

## 수크로스 스테아레이트의 유화력 및 가용화력 향상을 위한 혼합물 조성 최적화

배종환<sup>1</sup> · 송마리아<sup>2</sup> · 진병석<sup>3,†</sup>

<sup>1</sup>동덕여자대학교 응용화학과, 학생

<sup>2</sup>동덕여자대학교 보건향장학과, 박사 후 연구원

<sup>3</sup>동덕여자대학교 응용화학과, 교수

(2024년 2월 19일 접수: 2024년 4월 23일 수정: 2024년 4월 24일 채택)

## Optimization of Mixture Composition to Improve Emulsifying Power and Solubilization of Sucrose Stearate

Jong Hwan Bae<sup>1,\*</sup> · Maria Song<sup>2</sup> · Byung Suk Jin<sup>3,†</sup>

<sup>1</sup>Department of Applied Chemistry, Dongduk Women's University (Student)

<sup>2</sup>Department of Health and cosmetics, Dongduk Women's University (Postdoctoral researcher)

<sup>3</sup>Department of Applied Chemistry, Dongduk Women's University (Professor)

(Received February 19, 2024; Revised April 23, 2024; Accepted April 24, 2024)

**요약** : 본 연구에서는 수크로스 스테아레이트(SS)의 유화력과 가용화력을 좀 더 향상시키기 위해, sodium deoxycholate (SDOC)와 PEG-40 hydrogenated castor oil (HCO)와의 혼합 조성물을 구성하였다. 혼합물의 최적 조성을 구하기 위해 혼합물 실험 계획법을 도입하여 실험을 진행하고, 실험에서 얻은 데이터를 회귀 분석하여 혼합물 조성의 변화가 혼합물의 특성에 미치는 영향을 살펴보았다. SS에 SDOC만을 첨가했을 때 코코넛 오일에 대한 유화력이 가장 향상되고, HCO만을 첨가했을 때는 가용화력이 가장 향상된 반면, 에스테르 오일인 cetyl ethylhexanoate (CEH)에 대한 유화력은 SDOC와 HCO를 함께 첨가했을 때 가장 크게 향상됨을 알 수 있었다. 코코넛 오일 및 CEH 각각에 대한 유화력과 가용화력, 3개의 특성치에 대한 동시 최적화를 실시한 결과, 최적의 계면활성제 혼합 조성은 SS 0.7939, SDOC 0.0586, HCO 0.1475로 구해졌다.

**주제어** : 수크로스 스테아레이트, 혼합물 실험계획법, 유화력, 가용화력, 최적화

**Abstract** : In this study, we enhanced the emulsifying power and solubilization of sucrose stearate (SS) by creating mixtures with sodium deoxycholate (SDOC) and PEG-40 hydrogenated castor oil (HCO). We employed the design of mixture experiments (DOME) methodology to identify the optimal composition of the mixture, and the impact of varying the mixture composition on its

<sup>†</sup>Corresponding author

(E-mail: bsjin@dongduk.ac.kr)

characteristics was examined through regression analysis of the experimental data. It was revealed that the emulsifying power for coconut oil was most improved when only SDOC was added to SS, and solubilization was most improved when only HCO was added, while the emulsifying power for cetyl ethylhexanoate (CEH) was most significantly improved when SDOC and HCO were added together. As a result of simultaneous optimization of three characteristics, emulsifying power for each of coconut oil and CEH, and solubilization, the optimal surfactant mixture composition was determined as SS 0.7939, SDOC 0.0586, and HCO 0.1475.

*Keywords* : Sucrose stearate, Design of mixture experiments, Emulsifying power, Solubilization, Optimization

## 1. 서론

계면활성제는 여러 산업 분야에서 세척, 습윤, 대전 방지, 살균, 응집 등의 다양한 용도로 사용되고 있는데, 특히 식품, 의약, 생활용품, 화장품 등에서 유상, 수상, 고체 등이 함께 혼합된 제형에서는 상(phase)의 안정화를 위해 유화제, 가용화제, 분산제의 기능으로 사용되고 있다. 계면활성제의 근본적 기능은 서로 섞이지 않는 수성 성분과 유성 성분, 또는 액상과 고체상을 미세한 혼합 형태로 섞어주어 안정한 상을 유지하는 것인데, 가용화 제형을 제외하고 대부분 유화 및 분산의 혼합물 제형은 열역학적으로 불안정하기 때문에 오랜 시간이 지나면 제형의 상이 분리되기 마련이다. 따라서 혼합물 제형이 적정 기간 내에 상이 분리되지 않고 균일한 상을 그대로 유지할 수 있도록 계면활성제의 역할이 매우 중요하다[1-3].

계면활성제가 유화나 분산 제품에 실제 적용되는 경우, 계면활성제는 순수 단일성분이 아닌 여러 혼합 조성물 상태로 사용되는 경우가 많다[4]. 첫째는 계면활성제가 천연물에서 추출될 때 계면활성제 이외에 다른 불순물들이 같이 섞여 있는 경우와 합성반응으로 만들어질 때도 제조 과정에서의 미반응물이나 기타 부산물 등이 완전히 제거되지 못하고 경제적 생산 측면을 고려하여 계면활성제 자체가 혼합 조성물 상태로 사용되는 경우이다. 두 번째는 계면활성제의 유화력을 높이거나 안정성 향상을 위해 서로 다른 계면활성제를 혼합하든지 계면활성 능력을 지닌 고분자를 첨가하여 의도적으로 혼합 조성물을 만들어 사용하는 경우이다. 이렇게 계면활성제를 혼합 조성물로 만들게 되면 부족한 물성을 보완하고 특정 성

능에서 시너지를 발휘하는 등의 효과를 볼 수 있기 때문에, 계면활성제 혼합시스템에 대한 이론적 관심과 연구가 최근까지도 계속적으로 활발하게 진행되고 있다[5-7].

