Journal of the Korean Applied Science and Technology
Vol. 36, No. 1. March, 2019. 324~332
ISSN 1225-9098 (Print)
ISSN 2288-1069 (Online)
http://dx.doi.org/10.12925/jkocs.2019.36.1.324

인도네시아 열대작물 오일의 Amberlyst-15 촉매 에스테르화 반응 및 바이오디젤 물성 분석

이경호[*] · Riky Lim[*,***] · 이준표[**] · 이진석[**] · 김덕근[*,†]

[*]한국에너지기술연구원 바이오자원순환연구실
[**]한국에너지기술연구원 광주바이오에너지연구개발센터
[***]과학기술연합대학교대학원 재생에너지공학과
(2019년 3월 8일 접수: 2019년 3월 29일 수정: 2019년 3월 29일 채택)

Esterification of Indonesia Tropical Crop Oil by Amberlyst-15 and Property Analysis of Biodiesel

Kyoung-Ho Lee[*] · Riky Lim[*,***] · Joon-Pyo Lee[**] · Jin-Suk Lee[**] · Deog-Keun Kim[*,†]

[*]*Biomass and Wastes to Energy Laboratory, Korea Institute of Energy Research, Daejeon 34129, South Korea*
[**]*Gwangju Bio/Energy R&D Center, Korea Institute of Energy Research, Gwangju 61003, South Korea*
[***]*Renewable Energy Engineering, University of Science and Technology, Daejeon 34113, South Korea*
(Received March 8, 2019; Revised March 29, 2019; Accepted March 29, 2019)

요 약 : 한국과 인도네시아를 포함한 대부분의 국가는 온실가스 감축을 위해 바이오디젤 같은 바이오연료 보급에 대한 강력한 정책을 추진하고 있다. 하지만, 바이오디젤 보급 확대를 위해서는 원료 부족 문제를 먼저 해결해야 한다. 본 연구에서는 원료 공급 안정성을 개선하고 바이오디젤 생산 가격을 낮추기 위해 비식용이면서 동시에 단위면적당 생산성이 높은 인도네시아 열대작물(R. Trisperma) 오일의 바이오디젤 생산 가능성을 조사하였다. 수확기간이 다른 두 종류의 오일은 많은 불순물과 높은 유리지방산 함량을 가지고 있어 효율적인 바이오디젤 생산을 위해, 에스테르화 반응과 전이에스테르화 반응을 실시하였다. 오일은 반응을 진행하기 앞서 여과와 수분제거 과정을 통해 반응의 효율을 높이고자 하였다. 에스테르화 반응은 불균질계 산 촉매인 Amberlyst-15를 사용하였으며, 반응 전 오일들의 산가는 각각 41, 17 mg KOH / g 이었으나, 에스테르화 반응 후 3.7, 1.8 mg KOH/g으로 약 90% 이상의 전환율을 보이며 유리지방산 함량을 2%이하로 감소시켰다. 이후 전이에스테르화 반응은 KOH를 염기 촉매로 사용하여 바이오디젤 합성 실험을 진행하였다. 생성된 바이오디젤은 약 93%의 FAME 함량을 나타냈으며, 총 글리세롤의 함량은 0.43%으로 제품 규격(FAME 96.5%, 총 글리세롤 0.24%)에는 미달되었다. 이는 지방산 조성 분석 결과 일반적으로 관찰되지 않는 특이 지방산인 α-Eleostearic acid가 10.7~33.4% 포함되어 나타나는 특성으로

†Corresponding author
(E-mail: dkkim@kier.re.kr)

판단되며, 추가 반응 최적화 및 분리정제 연구 진행으로 연료품질 규격 달성이 필요한 것으로 나타났다. 기존에 활용되지 못하던 비식용 원료로부터 바이오디젤 생산 기술을 확보할 경우 바이오디젤 보급 확대를 위한 안정적 원료 공급에 기여할 것으로 판단된다.

