

# 나노셀룰로오스 기반 고분자 복합소재의 특성 및 응용

김세훈<sup>1</sup> · 권영제<sup>1</sup> · 야미니 샨마 · 손민영 · 조상호\* · 백경열\* · 조계용<sup>†</sup>

부경대학교 공업화학과, \*한국과학기술연구원 물질구조제어연구단  
(2023년 3월 28일 접수, 2023년 5월 1일 수정, 2023년 5월 2일 채택)

## Nanocellulose-based Polymer Composites with Their Properties and Applications

Se Hun Kim<sup>1</sup>, Young Jae Kwon<sup>1</sup>, Yamini Sharma, MinYoung Shon, Sangho Cho\*, Kyung-Youl Baek\* and Kie Yong Cho<sup>†</sup>

Department of Industrial Chemistry, Pukyong National University, Busan 48513, Republic of Korea

\*Materials Architecturing Research Center, Korea Institute of Science and Technology, Seoul 02792, Republic of Korea

(Received March 28, 2023; Revised May 1, 2023; Accepted May 2, 2023)

### 초 록

셀룰로오스는 자연의 다양한 공급원에서 쉽게 얻을 수 있는 가장 일반적인 천연 고분자이다. 셀룰로오스의 한 형태인 나노셀룰로오스는 셀룰로오스를 처리해 쉽게 얻을 수 있으며, 그 고유 물성이 상당히 우수하여 광범위한 산업 응용 분야에 사용이 가능하다. 이러한 나노 셀룰로오스는 금속 및 세라믹 필러를 포함하는 고분자 복합재료를 능가하는 뛰어난 기계적 물성 및 열적 안정성을 제공하며, 지속가능한 환경 친화적인 복합소재이다. 이러한 특성을 기반으로 필러, 포장지, 에너지, 의료, 코팅산업 등 다양한 분야에서 광범위하게 연구되고 있다. 본 리뷰에서는 나노셀룰로오스 및 나노복합소재 개발 그리고 응용분야에 대한 연구동향에 대해 고찰해보았다.

### Abstract

Celluloses are naturally occurring polymers that can be easily obtained from various natural sources. Nanocellulose, a form of cellulose, can be derived from regular cellulose and has unique properties that make it ideal for multiple industrial applications. Nanocellulose is a renewable, sustainable, and eco-friendly composite material with exceptional mechanical properties and thermal stability, surpassing metal and ceramic composites. As a result, nanocelluloses are being extensively studied for their potential applications, including fillers, packaging, energy, medicine, and coatings. This review aims to summarize the current research on nanocelluloses and their applications.

**Keywords:** Composites, Polymers, Biomass materials, Celluloses, Cellulose nanofibers

## 1. 서 론

석유화학기반 고분자 제품은 손쉽고 반영구적인 제품을 제공하여 우리에게 편리한 삶을 누리게 해주었지만 무분별한 제품사용으로 인한 환경문제는 이미 지난 몇 십년간 전 세계적으로 큰 문제점으로 대두되고 있다. 이러한 환경문제에 polylactic acid (PLA), polybutylene succinate (PBS)와 같은 바이오매스 기반 생분해성 고분자의 활용과 관련된 연구가 이루어지고 있지만, 석유화학기반 고분자에 비해 구체적인 응용분들에 있어 상대적으로 낮은 물성 한계로 상용화에 어려움을 겪고 있다[1,2]. 이러한 바이오매스 기반 고분자의 낮은 물성 한계점을 극복하기 위해 나노(nano) 소재를 활용한 복합소재 개발로 바이

오매스 기반에 고분자 소재의 물성 문제를 극복하는 연구들이 보고되고 있다. 나노복합소재 전략은 바이오매스 기반에 고분자 소재가 가지는 물성 한계를 쉽고 간단하게 극복할 수 있는 효과적인 방법이다. 일반적으로 나노 복합소재에 사용되는 물성 강화소재로는 금속와이어, 유리섬유, 나노카본 등이 있다. 다양한 연구분야에서 해당 소재를 적용한 복합소재를 활용하는 연구가 진행되고 있지만, 여전히 환경오염에 대한 문제가 대두되고 있다. 이를 대처하기 위하여 환경 친화적인 물성 강화 소재의 개발 및 적용에 대한 요구가 산업적 측면에서 논의되고 있어 천연 자원을 기반으로 하는 나노복합소재에 대한 연구가 최근 들어 크게 관심을 받고 있다[3-4].