화장품이나 가정 생활용품 등에 쓰이는 계면활성제는 유화, 가용화, 분산 등의 기능적 역할도 중요하지만, 이와 더불어 인체 안전성과 친환경성 등도 고려되어야 할 매우 중요한 요소이다. 최근 생활용품, 화장품에 사용되는 원료들의 위해성 논란과 환경오염 문제가 많이 대두되면서, 화학합성 원료보다는 천연에서 유래된 원료를 사용한 제품에 대한 소비자의 관심이 점점 더 커지고 있다[8]. 계면활성제 중에서 비이온 계면활성제는 일반 화장품이나 식품에 주로 많이 사용되고 있는데, 기존에는 PEG (polyethylene glycol) 계열의 합성 비이온 계면활성제가 가장 널리 사용되어 왔다. 하지만 합성 PEG의 경우 접촉성 피부염을 유발하거나 알레르기 반응을 유발할 수 있다는 등의 이유로 인하여 소비자의 거부감이 점점 커지고 있다[9-10]. 이에 따라 천연 성분인 당을 기반으로 하는 비이온 계면활성제에 관한 관심이 증가하면서 슈가 지방산 에스터류의 계면활성제가 새롭게 주목받고 있다. 슈가 지방산 에스터는 슈가 당 분자의 수산기가 지방산의 카르복실기와 에스터 결합을 이룬 비이온성 계면활성제로, 기존 PEG 계열 계면활성제만큼의 강력한 유화력에는 다소 못 미치지만, 인체에 안전하고 생분해성 등의 다수의 장점을 지니기 때문에 향후 활용이 더욱 증가할 것으로 기대되고 있다[11].

본 연구에서는 슈가 지방산 에스터 중에서 가장 범용적으로 많이 쓰이는 수크로스 스테아레이트(sucrose stearate)의 유화력과 가용화력을 좀 더 향상시키기 위한 혼합 조성물 구성을 시도하

였다. 수크로스 스테아레이트는 슈가 분자에 스테아릭 산(stearic acid)이 에스터 결합된 친수성의 계면활성제로 HLB (hydrophilic lyophilic balance) 값이 16으로 비교적 높기 때문에, O/W 유화제나 가용화제로 사용이 되고 있다. 수크로스 스테아레이트와 다른 계면활성제와의 혼합 조성물 구성은 계면활성제의 기능을 좀 더 높이기 위한 목적도 있지만, 혼합 조성물을 구성함으로써 수크로스 스테아레이트의 높은 단가를 낮추는 효과도 기대할 수 있다. 혼합물 구성의 조성을 최적화하기 위해 본 연구에서는 혼합물 실험계획법(DOME: design of mixture experiments)을 도입하여 실험을 진행하였다. 혼합물 실험계획법은 혼합물 조성의 변화가 혼합물의 특성에 미치는 영향을 탐구하는 설계 방법으로, Simplex Lattice Design, Simplex Centroid Design, Lambrakis Design 등의 효율적 실험방법을 통해 혼합물 구성을 최적화할 수 있다[12]. 본 연구에서는 계면활성제의 기본적 기능인 유화력과 가용화력을 기반으로 심플렉스 중심 설계(Simplex Centroid Design) 채택하여 계면활성제 혼합 조성 설계를 진행하고, 회귀 분석을 통해 혼합물 조성에 따른 각 물성의 변화를 관찰하면서 혼합물 조성의 최적화를 시도하였다.

## 2. 실험

### 2.1. 실험 재료

본 연구에서 사용된 재료는 다음과 같다. 계면활성제는 sucrose stearate (상품명 Ryoto™ Sugar Ester S-1670, Mitsubishi Chemical, Japan, 이하 SS로 표기), polyglyceryl-10 oleate (상품명 PGMO 10, Goldleben, Korea, 이하 PG10으로 표기), polyethylene glycol 100 stearate (상품명 Myrj 59, Croda, UK, 이하 PEGS로 표기), polyglyceryl-4 caprate (상품명 Soldoc PG410, Choice&Tech, Korea, 이하 PG4로 표기), polyglyceryl-10 laurate & polyglyceryl-10 myristate (상품명 Supersifier NS-3000, Kowon, Korea, 이하 NS로 표기), PEG-40 hydrogenated castor oil (상품명 Emanon CH-40, KAO, Japan, 이하 HCO로 표기), decyl glucoside (상품명 Elotant milcoside 302, LG Chem, Korea, 이하 DG로 표기), sodium deoxycholate (Sigma aldrich, USA, 이

하 SDOC로 표기) 등 총 8종류를 사용하였다. 천연오일에는 코코넛 오일(coconut oil, Ottogi, Korea), 에스테르 오일에는 cetyl ethylhexanoate (상품명 Hicos CEH, Ecotech Korea, 이하 CEH로 표기)를 사용하였다. 본 실험에 사용되는 계면활성제는 제품별로 assay(active content) 함량이 다르기 때문에, 각 제품의 assay 비율을 기준으로 함량을 보정하여 실험 정량을 하였다.

