

미건조 감귤박 적용에 따른 하이드로겔 특성변화

김동성 · 성용주[†]

접수일(2019년 5월 31일), 수정일(2019년 6월 17일), 채택일(2019년 6월 19일)

Changes in the Properties of Hydrogel Made Using Undried Citrus Pomace

Dong Sung Kim and Yong Joo Sung[†]

Received May 31, 2019; Received in revised form June 17, 2019; Accepted June 19, 2019

ABSTRACT

In this study, hydrogel was prepared using undried citrus pomace. Although the citrus pomace has several functional materials, including vitamin C, its utilization is very limited, and its disposal has become one of the serious problems in the citrus juice industry after the prevention of ocean disposal. The morphological properties of undried citrus pomace required the fine grinding treatment, which resulted in the homogeneous structure of hydrogel with the citrus pomace. The appearance of hydrogel before and after the addition of the treated citrus pomace was not significantly different, except for the color. The addition of the citrus pomace resulted in the decrease of the gelation content and in the hydrogel swelling capacity. Moreover, the higher citrus pomace addition induced the higher vitamin C content in the hydrogel. The gel strength could be increased via nanocellulose addition.

Keywords: Hydrogel, citrus pomace, vitamin C, gel strength

1. 서론

하이드로겔은 구조체 내 다량의 수분이 포함된 3차원 망상구조를 가지면서 일정한 형태를 가지고 있는 구조체를 총칭하며,¹⁾ 히드록시기, 카복실기, 아미노기 등의 친수성기를 가지는 원료들을 pH, 온도, 광에너지 등으로

물리적 가교결합을 일으키거나, 겔화제를 이용한 화학적 가교결합을 통해 제조된다.²⁾ 제조의 용이성으로 주로 겔화제를 이용하여 하이드로겔이 제조되며, 이때 겔화제로는 아가(agar), 카라기난(carrageenan), 젤라틴(gelatin), 펙틴(pectin), 콜라겐(collagen) 등이 이용되고 있다.^{3,4)} 이렇게 겔화제를 적용하여 제조된 하이드로겔은

• 충남대학교 농업생명과학대학 환경소재공학과(Department of Biobased Materials, College of Agriculture and Life Science, Chungnam National University, Daejeon, 34134, Republic of Korea)

[†] 교신저자(Corresponding Author): E-mail: yosung17@cnu.ac.kr

공유결합을 형성함으로써 외부의 환경변화에도 결합이 잘 끊어지지 않는 불용해성을 지니며, 여러 가지 구조적 장점으로 하이드로겔은 향장용소재, 생체소재, 창상치료제, 약물전달체, 콘택트렌즈 등 다양한 제품과 용도에 사용되고 있다.^{5,6)} 하지만 하이드로겔 자체로는 친수성 이외에 기능성을 포함하지 않고 있기 때문에, 기능성을 포함시키기 위해 기능성 추출 수용액을 혼합하여 하이드로겔을 제조하거나, 분말 형태의 기능성 소재를 하이드로겔의 제조 시 첨가하여 기능성 하이드로겔 제품을 만들게 된다. 특히 천연물 기반의 기능성 하이드로겔의 제조를 위해서는 천연물을 겔화제와 함께 혼합하는데, 천연물의 균일한 혼합을 위해 대체적으로 천연물을 건조, 분말화한 상태로 적용하여 제조하게 된다.⁷⁾