친환경 나노복합소재 중 나노셀룰로오스(Nanocellulose)는 나무, 섬유, 미생물 등 자연에서 쉽게 얻을 수 있는 지속가능한 소재로 천연자원을 기반으로 하는 나노복합소재에 대한 요구를 충족가능한 소재이다. 나노셀룰로오스의 높은 물성은 복합재로서 바이오매스 기반에 고분자 소재의 물성 개선에 큰 도움을 줄 뿐 아니라 셀룰로오스의 표면의 반응성 기능기들은 다양한 화학적 개질을 통하여 계면특성 조절이 가능하며 이를 기반으로 여러 응용분야에서 많은 관심을 가지고 있다 (Figure 1)[5-6].

<sup>1</sup> Co-first authors

<sup>†</sup> Corresponding Author: Pukyong National University  
Department of Industrial Chemistry, Busan 48513, Republic of Korea  
Tel: +82-629-6441 e-mail: kieyongh@pknu.ac.kr

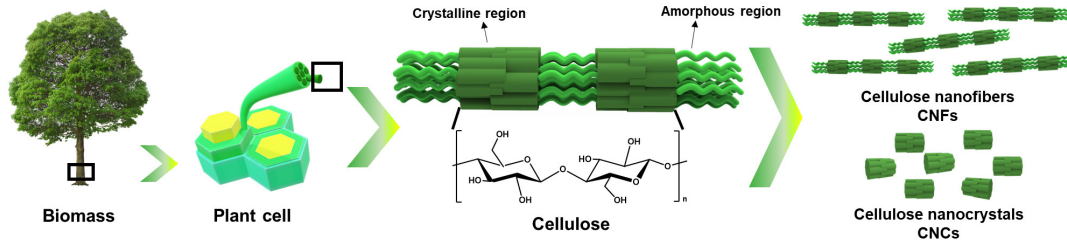


Figure 1. Schematic representation of nanocellulose extraction from biomass resource and cellulose structure.

Table 1. Nanocellulose Extraction Methods and Their Properties

Treatments	Methods	Cellulose Type	Size (nm)	Properties	Ref.
Physical treatment	Ultra-sonification	CNFs	5~20 <sup>a</sup>	Crystallinity (69%)	[10]
	Ball-milling	CNCs	3~10 <sup>a</sup> 120~400 <sup>b</sup>	Low yield (20%) Crystallinity (ca. 74.5%)	[11]
	High pressure homogenization	CNFs	21 <sup>a</sup>	High yield (84.2%) Crystallinity (81.36%)	[12]
Chemical treatment	Acid hydrolysis	CNCs	8~30 <sup>a</sup>	Crystallinity (79%)	[13]
	Alkali hydrothermal	CNFs	20~40 <sup>a</sup>	Crystallinity (ca. 73.6%)	[14]
	Ionic liquid treatment	CNCs	6 <sup>a</sup>	Crystallinity (ca. 82%)	[15]

a: diameter, b: length

## 2. 나노셀룰로오스

나노셀룰로오스는 바이오매스 원료에서 추출된 세포벽에서 두개의 anhydroglucose ring이 하나의 산소에 결합된 고분자 셀룰로오스이다 (Figure 1). 나노셀룰로오스의 고리에 인접한 산소와 하이드록실 그룹은 intra-inter 사슬간 강력한 수소결합을 형성하며 여러 사슬 가닥이 다발을 이루어 고밀도의 섬유형태를 이루고 있고 각각의 섬유는 막대 형태의 결정성 영역(crystalline domain)과 비결정성 영역(amorphous domain)이 반복되어 연결된 구조를 가진다. 나노셀룰로오스는 수 나노에서 마이크로미터의 크기로 셀룰로오스를 다양한 처리공정을 통해 결정성 영역과 비결정성 영역을 가공해 크기와 물성을 조절해 원하는 적용분야에 적합한 소재로 추출된다. 이렇게 추출된 나노셀룰로오스는 크게 섬유형태의 셀룰로오스 나노섬유(cellulose nanofiber, CNF)와 셀룰로오스 나노결정(cellulose nanocrystal, CNC)으로 구분된다[7-8].