주제어 : 바이오디젤, 열대작물 오일, Amberlyst-15, 에스테르화 반응, 전이에스테르화 반응

Abstract : Most countries including Korea and Indonesia have strong policy for implementing biofuels like biodiesel. Shortage of the oil feedstock is the main barrier for increasing the supply of biodiesel fuel. In this study, in order to improve the stability of feedstock supply and lower the biodiesel production cost, the feasibility of biodiesel production using two types of Indonesian tropical crop oils, pressed at different harvesting times, were investigated. R. Trisperma oils, a high productive non-edible feedstocks, were investigated to produce biodiesel by esterification and transesterification because of it's high impurity and free fatty acid contents. the kindly provided oils from Indonesia were required to perform the filtering and water removal process to increase the efficiency of the esterificaton and transesterification reactions. The esterification used heterogeneous acid catalyst, Amberlyst-15. Before the reaction, the acid value of two types oil were 41, 17 mg KOH/g respectively. After the pre-esterification reaction, the acid value of oils were 3.7, 1.8 mg KOH/g respectively, the conversions were about 90%. Free fatty acid content was reduced to below 2%. Afterwards, the transesterification was performed using KOH as the base catalyst for transesterification. The prepared biodiesel showed about 93% of FAME content, and the total glycerol content was 0.43%. It did not meet the quality specification(FAME 96.5% and Total glycerol 0.24%) since the tested oils were identified to have a uncommon fatty acid, generally not found in vegetable oils, α-eleostearic acid with much contents of 10.7~33.4%. So, it is required to perform the further research on reaction optimization and product purification to meet the fuel quality standards. So if the biodiesel production technology using un-utilized non-edible feedstock oils is successfully developed, stable supply of the feedstock for biodiesel production may be possible in the future.

Keywords : Biodiesel, Tropical Crop Oil, Amberlyst-15, Esterification, Transestrification

1. 서 론

석유계 연료는 현대 사회를 살아가는 우리에게 중요한 에너지원으로 자리잡고 있지만, 최근 화석자원 고갈과 가격 상승, 온실가스와 미세먼지 배출 등에 의한 환경오염 문제가 심각하게 부각되고 있다. 이에 기존의 화석연료를 대체하고 환경오염 문제가 거의 없는 친환경적 신재생에너지에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다. 수송부문에 사용되는 화석연료는 96% 이상이며, 전 세계 온실가스의 27%를 배출하고 있다. 따라서 기존 수송용 연료를 탄소중립으로 인정받는 바이오연료로 대체하는 방안은 온실가스 감축에 효과적인 수단이다. 그중에서도 바이오디젤은 식물성 및 동물성 유지, 폐식용유로부터 얻어지는 지방산 메틸에스테르(Fatty Acid Methyl Esters, FAME)로 기존 디젤엔진의 개조 없이 사용 가능한 장점이 있다[1,2].

바이오디젤은 유지내의 트리글리세라이드(Triglyceride)와 알코올이 촉매 존재 하에서 전이에스테르화(Transesterification) 반응을 통해 얻어진다. 이때 가장 많이 사용되는 방법은 KOH, NaOH 등의 염기성 촉매를 이용하는 방법이다. 염기성 촉매를 사용할 경우 산 촉매보다 반응시간을 단축시킬 수 있고 반응기를 부식시키지 않는다는 장점이 있다. 하지만 염기성 촉매를 사용하여 바이오디젤을 생산할 때, 유리지방산의 함량이 높으면 염기촉매와 원료 오일과 비누화 반응(Saponification)을 통해 지방산염을 생성하게 되어 촉매 사용량 증가, 바이오디젤과 글리세린간의

분리효율 저하, 세정 공정 부하 증가 등의 문제로 바이오디젤의 생산 수율을 크게 감소시킨다. 따라서 최근에는 전이에스테르화 반응 전 산 촉매를 이용하여 에스테르화(Esterification) 반응으로 유리지방산의 함량을 1% 이하로 낮춘 뒤 반응을 진행하는 방법이 적용되고 있다. 그중에서도 고체 산 촉매를 이용한 전처리 방법은 황산등의 산촉매 반응과 달리 반응 후 촉매의 분리 및 재이용이 가능하고 폐수가 발생하지 않는 장점이 있다[3-9].

