KOREAN JOURNAL OF PACKAGING SCIENCE & TECHNOLOGY
Vol. 30, No. 1 1~14 (2024)
https://doi.org/10.20909/kopast.2024.30.1.1

커피 은피와 커피찌꺼기를 활용한 지속가능한 포장소재 개발을 위한 연구동향

황지현[1] · 김도완[1,2*]

[1]국립강릉원주대학교, 생명과학대학, 해양바이오식품학과
[2]국립강릉원주대학교, 해람제빵연구소

Development of Sustainable Packaging Materials Using Coffee Silverskin and Spent Coffee Grounds: A Comprehensive Review

Jihyeon Hwang[1] and Dowan Kim[1,2*]

[1]Department of Marine Bio Food Science, College of Life Science, Gangneung-Wonju National University
[2]Haeram Institute of Bakery Science, Gangneung-Wonju National University

Abstract As awareness of environmental issues continues to grow, there is an escalating demand for recycling and repurposing byproducts of agricultural and food production processes and their conversion to high-value products. Coffee is the most widely consumed beverage globally; during coffee beverage processing and consumption, byproducts such as coffee silverskin (CS), spent coffee grounds (SCGs), and oil are generated. Despite containing beneficial materials such as cellulose, hemicellulose, lignin, lipids, and bioactive substances, these byproducts are typically discarded in landfills or incinerated. The utilization of CS, SCGs, and oil in the development of packaging materials holds significant potentials toward the realization of a sustainable society. To this end, considerable research efforts have been dedicated to the development of high-value materials derived from coffee byproducts, including functional fillers, polymer composites, and biodegradable polymers. Notably, CS and SCGs have been employed as functional fillers in polymer composites. Additionally, lipids extracted from SCGs have been used as plasticizers for polymers and cultured with microorganisms to produce biodegradable polymers. This review focuses on the research and development of polymer/CS and polymer/SCG composites as well as cellulose extraction and utilization from CS and SCGs and its applications, oil extraction from SCGs, and cultivation with microorganisms using extracted oil for polyhydroxyalkanoates(PHA) production.

Keywords Coffee silverskin, Spent coffee grounds, Polymer composites, Polyhydroxyalkanoates, Sustainable packaging

서 론

전 세계적으로 커피는 인기있는 기호식품이며, 가장 많이 소비되는 음료 중 하나이다[1-6]. 커피의 풍부한 향미와 카페인(caffeine), 플라보노이드(flavonoids), 페룰산(ferulic acid)등과 같은 유익한 성분 때문에 많은 사람들은 커피를 섭취하고 있다[7]. 국제커피협회(International Coffee Organization, ICO)의 보고에 따르면, 2022년 기준으로 전 세계 커피 소비량은 제품 당 약 1억 7030만 개로, 이는 전년 대비 3.3% 증가한 것으로 추정되며, 커피 생산 및 소비량은 매년 지속적으로 성장하고 있다[3-6,8].

커피는 Fig. 1과 같이 열매수확부터 커피음료로의 가공 공정 및 사용 후 폐기단계까지 각 단계에서 많은 부산물이 발생된다[1-5,7,9-12]. 커피나무 열매인 커피 체리(coffee cherry)는 수확 후 건식 또는 습식 가공 방법에 따라 과육이 제거되는 공정을 거치는데, 이 단계에서는 가공 방법에 따라 커피 껍질(coffee husk)과 커피 펄프(coffee pulp)와 같은 부산물이 생성된다. 또한 커피 체리로부터 생산된 생두(green coffee beans)는 로스팅(roasting) 공정을 거쳐 소비되는데, 이 과정에서 커피 은피(coffee silverskin, CS)가 부산물로 발생된다. 볶은 커피(roasted coffee beans)를 분쇄한 원두

*Corresponding Author: Dowan Kim
Department of Marine Bio Food Science, College of Life Science, Gangneung-Wonju National University, 25457, Republic of Korea
Tel: +82-33-640-2337
E-mail: dowankim@gwnu.ac.kr

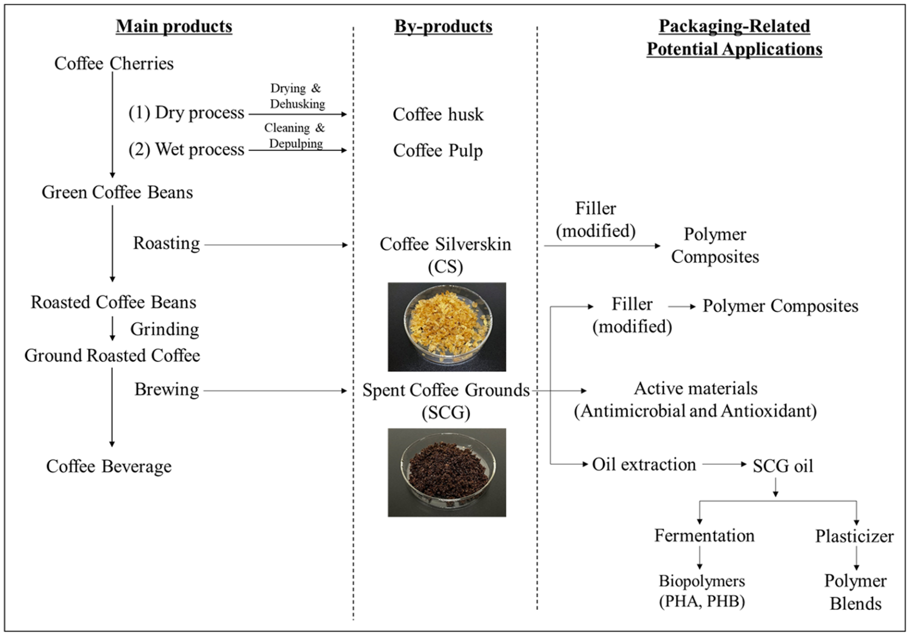

Fig. 1. Schematic of the potential applications of the coffee processing byproducts in the packaging industry[1-5,7,9-12].

에 물을 첨가하여 원두 속에 존재하는 가용성 성분을 추출하는 과정에서 불용성 커피찌꺼기(spent coffee grounds, SCG)가 생성된다[3,4,9-12]. 전 세계적으로 커피의 생산과 수요는 증가하고 있으며, 이에 따라 커피 산업은 매년 2,300만톤 이상의 커피 부산물과 폐기물이 생성되는 것으로 보고되고 있으며, 이중 45%는 커피음료와 인스턴트 커피 생산 시 생성된다[2]. 특히, 생두 1000 kg 당 약 600 kg의 SCG가 생산되는 것으로 추정되며, 커피 산업에서 가장 많은 폐기물의 원인 중 하나로 지목되고 있다[13,14]. 또한, 폐기되는 커피 부산물들은 생활폐기물로 분류되어 매립 및 소각 처리되며, 처리 과정에서 메탄 및 이산화탄소와 같은 온실 가스가 발생되어 토양오염 및 대기오염과 같은 환경오염을 유발한다[12].