### 2.1. 셀룰로오스 나노섬유(CNF) 제조

CNF는 일반적으로 ultra-sonification[10], ball milling[11], high pressure homogenization[12]과 같은 기계적 처리를 통해 폭 5~100 nm 길이에서 수십 마이크로미터 수준의 높은 종횡비를 가지는 섬유형태로 제조된다(Table. 1). 하지만 기계적 처리로 생성된 CNF는 hemicellulose나 lignin 같은 불순물들이 나노셀룰로오스와 수소결합을 통해 상호 결합을 하여 순수한 나노셀룰로오스를 얻을 수 없기에 칼륨, 칼슘, 나트륨과 같은 알칼리 처리의 과정을 거쳐 불순물들의 비결정성 영역의 알칼리화를 통해 수소결합을 제거해주어 순수 CNF를 수득한다.

### 2.2. 셀룰로오스 나노결정(CNC) 제조

CNC를 얻기 위한 일반적인 방법은 결정성 영역과 비결정성 영역이

번갈아 가며 하나의 섬유형태를 이루는 셀룰로오스에 황산과 같은 강산을 사용하고 acid hydrolysis[13], alkali hydrothermal[14], ionic liquid treatment[15] 등을 통하여 비교적 약한 결합 및 낮은 밀도를 가지는 비결정성 영역을 가수분해 반응을 통해 제거해주고 남은 결정성 영역만을 추출해 직경 2~20 nm의 높은 기계적, 열적 안정성을 가지는 CNC를 수득할 수 있다(Table 1).

## 3. 나노셀룰로오스기반 복합소재의 물성

Figure 2는 나노복합물에 사용되는 복합소재들의 열팽창계수(coefficient of thermal expansion, CTE)와 영률(Young's modulus, E)에 대한 ashby plot을 보여준다. 나노셀룰로오스의 영률과 열팽창계수는 각각 ca.145 GPa, ca. 0.1 ppm K<sup>-1</sup> 로 금속, 세라믹 복합소재와 비슷한 기계적 강도를 가지지만 압도적으로 낮은 열팽창계수를 가짐으로 열에 대한 안정성이 다른 복합소재에 비해 매우 높다. 이는 셀룰로

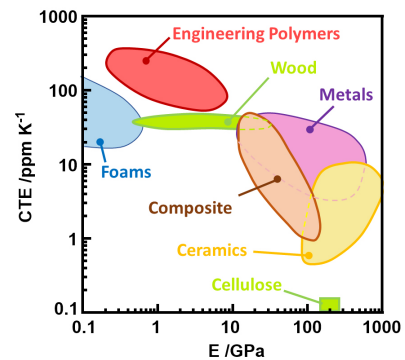
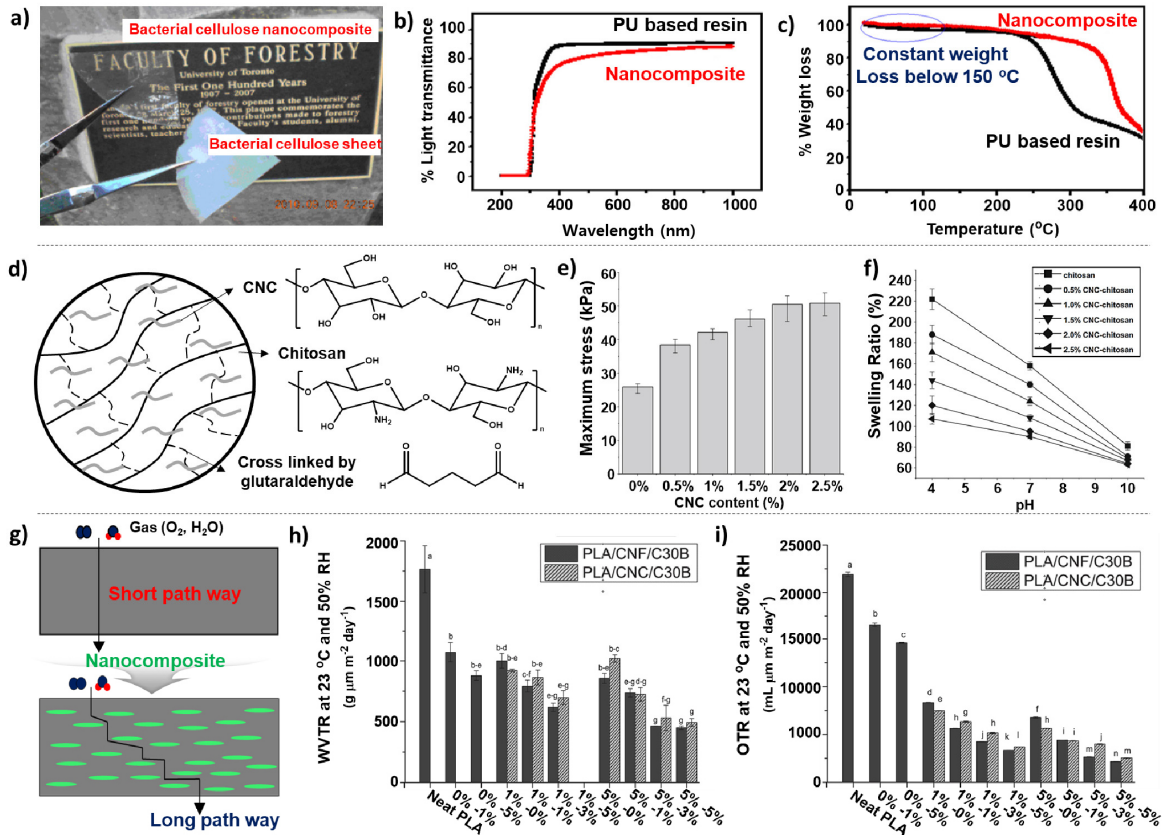