### 2.2. 유화력 테스트

본 연구에서 유화력은 Jeong et. al [13] 및 Yeon et. al [14]의 방법을 개량하여 측정하였다. Falcon tube (50 mL)에 2 wt% 계면활성제 수용액 5 g과 코코넛 오일 또는 CEH 오일 5 g을 넣고, 여기에 기포 제거를 위해 실리콘 오일 소량(0.1 g)을 넣어 70°C 항온수조에서 5분 동안 보관한다. 항온수조에서 꺼낸 뒤 볼텍스 믹싱을 1분 가량 진행한 후, 다시 70°C 항온수조에 5분 동안 보관한다. 이어서 진탕장비(CM-1000, Eyela, Japan)로 2000 rpm 속도로 30분 간 믹싱 후, falcon tube의 내용물을 시험관에 부어서 옮긴다. 시험관을 거치대(rack)에 세워서 2시간 경과 후, 전체 혼합물 층과 유화된 층의 높이를 각각 측정해서 아래 식과 같은 정의로 유화력을 산출하였다.

유화력(Emulsifying power) =

$$\frac{\text{유백색의 유화층 높이}}{\text{전체 혼합물 층 높이}}$$

### 2.3. 가용화력 테스트

계면활성제에 대한 가용화력 테스트는 색소 가용화법[15]을 활용하여 소수성 색소인 Orange SS oil (TCI Chem, Japan)를 가지고 진행하였다. 0.5 wt% 계면활성제 수용액 40 g에 0.1 wt% (1000ppm) 농도의 Orange SS 색소 첨가한다. 볼텍스 믹싱을 1분 가량 진행한 후, 60°C 항온수조에서 30 분간 녹여준다. 진탕장비(CM-1000, Eyela, Japan)로 상온에서 2000 rpm 속도로 10분 간 혼합 후, 감압 여과기와 멤브레인 필터를 각각 사용하여 2번의 필터링을 진행하였다. 여과액을 증류수로 4배 희석한 후, UV-VIS 분광기(V-750 spectrophotometer, Jasco, Japan)로 흡광도를 측정하였다.

### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1. 혼합 조성물 구성을 위한 사전 실험

수크로스 스테아레이트(SS) 혼합 조성물 최적 구성을 위한 사전 실험으로, SS와 혼합할 계면활성제 후보군으로 몇 종을 선택하여 혼합 구성으로 유효력이 상승하는지를 살펴보았다. SS와 혼합할 계면활성제 후보군은 현재 화장품/식품 분야에서 가장 범용적으로 널리 사용되는 것 중에서 분자 구조 유형별로 선택하였다. Fig. 1은 SS 단독(맨 왼쪽)과 SS와 후보군의 계면활성제를 7:3의 비율로 혼합하였을 때의 유효력을 비교한 사진이다. 본 유효력 테스트에서는 물과 코코넛 오일을 1:1 중량 비율로 혼합하였고, 계면활성제는 전체 혼합 용액 대비 1 wt%의 비율로 첨가하였다. 혼합물을 믹서로 유효시키면 처음에는 시험관 전체가 동일하게 유백색의 외관으로 나타나지만, 시간이 지나면서 점차 상(phase) 분리가 나타나고, 2시간 후에는 사진에서 보이는 것처럼 5개 시험관 모두에서 다양한 형태로 상분리가 진행되었다. SS 계면활성제 단독의 시험관에서는 위쪽에는 유백색의 유효층, 아래쪽에는 청색 빛의 불투명한 수상층으로 분리되는 것을 볼 수 있었다. PG4, DG를 혼합한 시험관에서는 위쪽에 오일 층이 점차적으로 투명하게 상분리가 되었고, PG10을 혼합한 시험관에서도 위쪽 오일 층에서 불균일하게 투명 영역이 나타나는 등 상분리가 진행되고 있었다. SDOC를 혼합한 맨 오른쪽의 시험관에서는 아래에 분리된 수상층이 있지만 다른 시험관들에 비해서 유백색의 유효층이 가장 길게 나타났다. 따라서 SS에 SDOC를 혼합하면 SS 단독일 때보다 유효력이 좀 더 향상됨을 알 수 있었다.

가용화 능력이 우수한 몇 종의 계면활성제를 선별하여 SS와 혼합한 후, 가용화력의 상승 여부를 살펴보았다. Fig. 2는 SS 단독과 SS에 각각의 가용화제를 7:3의 비율로 혼합했을 때 용해된 Orange SS의 UV-Vis 흡수 피크를 비교한 것이다. 그림에서 보듯이 Orange SS의 최대 흡수피크는 대략 495 nm에서 나타나며, Orange SS 최대 피크 파장에서의 흡광도는 물에 용해된 Orange SS의 농도에 비례하게 되는데, 흡광도 값이 높을수록, 계면활성제의 가용화력이 우수함을 의미한다. SDOC를 제외한 나머지 가용화제를 SS와 혼합하게 되면, SS 단독일 때보다도 흡광도가 상승하는 것으로 나타났다. 그중에서도 HCO를 혼합

하였을 때 흡광도가 가장 높게 나타나 SS에 HCO를 혼합했을 때 가용화력이 가장 크게 상승함을 알 수 있었다.

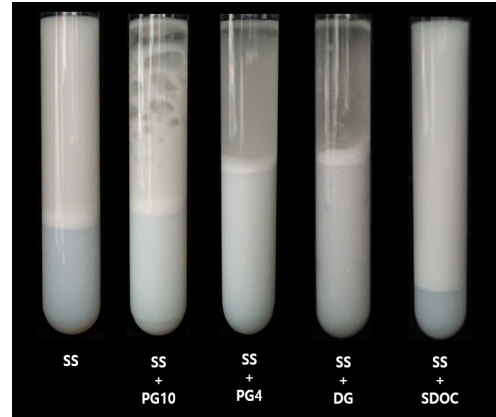


Fig. 1. Appearance comparison of emulsifying power between between sucrose stearate and mixed surfactant (coconut oil).