국내에서 생산되는 주요 과일 중 하나인 감귤은 제주도를 포함한 일부 남부지방에서 주로 생산되고 있는데 2017년 기준 약 57만 6천 톤 가량이 생산되었으며, 실제 매년 약 50만 톤 이상의 감귤이 생산되고 있다. 이러한 감귤은 생산량 중 70%가 생과로 이용되며, 30%는 가공용으로 활용되는데, 가공용으로 사용되는 감귤은 착즙공정을 거쳐 착즙물은 감귤주스로 판매되고, 착즙 후 남은 부산물인 감귤박은 폐기된다. 감귤 착즙과정 중 발생하는 감귤박은 착즙 후 원물의 약 50% 정도가 발생되는데 실제 국내에서는 매년 약 5-7만 톤의 감귤박이 발생된다. 감귤박은 가공 시 착즙된 후 세척과정 없이 그대로 배출되기 때문에 감귤에 포함되어 있는 수분의 대부분은 감귤즙이며, 감귤 내 다양한 유효성분들이 모두 남아있게 된다. 이러한 감귤박은 현재 퇴비 및 사료 등으로 일부 활용되고 있으나 대부분 폐기되고 있으며, 해양투기가 금지됨에 따라 그 처리비용이 매년 높아짐에 따라 적절한 활용방법이 시급히 요구되고 있는 실정이다. 감귤박은 플라보노이드계 성분, 비타민 C, D-리모넨, 펙틴, 카로티노이드, 나린진(narjin) 등 다양한 기능성 물질들을 포함하고 있으며, 그 중 항산화, 항암, 항염증을 가지고 있는 플라보노이드류와 비타민 C는 대표적인 기능성 물질이라고 할 수 있다.⁸⁾ 특히 비타민 C 함량은 감귤의 껍질 부분이 과육보다 약 4배 가량 높은 것으로 알려져 있으며, 비타민 C는 항산화물질을 포함하여 피부노화방지과 함께 미백효과 등이 있어 화장품소재로 사용되고 있다. 또한 잘 알려진 성분인 D-리모넨은 항균제, 항바이러스제, 항진균제 등이 포함되어 있어, 이를 이용해 기능성 화장품, 세제 등 다양한 용도로 사용되고 있다. 감귤박의 다양한 기능성

유효성분을 활용하기 위해 추출물의 종류에 따른 성분 분석,⁹⁾ 감귤박의 사료로의 활용¹⁰⁾ 등 다양한 연구가 진행된 바 있으나, 감귤박의 활용을 위한 건조과정이 대부분 적용됨에 따라 감귤박의 다양한 기능성 물질의 건조과정 중 파괴되거나 감소됨에 따라 최종 산물의 기능성이 크게 감소될 수 있다.

본 연구에서는 감귤박 하이드로겔 제조 시 미건조 감귤박의 유용한 기능성 물질들의 손실이나 파괴를 최소화하기 위해 별도의 건조과정 없이 착즙 이후 배출되는 감귤박을 그대로 활용한 기능성 하이드로겔 제조가 가능한지 여부를 평가하고자 하였다. 이를 위해 감귤박을 미세화 처리하였으며, 겔화제로는 친수성물질로 강한 겔화능을 보유하여 수분흡수성, 응고성, 보수성 등 우수한 성질을 가지는 아가를 이용하여,¹¹⁾ 하이드로겔을 제조하여 그 특성을 알아보았다.

2. 재료 및 방법

2.1 재료

본 연구에서는 제주도에서 생산된 감귤의 착즙 가공 과정에서 발생한 착즙부산물인 감귤박을 제주 A사에서 착즙 직후 분양받아 실험을 진행하였다. 하이드로겔을 제조하기 위한 겔화제로는 아가(agar powder, Samchun, Korea)를 사용하였고 하이드로겔 제조 시 물리적 특성을 개선하기 위한 방안으로 슬러리 형태의 농도 2% 활엽수 나노셀룰로오스를 M사에서 분양받아 사용하였다.

2.2 감귤박 처리 및 특성 평가

2.2.1 감귤박의 형태적 특성 평가

감귤의 착즙과정 중 다양한 형태의 입자들로 분쇄 및 압착되어 배출되는 감귤박의 활용을 위하여 감귤박을 구성하는 입자들의 형태적 특성을 알아보았다. 감귤박을 20, 40, 60, 80, 100, 140, 200 mesh를 이용하여 구성성분의 크기별 분급을 진행하였는데 이때 감귤박 구성성분들이 분급 시의 물리적인 힘에 의해 형태의 변형이 발생하는 것을 최소화하기 위해 각 단계별 분급 시 청수로 여러 번 희석하면서 분급을 진행하였다. 분급이 진행된 이후 각각의 메쉬 단계에 모아진 분급분의 무게를 측정하여 구성성분의 크기분포를 평가하였다.