Figure 2. Ashby plot of CET versus Young's modulus for cellulose nanocomposites with other materials[9].



**Figure 3.** (a) Optical transparency of bacterial cellulose nanocomposite film and bacterial cellulose sheet. (b) Transmittance spectra of PU-based resin and bacterial cellulose nanocomposite (c) TGA of neat PU-based resin and bacterial cellulose nanocomposite. Reprinted with permission from ref. [17]. Copyright © 2011 Elsevier B.V. (d) The schematic representation of the CNC- Chitosan hydrogel (e) Maximum stress of hydrogels with varying CNC content (f) Swelling behavior of hydrogels at different pH values. Reprinted with permission from ref. [22]. Copyright © 2017 Springer Science+Business Media Dordrecht. (g) The schematic representation of increased diffusion path within the Nanocellulose films. (h) Water vapor transmission ratio (i) oxygen transmission rate of the hybrid nanocomposites. Reprinted with permission from ref. [25]. Copyright © 2016 Society of Chemical Industry.

오스 소재가 복합소재 시장에서 매우 큰 우위를 가지고 있고 다양한 분야에서 나노셀룰로오스의 복합소재의 적용으로 우수한 기계적, 열적 특성을 지닌 복합물 제조가 가능하다[9]. 이러한 나노셀룰로오스 복합소재의 이용을 위해 앞서 설명한 다양한 처리방법으로 추출된 나노셀룰로오스는 복합소재로서 포장지, 화장품, 전자, 종이, 코팅, 필터, 의료 등 다양한 산업에서 나노셀룰로오스 복합소재의 적용과 관련된 다양한 연구들이 진행되고 있다.

### 4. 나노셀룰로오스 복합소재의 응용

#### 4.1. 전자제품

나노셀룰로오스 기반의 고분자 복합소재는 금속와이어나 유리섬유와 같은 복합소재에 비해 높은 기계적 물성, 낮은 열팽창 계수와 투명한 광학적 성질로 전자제품 분야에서 높은 기술적 우위를 가진다[16]. 2012년 Manuspia 연구팀에서 유기 발광 다이오드(Organic Light Emitting Diodes, OLED) 제조에 CNC를 이용한 복합 필름을 지지층으로 사용해 Figure 3a, 3b에서 일반적으로 지지층에 사용되는 polyurethane(PU) 소재와 비슷하게 80% 이상의 높은 투과율을 가지고 PU보다 높은 열적 안정성(Figure 3c)을 가지는(열팽창 계수: 20 ppm K<sup>-1</sup>)

우수한 성능의 OLED 디스플레이를 개발하였다[17]. 이와 유사하게 센서, 에너지 저장장치, 전자기기분야에서 나노셀룰로오스의 우수한 물성을 기반으로 고분자 복합소재와 신규 친환경 소재로 많은 관심을 가지고 있으며 해당 연구가 보고되고 있다[18-20].

