) from water by pervaporation: separation improvement by Dean vortices. *J. Membr. Sci.*, **142**, 129-141 (1998)
12. Kim, H.J., Song, Y.S. and Min, B.R. : The study on the recovery of volatile organic compounds by pervaporation. *Membrane J.*, **9**, 51-61 (1999)
13. Kober, P.A. : Pervaporation, perstillation and percrystallization. *J. Membr. Sci.*, **100**, 61-64 (1995)
14. Xianshe, F. and Robert, Y.M.H. : Liquid separation by membrane pervaporation: A review. *Ind. Eng. Chem. Res.*, **36**, 1048-1066 (1997)
15. Psarou, R., Aptel, P., Aurelle, Y., Mora, J.C. and Bersillon, J.L. : Pervaporation: importance of concentration polarization in the extraction of trace organics from water. *J. Membr. Sci.*, **36**, 373-384 (1988)
16. Karlsson, Hans O.E. and Tragardh, G. : Pervaporation of dilute organic-waters mixtures. A literature review on modelling studies and applications to aroma compound recovery. *J. Membr. Sci.*, **76**, 121-146 (1993)
17. Karlsson, Hans, O.E. and Tragardh, G. : Aroma compound recovery with pervaporation-Feed flow effects. *J. Membr. Sci.*, **81**, 163-171 (1993)
18. Ray, S.K., Sawant, S.B., Joshi, J.B. and Pangarkar, V.B. : Dehydration of acetic acid by pervaporation. *J. Membr. Sci.*, **138**, 1-17 (1998)
19. Hickey, P.J., Juricic, F.P. and Slater, C.S. : The effect of process parameters on the pervaporation of alcohols through organophilic membranes. *Separation Science and Technology*, **27**, 843-861 (1992)
20. Rajagopalan, N. and Cheryan, M. : Pervaporation of grape juice aroma. *J. Membr. Sci.*, **104**, 243-250 (1995b)
21. Yoo, J.G. : Pervaporation separation of a multicomponent aroma model solution in natural fruit juice. The dissertation of Master, Kyungpook National University (2000)
22. Jenny, O. and Tragardh, G. : Influence of feed flow velocity on pervaporative aroma recovery from a model solution of apple juice aroma compounds. *J. Food Engineering*, **39**, 107-115 (1999)