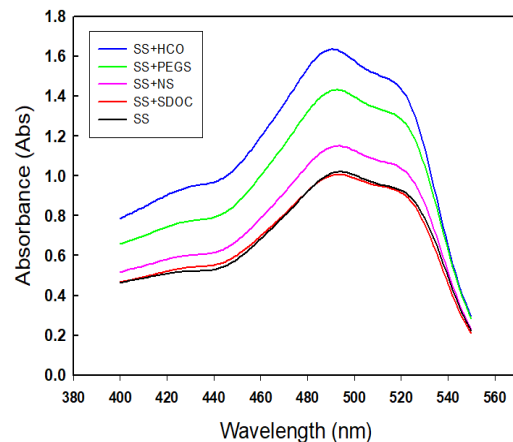


Fig. 2. Comparison of the UV-Vis spectrum of solubilized Oil Orange SS based on the type of surfactant.

#### 3.2. 혼합물 실험 설계 및 회귀 분석

혼합물 실험 설계법을 통해, 여러 성분의 혼합물을 만드는 과정에서, 각 성분들이 혼합물 최종 물성에 어떠한 영향을 미치는지 파악하고, 혼합성분의 최적 비율을 구할 수 있다. 본 연구에서는 혼합물 실험 설계법을 활용하여 SS의 유효력과 가용화력을 좀 더 향상시키기 위한, 혼합물 최적 구성을 위한 실험을 실시하였다. 앞서 진행된 사

Table 1. Design matrix for the mixture experiment

Std No.	Run No.	Point type	$X_A$ (SS)	$X_B$ (SDOC)	$X_C$ (HCO)	Emulsifying power of coconut oil ( $Y_1$ )	Emulsifying power of CEH ( $Y_2$ )	Solubilization ( $Y_3$ )
10	1	-1	0.75	0.05	0.2	0.69	0.92	1.44
7	2	0	0.8	0.1	0.1	0.7	0.91	1.27
2	3	1	0.7	0.3	0	0.89	0.72	1.04
1	4	1	1	0	0	0.64	0.64	1.37
8	5	-1	0.9	0.05	0.05	0.68	0.89	1.37
6	6	2	0.85	0.15	0	0.74	0.79	0.99
3	7	1	0.7	0	0.3	0.63	0.75	1.64
4	8	2	0.7	0.15	0.15	0.73	0.83	1.37
9	9	-1	0.75	0.2	0.05	0.79	0.79	1.12
5	10	2	0.85	0	0.15	0.68	0.88	1.78

전 실험을 통해 SS의 기능 향상에 도움이 될 것으로 예상되는 성분으로, 유화력 상승에 도움을 주는 SDOC와 가용화력이 가장 좋은 HCO를 각각 선택하여 SS와 이들과의 혼합 조성물을 구성하였다. SS의 성능 개선이 목표인 만큼, 주성분으로서 SS를 최소 0.7 이상의 혼합 비율로 설정하고, SDOC와 HCO의 혼합 비율을 각각 0.3 이내로 제한 영역을 두었다. 따라서 SS(A성분)는  $0.7 \leq X_A \leq 1.0$ , SDOC(B성분)와 HCO(C성분)는 각각  $0 \leq X_B, X_C \leq 0.3$ 의 범위에서 혼합을 실시하였고, 각 성분의 혼합 비율의 합은  $X_A + X_B + X_C = 1$ 을 만족해야 한다.

혼합물 실험 설계는 실험 계획법의 심플렉스 중심 설계에 축점(axial point)을 추가하여 Table 1에서와 같은 조성 비율로 10번의 실험을 설계하였다. Table 1의 Point Type에서 -1은 축점, 0은 중앙점이고, 1은 꼭짓점, 2는 2중 혼합점을 의미하고, 10번의 실험 수행 순서는 MINITAB에서 제시된 랜덤 순서로 진행하였다. 조성 비율에 따른 반응변수는 유화력과 가용화력을 나타내는 특성값들로 설정하였다. 유화력의 특성값은 앞서 (1)식에서 정의된 값으로 나타나는데, 유화력의 경우 오일의 종류에 따라 유화력이 달라지기 때문에 천연 오일인 코코넛 오일과 에스테르 오일인 CEH, 2가지 오일에 대한 특성값  $Y_1$ 과  $Y_2$ 를 각각 구하였다. 가용화력은 UV-Vis 최대 피크

파장에서의 흡광도 값을 특성값  $Y_3$ 로 설정하였다. 10번의 혼합 조성 별 실험에서 얻어진 특성값들을 Table 1에 나타내었다.