미활용 열대작물 또는 식물성 오일을 이용한 연구는 그동안 지속적으로 연구되었다[10-13]. 한국과 인도네시아를 포함한 대부분의 국가는 지구온난화 방지를 위해 바이오디젤 같은 바이오연료 보급에 대한 강력한 정책을 추진하고 있다. 하지만, 바이오디젤 보급 확대를 위해서는 원료 부족 문제의 선행적 해결이 필요하다. 본 연구에서는 원료 공급 안정성을 개선하고 바이오디젤 가격을 낮추기 위해 비식용이면서 동시에 단위면적당 생산성이 높은 열대작물(R. Trisperma) 오일을 인도네시아로부터 공급받았다. 인도네시아 열대작물(Reutealis trisperma, commonly known as Philippine Tung)에서 추출한 식물성 유지의 바이오디젤 원료유로 활용가능성을 확인하기 위해 고체 산 촉매를 이용한 에스테르화 반응을 진행하여 유리지방산 함량을 낮추고, 염기성 촉매인 KOH를 이용하여 바이오디젤을 제조하고 그 물성을 평가하고자 하였다.

2. 실 험

2.1. 시약

본 연구에 사용된 원료유는 인도네시아에서 시범경작하고 있는 열대작물(Reutealis Trisperma, Kemiri Sunan)로부터 착유한 오일(Kemiri Sunan Oil, KSO)로 수확일이 서로 다른 오일을 사용하였다. KSO#1은 2017년 11월20일에 수확하여 2017년 11월 25일에 착유하였으며, KSO#2는 2018년3월 1일에 수확하여 2018년 3월 4일에 착유한 오일이다. KSO#1과 KSO#2의 산가는 각각 41, 17 mg KOH/g로 분석되었다. 오일의 성분을 파악하기 위해 표준방법에 의한 지방산 조성을 분석하였고 이를 Table 1과 Fig. 1-2에 정리하였다. 조성 분석결과 불포화 지방산 함량이 높게 나타났으며 특이 지방산인 α-Eleostearic acid가 포함되어 있음을 확인하였다[14,15].

전처리반응을 위해 사용한 고체 산 촉매는 Sigma-Aldrich사의 Amberlyst-15를 사용하였고, 알코올은 덕산사의 메탄올(GR grade)을 사용하였다. 바이오디젤 생산 반응에 필요한 알칼리 촉매는 OCI사의 KOH(95%)를 사용하였다.

2.2. 원료유 전처리

제공받은 원료유는 실험에 사용하기 앞서 반응의 효율을 높이기 위해 여과와 수분제거 과정을 거쳤다. 과정은 우선 진공펌프를 이용하여 원료유가 0.5μm의 하우징필터를 거쳐 여과되도록 하였다. 사용한 여과장치의 개략도는 Fig. 3에 나타내었다. 여과 이후 회전증발농축기(Rotary evaporator)를 이용하여 90도로 가열한 물중탕에서 진공펌프로는 감압하여 여과한 원료유 내에 포함되어 있을 수분을 제거하였다. 수분제거 과정은 진공펌프의 압력 게이지가 15mbar 이하로

Table 1. Fatty acid compositions of R. Trisperma oil [14]

Fatty acid	Structure	KSO#1	KSO#2	West Java[a]
Palmitic acid	C16:0	31.38	16.22	15.2
Stearic acid	C18:0	5.24	5.99	6.6
Oleic acid	C18:1	36.95	19.29	18.4
Linoleic acid	C18:2	13.45	18.84	23.1
α-Eleostearic acid	C18:3	10.73	33.41	36.8
Behenic acid	C22:0	2.24	4.24	-
Total saturated fatty acid		38.86	26.45	21.8
Total unsaturated fatty acid		61.13	71.54	78.3

[a]Abduh et al.[14].

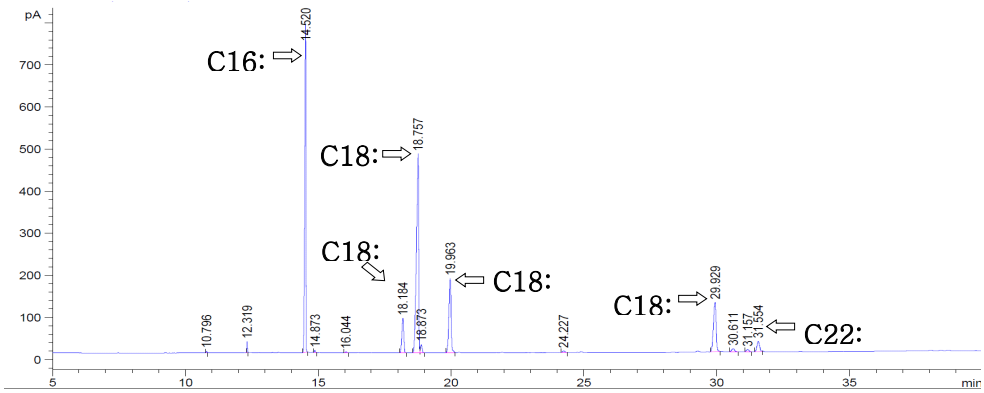

Fig. 1. Gas chromatogtam of R. Trisperma oil(KSO#1).