2.2.2 감귤박의 미세화 처리

감귤박으로 그대로 겔화제와 함께 혼합하여 하이드로겔을 제조 시, 감귤박 구성성분들이 다양한 형태와 크기를 가지고 있기 때문에 균일하고 일정한 형태와 특성을 가지는 하이드로겔의 제조가 어렵다. 이에 200 mesh에서 걸리는 크기를 가지는 감귤박 분급분의 경우 PFI mill을 이용하여 미세화 처리를 실시하였다. 일반적으로 수용성 플라보노이드 성분은 식물세포 내 액포에 포함되어 있는 것으로 알려져 있는데,¹²⁾ 감귤박 세포의 과도한 물리적 처리는 감귤박 구성세포의 파괴를 가져올 수 있고 이에 따라 세포 내 기능성 성분의 용출 및 감소를 가져올 수 있다. 이에 따라 감귤박의 PFI mill 처리 시 과도하지 않은 정도로 유지하면서 미세화 처리를 진행하였고 처리 후 200 mesh 통과 고형분 및 추출액을 활용하여 하이드로겔을 제조하였다.

2.2.3 미세화된 감귤박 입도 분석

미세화 처리된 감귤박의 200 mesh 통과 분의 입자 크기 분포를 알아보기 위해서 Flow CAM(fluid imaging technology) 장치를 사용하여 평가하였다. Flow CAM은 액체에 혼합된 상태에서 cell을 통과할 때 레이저의 산란되는 광으로 입자의 분포 및 부피 등의 측정하는 장치로서 대체로 0.1~1,000 μm 의 입자 크기를 측정할 수 있다.¹³⁾

2.3 하이드로겔 제조

하이드로겔을 제조하기 위하여 겔화제인 아가의 농도를 1~5%(W/V)로 하여 증류수와 혼합한 후 85 $^{\circ}\text{C}$ 이상에서 호화를 시킨 후 용매를 약 60 $^{\circ}\text{C}$ 로 냉각시켰다. 이후 미세화된 감귤박을 4% 및 8%(W/V) 각각 첨가하여 하이드로겔을 제조하였다. 이러한 감귤박 하이드로겔 제조 시 나노셀룰로오스를 0.1~0.3%(W/V)로 각각 추가적으로 첨가하여 하이드로겔을 제조하였다. 이후 준비된 혼합용액을 25 \pm 1 $^{\circ}\text{C}$ 로 냉각시킨 후 2시간 동안 충분히 겔화를 진행시켜 하이드로겔 시료를 각각 제조하고 각각의 조건에서 제조된 하이드로겔의 특성을 평가하였다.

2.4 감귤박 적용에 따른 겔 특성변화 평가

2.4.1 겔화율 평가

겔화제인 아가와 감귤박 혼합조건별 제조된 하이드로겔의 겔화 정도 및 가교결합 정도를 확인하기 위하여 겔화율을 다음의 과정으로 측정하였다.¹⁴⁾ 감귤박의 첨가량에

따라 제조된 하이드로겔 시료를 각각 증류수에 3일간 침지한 후 블로팅 페이퍼를 이용하여 하이드로겔 구조체 외의 수분을 제거하고 열풍건조기를 이용하여 60 $^{\circ}\text{C}$ 에서 48시간 건조시킨 후 침지 전 하이드로겔의 무게(W_d)와 건조 후 남은 무게(W_i)를 이용하여 다음 Eq. 1에 의거하여 겔화율을 계산하였다.

$$\text{Gelation content (\%)} = \frac{W_d}{W_i} \times 100 \quad [1]$$

2.4.2 팽윤도 측정

하이드로겔의 침지에 의한 수분흡수특성을 평가하기 위하여 팽윤도를 측정하였는데 수분 흡수용도 등으로 하이드로겔의 적용 시 팽윤도는 매우 중요한 품질평가 기준이라고 할 수 있다. 팽윤도는 제조된 하이드로겔을 증류수에 48시간 이상 충분히 침지시킨 후, 침지된 하이드로겔의 내부 구조에 포함되어있지 않은 외부 수분을 제거한 후 무게를 측정하고(W_s), 열풍건조기를 이용하여 65 $^{\circ}\text{C}$ 에서 48시간 동안 건조하여 무게를 측정한 후(W_d) 다음 Eq. 2를 이용하여 팽윤도를 계산하였다.¹⁴⁾

$$\text{Swelling capacity (\%)} = \frac{W_s - W_d}{W_d} \times 100 \quad [2]$$

2.4.3 비타민 C 함량 측정

감귤박의 비타민 C 함량 평가를 위해 요오드 적정법을 이용하여 평가를 실시하였다.¹⁵⁾ 아가 2%(W/V)에 감귤박을 4%, 8%(W/V)를 혼합하여 하이드로겔을 제조하였고, 제조된 하이드로겔을 분쇄처리하여 30 mesh 통과분을 실험에 이용하였다. 비커에 증류수와 함께 감귤박과 녹말 지시약을 넣고, 요오드화칼륨과 요오드용액으로 제조된 적정시약을 감귤박이 포함되어 있는 용액에 떨어뜨려 종말점에 해당하는 부피를 비타민 C 함량으로 환산하여 비타민 C 함량을 측정하였다.