Table 1에서의 특성값  $Y_1$ ,  $Y_2$ ,  $Y_3$ 값 각각에 대해 회귀분석을 실시하였는데, 제일 먼저 코코넛 오일에 대한 유화력을 나타내는 특성값  $Y_1$ 에 대해 모델링 한 결과를 Table 2에 나타내었다. 회귀 분석 결정계수 값은  $R^2 = 99.31\%$ 로 데이터가 모델에 적합하였으며, 분산분석 결과를 보면 선형 및 2차 모형 모두 p-값이 0.05보다 작으므로 독립변수와 종속변수 간에 통계적으로 유의성이 있는 것으로 나타났다. 또한  $X_A * X_B$ ,  $X_A * X_C$ ,  $X_B * X_C$ 의 p-값도 각각 0.054, 0.017, 0.042로 나타났는데, 두 성분 간의 상관관계들도 유화력에 유의한 영향을 미친다고 말할 수 있다. 회귀 분석 모형 식을 살펴보면  $X_A$ ,  $X_B$ ,  $X_C$  항의 계수가 각각 0.638, 2.379, -0.688로 나오고 이들 중 SDOC 조성의 계수가 다른 두 계수보다 상대적으로 크게 나왔는데, 이는 SDOC가 코코넛 오일의 유화력 상승에 큰 영향을 미치는 것을 의미한다.

Fig. 3은 회귀 분석으로 얻은 식을 사용하여, 혼합물의 각 성분조성 비율에 따른 코코넛 오일에 대한 유화력 변화를 나타낸 그림이다. (a)의 혼합물 등고선도(mixture contour plot)를 살펴보면, SDOC (B)의 최대 조성인 0.3에 가까울수록

Table 2. The analysis result of the regression and variance of emulsifying power for coconut oil

Response	F	p	R <sup>2</sup> (%)	Equation on terms of pseudo composition
Regression	114.61	0.000	99.31	$Y_1 = 0.639X_A + 2.379X_B - 0.688X_C - 1.282X_A * X_B + 1.870X_A * X_C - 1.403X_B * X_C$
Linear	19.86	0.008		
Quadratic	10.59	0.023		
X <sub>A</sub> *X <sub>B</sub>	7.30	0.054		
X <sub>A</sub> *X <sub>C</sub>	15.54	0.017		
X <sub>B</sub> *X <sub>C</sub>	8.75	0.042		

( X<sub>A</sub> : SS X<sub>B</sub> : SDOC X<sub>C</sub> : HCO )

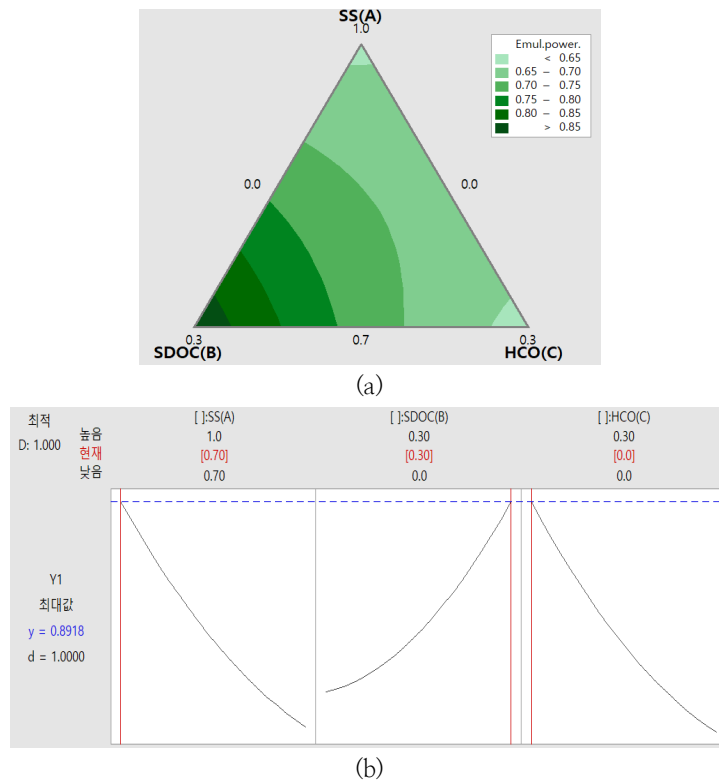


Fig. 3. Effect of mixture composition on emulsifying power for coconut oil (a) contour plot (b) maximum value of emulsifying power at optimized mixture composition.

유화력은 높아지는 것으로 나타나, SS에 SDOC의 첨가는 유화력 상승에 큰 영향을 미치는 것을 알 수 있다. 이는 SDOC가 이온성 계면활성제로 음전하를 띠기 때문에 유화입자 계면 간 정전기적 반발력이 작용하여 유화의 안정성을 높이는 것으로 예측된다. 유화력의 목표(target) 최댓값을 1로 설정하

고 혼합 조성의 최적화를 구한 결과, (b)에서 보듯 SS 0.7에 SDOC를 최대치 0.3으로 첨가했을 때가 최적 조성으로 구해졌다. 이때 유화력의 최댓값은 Y<sub>1</sub> = 0.8918로 나타나고, 이때 예측된 반응의 종합 만족도(D)는 1로 나왔다. 모형식으로 부터 얻은 최적 조성에서의 코코넛 오일 유화력 최댓값 0.8918

은 실제 실험을 통해 얻은  $X_A = 0.7$ ,  $X_B = 0.3$ 에서의 유화력 값(0.89, Table 1, Run No. 3)과 거의 동일하게 나타났다.