#### 4.2. 의료 산업

셀룰로오스는 낮은 독성을 가지며, 생체 친화적이고 높은 물성으로 의료 산업에서 오랫동안 많은 관심을 받는 소재이다[21]. 의료 산업에서 나노셀룰로오스는 생체 친화적인 고분자 소재와 함께 사용될 때 약물전달이 용이한 특성이 보고된 바 있다[22]. 높은 유연성과 생체친화도를 요구하는 의료용 패치 분야에서도 나노셀룰로오스 기반의 고분자 복합소재가 적용되어 우수한 물리적 특성을 보여주었다. 2017년 Sampath 연구팀에서는 chitosan기반 glutaraldehyde 가교 고분자를 이용한 semi-interpenetrating polymer network (SIPN) 구조에 CNC 복합소재가 적용된 하이드로겔을 보고하였다(Figure 3d). CNC의 첨가량에 따른 maximum stress는 기존 하이드로겔보다 CNC를 2.5 wt% 첨가한 복합소재에서 두 배 정도 높은 기계적 강도를 보여주었다(25.9 kPa → 50.7 kPa) (Figure 3e). Figure 3f에서는 다양한 CNC 함량에 따라 변화하는 swelling ratio를 나타내고 해당 특성은 pH에 의존적임을 보여준

다. 해당 비교를 통해 개발된 CNC 고분자 복합소재는 pH와 CNC 도입량에 따라 수팽윤 특성이 민감하게 변화하며 CNC 도입이 기계적 성능 향상에 크게 기여하여 우수한 약물전달 시스템, 피부조직, 의약품에 적용가능성을 제시하였다[24].

#### 4.3. 식품 포장재

식품포장재는 제품 특성상 일회성 사용이 일반적이고 음식물의 오염으로 인한 재활용이 어렵고 폐기시 환경에 부하가 크다. 지속 가능성을 확보하기 위하여 바이오매스 기반의 고분자를 이용하는 연구가 늘어나고 있으나, 차단 성능이 높지 않아 기계 차단 성능을 보완할 수 있는 복합소재에 대한 연구를 필요로 한다. 특히 나노셀룰로오스 복합물은 지속 가능성이 높으며, 강한 수소결합으로 만들어진 네트워크 구조로 인해 산소나 수분 같은 가스 투과를 차단해 산소 및 수분 투과도를 낮춰 제품을 안정적으로 보관하는데 좋은 특성을 보인다(Figure 3g)[25]. 2016년 Dauggard 연구팀은 생분해성 고분자인 PLA 매트릭스에 CNF 분산을 통한 환경친화적 포장지의 배리어 증진 연구 결과를 보고했다[25]. PLA 필름에서 산소 투과도(oxygen transmission rate, OTR)와 수분 투과도(water vapor transmission rate) 결과는 각각  $25.2 \text{ L} \cdot \mu\text{m} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{day}^{-1}$  그리고  $1863 \text{ g} \cdot \mu\text{m} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{day}^{-1}$ 였으며 CNF를 첨가했을 때 각각  $2.9 \text{ L} \cdot \mu\text{m} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{day}^{-1}$  그리고  $493 \text{ g} \cdot \mu\text{m} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{day}^{-1}$ 로 크게 감소하는 경향을 통해 탁월한 기계차단 특성을 보였다(Figure 3h, 3i). 이처럼 나노셀룰로오스 기반에 고분자 복합소재는 식품포장재 적용 시 높은 기계차단 특성을 보여주고 이와 유사한 연구가 현재까지 지속적으로 보고되고 있다[26-28].

#### 4.4. 코팅산업

나노셀룰로오스의 코팅은 높은 투과율을 보여주는 광학적 특성으로 코팅 시 코팅 제품의 시각정보를 방해하지 않는 장점이 있다. 또한, 셀룰로오스의 친수성 특성으로 수계 분산이 가능하다는 점에서 기존 유기용매를 사용하는 코팅산업에서 독성 용매를 사용하지 않고 코팅이 가능하다는 특성이 있다. 나노셀룰로오스가 도입된 코팅막은 높은 기계차단 특성과 높은 기계적 물성발현에 도움을 주므로 코팅산업에서 제품의 부식이나 보호를 위한 보호필름으로 기술 개발이 진행되고 있다[29,30].