2.4.4 겔 강도 특성 평가

감귤박 및 나노셀룰로오스 혼합에 의한 겔 강도를 측정하였다. 겔 강도는 하이드로겔의 소재로의 활용에 있어 필수적인 요소이다. 하이드로겔의 겔 강도를 측정하기 위해 Texture analyser(Stable Micro System TAXT2i Texture analyzer, England)를 적용하였으며, 겔 강도 평가를 위해 시편 두께 3.0~3.5 mm, 넓이는 20 cm^2 로 절삭하여 측정하였다.¹⁶⁾

3. 결과 및 고찰

3.1 감귤박의 형태적 특성 및 미세화 처리

3.1.1 감귤박의 형태적 특성

감귤박의 활용을 위해 포함하고 있는 함수율과 크기 분포 특성을 확인하였다. 착즙 이후 배출되는 감귤박의 함수율은 약 70% 정도인 것으로 확인되었다. 이 때 배출되는 감귤박 구성성분들의 형태적 특성 평가를 위한 크기별 분급결과는 Table 1에 나타내었다. 감귤박의 구성성분 중 20 mesh에 걸리는 크기의 물질들이 약 31.8% 정도 차지하는 것으로 평가되었다. 200 mesh를 통과하는 미세한 물질들과 용해성 성분들이 약 56.74%를 차지하고 있었다. 20-200 mesh 사이의 크기의 분급분은 상대적으로 그 양이 적은 것을 확인할 수 있었다.

Fig. 1은 각의 크기별로 분급된 감귤박 구성성분의 상태를 보여주고 있는데 200 mesh 이상의 큰 입자들의 경우

Table 1. Classification of citrus pomace depending on Size

	Fraction (%)
① Citrus pomace (X) >20 mesh	31.8
② 20 mesh > X >40 mesh	3.9
③ 40 mesh > X >60 mesh	0.8
④ 60 mesh > X >80 mesh	3.7
⑤ 80 mesh > X >100 mesh	0.6
⑥ 100 mesh > X >140 mesh	1.6
⑦ 140 mesh > X >200 mesh	0.8
⑧ 200 mesh > X (Fines and solubles)	56.7

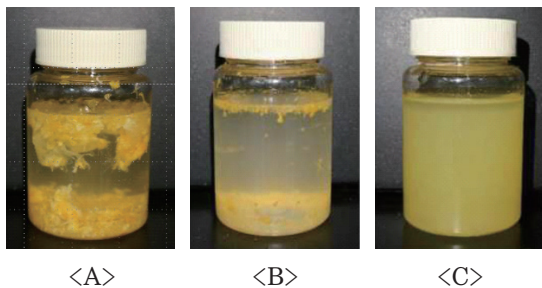


Fig. 1. Morphology and distribution in water solution of citrus pomace depending on size classification (A: X >20 mesh, B: 20 > X >200 mesh, C: 200 mesh > X).

수용액상에서 섬유 뭉침 등이 발생하여 균일한 하이드로겔 제조가 불가능하기에 미세화 처리를 진행하였다.

3.1.2 감귤박의 미세화 처리 특성 평가

감귤박의 조대입자들의 활용을 위한 방안으로 200 mesh 미통과분에 대한 미세화 처리를 실시하였다. 미세화 처리 시 식물세포의 파괴를 최소화하기 위하여 PFI mill을 이용해 처리하였으며, 처리 이후 200 mesh 통과분을 최종 처리분으로 활용하였다. 미세화 처리된 감귤박의 입도분석을 실시한 결과 Table 2에서 나타난 바와 같이 섬유입자의 크기 평균값은 약 22 μm 정도로 하이드로겔 제조 시 균일한 분포 및 품질을 나타낼 수 있을 것으로 판단되었다.