오일 종류를 달리하여 에스테르 오일인 CEH에 대한 혼합물 조성의 회귀분석 결과는 Table 3과 같다. 회귀분석 결과를 보면 결정계수 값은  $R^2 = 90.18\%$ 로 비교적 높은 신뢰성을 보이며, 선형 및 2차 모형 모두 p-값이 0.018, 0.022로 통계적으로 유의성 있게 나타났다. 혼합물의 성분 조성 비율에 따른 에스테르 오일 CEH에 대한 유화력 변화를 Fig. 4에 나타내었다. 코코넛 오일과는 달리 혼합물 등고선도(a)를 보면, SS와 HCO의 중간지점에서 유화력이 가장 높고, 각 성분의 꼭짓점 방향으로 향할수록 유화력이 감소함을 알 수 있다. 유화력 목표 최댓값을 1로 설정하여 최적화를 시도한 결과(b),  $X_A$  (SS) = 0.8213,  $X_B$  (SDOC) = 0.0212,  $X_C$  (HCO) = 0.1574의 조성으로 혼합했을 때  $Y_2 = 0.9212$ 의 최댓값을 얻게 되고, 이렇게 예측된 모형의 종합만족도(D)는 1로 나타났다. 앞서 코코넛 오일의 유화력 결과와는 달리, 에스테르 오일 CEH에서는 3종의 계면활성제를 혼합 사용하는 것이, 단독 사용이나 계면활성제 2종 혼합보다도 유화력이 더 향상되는 등, 혼합에 따른 시너지 효과가 발생함을 알 수 있다.

가용화력에 대한 혼합물 회귀 분석에서는,  $X_B * X_C$ 의 계수항 p값이 0.05를 초과하여 유의성이 없는 것으로 나타나, 이 항을 교락시키고 다시 회귀 분석을 실시한 결과, 선형과 2차 모형 모두  $p < 0.05$ 로 통계적으로 유의성이 있게 나타나고, 결정계수 값은  $R^2 = 95.80\%$ 로 데이터에 모형이 적합한 것으로 나타났다. 이 모형에 기초

한 회귀식은 Table 4와 같다. 혼합물의 각 성분 조성 변화에 대한 가용화력의 변화를 Fig. 5에 나타내었다. 혼합물 등고선도(a)를 보면, HCO 조성 방향으로 갈수록 가용화력이 증가함을 확인할 수 있다. 가용화력의 목표는 최대 정하고 최적화를 시도한 결과, SDOC 혼합 없이, 나머지 두 계면활성제를  $X_A$  (SS) = 0.8121,  $X_C$  (HCO) = 0.1879의 비율로 혼합했을 때  $Y_3 = 1.7286$ 로 최적화가 되고, 이때 예측된 반응의 종합만족도(D)는 1로 나타났다. SS 단독보다는 HCO 일정량을 혼합하였을 때 가용화력이 더욱 상승함을 알 수 있다.

### 3.3. 동시 최적화 및 확인 실험

Table 2-4의 회귀식에 근거하여 Derringer and Suich (1980)가 제안한 호감도 함수 접근법 [16]을 이용하여 코코넛 오일과 에스테르 오일 각각의 유화력 및 가용화력, 총 3개의 반응변수를 동시 최적화한 실험결과를 Fig. 6에 제시하였다. 동시 최적화를 함에 있어 3개의 반응변수 각각의 가중치를 1로 동일하게 설정하였으며 그 결과,  $X_A = 0.7939$ ,  $X_B = 0.0586$ ,  $X_C = 0.1475$ 의 혼합 조성을 구성하였을 때, 코코넛 오일 유화력  $Y_1 = 0.6924$ 로, CEH 유화력  $Y_2 = 0.9161$ 로, 가용화력  $Y_3 = 1.5009$ 로 최적화 되었고 예측된 반응의 종합만족도(D)는 0.9469로 나타났다. 혼합물의 최적화 프로그램에서의 결과를 토대로 최적의 혼합비  $X_A = 0.7939$ ,  $X_B = 0.0586$ ,  $X_C = 0.1475$ 로 계면활성제를 혼합하여 확인 실험을 수행하였다. 확인실험 결과, 코코넛 오일 유화력 평균은 0.670으로 최적조건의 95% 신뢰구간인 0.6577 - 0.7270 사이의 값으로 나타나고, CEH

Table 3. The analysis result of the regression and variance of emulsifying power for CEH

Response	F	p	$R^2(\%)$	Equation on terms of pseudo composition
Regression	7.35	0.038	90.18	$Y_2 = 0.651X_A - 3.111X_B - 5.644X_C + 5.612X_A * X_B + 9.490X_A * X_C + 4.824X_B * X_C$
Linear	12.91	0.018		
Quadratic	10.62	0.022		
$X_A * X_B$	7.00	0.057		
$X_A * X_C$	20.02	0.011		
$X_B * X_C$	5.17	0.085		

(  $X_A$  : SS  $X_B$  : SDOC  $X_C$  : HCO )