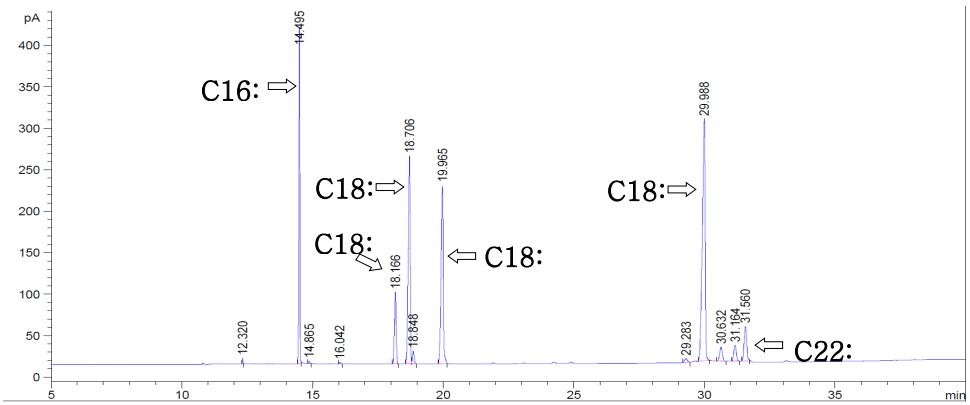

Fig. 2. Gas chromatogtam of R. Trisperma oil(KSO#2).

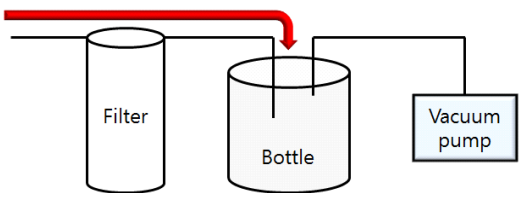

Fig. 3. Schematic diagram of Filtration.

감소될 때까지 진행하였다. 이후 여과와 수분제거 과정을 거친 원료유는 각각 산가, 수분, 고형물 분석을 통해 원료유의 전처리 전과 후의 값을 비교하였다.

2.3. 실험 방법

고체 산 촉매를 이용한 원료유의 에스테르화 반응은 둥근바닥 2구 플라스크를 반응기로 이용하였으며, 식용유를 이용한 기름 중탕으로 반응기의 온도를 조절하였다. 둥근 플라스크 상단에는 컨덴서를 설치하여 메탄올의 증발을 방지하였고, 다른 목으로 일정 반응 시간별 시료를 채취하였다. 사용된 반응장치의 모식도는 Fig. 4에 나타내었다[16]. 실험은 반응온도 65℃에서 진행하였으며, 원료유 100g과 메탄올 30wt%, 촉매 10wt%를 반응기에 넣은 다음 마그네틱 바를 이용하여 교반하며 전처리 에스테르화 반응 실험을 진행하였다.

에스테르화 반응을 마친 오일은 전이에스테르화 반응을 위해서 회전증발농축기를 이용하여 생성물에 남아있는 메탄올과 수분을 제거하였다. 이후 과정은 에스테르화 반응과 마찬가지로 둥근바닥 플라스크를 반응기로 이용하였다. 반응온도는 65℃이며, 원료유 100g과 메탄올 20wt%,

KOH 촉매 0.8wt%를 넣은 다음 마그네틱 바를 이용하여 교반하며 실험을 진행하였다.

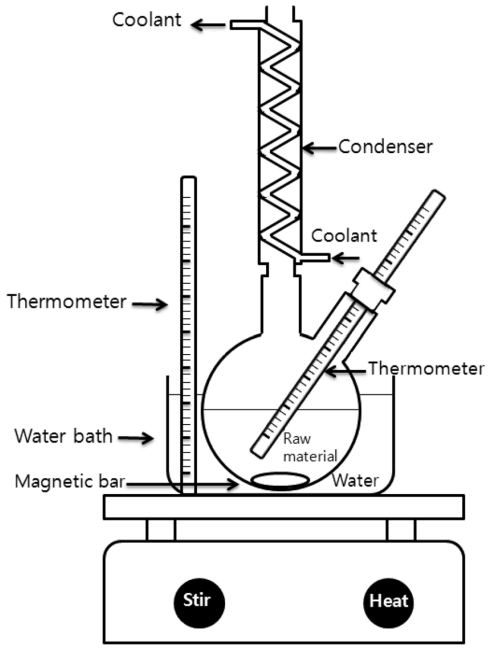

Fig. 4. Round bottom flask reactor system[16].