#### 4.5. 화장품 산업

화장품 산업은 인체 피부에 사용되는 만큼 꽃잎, 에센셜 오일, 식물 뿌리와 같이 세포독성을 가지지 않는 자연기반 물질을 이용해 제품 생산을 한다[31]. 나노셀룰로오스는 자연기반의 소재로 인체 독성이 현저히 낮고 피부와 같이 민감한 부위에도 알레르기 반응을 최소화할 수 있는 소재이다. 특히 셀룰로오스의 친수성 특성과 3D 네트워크를 강력하게 유지하여 높은 물성을 기반으로 물을 쉽게 포함하고 피부미용을 증진시키는 안티에이징, 미백, 보습효과를 가지는 물질들과 함께 사용되기 쉽기에 마스크 팩이나 스크럽 같은 제품에 적용하는 연구가 진행되고 있다[32].

## 5. 결론 및 전망

본문에서 언급된 분야 외에도 나노셀룰로오스 복합소재는 건설, 3D 프린팅, 배터리, 멤브레인과 같은 첨단산업에서도 연구가 보고되고 있다. 하지만 이러한 나노셀룰로오스 복합소재의 우수한 성능에도 실제 산업에서는 아직 셀룰로오스 상용성이 낮다. 이는 나노셀룰로오스 추

출 시 많은 시간과 에너지가 소모되는 반면 낮은 수율을 보여주고, 셀룰로오스 표면의 많은 친수화기는 복합소재로 만들어졌을 때 물에 대한 높은 친화도로 소재 자체의 물성을 파괴할 가능성이 있다는 점과 소수성 소재와의 낮은 계면친화성(interfacial compatibility)을 가지기에 해당소재의 산업적용에 어려움을 겪고 있다. 그러나 셀룰로오스의 이러한 단점에도 많은 분야에서 다양한 연구가 진행되고 있고 상기 문제를 극복하고자 하는 연구들이 보고되고 있다. 좀 더 구체적으로, 합성단계에서 친수성 기능기의 화학적 개질이 용이한 첨가제 활용 및 합성 후 간단한 물리적 처리과정을 통한 기능그룹의 환원 반응 또는 화학적 처리과정을 통한 친수성 기능기의 소수화 과정을 통한 바이오매스 기반 고분자뿐만 아니라 다양한 엔지니어링 고분자와의 상용성 향상에 대한 연구가 요구되고 있다. 본 리뷰는 나노셀룰로오스의 합성 과정 및 특성에 대한 이해도를 높이고, 복합화를 통하여 기존 바이오매스 기반 고분자소재의 물성향상에 대한 가능성을 제시하였다. 본 저자는 좀 더 많은 산업분야에서 나노셀룰로오스 기반에 친환경 복합소재가 개발되고 활용되어 생활 전반에 적용되기를 바라고 본 리뷰가 해당 목표에 도움이 되기를 기대한다.

## 감 사

본 논문은 2023년도 산업통상자원부 및 산업기술평가기관리원 (KEIT) 연구비 지원을 받아 수행됨(과제번호: 200018459, 과제번호: 20008653).