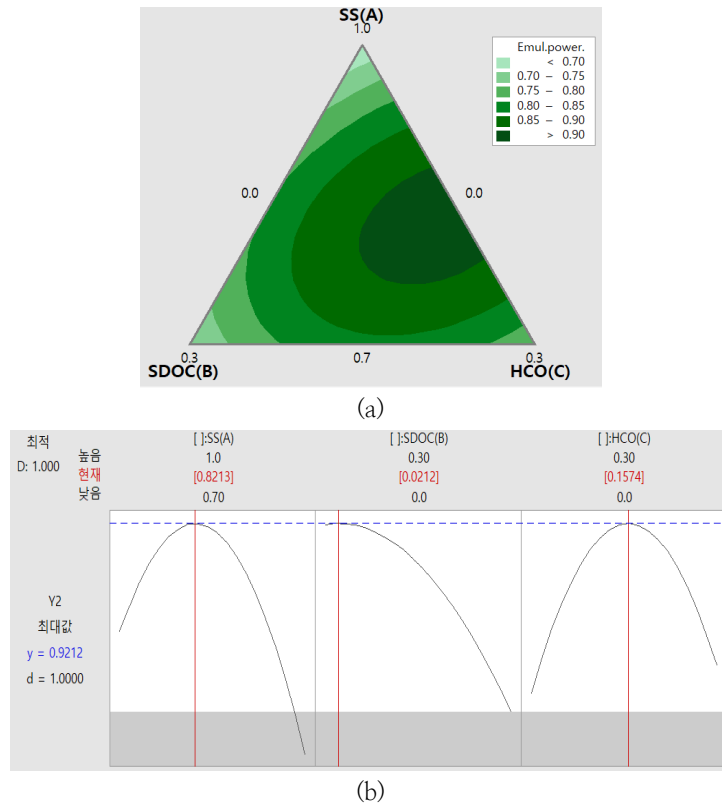


Fig. 4. Effect of mixture composition on emulsifying power for CEH (a) contour plot (b) maximum value of emulsifying power at optimized mixture composition.

Table 4. The analysis result of the regression and variance for solubilization

Response	F	p	R <sup>2</sup> (%)	Equation on terms of pseudo composition
Regression	28.53	0.001		
Linear	6.62	0.039	95.80	$Y_3 = 1.39X_A + 8.18X_B - 4.59X_C - 11.33X_A * X_B + 9.58X_A * X_C$
Quadratic	9.62	0.019		
X <sub>A</sub> *X <sub>B</sub>	11.16	0.021		
X <sub>A</sub> *X <sub>C</sub>	7.97	0.037		

( X<sub>A</sub> : SS X<sub>B</sub> : SDOC X<sub>C</sub> : HCO )

오일 유화력 평균은 0.937로 95% 신뢰구간인 0.8702 - 0.9619 사이의 값으로 나타났다. 마지막으로 가용화력에서도 평균값은 1.495로 95% 신뢰구간인 1.4258 - 1.5759 사이의 값으로 나타

나, 확인 실험 결과 3개의 반응변수 모두가 최적화 프로그램에서 예측한 특성치의 신뢰구간 내의 값을 보였다.



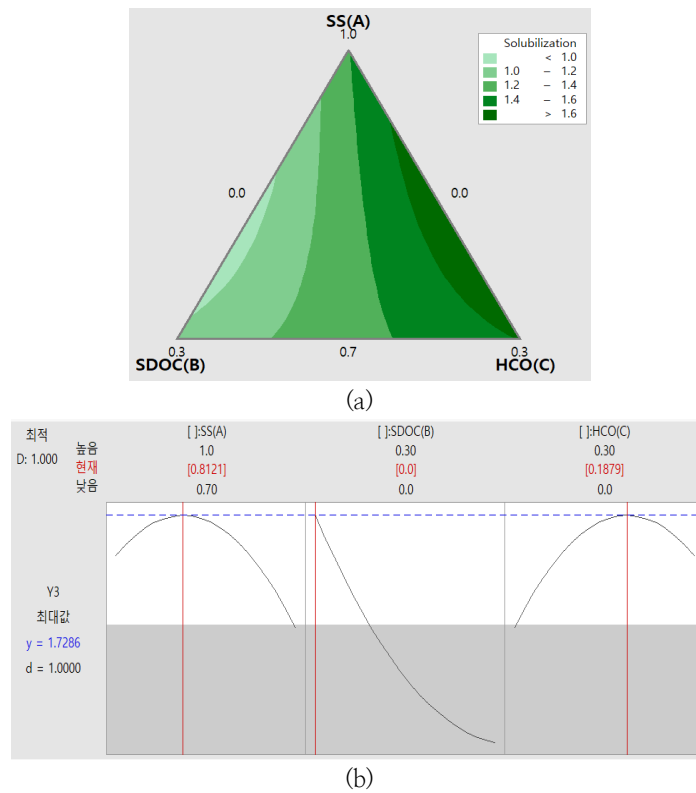


Fig. 5. Effect of mixture composition on solubilization (a) contour plot (b) maximum value of solubilization at optimized mixture composition.

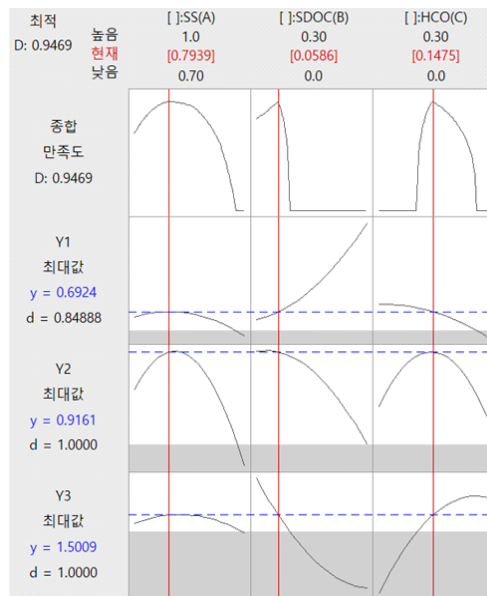


Fig. 6. Result of simultaneous optimization (Y<sub>1</sub>: Emulsifying power for coconut oil, Y<sub>2</sub>: Emulsifying power for CEH, Y<sub>3</sub>: Solubilization).