3.2 감귤박의 겔화특성

3.2.1 겔화제의 첨가량에 하이드로겔 특성 평가

천연 겔화제인 아가의 첨가량에 따른 제조된 하이드로겔의 외관 특성을 Fig. 2에서 나타내었다. 겔화제의 첨가량이 증가할수록 겔의 투명도는 감소하는 것을 볼 수 있는데, 이는 겔화제의 함량이 높아지면서 내부의 가교결합 밀도가 높아짐에 따라 투명도가 감소하는 것으로 확인되었다.

겔화제의 첨가량에 따른 수분 흡수 특성을 평가하기 위하여 하이드로겔의 팽윤도를 측정한 결과를 Fig. 3에 나타내었다. 하이드로겔 구조 내로 수분의 흡수량이 높아질수록 팽윤도는 높게 나타나는데, 겔화제의 첨가량이

Table 2. Particle size of citrus pomace after the fine grinding treatment

Sample	Average (μm)	Min (μm)	Max (μm)
>200 mesh	22.07	1.01	39.59

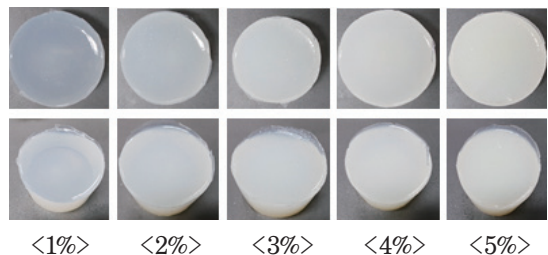


Fig. 2. The appearance of the hydrogel depending on the contents of the gellant.

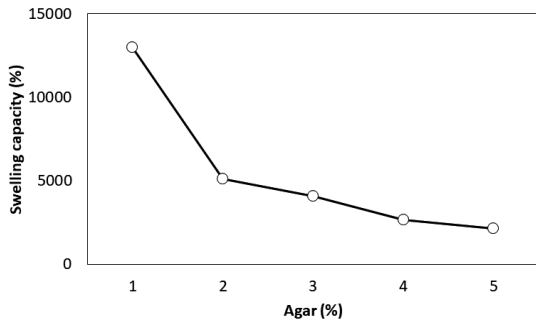


Fig. 3. Changes in swelling capacity of hydrogel in respect with the dosage of gellant (agar).

증가할수록 팽윤도는 낮아지는 것으로 나타났다. 이는 겔화제의 함량이 증가할수록 하이드로젤 구조 내 가교율이 높아지면서 내부로 수분의 유입이 감소하여 팽윤도가 감소하는 것으로 판단되어, 이후 감귤박을 이용한 하이드로젤 제조 시 겔화제인 아가의 첨가량은 2%로 조절하여 주었다.

3.2.2 감귤박 첨가에 따른 하이드로젤 특성변화

겔화제 첨가량을 2%로 한 후 미세화 처리 전후의 감귤박을 각각 4%씩 첨가하여 하이드로젤을 제조 후 외관특성을 알아보았다. Fig. 4에서 보는 바와 같이 미처리 감귤박을 적용하여 제조된 하이드로젤에서는 감귤박의 뭉침현상 등으로 하이드로젤에서 균일한 분포가 일어나지 않은 것을 확인할 수 있었다. 반면에 감귤박을 미세화 처리 후 제조된 하이드로젤에서는 균일한 감귤박의 분포가 나타남으로써 표면 및 외관 특성이 감귤박을 적용하지 않은 하이드로젤과 유사하게 나타나는 것을 확인할 수 있었다. 즉 미세화 처리에 의해 미건조 감귤박의 하이드

로젤 적용성이 개선되었다. 따라서 하이드로젤 제조에 미건조 감귤박을 적용하기 위해서는 미세화 처리가 선행되어야 할 것으로 판단된다.

3.3 감귤박 첨가 하이드로젤의 기능성 변화

3.3.1 겔화율 변화

감귤박의 첨가에 따른 하이드로젤의 겔화율 변화를 측정하여 Fig. 5에 나타내었다. 감귤박의 첨가는 하이드로젤의 겔화율을 감소시키는 것으로 나타났는데 이는 감귤박으로 인해 겔화 시 내부 가교결합이 방해되어 겔화율이 감소하는 것으로 판단되었다. 일정 정도의 겔화율이 감소된 이후 추가적인 감귤박의 첨가로 인한 겔화율 저하는 발생되지 않는 것을 확인할 수 있었다.