## References

1. M. Rabnawaz, I. Wyman, R. Auras, and S. Cheng, A roadmap towards green packaging : the current status and future outlook for polyesters in the packaging industry, *Green Chem.*, **19**, 4737-4353 (2017).
2. Editorial *Nat. Commun.*, **9**, 2157 (2018).
3. K. Lee, Y. Aitomäki, L. A. Berglund, K. Oksman, and A. Bismarck, On the use of nanocellulose as reinforcement in polymer matrix composite, *Compos. Sci. Technol.*, **105**, 15-27 (2014).
4. T. Hassan, A. Salam, A. Khan, S. U. Khan, H. Khanzada, M. Wasim, M. Q. Khan, and I. S. Kim, Functional nanocomposites and their potential application : A review, *J. Polym. Res.*, **28**, 1-22 (2021).
5. P. Phanthong, P. Reubroycharoen, X. Hao, G. Xu, A. Abudula, and G. Guan, Nanocellulose : Extraction and application, *Carbon Resour. Convers.*, **1**, 32-43 (2018).
6. R. J. Moon, A. Martini, J. Nairn, J. Simonsen, and J. Youngblood, Cellulose nanomaterials review : Structure, properties and nanocomposites, *Chem. Soc. Rev.* **40**, 3941-3994 (2011).
7. A. Ferrer, L. Pal, and M. Hubbe, Nanocellulose in Packaging : Advances in barrier layer technology, *Ind. Crops. Prod.*, **95**, 574-582 (2017).
8. P. Dhar, U. Bhardwaj, A. Kumar, and V. Katiyar, Poly (3-hydroxybutyrate)/cellulose nanocrystal films for food packaging applications: Barrier and migration studies, *Polym. Eng. Sci.*, **55**, 2388-2395 (2015).
9. A. N. Nakagaito, M. Nogi, and H. Yano, Displays from transparent films of natural nanofibers, *MRS Bull.*, **37**, 7683-7687 (2004).
10. W. Chen, H. Yu, Y. Liu, P. Chen, M. Zhang, and Y. Hai,

- Individualization of cellulose nanofibers from wood using high-intensity ultrasonication combined with chemical pretreatments, *Carbohydr. Polym.*, **83**, 1804-1811 (2011).
11. X. Kang, S. Kuga, C. Wang, Y. Zhao, M. Wu, and Y. Huang, Green preparation of cellulose nanocrystal and its application, *ACS Sustain. Chem. Eng.*, **6**, 2954-2960 (2018).
  12. W. Liu, H. Du, K. Liu, H. Liu, H. Xie, X. Si, B. Pang, and X. Zhang, Sustainable preparation of cellulose nanofibrils via choline chloride-citric acid deep eutectic solvent pretreatment combined with high-pressure homogenization, *Carbohydr. Polym.*, **267**, 118220 (2021).
  13. D. Lv, H. Du, X. Che, M. Wu, Y. Zhang, C. Liu, S. Nie, X. Zhang, and B. Lin, Tailored and integrated production of functional cellulose nanocrystals and cellulose nanofibrils via sustainable formic acid hydrolysis: kinetic study and characterization, *ACS Sustain. Chem. Eng.*, **7**, 9449-9463 (2019).
  14. Y. H. Feng, T. Y. Cheng, W. G. Yang, P. T. Ma, H. Z. He, X. C. Yin, and X. X. Yu, Characteristics and environmentally friendly extraction of cellulose nanofibrils from sugarcane bagasse, *Ind. Crops. Prod.*, **111**, 285-291 (2018).
  15. J. Mao, B. Heck, G. Reite, and M. P. Laborie, Cellulose nanocrystals' production in near theoretical yields by 1-butyl-3-methylimidazolium hydrogen sulfate ([Bmim]HSO<sub>4</sub>) - mediated hydrolysis, *Carbohydr. Polym.*, **117**, 443-451 (2015).
  16. J. H. Kim and B. S. Shim, Review of nanocellulose for sustainable future materials, *Int. J. Precis. Eng. Manuf.*, **2**, 197-213 (2015).
  17. S. Ummartyotin, J. Juntaro, M. Sain, and H. Manuspiya, Development of transparent bacterial cellulose nanocomposite film as substrate for flexible organic light emitting diode (OLED) display, *Ind. Crops. Prod.*, **35**, 92-97 (2012).
  18. K. B. R. Teodoro and R. C. Sanfelice, A review on the role and performance of cellulose nanomaterials in sensors, *ACS Sens.*, **6**, 2473-2496 (2021).
  19. Z. Wang, Y. Lee, S. Kim, J. Seo, S. Lee, and L. Nyholm, Why cellulose-based electrochemical energy storage devices?, *Adv. Mater.*, **33**, 20000892 (2021).
  20. S. Nie, N. Hao, K. Zhang, C. Xing, and S. Wang, Cellulose nanofibrils-based thermally conductive composites for flexible electronics : A mini review, *Cellulose*, **27**, 4173-4187 (2020).
  21. S. Kalia, A. Dufresne, B. M. Cherian, B. S. Kaith, L. Avérrous, J. Njuguna, and E. Nassiopoulos, Cellulose-based bio-and nanocomposite: A review, *Int. J. Polym. Sci.*, **2011**, 837878 (2011).
  22. A. B. Seabra, J. S. Bernardes, W. J. Fávaro, A. J. Paula, and N. Durán, Cellulose nanocrystals as carriers in medicine and their toxicities: A review, *Carbpol.*, **181**, 514-527 (2018).
  23. U. G. T. M. Sampath, Y. C. Ching, C. H. Chuah, R. Singh and P. Lin, Preparation and characterization of nanocellulose reinforced semi-interpenetrating polymer network of chitosan hydrogel, *Cellulose*, **24**, 2215-2228 (2017).
  24. C. V. Garcia, G. H. Shin, and J. T. Kim, Metal oxide-based nanocomposites in food packaging: Applications, migration, and regulations, *Trends Food Sci. Technol.*, **82.**, 21-31 (2018).
  25. S. S. Nair, J. Y. Zhu, Y. Deng, and A. J. Ragauskas, High performance green barriers based on nanocellulose, *Sustain. Chem. Process.*, **2**, 1-7 (2014).
  26. J. Trifol, D. Plackett, C. Sillard, P. Szabo, J. Bras, and A. E. Daugaard, Hybrid poly(lactic acid)/nanocellulose/nanoclay composites with synergistically enhanced barrier properties and improved thermomechanical resistance, *Polym. Int.*, **65**, 988-995 (2016).
  27. J. Trifol, D. C. M. Quintero and R. moriana, Pine Cone Biorefinery, Integral alorization of residual biomass into lignocellulose nanofibrils (LCNF)-Reinforced composites for packaging, *ACS Sustain. Chem. Eng.*, **9**, 2180-2190 (2021).
  28. C. Amara, A. E. Mahdi, R. Medimagh, and K. khwaldia, Nanocellulose-based composites for packaging applications, *Curr. Opin. Green Sustain. Chem.*, **31**, 100512 (2021).
  29. H. Soeta, S. Fujisawa, T. Saito, and A. Isogai, Interfacial layer thickness design for exploiting the reinforcement potential of nanocellulose in cellulose triacetate matrix, *Compos. Sci. Technol.*, **147**, 100-106 (2017).
  30. S. Fujisawa, E. Togawa, and K. Kuroda, Facile route to transparent, strong, and thermally stable nanocellulose/polymer nanocomposites from an aqueous pickering emulsion, *Biomacromolecules*, **18**, 266-271 (2017).
  31. N. Hasan, D. R. A. biak, and S. Kumarudin, Application of bacterial cellulose (BC) in natural facial scrub, *Int. J. Adv. Sci. Eng. Inf. Technol.*, **2**, 2088-5334 (2012).
  32. H. Ullah, H. A. Santos, and T. Khan, Applications of bacterial cellulose in food, cosmetics and drug delivery, *Cellulose*, **23**, 2291-2314 (2016).