하지만, 커피 부산물은 셀룰로오스(cellulose), 헤미셀룰로오스(hemicellulose), 리그닌(lignin)과 같은 섬유질과 단백질(protein), 지질(lipids), 미량영양소(micronutrients), 카페인(caffein), 탄닌(tannin), 클로로겐산(chlorogenic acid) 및 멜라노이딘(melanoidin) 등과 같은 생리활성물질들이 풍부하다. 따라서, 생리활성물질들을 재활용 및 재사용하여 고부가가치 소재로써 활용 가능성을 모색하는 연구와 커피 부산물로부터 발생되는 환경 오염을 감소시킬 수 있는 방안 마련을 위한 연구가 진행되고 있다[1,3,6-9,12,15-17]. 특히, 바이오 화학 및 고분자 재료 분야에서의 지속가능한 생산을 위한 전략의 하나로 CS 또는 SCG를 물리적으로 분쇄하거나 에스테르화 반응 또는 TEMPO(2,2,6,6-tetramethylpiperidin-1-oxyl) 산화 처리(TEMPO-mediated oxidation)와 같은 화학 반응을 실시하여, 셀룰로오스 또는 나노셀룰로오스를 제조하고, 이를 석유계 및 생분해성 고분자와 혼합하여 충진제(filler)로써 활용 가능성을 확인하는 연구가 진행되고 있다[1,8,12,19-23,25,28-41]. 또한, 팔미트산(palmitic acid), 스테아르산(stearic acid), 올레산(oleic acid) 및 리놀레산(linoleic acid)과 같은 지방산으로 구성되어 있는 지질을 SCG로부터 추출하여 가소제로 활용하거나 미생물에서 합성되는 생분해성 고분자인 폴리하이드록시알카노에이트(polyhydroxyalkanoates, PHAs) 합성과정에 적용하는 등 다양한 연구가 진행되고 있다[1,2,43,47-50].

본 총설의 목적은 커피 부산물인 CS와 SCG의 주요성분 및 특성 분석과 CS와 SCG를 활용한 셀룰로오스 추출, 복합소재 개발 및 PHA합성 등과 같은 다양한 연구결과를 조사하여 지속가능한 포장재 제조 및 기능성 첨가제로써 CS와 SCG의 잠재적 활용 가능성을 조사하는 것이다. 또한, 커피찌꺼기를 활용한 포장소재 또는 응용제품의 사업화 현황에 대한 조사와 커피찌꺼기를 활용한 포장소재를 개발할 때 고려해야할 관리규정에 대하여 조사하였다.

커피 은피와 커피찌꺼기의 활용

1. 커피 은피

CS는 생두의 배유를 보호하고 있는 외피로 로스팅 과정에서 발생되는 부산물이다. CS는 고농도의 수용성 식이섬유로 구성되어 있으며, 셀룰로오스 (24%), 헤미셀룰로오스 (17%), 리그닌 (29%)과 같은 섬유질과 자일로스(xylose), 갈락토스(galactose) 및 만노스(mannose)와 같은 다당류의 함량이 풍부하다[1,7,9,10,18,19]. 또한 CS는 클로로겐산과 같은

페놀성 화합물과 로스팅 과정에서 형성되는 마이야르 반응(Maillard reaction) 생성물 중 멜라노이딘의 높은 함량으로 우수한 항산화 특성을 보유하고 있다[7,9,10,18,19]. CS를 활용한 연구는 재활용 관점에서 중요한 연구로 판단되며 다양한 산업분야에 활용하기 위해서는 CS에 다량 함유된 셀룰로오스 및 페놀성 화합물과 같은 기능성 성분을 활용하는 연구가 필요하다. 본 총설에서는 1) CS의 물리적·화학적 개질 없이 석유계 유래 고분자 소재 또는 생분해성 소재들과 복합화 하는 연구와 2) CS로부터 추출한 셀룰로오스를 이용하여 고분자 소재들과 혼합한 후, 제조한 복합소재의 물리적·화학적 특성을 개선시키기 위한 충진제로의 잠재적 활용 가능성을 확인하는 연구결과에 대하여 정리하였다[19-23,25,27].

1.1. 고분자/CS 복합소재

석유계 유래 고분자 소재 또는 생분해성 소재들과 CS를 혼합하여 복합소재를 개발하는 연구가 보고되고 있다. Zarrinbakhsh 등[20)]은 폴리프로필렌(polypropylene, PP)과 CS를 혼합하여 복합시편을 제조하였고, CS함량 변화에 따른 물리적 특성을 확인하는 연구를 수행하였다. 이 연구에서는 CS를 기계적으로 분쇄한 후, 이축 압출기와 사출기로 구성된 플라스틱 성형 장비를 사용하여 PP/CS 복합시편을 제조하였다. 분쇄된 CS는 리그노셀룰로오스(lignocellulose) 형태로 존재하며, 상대적으로 밀도가 높은 섬유 구조와 풍부한 수산기(hydroxyl group)들을 보유하고 있는 것으로 확인되었다. 일반적으로, 고분자 매트릭스에 CS를 첨가하면 열 안정성과 기계적 강도 등의 물리적 특성이 개선될 수 있는데, 본 연구에서도 굴곡 탄성율과 열변형온도는 증가하는 것으로 확인되었다[20)]. 이는 PP 내 CS의 도입이 PP사슬의 움직임을 감소시켜, PP의 열 안정성과 강성을 향상시킨 것으로 해석하였다. 하지만, 25 wt% CS가 첨가된 PP 복합시편에서는 인장강도와 연신율이 감소되는 것으로 확인되었다. 이는 소수성인 PP와 친수성인 CS간의 약한 상호작용 때문으로 해석하고 있다. Hejna 등[21)]은 고밀도 폴리에틸렌(High density polyethylene, HDPE) 내에 CS를 첨가하여 제조한 HDPE/CS 복합필름의 물리적, 기계적 및 열적 특성에 대한 연구를 수행하였다. HDPE 내 소량의 CS 첨가 (1 wt% 및 2 wt%)는 HDPE/CS 복합필름의 인장강도 및 열 안정성을 향상시켰다. 이는 HDPE 내 소량의 CS가 균일하게 혼합되어 HDPE와 CS간 상호작용 증가 및 결정성 구조를 증가시켰기 때문으로 판단하였다. 하지만, 소량의 CS를 HDPE에 첨가하게 되면, 상(phase)의 연속성과 유연성이 감소하는 것으로 확인되었다. 또한 HDPE 내 고함량의 CS (5 wt%, 10 wt% 및 20 wt%)의 첨가는 CS간의 뭉침 현상으로 추정되는 HDPE와 CS 계면간 상호작용의 저하가 확인되었으며 이로 인해 HDPE 매트릭스의 기계적 강도가 크게 감소되었다.