3.3.2 팽윤도 변화

감귤박의 첨가량에 의한 팽윤도 변화를 평가하여 Fig. 6에 나타내었다. 팽윤도는 하이드로젤 내부의 공극으로 수분이 추가적으로 흡수되는 정도를 나타내는데 감귤박의

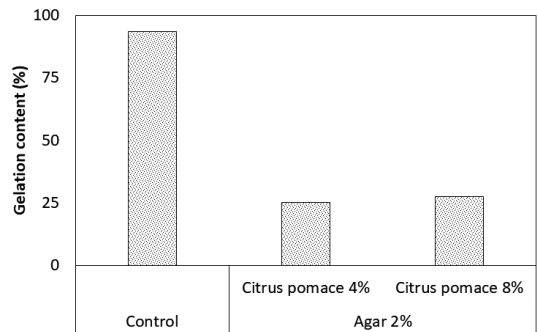


Fig. 5. Change in the gelation content depending on the addition amounts of citrus pomace.

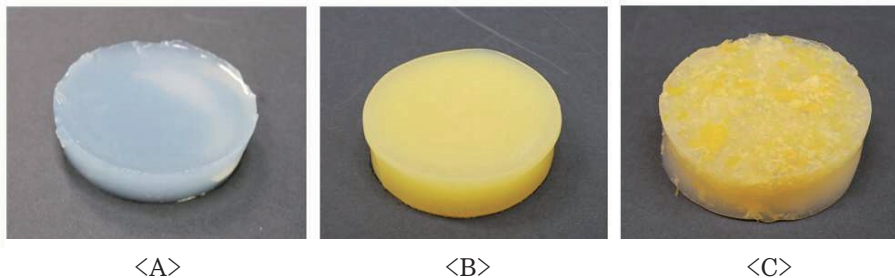


Fig. 4. The appearance of the hydrogel depending on the addition of citrus pomace (A: agar 2%, B: agar 2%+treated citrus pomace 4%, C: agar 2%+treated citrus pomace 4%).

첨가량이 증가할수록 하이드로겔의 팽윤도는 감소하는 것으로 확인할 수 있었다. 이는 하이드로겔 내부의 공극을 감귤박 입자들이 메우면서 수분의 추가적인 흡수공간이 감소하게 됨에 따른 영향으로 판단되었다.

3.3.3 감귤박 첨가에 따른 하이드로겔의 비타민 C 함량

감귤박을 각각 4%(4 g) 및 8%(8 g) 첨가하여 제조된 하이드로겔의 비타민 C 함량을 측정하여 Fig. 7에 나타내었다. 비타민 C 함량은 감귤박을 4% 첨가 시 2.35 mg, 감귤박 8% 첨가 시 4.69 mg이 포함되어 있는 것으로 확인되었는데, 감귤박의 첨가량이 증가할수록 감귤박 하이드로겔에 포함되어 있는 비타민 C 함량은 증가하는

것으로 나타났다. 감귤박 하이드로겔에 포함되어 있는 비타민 C 함량을 감귤박 첨가량에 따른 비로 환산할 경우 감귤박 1 g 첨가당 약 0.59 ± 0.1 mg/g 의 비타민 C가 하이드로겔에 포함되는 것을 확인할 수 있었다.

3.3.4 나노셀룰로오스 첨가에 따른 하이드로겔 강도 변화

감귤박의 첨가에 따른 겔화제의 가교결합감소를 보완하고 추가적인 겔 특성 개선을 위한 방안으로 나노셀룰로오스의 추가적인 첨가를 통한 하이드로겔 강도변화를 평가하였다. Fig. 8에서 보는 바와 같이, 나노셀룰로오스 첨가에 따라 겔 강도가 증가하는 것을 확인할 수 있었다. 감귤박의 첨가는 겔화율 자체의 감소를 가져오지만 겔

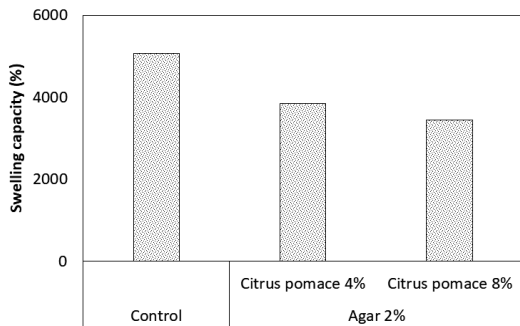


Fig. 6. Change in the swelling capacity depending on the addition amounts of citrus pomace.