#### 4. 결론

최적의 수크로스 스테아레이트(SS) 혼합 조성물 구성을 위해, 혼합물 실험 계획법에 따라 혼합 조성에 따른 특성치 변화를 관찰하는 실험을 실시하였다. 유화력과 가용화력의 특성치 데이터를 회귀 분석하여 p-값이 0.05 이하로 95% 이상 유의성 있는 모형 식을 구하고, 혼합물 조성의 변화가 혼합물의 특성치에 미치는 영향을 살펴보았다. 코코넛 오일의 유화력 테스트에서는 SS 0.7에 SDOC의 최대 허용 조성인 0.3을 혼합했을 때 유화력이 가장 향상되었고, 에스테르 오일 CEH 유화력 테스트에서는 SS 0.8213, SDOC 0.0212, HCO 0.1574의 조성으로 3종의 계면활성제를 혼합했을 때 유화력이 가장 높게 나타났다. 가용화력 테스트에서는 SDOC 혼합 없이, SS 0.8121, HCO 0.1879의 비율로 두 계면활성제를 혼합했을 때 가용화력이 가장 높게 나타났다. 위 3개의 특성치에 대한 동시 최적화를 실시한 결과에서는, 계면활성제 혼합 조성을 SS 0.7939, SDOC 0.0586, HCO 0.1475로 구성했을 때 코코넛 오일 유화력  $Y_1 = 0.6924$ , CEH 유화력  $Y_2 = 0.9161$ , 가용화력  $Y_3 = 1.5009$ 의 특성치가 예측되었다. 최적화된 혼합 조성으로 실험을 실시한 결과, 이들 예측된 특성치의 신뢰구간 내에서의 값을 확인하였다.

#### 감사의 글

본 연구는 산업통상자원부의 바이오산업기술개발사업(과제번호 20018375)의 지원에 의하여 수행된 결과의 일부이며 이에 감사의 뜻을 표합니다.

#### References

1. D. J. McClements, S. M. Jafari, "Improving emulsion formation, stability and performance using mixed emulsifiers : A review", *Advances in colloid and interface science*, Vol.251, pp. 55-79, (2018).
2. D. J. McClements, "Edible nanoemulsions: fabrication, properties, and functional performance", *Soft Matter*, Vol.7, No.6 pp. 2297-2316, (2011).
3. I. Kralova, J. Sjöblom, "Surfactants used in food industry: a review", *Journal of Dispersion Science and Technology*, Vol.30, No.9 pp. 1363-1383, (2009).
4. P. M. Holland, D. N. Rubingh, "Mixed Surfactant Systems: An Overview", *ACS Symposium Series*, Vol.501, pp. 2-30, (1992).
5. E. Dickinson, "Mixed biopolymers at interfaces: competitive adsorption and multilayer structures", *Food Hydrocoll*, Vol.25, No.8 pp. 1966-1983, (2011).
6. D. Guzey, D.J. McClements, "Formation, stability and properties of multilayer emulsions for application in the food industry", *Advances in colloid and interface science*, Vol.128, pp. 227-248, (2006).
7. A. M. Forgiarini, J. Esquena, C. González, C. Solans, "Formation and stability of nanoemulsions in mixed nonionic surfactant systems", *Trends in colloid and interface science XV*, Vol.118, pp. 184-189, (2001).
8. K. Holmberg, "Natural surfactant", *Current Opinion in Colloid & Interface Science*, Vol.6, No.2, pp. 148-159, (2001).
9. W. Johnson Jr, "Final report on the safety assessment of PEG-25 propylene glycol stearate, PEG-75 propylene glycol stearate, PEG-120 propylene glycol stearate, PEG-10 propylene glycol, PEG-8 propylene glycol cocoate, and PEG-55 propylene glycol oleate", *International Journal of Toxicology*, Vol.20, No.8, pp. 13-26, (2001)
10. J. S. Lee, H. S. Chae, W. C. Chung, S. S. Kim, H. J. Song, "Urticaria Reaction by Oral Polyethylene Glycol Ingestion", *Korean Journal of Gastrointestinal Endoscopy*, Vol. 24, No.5, pp. 299-301, (2002).
11. N. S. Neta, J. A. Telxeira, L. R. Rodrigues, "Sugar ester surfactants: Enzymatic synthesis and applications in

- food industry”, *Critical Reviews in Food Science and Nutrition*, Vol.55, No.5, pp. 595–610, (2015).
12. Y. S. Park, “Selection of Optimum Ratio of 3 Components (Ir-Sn-Sb) Electrode using Design of Mixture Experiments”, *Journal of Environmental Science International*, Vol.25, No.5, pp. 737–744, (2016).
  13. N. H. Jeong, S. S. Park, H. K. Jeong, K. H. Cho, K. D. Nam, “Studies on the Polymeric Surface Active Agent(VI)-The Surface Activities of Anionic Oligomer Surfactant with  $\alpha$ -Sulfo Alkanoic Acid”, *Applied Chemistry for Engineering*, Vol. 4, No. 4, pp. 683–691, (1993).
  14. J. Y. Yeon, B. R. Shin, T. G. Kim, J. M. Seo, C. H. Lee, S. G. Lee, H. B. Pyo, “A study on emulsion stability of O/W and W/S emulsion according to HLB of emulsifier”, *Journal of the Society of Cosmetic Scientists of Korea*, Vol.40, No.3, pp. 227–236, (2014).
  15. S. Hong, K. Zuo, S. B. Lee, “Evaluation of Coconut Oil-based Emulsion Stability Using Tween-Span Type Nonionic Mixed Surfactant”, *Applied Chemistry for Engineering*, Vol.30, No.4, pp. 453–459, (2019).
  16. G. Derringer, R. Suich, “Simultaneous optimization of several response variables”, *Journal of quality technology*, Vol.12, No.4, pp. 214–219, (1980).