바이오 기반 고분자인 폴리(3-하이드록시부티레이트-*co*-3-하이드록시발레레이트) (poly(3-hydroxybutyrate-*co*-3-hydroxyvalerate), P(3HB-*co*-3HV)), 폴리(부틸렌아디페이트-코-테레프탈레이트) (poly(butylene adipate-*co*-terephthalate), PBAT), 폴리락트산(polylactic acid, PLA) 및 폴리부틸렌숙시네이트 (polybutylene succinate, PBS)등과 CS를 혼합하여 생분해성 복합소재를 개발하는 연구가 보고되고 있다[19,22,23,25)]. Sarasini 등[22)]은 이축 압출 및 사출공정을 이용하여 P(3HB-*co*-3HV)/PBAT에 CS를 혼합하여 P(3HB-*co*-3HV)/PBAT/CS 복합소재를 제조하였다. CS함량이 증가함에 따라 P(3HB-*co*-3HV)/PBAT사슬의 움직임이 감소하여 강성이 향상되었다고 보고하고 있다. 하지만, CS가 첨가되지 않은 P(3HB-*co*-3HV)/PBAT 복합소재의 인장강도 결과와 비교해보면, P(3HB-*co*-3HV)/PBAT/CS 복합소재의 인장강도는 개선되지 않았으며, 이는 P(3HB-*co*-3HV)/PBAT와 CS간의 약한 상호작용 때문인 것으로 판단하였다. 또한 페놀성 화합물인 멜라노이딘, 카페인, 폴리페놀 및 탄닌을 다량 함유하고 있는 CS를 첨가하게 되면 P(3HB-*co*-3HV)/PBAT/CS 복합소재의 항산화 특성이 향상되는 것으로 보고하고 있다. 이는 CS에 함유된 페놀성 화합물의 수산기가 수소를 공여하여 자유라디칼에 의한 산화를 억제하는 효과를 발현했기 때문으로 판단하였다. Sarasini 등[23)]은 P(3HB-*co*-3HV)/PBAT와 CS간 상호작용을 향상시키기 위해 표면처리한 CS를 도입하여 사출 및 이축 압출공정을 이용하여 P(3HB-*co*-3HV)/PBAT/CS 복합소재를 제조하였다. CS의 표면처리를 위하여 3-아미노프로필트리에톡시실란((3-aminopropyl)triethoxysilane, APTES) 커플링제를 사용하였다. APTES는 아미노기 그룹(amino group, $-NH_2$)을 함유하고 있는 유기 실란 화합물로, 실란화 처리 후 충진제의 표면은 아미노화(amination)처리되어 충진제와 고분자 간의 상호작용 및 결합을 강화시키는 역할을 한다[24)]. 특히, 고분자 매트릭스 내 실란화 처리된 커피 부산물을 첨가하게 되면, 고분자 매트릭스와 커피 부산물 간의 상호작용이 증가하여 복합소재의 물리적 특성이 개선될 수 있다고 보고하고 있다[23,24)]. Sarasini 등[23)]의 연구에서도 표면 처리된 CS의 첨가로 인해 P(3HB-*co*-3HV)/PBAT/CS 복합소재의 인장강도 및 강성과 같은 기계적 물성이 향상되는 것으로 확인되었다. 이는 로스팅 과정에서 CS의 수용성 성분이 제거되었고, APTES 표면처리에 의해 친수성인 CS의 표면이 소수성으로 개질되어, 상대적으로 소수성 성질을 보유한 P(3HB-*co*-3HV)/PBAT와 표면 처리된 CS간 상호작용이 개선되었기 때문으로 판단하였다. Ghazvini 등[25)]은 PLA와 PLA/PBS 복합소재 내 20 wt% 및 30 wt%의 CS를 혼합하여 사출 및 이축 압출공정 및 캐스팅(casting) 방식을 통해 PLA/CS 및 PLA/PBS/CS 복합소재를 제조하였다.

PLA 및 PLA/PBS 내 CS의 함량이 증가함에 따라 강성이 향상된다고 보고되었다. 이는 CS가 셀룰로오스 및 리그닌과 같은 결정성이 높은 성분을 다량 포함하고 있어서 PLA 및 PLA/PBS 매트릭스 내 결정성 구조가 증가하였기 때문으로 추정하였다. 하지만, 복합소재 내 CS함량이 증가함에 따라 인장강도가 감소되는 현상을 확인하였다. 이 현상은 CS함량이 증가하면 CS간 응집력이 증가되어 PLA-CS 및 PLA/PBS-CS간 상호작용이 약해지고 또한 상분리로 인한 이종소재간 기공이 형성되었기 때문으로 해석하였다.

1.2. CS로부터 추출한 셀룰로오스를 활용한 연구

셀룰로오스는 식물 세포벽에 풍부하게 존재하는 다당류이며, 우수한 기계적 강도, 재활용 및 생분해 특성을 보유하고 있어 다양한 분야에서 안전하고 지속가능한 바이오 기반 소재로써 연구 및 활용되고 있다. CS 내 셀룰로오스가 풍부하게 함유되어 있으며, CS로부터 셀룰로오스를 추출, 기계적 분쇄 및 화학적 개질을 통하여 새로운 기능성을 부여하여 다양한 분야에 적용하고자 하는 노력이 진행되고 있다[19,27].