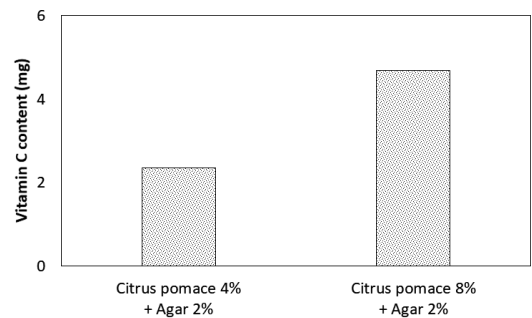


Fig. 7. The contents of vitamin C in the hydrogel depending on the addition amount of citrus pomace.

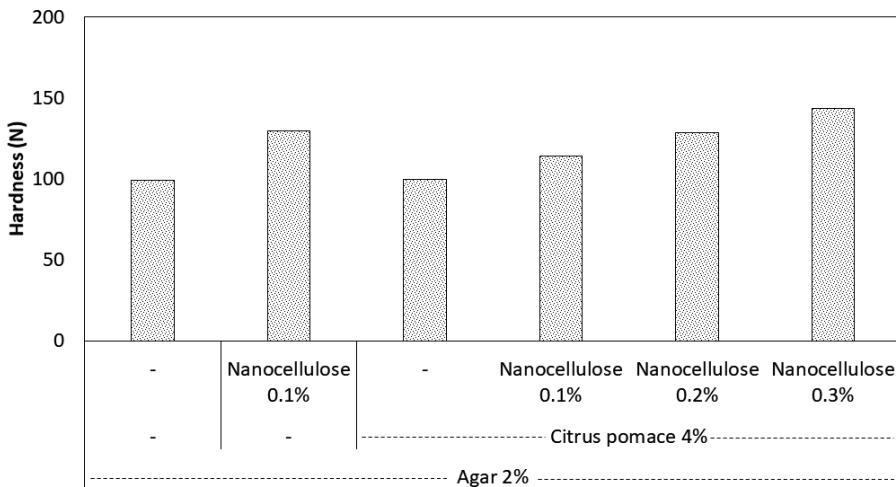


Fig. 8. Change in hydrogel hardness depending on the addition amounts of citrus pomace and nanocellulose.

강도에서는 겔화제만 단독으로 적용하여 제조된 하이드로겔과 유의한 차이를 나타내지 않았고 나노셀룰로오스의 첨가는 이러한 하이드로겔의 강도를 증가시키는 것으로 확인되었다. 감귤박의 첨가 후 나노셀룰로오스를 적용하는 경우 겔화제 단독으로 제조되는 경우에 비해 강도 증가효과가 낮게 나타나는 것을 확인할 수 있었다.

4. 결론

본 연구에서는 비타민 C 등 다양한 기능성 물질을 함유하고 있는 감귤박을 화학적 처리 또는 건조 등의 열처리 없이 물리적 처리만을 통하여 하이드로겔을 제조함으로써 감귤박에 포함된 다양한 성분들의 손실 없이 기능성 하이드로겔 제조가 가능한지에 대하여 알아보았다. 감귤의 착즙과정 중 발생하는 감귤박은 대체로 20 mesh 이상의 조대한 크기를 가지고 있는 것으로 확인되었는데 적절한 미세화 처리를 통해 쉽게 200 mesh 통과분으로 미세화되었다. 이러한 미세화된 감귤박을 첨가하여 제조된 하이드로겔의 경우 겔화율과 팽윤력이 감소하는 것을 확인할 수 있었으나 겔 강도에서는 유의한 변화가 발생하지 않았다. 감귤박을 포함하는 하이드로겔의 경우 비타민 C를 함유하는 것으로 확인되었고 나노셀룰로오스의 첨가로 하이드로겔의 겔 강도가 개선됨을 확인할 수 있었다. 이러한 연구결과를 바탕으로 감귤박의 기능성 물질들을 손실 없이 적용한 하이드로겔의 제조가 가능함을 확인할 수 있었고 향후 하이드로겔의 기능성 강화를 위한 다양한 첨가제의 적용과 관련 제조기술이 보완된다면 다양한 용도로 활용될 수 있는 감귤박 하이드로겔의 제조가 가능할 것으로 판단되었다.