2.4. 분석 방법

원료유의 유리지방산 함량은 적정에 의한 산가(Acid Value, A.V.) 분석을 통해 측정하였다. 산가는 오일 1g 중에 포함된 산을 중화하는데 필요한 KOH의 mg수로 정의되며 EN ISO 661(Animal and vegetable fats and oils-Preparation of test sample) 표준 분석방법을 통해 측정하였다. 산가, 유리지방산 전환율, 유리지방산 함량은 각각 다음과 같은 식으로 계산된다[17].

$$A.V. = \frac{56.11 \times V \times C}{m} \quad (1)$$

$A.V.$ = 산가
V = 사용한 KOH 용액의 부피
C = KOH 용액의 몰 농도
m = 시료의 질량

$$FFA\ Conversion(\%) = \frac{A.V._i - A.V._f}{A.V._i} \times 100 \quad (2)$$

$A.V._i$ = 반응 전 산가
$A.V._f$ = 반응 후 산가

$$FFA(\%) = A.V. \times \frac{282}{56.1} \times \frac{100}{1000} \fallingdotseq A.V. \times \frac{1}{2} \quad (3)$$

원료유 및 반응물 중에 포함된 수분은 Karl-Fisher 적정법으로 Mettler Toledo DL31 Titrator를 이용하여 측정하였다. 고형물 함량은 일정량의 오일을 석유에테르에 녹인 다음 0.1 μm Cellulose Nitrate Membrane Filter에 여과시켜 Cellulose 필터의 무게 변화를 측정해 계산하였다. 지방산 메틸 에스테르 함량은 표준 분석방법인 EN 14103에 따라 Agilent사의 6890 capilliary GC(gas chromatography)를 이용하여 분석하였으며, 반응물에 포함된 글리세롤(Glycerol), 모노글리세라이드(Monoglyceride), 디글리세라이드(Diglyceride), 트리글리세라이드(Triglyceride), 총 글리세롤(Total glycerol) 함량 분석은 마찬가지로 표준 분석방법인 EN 14105에 따라 Agilent사의 7890 On-column GC를 이용하여 분석하였다[18-20].

3. 결과 및 고찰

3.1. 원료유 전처리

원료유를 이용한 바이오디젤 전환 실험에 앞서 전처리 과정을 통해 반응 효율을 저해 할 수 있는 고형물과 수분을 제거하였다. 이후 전처리 전 오일과의 산가, 수분, 고형물 함량을 측정하여 비교하여 Table 2에 나타내었다. 실험결과 KSO#1, #2 모두 산가의 변화는 크게 없었으며, 수분은 0.1 % 미만, 고형물 함량은 0.6 % 미만으로 이후 실험을 진행하기 적합한 상태로 나타났다.

3.2. 에스테르화 반응

여과 및 수분제거된 원료유는 무수 메탄올과 Amberlyst-15 촉매 하에서 에스테르화 반응을 진행하였다. 반응은 3시간동안 진행하였으며 30분 간격으로 시료를 채취하여 산가를 분석 하였다. 분석 결과는 Fig. 5 - 6에 나타내었다. 실험결과 두 오일 모두 유리지방산의 전환율은 90%를 초과하였다. KSO#1의 경우 초기 산가가 KSO#2에 비해 2배 가량 높았기 때문에 동일한 조건으로 실험을 진행 하였음에도 유리지방산의 함량이 2%가량 되었으며, KSO#2의 유리지방산

Table 2. Properties of R. Trisperma oil before and after pre-treatment

	Acid Value (mg KOH / g)		Water Contents (%)		Impurity Contents (%)	
	Before	After	Before	After	Before	After
KSO#1	41.087	40.408	0.9808	0.0748	1.205	0.595
KSO#2	17.344	18.926	0.4922	0.0488	0.746	0.193