Sung 등[19]은 CS로부터 셀룰로오스를 추출하기 위해 CS를 분쇄 및 건조한 후, 5% (w/v) 수산화 칼륨 용액(potassium hydroxide solution)에서 80^{o}C 조건으로 반응시켜 CS 내 함유되어 있는 펙틴(pectine), 헤미셀룰로오스 및 리그닌을 제거하였다. 이후, 아세트산을 사용하여 CS의 불용성 잔류물을 제거한 다음 1.5% (w/v) 차아염소산나트륨 용액(sodium hypochlorite solution)을 활용한 표백공정과 증류수를 활용한 세척공정을 통하여 셀룰로오스를 추출하였다. 추출된 셀룰로오스는 황산(sulfuric acid)을 이용한 가수분해반응을 통해 비결정성 영역을 제거하여 셀룰로오스 나노크리스탈(cellulose nanocrystal, CNC) 분말을 제조하였다. 셀룰로오스의 결정성 영역인 CNC는 기계적 특성 및 열 안전성이 우수하며 재사용 및 생분해가 용이하기 때문에 친환경 재료로써 다양한 분야에서 활용되고 있다. Sung 등[19]은 PLA의 낮은 기계적 강도 및 기체 차단 특성과 같은 제한된 물성을 개선하고자 이축 압출 및 핫 프레스(hot press) 공정을 통해 PLA/CNC 복합소재를 제조하였다. PLA 내 3% 및 5%의 CNC를 혼합하였을 때 PLA/CNC 복합소재의 영률이 향상되는 것으로 확인되었으며, 이는 CNC의 높은 결정화도로 인해 PLA/CNC 복합소재의 결정화도가 향상되어 강성이 증가되었기 때문으로 보고하고 있다. 하지만, 3% CNC를 PLA 내 첨가하게 되면 인장강도는 개선되지만, 3%를 초과하여 첨가하게 되면 CNC-CNC간 반데르발스 힘(van der Waals force)과 같은 물리적 상호작용으로 인해 뭉침 현상이 발생되고, 이로 인해 복합소재의 기계적 강도가 저하된다고 보고하고 있다. 또한, PLA 내 CNC를 첨가하게 되면 산소 및 수증기 차단 특성이 향상되는 것으로 나타났다. 이는 PLA 내 CNC의 함량이 증가함에 따라 PLA/CNC 복합소재의 투과 경로(tortuous)가 증가되어 수증기 및 산소 분자의 투과 속도가 낮아졌기 때문으로 해석하였다. 기계적 강도 결과와 마찬가지로, CNC를 3% 초과하여 첨가하면 PLA/CNC 복합소재의 산소 및 수증기 차단 특성은 크게 개선되지 않는 것으로 확인되었다. 이는 PLA 내 CNC함량이 증가하면 PLA-CNC간 상호작용보다 CNC-CNC간 상호작용이 증가하여 응집이 발생되어 수증기 및 산소 분자의 투과 경로를 효과적으로 증가시키지 못했기 때문으로 판단하였다. Liu 등[27]은 CS에서 추출한 셀룰로오스와 피코시아닌(phycocyanin), 커큐민(curcumin) 및 라이코펜(lycopene)과 같은 천연색소를 키토산(chitosan)과 혼합하여 캐스팅 방식을 통해 복합필름을 제조하여 식품 포장재로써의 적용 가능성을 확인하였다. CS로부터 셀룰로오스를 추출하기 위해, CS를 분쇄 및 가열한 후, 80^{o}C에서 수산화나트륨(sodium hydroxide) 용액과 반응을 시켰다. 아세트산 완충 용액(acetate buffer solution)과 아염소산나트륨 용액(sodium chlorite solution)을 이용하여 수산화나트륨과 반응 한 CS를 80℃에서 반복적인 표백 공정을 실시하였으며, 표백된 섬유는 중성 pH가 되도록 증류수로 반복적으로 세척하여 백색의 셀룰로오스를 추출하였다. 결과적으로 CS로부터 추출한 셀룰로오스와 천연색소를 활용한 키토산 복합소재는 식품 포장재로 적합한 기계적 특성을 나타낸다고 보고하고 있다. 또한, 천연색소의 첨가로 시각적 특성이 향상되어, 소비자의 제품 인식 및 선택에 긍정적인 영향을 미칠 수 있을 것이라 예상하였다(Table 1).

2. 커피찌꺼기

SCG는 로스팅된 커피 원두에서 커피를 추출 및 음용 한 후 남은 고형 잔류물로써 셀룰로오스 (12%)와 헤미셀룰로오스 (39%), 리그닌 (24%) 등의 섬유질과 포도당, 자일로스, 갈락토스 및 만노스 등의 다당류가 풍부하다[1,9]. 또한 필수 아미노산으로 구성된 단백질과 커피의 대표적인 페놀성 화합물인 클로로겐산 및 로스팅 과정에서 형성되는 멜라노이딘, 카페인 등을 포함하고 있으며, 리놀레산, 팔미트산, 스테아르산 및 올레산 등 다양한 지방산과 생리활성물질이 풍부하게 함유되어 있다. 따라서, 1) SCG를 물리적·화학적 개질 없이 석유계 유래 고분자 소재 또는 생분해성 소재들과 복합화 하여 충진제로써 활용 가능성을 확인하는 연구, 2) SCG에 함유된 성분을 추출한 후 물리적·화학적으로 개질 한 후 고분자 소재들과 혼합하여 복합소재의 충진제로써 활용 가능성을 확인하는 연구, 3) SCG에서 추출한 지질을 기질로 하여 미생물을 배양한 후 생분해성 고분자를 제조하는 연구와, 4) SCG에서 추출한 지질을 고분자 소재 또는 생분해성 소재들과 혼합하여 가소제로써 활용 가능성을 확인하는 연구, 5) SCG를 활용하여 활성포장소재의 기능성 물질로써의 가능성을 확인하는 연구 등이 광범위하

Table 1. Summary of research findings related to polymer composites utilizing CS as functional fillers

Polymer matrix	Filler	Preparation method	Main effect of CS addition in polymer	Publication year	Ref.
PP	CS	Extrusion, Injection molding	• Increased the flexural modulus and heat deflection temperature • Decreased the tensile strength and elongation at Break (CS of 25 wt%)	(2016)	[20]
HDPE	CS	Extrusion	• Improved the tensile strength and thermal stability	(2021)	[21]
P(3HB-*co*-3HV)/PBAT	CS	Extrusion, Injection molding	• Increased the young's modulus and antioxidant activity • Decreased the tensile strength	(2018)	[22]
	Extracted and silanized CS	Extrusion, Injection molding	• Enhanced the tensile strength and young's modulus • The impact of silane modification outweighed the influence of introducing a plasticizing agent.	(2018)	[23]
PLA	CS	Extrusion, Injection molding, Casting	• Increased young's modulus but decreased tensile strength	(2022)	[25]
	CS-extracted cellulose nanocrystals	Extrusion, Hot press	• Improved young's modulus, oxygen and water vapor permeability	(2017)	[19]
PLA/PBS	CS	Extrusion, Injection molding, Casting	• Increased the young's modulus but decreased tensile strength	(2022)	[25]
Chitosan	CS-extracted cellulose	Casting	• Adequate mechanical properties for food packaging applications	(2023)	[27]

게 진행되고 있다[20,28-41,43,47-50].