사 사

본 연구는 충남대학교 학술연구진흥사업 자체연구과제 지원사업의 지원에 의하여 이루어졌습니다.

Literature Cited

1. Lee, M. H., Kim, S. J., and Park, S. N., Development of porous cellulose-hydrogel system for enhanced transdermal delivery of quercetin and rutin, *Polymer (Korea)* 37(3):347-355 (2013).
2. Lee, E. J. and Kim, Y. H., Synthesis and thermo-responsive properties of amino group terminated poly(N-isopropylacrylamide) and sodium alginate-g-poly(N-isopropylacrylamide), *Polymer (Korea)* 37(4):539-546 (2013).
3. Kim, E. M. and Lee, H. G., Development of lemon pyun by the addition of various gelling agents, *Korean Journal of Food and Cookery Science* 19(6):772-776 (2003).
4. Park, G. Y., Ra, H. N., Cho, Y. S., Kim, H. Y., and Kim, K. M., Effects of addition of mixed gelling agent on quality of peach (*Prunus persica* L. Batsch) jelly, *Journal of Korean Society of Food Culture* 33(5):448-453 (2018).
5. Kim, H. J., Cho, N. Y., Cho, S. W., Kim, Y. G., Ryu, H. W., and Jeong J. H., Tuning the hydrophobicity of agar hydrogel with substituent effect, *Polymer (Korea)* 40(2):321-327 (2016).
6. Jang, H. N., Chung, Y. B., and Kim, S. S., Preparation and characterization of silicone hydrogel lens containing poly(ethylene glycol), *Polymer (Korea)* 33(2):169-174 (2009).
7. Yun, W., Lee, Y., Kim, S., Kim, J., Sung, J., Lee, H., Son, H., Hwang, D., and Jung, Y., The preparation of mask-pack sheet blended with *Styela clava* tunics and natural, *Polymer* 29(1):45-54 (2017).
8. Senevirathne, M., Jeon, Y. J., Ha, J. H., and Kim, S. H., Effective drying of citrus by-product by high speed drying: A novel drying technique and their antioxidant activity. *J. Food Eng.* 92:157-163 (2009).
9. Song, Y. W., Moon, K. S., and Kim, S. M., Antioxidant activity and nutrient content of ethanol and hot-water extracts of citrus pomace, *J. Korean Soc. Food Sci. Nutr.* 42(9):1345-1350 (2013).
10. Choi, S. H. and Na, J. C., Effects of feeding

- Japanese apricot, carrot, or tangerine by-products on contents of vitamins E and K in chicken egg yolks, *Jour. Agrt. Sci.* 35(2):193-198 (2008).
11. Song, B. R., Kim, J. E., Yun, W. B., Lee, M. R., Choi, J. Y., Park, J. J., Kim, D. S., Lee, C. Y., Lee, H. S., Lim, Y., Jung, M. W., Kim, B. H., and Hwang, D. Y., Beneficial effect of an agar mask against skin damage induced by UV exposure in SKH-1 hairless mice, *Journal of Life Science* 27(9):975-985 (2017).
 12. Kim, Y. D., Ko, W. J., Koh, K. S., Jeon, Y. J., and Kim, S. H., Composition of flavonoids and antioxidative activity from juice of Jeju native citrus fruit during maturation, *Korean J. Nutr.* 42(3):278-290 (2009).
 13. Lee, H. J., Lee, L., Kim, C. H., Nam, S. Y., Seo, Y. B., and Ahn, J. W., Optical characteristics of eco-friendly in-situ recycled paper with limestone as filler, *Journal of the Korean Ceramic Society* 51(2):132-137 (2014).
 14. Park, S. E., Nho, Y. C., and Kim, H. I., Preparation of poly(polyethylene glycol methacrylate-co-acrylic acid) hydrogels by radiation and their physical properties, *Radiation Physics and Chemistry* 69:221-227 (2004).
 15. Hwang, J., Seo, Y., and Choi, J., Facial and effective detection of vitamin C on a paper based kit, *Korean Society for Biotechnology and Bioengineering Journal* 31(1):46-51 (2016).
 16. Kim, T. H. and Nho, Y. C., Synthesis of PVA/PVP hydrogel by irradiation crosslinking, *Polymer (Korea)* 25(2):270-278 (2001).