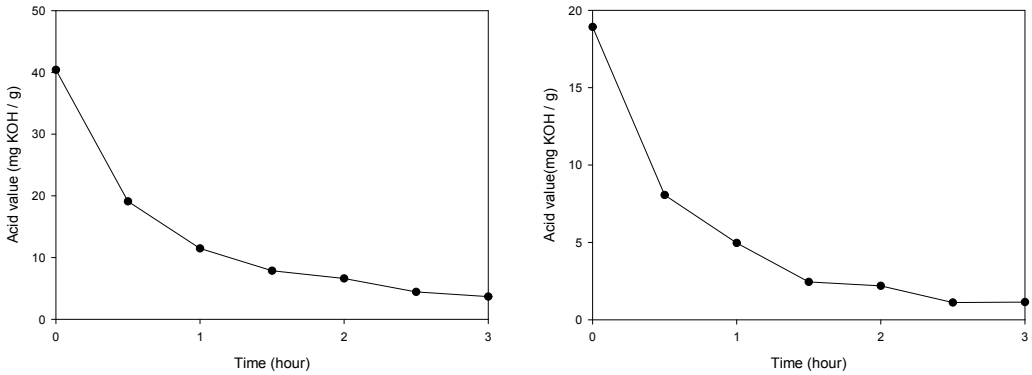

Fig. 5. Acid value of R. Trisperma oil during esterification of KSO#1(left), #2(right).

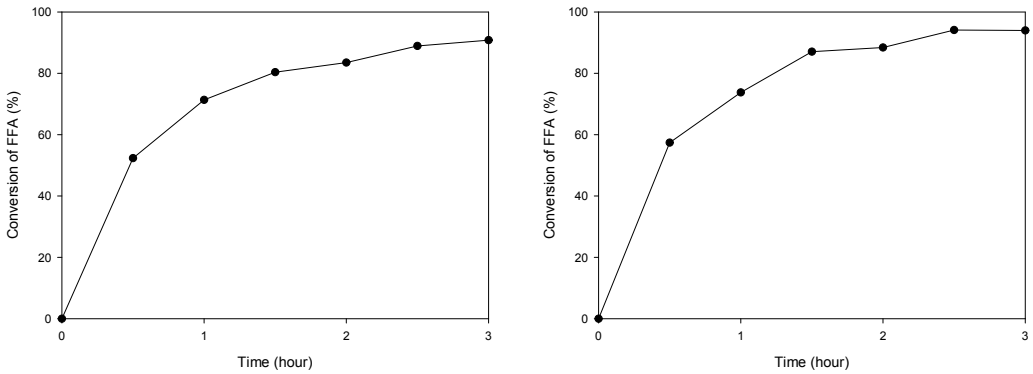

Fig. 6. FFA conversion of R. Trisperma oil by esterification of KSO#1(left), #2(right).

함량은 1% 미만으로 저감되었다. 이는 초기 산가가 높은 만큼 전처리 에스테르화 반응을 통해, 유리지방산이 FAME으로 전환됨에 따라 생성되는 수분량이 2배 정도 높아 반응평형에 영향을 주었기 때문으로 판단되며, 생성된 수분을 제거 후 다시 에스테르화 반응시 1% 이하로 유리지방산 전환 제거가 가능하다.

3.3 전이에스테르화 반응 및 바이오디젤 분석

에스테르화 반응을 통해 산가를 낮춘 오일은 메탄올과 KOH 촉매 하에서 전이에스테르화 반응을 진행하였다. 반응은 50분동안 진행하였으며 반응시간에 따라 시료를 채취하여 FAME 함량을 분석하였다. 오일의 FAME 함량 분석결과는 Fig. 7에 나타내었다. KSO#1의 최종 FAME 함량은 93.28%, KSO#2의 FAME 함량은 92.20%로 에스테르화 반응에서 KSO#1의 유리지방산 함량이 더 높았지만 바이오디젤 생산 반응에는 큰 영향을 미치지 않은 것으로 생각된다. 이후 반응이 종료된 오일은 분액 깔때기에 정치시켜 층 분리