2.1. 고분자/SCG 복합소재

Zarrinbakhsh 등[20]은 SCG의 기능성 충진제로의 적용 가능성을 확인하기 위하여 SCG를 기계적으로 분쇄한 후, PP와 혼합하여 이축 압출 및 사출공정을 통해 PP/SCG 복합소재를 제조하였다. 분석결과, SCG는 CS와 같이 리그노셀룰로오스 형태로 존재하며, 상대적으로 높은 지질 함량을 보유하고 있는 것으로 확인되었다. 또한, SCG는 불규칙한 다공성 구조와 풍부한 수산기 들을 보유하고 있음이 확인되었다. PP 내 SCG (25 wt%)의 첨가는 PP/SCG 복합소재의 인장강도, 굴곡탄성율 및 열변형온도를 감소시키는 것으로 확인되었다. 이는 소수성인 PP와 친수성인 SCG간의 약한 상호작용 때문으로 보고하였다. 하지만, PP/SCG 복합소재의 연신율은 PP/CS 복합소재와 비교하였을 때 개선되는 것으로 확인되었다. 이는 SCG 내 다량 함유되어 있는 지질성분이 가소화 효과(plasticization effect)를 일으켰기 때문이라고 판단하였다. Sohn 등[28]은 PP 내 건조된 SCG를 첨가한 후, 압출 및 사출공정을 통해 HOMO-PP/SCG 복합소재를 제조하였으며, PP와 SCG간의 계면 상호작용을 향상시키기 위해 압출 공정 중에 말레산 무수물로 개진된 폴리프로필렌(malleated polypropylene, MAPP)을 3 phr (parts per hundred resin) 첨가하였다. HOMO-PP 내 SCG의 함량 (10 wt%, 20 wt% 및 30 wt%)이 증가함에 따라 HOMO-PP/SCG 복합소재의 충격 강도가 향상된 것으로 나타났다. 이는 SCG의 첨가로 인해 HOMO-PP 매트릭스 내 결정성 영역을 감소시키고 무정형 영역을 증가시키며, 복합소재의 취성(brittleness)을 감소시켰기 때문으로 보고하고 있다. 하지만, SCG의 함량이 증가함에 따라 HOMO-PP 매트릭스와 SCG간 상분리가 발생하여 인장강도가 감소하는 것으로 확인되었다. Marques 등[29]은 고함량 (20 wt%, 40 wt% 및 60 wt%)의 SCG를 PP에 첨가하여 이축 압출 및 사출공정을 이용하여 PP/SCG 복합소재를 제조하였다. PP 내 SCG함량이 증가함에 따라 굴곡 탄성률이 향상되는 것을 확인하였고, 이는 PP 매트릭스에 높은 결정성 영역을 가지는 SCG가 첨가되어 PP/SCG 복합소재의 결정성 영역이 증가하였기 때문으로 판단하였다. 하지만, SCG함량이 증가함에 따라 복합소재의 인장강도, 연신율 및 충격 강도와 같은 기계적 특성은 감소되는 것으로 나타났다. 이는 선행연구들과 동일하게 PP와 SCG간 약한 상호작용 때문인 것으로 판단하였다. Essabir 등[30]은 표면처리 되지 않은 SCG (raw SCG), 표백 처리된 SCG (SCG-H_2O_2), 표면 및 표백 처리된 SCG (SCG-Si) 및 SCG-Si-상용화제(styrene-(ethylene-butene)-styrene triblock copolymer, SEBS-g-MA, SEBS)가 도입된 PP 복합소재들을 각각 제조한 다음 물성 변화를 확인하였다. PP/raw SCG 복합소재와 비교해 보면, PP/SCG-H_2O_2 복합소재의 영률 및 인장강도가 향상되는 것으로 보고하고 있다. 이는 표백 공정을 통해 SCG

내 비 셀룰로오스 성분이 제거되고 상대적으로 셀룰로오스 함량이 증가하며, PP와 SCG간 상호작용이 개선되었기 때문으로 해석하였다. PP/raw SCG 복합소재와 비교해보면, 테트라에틸오소실리케이트(tetraethyl orthosilane, TEOS)으로 화학적 처리된 SCG-Si가 첨가된 PP/SCG-Si 복합소재의 강성은 감소하는 것으로 확인되었다. 이는 TEOS로 표면처리 된 SCG의 분자 내 존재하는 12개의 탄소원자를 가지는 지방족 사슬이 복합소재의 유연성을 향상시켰기 때문으로 판단하였다. PP/raw SCG 복합소재와 비교해보면, SCG-Si와 SEBS-g-MA를 첨가한 PP/SCG-Si-SEBS-g-MA 복합소재의 경우 무수말레인산의 낮은 탄성 특성 때문에 강성이 감소하는 것으로 확인되었다. 하지만, PP/SCG-Si-SEBS-g-MA 복합소재의 인장강도는 향상된 것으로 확인되었다. 이는 SEBS-g-MA도입으로 인해 SCG-Si와 PP 계면 간 균열전파(crack propagation)방지와 기계적 에너지 소실(energy dissipation)이 개선되었기 때문으로 해석하였다. Tan 등[31]은 산화 생분해성 고밀도 폴리에틸렌(oxobiodegradable high density polyethylene, oxo-HDPE)과 SCG간 상호작용을 개선시키기 위해 1% 농도의 NaOH 용액을 사용하여 SCG를 표면 처리하였다. 알칼리 처리 시간을 달리하여 제조한 SCG들을 혼합해서 oxo-HDPE/SCG 복합소재(type C)들을 제조하였고, 알칼리 처리한 SCG의 함량을 달리하여 oxo-HDPE/SCG 복합소재(type D)들을 제조하였다. 알칼리 처리 시간이 증가하게 되면 SCG 내 존재하고 있는 불순물, 천연지방, 왁스류, 헤미셀룰로오스 및 리그닌 등이 제거되어 SCG의 수산기와 반응성 작용기가 증가된다고 보고하고 있다. 따라서, 알칼리 처리된 SCG와 oxo-HDPE간의 상호작용이 증가하고 이로 인해 기계적 강도가 개선되는 것으로 확인되었다. oxo-HDPE 내 알칼리 처리한 SCG의 함량이 10%까지 증가하면 oxo-HDPE/SCG 복합소재(type D)의 기계적 강도가 향상되는 것으로 보고하고 있다. 이는 SCG 내 존재하고 있는 성분들이 제거됨으로써 섬유간 밀도와 강성이 감소되고 이로 인해 oxo-HDPE/SCG 복합소재(type D)의 인장강도 실험 시 힘이 가해지는 방향에 따라 분자의 재배열이 가능하여 기계적 강도가 개선되는 것으로 해석하였다. 하지만, SCG의 함량이 10 wt% 이상으로 증가하게 되면 SCG간 응집이 발생하여 oxo-HDPE 매트릭스 내에 SCG가 불균일하게 분산되기 때문에 복합소재의 기계적 특성이 저하되는 것으로 확인되었다. 또한, oxo-HDPE 내 알칼리 처리된 SCG를 첨가하게 되면 복합소재의 내수성이 증가하는 것으로 확인되었고, 이는 알칼리 처리를 통해 SCG의 소수성 특성이 증가하였기 때문으로 판단하였다.

PBAT, PLA, PBS, PHA 및 펙틴과 같은 생분해성 고분자에 SCG를 혼합하여 생분해성 복합소재를 개발하는 연구가 보고되었다[32-38]. PBAT는 주사슬에 카르보닐기(carbonyl group)가 있어 상대적으로 소수성이며 우수한 가공 특성을 가지고 있지만, 높은 가격으로 인해 시장성이 제한된다고 보고되고 있다[32]. SCG의 도입은 상대적으로 높은 가격을 가지고 있는 PBAT 원료 사용량을 감소함으로써 가격경쟁력을 향상시킬 수 있다. 또한, SCG의 도입은 PBAT의 결정화도를 높일 수 있으며, SCG와 PBAT간 상호작용의 증가로 인해 강성을 향상시킬 수 있다. 따라서, Moustafaet 등[32]은 PBAT에 기능성 충진제로써 SCG를 도입하고자 하였다. 하지만, 친수성인 SCG는 소수성인 PBAT와 상용성이 부족하여 PBAT/SCG 복합화 시 물리적 특성의 개선을 확보하는데 제한이 있어 상용성 확보를 위하여 폴리에틸렌글라이콜(polyethylene glycol, PEG)을 함께 도입하였다. Moustafaet 등[32]은 이축 압출공정에서 PEG의 수산기와 SCG의 수산기 간에 에터 그룹(ether group)이 형성되어 상대적으로 소수성 특성을 갖는 SCG가 형성되어 PBAT와 SCG간의 혼화성이 개선될 것으로 가정하였다. 따라서, 15 wt%의 PEG 첨가와 SCG함량 (10 wt%, 20 wt%, 30 wt% 및 50wt%)을 고려하여 PBAT/SCG 복합소재들을 제조하였다. PEG가 미 첨가된 PBAT/SCG 복합소재의 경우, SCG 함량이 증가함에 따라 복합소재의 결정성이 증가하여 탄성계수는 증가하였지만, PBAT와 SCG간 상용성 부족 및 SCG의 친수성 때문에 인장강도 및 소수성은 감소되는 것으로 확인되었다. PEG가 첨가된 PBAT/SCG 복합소재의 경우, 인장강도와 소수성이 증가되었으나, 탄성계수가 감소하는 것으로 확인되어 연구진들이 제안한 가정이 검증되었다.