#### Authors

Se Hun Kim; B.Sc., Graduate Student, Department of Industry Chemistry, Pukyung National University, Busan 48513, Republic of Korea; tpgns5053@gmail.com

Young Je Kwon; M.Sc., Graduate Student, Department of Industry Chemistry, Pukyung National University, Busan 48513, Republic of Korea a; yzyz5004@gmail.com

Yamini Sharma; M.Sc., Graduate Student, Department of Industry Chemistry, Pukyung National University, Busan 48513, Republic of Korea; yaminisharma@pukyong.ac.kr

MinYoung Shon; Ph.D., Professor, Department of Industry Chemistry, Pukyung National University, Busan 48513, Republic of Korea; myshon@pknu.ac.kr

Sangho Cho; Ph.D., Senior Researcher, Materials Architecturing Research Center, Korea Institute of Science and Technology, Seoul 02792, Republic of Korea; scho@kist.re.kr

Kyung-Youl Baek; Ph.D., Principal Researcher, Materials Architecturing Research Center, Korea Institute of Science and Technology, Seoul 02792, Republic of Korea; baek@kist.re.kr

Kie Yong Cho; Ph.D., Associate Professor, Department of Industry Chemistry, Pukyung National University, Busan 48513, Korea; kieyongh@pknu.ac.kr