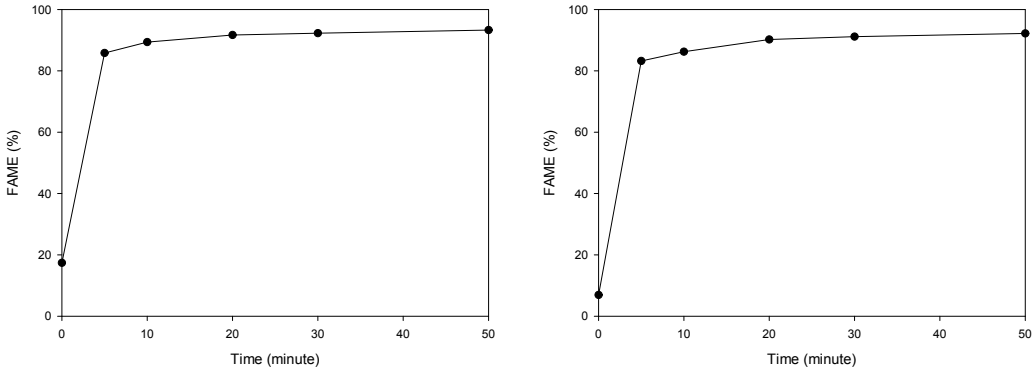

Fig. 7. FAME contents of R. Trisperma oil biodiesel during transesterification of KSO#1(left), #2(right).

Table 3. Total Glycerol contents of R. Trisperma oil biodiesel by transesterification

	Glycerol	Monopalmitate	Monoglyceride	Diglyceride	Triglyceride	Total Glycerol (%)
KSO#1	0.3093	0.4159	0.0197	0.0435	0.0000	0.428
KSO#2	0.3316	0.0709	0.0379	0.0235	0.0000	0.363

를 진행하였고, FAME 층과 글리세린 층으로 분리하였다. 이후 FAME 층의 시료를 채취하여 총 글리세롤 함량을 분석하였으며 분석결과는 Table 3에 나타내었다. 생산된 바이오디젤은 제품 규격(FAME 96.5% 이상, 총 글리세롤 0.24% 이하)에는 미달하는 것으로 나타났다. 이는 대상 열대작물 원료 오일에 대부분의 바이오디젤 원료에서 일반적으로 발견되지 않는 특이 지방산인 α-Eleostearic acid이 다량 포함되었기 때문으로 판단된다[14]. 따라서, 추가 반응 최적화와 특이 지방산의 분리정제 연구 진행을 통해 바이오디젤 연료 품질규격 달성이 필요한 것으로 나타났다.

4. 결 론

인도네시아 열대작물에서 추출한 오일(R. Trisperima oil)로부터 바이오디젤 생산 가능성을 조사하기 위해 수분과 고형물 제거 과정을 진행하였으며, Amberlyst-15 촉매를 이용한 에스테르화 반응과, KOH 촉매를 이용한 전이에스테르화 반응을 진행하였다. 각 반응 과정에서 유리지방산 제거 특성과 FAME 함량 등의 물성 분석을 통해 바이오디젤 생산 가능성을 평가하였다. 실험결과 Amberlyst-15를 이용한 에스테르화 반응을 통해 제공받은 두 종류 오일의 유리지방산 함량을 효과적으로 2% 이하로 낮출 수 있었으며, KOH를 염기촉매로 이용한 전이에스테르화 반응에서 비누화 반응을 방지하며 바이오디젤을 제조할 수 있었다. 또한 최종 반응을 통해 얻어진 바이오디젤은 90% 이상의 FAME 함량을 나타냈다. 지방산 조성분석 결과 특이 지방산인 α-Eleostearic acid가 다량 포함되어, 바이오디젤 제품 규격에는 못 미치는 품질규격 결과를 얻었으나 반응 최적화 및 특이 지방산의 분리정제 연구 진행을 통해 제품 규격 달성이 필요한 것으로 나타났다. 이를 통해, 기존에 활용되지 못하던 비식용 원료로부터 바이오디젤 생산 기술 확보시 바이오디젤 보급 확대를 위한 신규 바이오매스 확보가 가능하며 안정적 원료 공급에 일조할 것으로 기대된다.