Suaduang 등[33]은 PLA의 물리적 및 기계적 특성을 향상시키기 위하여 SCG를 기계적으로 분쇄한 후, 이축 압출 및 블로우 압출공정을 이용하여 PLA/SCG 복합필름을 제조하였으며, 기능성 충진제로써 SCG의 적용 가능성을 확인하였다. PLA 내 SCG함량 (5 wt%, 7.5 wt% 및 10 wt%)이 증가함에 따라 연신율이 증가하지만, 경도, 취성 및 파열계수가 감소하는 것으로 확인되었다. 이는 SCG 내 함유되어 있는 지질 성분이 가소화 효과를 일으켜 복합소재의 유연성을 향상시키고 취성은 감소시킨 것으로 판단된다. Lee 등[34]은 PLA 매트릭스 내 상용화제로써 PP/Lignin을 활용하였으며, 기능성 충진제로써 10 wt%의 SCG를 첨가하여 이축 압출공정을 통해 PLA/SCG/PP/Lignin 친환경 복합소재를 제조하였다. 본 연구에서는 PLA 내 SCG/PP/Lignin이 첨가되면, 복합소재의 열 안정성이 향상되는 것으로 보고하고 있다. 이는 리그닌 내에 함유되어 있는 페닐프로파노이드(phenylpropanoid) 화합물이 다양한 알킬 그룹(alkyl group)과 강한 상호작용을 형성하며 열 분해 온도의 증가를 야기시켰다고 판단하였다. 또한, PLA 내 SCG/PP/Lignin이 첨가됨에 따라 복합소재의 굴곡강도가 증가하는 것으로 나타났다. 이는 리그닌 내에 존재하는 수산기와 같은 극성기와 탄화수소 및 벤젠고리 등의 비극성기가 PLA, PP 및 SCG 내에 존재하는 작용기들 간의 상호작용을 증가

시켰기 때문으로 보고하고 있다. Wu 등[35]은 PLA와 SCG 간 상호작용을 향상시키기 위해 무수말레인산을 이용하여 그라프트 중합반응을 실시하여 PLA-g-MA을 제조하였다. 또한, SCG 내 포함되어 있는 수용성 성분을 물리적으로 제거한 SCG를 제조하였으며, TEOS를 사용하여 개질 된 SCG(TSCG)를 제조하였다. 핫 프레스 공정을 통해 PLA-g-MA/TSCG 및 PLA/SCG 복합소재를 제조하였다. TSCG함량 (10 wt%, 20 wt%, 30 wt% 및 40 wt%)이 증가함에 따라 PLA-g-MA/TSCG 복합소재는 화학적 처리 공정을 거치지 않은 PLA/SCG 복합소재와 비교하였을 때, 파단 시 인장강도와 같은 기계적 특성이 개선되는 것으로 나타났다. 이는 PLA-g-MA에 존재하는 카르복실기 그룹(carboxyl groups)과 TSCG에 존재하는 수산기 및 실라놀 그룹(silanol group) 간 화학적 결합이 형성되었기 때문으로 판단하였다. Gaidukova 등[36]은 이축 압출 및 사출공정을 통해 PBS에 충진제로써 SCG를 혼합하여 PBS/SCG 복합소재를 제조하였다. 본 연구에서는 PBS 매트릭스 내 SCG함량 (20 wt%, 40 wt% 및 60 wt%)이 증가함에 따라 PBS/SCG 복합소재의 인장강도는 증가하지만 연신율은 감소하는 것으로 확인하였다. 이는 SCG의 도입으로 인해 PBS 사슬의 움직임을 감소시켰고 결정성 영역을 증가시켰기 때문으로 판단하였다. 또한, SCG의 함량이 증가함에 따라 PBS/SCG 복합소재의 생분해성 특성이 향상되는 것을 확인하였다. 이는 SCG가 섬유질 및 다당류와 같은 친수성 특성을 갖는 다양한 화학적 성분을 함유하고 있어 물 분자의 흡수를 촉진하여 미생물의 활동을 촉진시켰기 때문으로 판단하였다. Wu 등[37]은 PHA와 SCG간 상호작용을 개선시키기 위해 아크릴산(acrylic acid, AA)으로 그라프트 반응된 PHA-g-AA을 제조하였다. 핫 프레스 공정을 통해 PHA/SCG 및 PHA-g-AA/SCG 복합소재를 제조하였다. PHA/SCG 복합소재와 비교하였을 때 PHA-g-AA/SCG 복합소재의 영률, 인장강도 및 연실율과 같은 기계적 특성이 우수한 것으로 확인되었다. 이는 AA로 개질된 PHA 매트릭스와 SCG간 축합 반응에 의한 화학적 결합이 형성되었기 때문으로 판단되었다. PHA-g-AA 내 SCG의 함량 (10 wt% 및 20 wt%)이 증가함에 따라 영률이 증가하였지만 고함량 (30 wt% 및 40 wt%)의 SCG가 첨가됨에 따라 복합소재의 영률은 감소하는 것으로 확인되었다. 이는 SCG의 함량이 30 wt% 이상 증가함에 따라 SCG간 응집이 발생하여 PHA-g-AA 매트릭스와 SCG간 형성되었던 화학적 결합이 감소되었기 때문으로 판단하였다. Mendes 등[38]은 고메톡실 펙틴(high methoxyl pectin, HDM) 내 기능성 충진제로써 SCG를 첨가하여 연속 캐스팅 방식을 통해 HDM/SCG 복합필름을 제조하였다. HDM 내 20 wt%의 SCG가 첨가되면 HDM/SCG 복합필름의 영률이 향상되는 것으로 나타났다. 이는 HDM 매트릭스와 SCG 내 함유되어 있는 폴리페놀 화합물 간 수소결합 및 공유결합 등이 형성되어 상호작용이 증가하였기 때문으로 판단하였다. 또한, HDM 내 SCG함량이 증가함에 따라 복합필름 내 수증기 차단 특성이 개선되는 것으로 보고하고 있다. 이는 친수성인 HDM/SCG 복합필름 내 수증기가 투과될 경우, 복합필름과 수증기 간 계면평형이 형성되어 복합필름이 수증기를 응집하여 수증기 확산경로를 변경시킨 것으로 판단하였다.

2.2. SCG로부터 추출한 셀룰로오스를 활용한 연구

SCG 내 다량 함유되어 있는 셀룰로오스는 우수한 기계적 특성을 가지며, 높은 재활용 및 생분해 특성을 제공하여 재생가능한 바이오 기반 고분자로 각광받고 있다. SCG 내 셀룰로오스는 산 가수분해, 기계적 처리, 또는 화학적 처리 방법에 의해서 추출 및 제조되며, SCG로부터 추출된 셀룰로오스를 활용하여 지속가능한 포장재를 개발하는 연구가 활발하게 진행되고 있다. 이중 SCG로부터 셀룰로오스 나노섬유(cellulose nanofiber, CNF)를 얻기 위하여 TEMPO 산화 처리 방법이 널리 사용되고 있다[39]. TEMPO에 의해 촉매되는 셀룰로오스의 산화 반응은 조촉매인 브롬화 나트륨(sodium bromide, NaBr)과 산화제로써 차아염소산나트륨(sodium hypochlorite, NaClO)을 함께 사용하여 유도된다. 셀룰로오스의 C6에 존재하는 수산기에서 알데하이드(aldehyde)로 처음 산화된 다음, NaClO/TEMPO/NaBr을 사용하여 카르복실기로 산화된다고 보고되고 있다. 이 반응은 pH 10부근에서 산화된 셀룰로오스의 C6에 존재하는 수산기들의 간의 정전기적 반발력을 형성시키고, 기계적 처리에 의해 CNF의 분리가 화학적 처리 방법인 촉진된다고 보고하고 있다[39].

Oh 등[40]은 화학적 처리 방법인 탈리그닌 처리 및 TEMPO 산화 처리와 물리적 처리 방법인 초고압 균질 처리(High pressure treatment) 공정을 활용하여 SCG로부터 셀룰로오스를 추출하여 단일필름을 제조하였다. 우선, SCG를 기계적으로 분쇄한 후, Wise법으로 알려진 아염소산 나트륨(sodium chlorite) 및 초산(acetic acid)을 첨가하여 80ºC 항온수조에서 반응시킨 다음, 중성의 pH가 되도록 증류수로 반복 세척하여 SCG 내 리그닌을 선택적으로 용해시켜 제거하였다. 탈리그닌 처리 후, 강하게 결합되어 있는 섬유 간의 반발력을 만들어 셀룰로오스를 개별화시키기 위해 TEMPO, 브롬화 나트륨 및 차아염소산나트륨을 사용하여 TEMPO 산화 처리를 실시하였다. TEMPO 처리된 셀룰로오스 단일 필름의 물리적 특성을 개선시키기 위하여, 가소제로써 글리세롤(glycerol, GLY)과 가교제로써 신남알데하이드(cinnamaldehyde) 0.02 wt%를 첨가하여 초고압 균질 처리를 통해 필름 형성 용액을 제조하였고 캐스팅 방식을 이용하여 단일필름을 제조하였다. 셀룰로오스 필름 내 1.5 wt% GLY을 첨가하게 되면 SCG 셀룰로오스 필름의 인장

강도 및 연신율과 기계적 특성이 향상되는 것으로 보고하고 있다. Kanai 등[41]도 SCG로부터 셀룰로오스를 추출하기 위해 TEMPO 산화 처리 방법을 사용하였다. SCG를 분쇄 및 건조한 후, SCG 내 함유되어 있는 트리아실글리세롤(triacylglycerol, TAG)을 제거하기 위해 건조된 SCG분말을 헥산(n-hexane)을 이용하여 제거하였다. 전처리 과정을 거친 SCG와 TEMPO 및 브롬화 나트륨을 교반 한 후 차아염소산나트륨을 첨가하여 3시간 동안 연속적으로 반응시켰다. TEMPO 산화 반응의 시작으로 pH의 변화가 나타나면 0.5 M 수산화나트륨 또는 1 M 염산(hydrochloric acid)을 첨가하여 pH 10이 유지되도록 조절하였다. pH가 10분 간 변하지 않는 지점을 TEMPO 산화 종결 지점으로 보고, 에탄올(ethanol)을 첨가하여 TEMPO 산화 반응을 종결시켰다. TEMPO 산화 처리된 셀룰로오스는 증류수로 반복 세척하여 수집되었다. 수집된 섬유는 동결 건조 후, 증류수에 분산시켜 초음파 처리를 통해 겔(gel) 형태의 TOCNFs (TEMPO-oxidized cellulose nanofibers)분산액으로 제조하였다. 본 연구에서는 SCG로부터 제조된 TOCNFs와 목재 원료로부터 제조된 미세결정 셀룰로오스 (microcrystalline cellulose, MCC)의 특성을 비교 분석하였으며, PVA 용액과 TOCNFs를 혼합하여 복합필름을 제조하여 PVA와 TOCNFs 간 상호작용 특성에 대해 분석하였다. 분석 결과, TEMPO 산화 처리를 통해 SCG 미세섬유 표면의 수산기(-OH)가 카르복실기(-COOH)로 치환된 것으로 나타났다. 또한, SCG로부터 추출 및 제조된 TOCNFs는 목재로부터 추출 및 제조된 MCC보다 낮은 결정성 구조를 보유하는 것으로 확인되었다. 이는 SCG 내 헤미셀룰로오스, 리그닌 및 트리아실글리세롤의 높은 함량으로 인해 섬유화(fibrillation) 과정이 충분하게 이루어지지 않았기 때문으로 판단하였다. 또한, PVA 매트릭스 내 TOCNFs를 혼합한 경우 카르보닐기와 메틸기(methyl group)와 같은 주요 피크의 이동이 나타난 것으로 확인되었다. 이는 PVA 매트릭스와 TOCNFs 간의 수소결합과 같은 물리적 상호작용이 형성되었기 때문으로 판단하였다 (Table 2).