감사의 글

본 연구는 산업통상자원부(MOTIE)와 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행된

연구과제의 결과입니다. (No. 20178520091280)

References

1. IEA, World Energy Outlook, International Energy Agency, (2009).
2. Y. -W. E. -S. Song, H. -Y. Kim, "Synthesis of Biodiesel Using Supercritical Fluid", *Clean Technol.*, Vol.11, No.4, pp. 171-179 (2005).
3. S. -S. Kim, Y. -S. Kim, J. Kim, "Status and Prospect of Biodiesel as a Renewable Energy in Korea", *KIC News*, Vol.11, No.3, pp. 1-10 (2008).
4. H. -S. Lee, J. -P. Lee, J. -S. Lee, D. -K. Kim, "Kinetics of esterification of food waste oil by solid acid catalyst and reaction optimization", *J. Oil & Applied Science*, Vol.34, No.3, pp. 683-693 (2017).
5. S. Gan, H. K. Ng, P. H. Chan, F. L. Leong, "Heterogeneous free fatty acids esterification inwaste cooking oil using ion-exchange resins", *Fuel Processing Technology*, Vol.102, pp. 67-72 (2012).
6. O. Ilgen, "Investigation of reaction parameters, kinetics and mechanism of oleic acid esterification with methanol by using Amberlyst 46 as a catalyst", *Fuel Processing Technology*, Vol.124, pp. 134-139 (2014).
7. M. Chai, Q. Tu, M. Lu, Y. J. Yang, "Esterification pretreatment of free fatty acid in biodiesel production, from laboratory to industry", *Fuel Processing Technology*, Vol.125, pp. 106-113 (2014).
8. L. Chen, T. Liu, W. Zhang, X. Chen, J. Wang, "Biodiesel production from algae oil high in free fatty acids by two-step catalytic conversion", Bioresource Technology. Vol.111, pp. 208 (2012).
9. D. K. Kim, J. D. Choi, J. Y. Park, J. S. Lee, S. B. Park, S. C. Park, "Optimization of Pre-treatment of Tropical Crop Oil by Sulfuric Acid and Bio-diesel Production", *Korean Chem. Eng. Res*, Vol.47, pp. 762-767 (2009).
10. A. Kumar, S. Sharma, "An evaluation of multipurpose oil seed crop for industrial uses (Jatropha curcal L.): A review", *Ind Crops Prod.* Vol. 28, pp. 1-10 (2008).
11. A. K. Tiwari, A. Kumar, H. Raheman, "Biodiesel production from jatropha oil (Jatropha curcas) with high free fatty acids: An optimized process", *Biomass Bioenergy.*, Vol.31, pp. 569-575 (2007).
12. J. K. Kim, J. Y. Park, C. H. Jeon, K. I. Min, E. S. Yim, C. S. Jung, J. H. Lee, "Fuel Properties of Various Biodiesels Derived Vegetable Oil", *J. Kor. Oil Chem. Soc.,* Vol.30, No.1, pp. 35-48 (2013).
13. Y. J. Hyun, "Conversion of Jatropha Oil into Biodiesel in Continuous Process Using Alkali and Mixed Catalysts", *J. Kor. Oil Chem. Soc.,* Vol.26, No.4, pp. 394-399 (2009).
14. M. Y. Abduh, M. H. Nadia, Syaripudin, R. Manurung, R. E. Putra, "Factors affecting the bioconversion of Philippine tung seed by black soldier fly larvae for the production of protein and oil-rich biomass", *J. Asia-Pacific Entomology*, Vol.21, pp. 836-842 (2018).
15. B. R. Moser, "Biodiesel production, properties, and feedstocks", *In Vitro Cell. Dev. Biol.-Plant*, Vol.45, pp. 229-266 (2009).
16. S. M. Kim, D. K. Kim, J. S. Lee, S. C. Park, Y. Y. Lee, "Esterification Reaction of Animal Fat for Bio-diesel Production", *Clean Technol.*, Vol.18, No.1, pp. 102-110 (2012).
17. American Oil Chemists' Society, "Official Methods and Recommended Practices of the AOCS. AOCS Official Method Cd 3d-63 Acid Value", Champaign, Illinois (2003).
18. EN 14103, "Fat and oil derivatives. fatty acid methyl esters(FAME). determination of ester and linoleic acid methyl ester contents", European Committe for

Standardization, Berlin, (2001).
19. EN 14105, "Fat and oil derivatives. fatty acid methyl esters(FAME). determination of free and total glycerol and mono-, di-, triglyceride contents", European Committee for Standardization, Berlin, (2001).
20. J. Y. Park, D. K. Kim, Z. M. Wang, P. Lu, S. C. Park, J. S. Lee, "Production and Characterization of Biodiesel from Tung Oil", *Appl. Biochem. Biotechnol*, Vol.148, pp. 109-117 (2008).