2.3. SCG로부터 추출한 지질을 활용한 생분해성 고분자 제조

SCG로부터 추출한 지질은 팔미트산, 스테아르산, 올레산 및 리놀레산과 같은 우수한 품질의 다양한 지방산을 함유하고 있다. SCG로부터 지질을 추출하는 방법으로 속슬렛 추출법(soxhlet extraction)[42,43], 가압 유체 추출법(pressurized Fluid Extraction)[43] 및 초임계 이산화탄소 추출법(supercritical carbon dioxide extraction)[43-45] 등이 주로 사용되고 있다. 속슬렛 추출법은 가장 일반적으로 사용되는 추출법으로 n-헥산, 에테르 및 클로로포름 등의 비극성 유기용매를 사용하여 지질을 추출하는 방법이다[42,43]. 가압 유체 추출법은 비극성 유기용매를 사용하여 고온·고압 조건에서 지질을 추출하는 방법이다. 온도 및 압력이 높을수록 용매의 점도는 감소하고 확산속도는 증가하기 때문에 추출 속도 및 시간이 향상되고, 비극성 유기용매의 소비를 절약할 수 있다는 장점이 있다[43]. 초임계 이산화탄소 추출법이란 임계 온도 (31°C) 및 임계 압력 (7.5 MPa)을 초과한 상태의 이산화탄소인 초임계 이산화탄소(supercritical carbon dioxide, sCO_2)를 용매로 사용하여 지질을 추출하는 방법이다. sCO_2는 낮은 점도, 높은 확산 속도 및 액체와 같은 높은 용해력에 의해 물질 내 존재하는 미세 공간 안으로의 빠른 침투가 가능하며, 무독성, 불연성이면서 상대적으로 가격이 저렴한 특성을 갖는다. sCO_2 추출법은 낮은 온도에서 추출이 가능하여 추출된 유효 성분의 열에 의한 손상을 막을 수 있으며, 추출 시 용매로 사용한 이산화탄소는 대기압에 증발되기 때문에 폐기물이 발생하지 않아, 친환경적이며 에너지 비용을 절약할 수 있는 추출법으로 다양한 산업 분야에서 주목받고 있다[43-45]. 선행 연구에서는 다양한 추출법을 활용하여 SCG로부터 지질을 추출한 후 추출 방법에 따른 지질의 추출 수율 및 특성을 분석하였다. Williamson 등[43]은 속슬렛 추출법, 가압 유체 추출법 및 sCO_2 추출법을 활용하여 SCG로부터 추출된 지질의 추출 수율 및 특성을 분석하였다. 석유 에테르(petroleum ether)를 용매로 하여 속슬렛 추출법 및 가압 유체 추출법을 사용한 경우 SCG로부터 각각 12.86 wt% 및 13.73 wt%의 지질이 추출된 것으로 나타났다. 속슬렛 추출법을 사용한 경우 많은 양의 유기용매가 필요하고, 추출 시간이 많이 소요되는 반면, 가압 유체 추출법을 사용한 경우 속슬렛 추출법과 비교하였을 때 상대적으로 적은 양의 유기용매로 추출이 가능하고, 빠른 속도로 많은 양의 지질을 추출할 수 있다고 보고하고 있다. 하지만, sCO_2 추출법을 사용하여 SCG로부터 추출된 지질은 7.56 wt%로 가장 낮은 추출 수율을 보이는 것으로 확인되었다. 이는 헥산, 에탄올 및 아이소프로필 알코올(isopropanol)과 같은 보조 유기용매를 사용하지 않고 순수한 sCO_2만을 사용했기 때문에 sCO_2 추출법은 속슬렛 추출법 및 가압 유체 추출법과 비교하였을 때 가장 낮은 추출 수율을 보이는 것으로 보고하고 있다. Ahangaru 등[45]은 sCO_2 추출법을 활용하여 다양한 추출 온도, 압력 및 보조용매를 사용하여 SCG 내 지질을 추출하였다. sCO_2 추출법을 통해 추출된 최대 지질의 수율을 15.4 wt%로 확인되었으며, 추출 압력이 증가함에 따라 sCO_2의 밀도 및 용해력이 증가하면서 SCG 내 지질의 추출 수율이 증가하는 것으로 나타났다. 또한, 추출 보조용매로써 헥산을 사용하면 추출 수율이 증가하는 것으로 나타났다. 이는 비극성 유기용매의 첨가로 SCG 내 지질과 용매 간의 물리적·화학적 상호작용이 증가하여 지질의 용해도가 향상되었기 때문으로 판단하였다. 그러나, 추출 온도가 증가함에 따라 지질의 추출 수율은 감소하는 것으로 확인되었다. 이는 추출 온도가

Table 2. Summary of research findings related to polymer composites prepared using SCGs and cellulose extracted from SCGs as functional fillers

Polymer matrix	Filler	Preparation method	Main effect of SCG addition in polymer	Publication year	Ref.
PP	SCG	Extrusion, Injection molding	• Decreased the tensile strength, flexural modulus, heat and deflection temperature (25 wt% SCG in PP) • Improved elongation at break (25 wt% SCG in PP)	(2016)	[20]
	SCG	Extrusion, Injection molding	• Improved impact strength by increasing of the SCG contents (10%, 20% and 30%) in PP matrix	(2019)	[28]
	SCG	Extrusion, Injection molding	• Enhanced the flexural modulus by increasing of the SCG contents (20%, 40% and 60%) in PP matrix	(2022)	[29]
	Alkali-treated SCG(SCG-H_2O_2) and silanized SCG (SCG-Si)	Coupling with maleic anhydride, Extrusion, Injection molding	• Improved the young's modulus and tensile strength of PP/SCG-H_2O_2 composite • Decrease the stiffness of PP/SCG-Si composites and PP/SCG-Si-SEBS-g-MA composites • Increase the tensile strength of PP/SCG-Si-SEBS-g-MA composites	(2018)	[30]
Oxo-HDPE	Alkali-treated SCG	Hot press	• Improved mechanical strength and water resistance of oxo-HDPE/alkali- treated SCG (type D)	(2017)	[31]
PBAT	SCG	Extrusion	• In order to improve compatibility between PLA and SCG, PEG as a plasticizer is incorporated into the PLA/SCG matrix. • Improved the tensile strength and hydrophobicity of PBAT/SCG with PEG • Improved the tensile strength and hydrophobicity of PBAT/SCG with PEG	(2017)	[32]
PLA	SCG	Extrusion (Brown)	• Enhanced the elongation at break by increasing of the SCG contents (5 wt%, 7.5 wt% and 10 wt%) in PLA matrix	(2019)	[33]
	SCG/PP/Lignin	Extrusion	• Improved the thermal stability and flexural strength	(2015)	[34]
	Crosslinked with TEOS SCG	Coupling with maleic anhydride, Hot press	• The grafting reaction of maleic anhydride (MA) onto PLA was conducted. • Surface treatment of SCG was conducted using tetraethyl orthosilicate (TEOS) • Improved tensile strength at break of PLA-g-MA/TSCG	(2015)	[35]
PBS	SCG	Extrusion, Injection molding	• Improved the biodegradability and tensile strength • Decrease the elongation at break	(2021)	[36]
PHA-g-AA	SCG	Hot press	• Increased the young's modulus PHA-g-AA/SCG composites (SCG of 20 wt%)	(2017)	[37]
Pectin (high methoxyl pectin, HDM)	SCG	Continuous casting	• Improved the modulus and water vapor permeability	(2019)	[38]
Cellulose	SCG-extracted cellulose	Delignification, TEMPO-mediated oxidation, High-pressure treatment	• Tensile strength and elongation at break were enhanced with the addition of 1.5% GLY in the cellulose matrix	(2022)	[40]
PVA	SCG-extracted cellulose	TEMPO-mediated oxidation	• Formed the strong physical interaction between PVA and TOCNF	(2020)	[41]

증가함에 따라 sCO_2의 밀도가 감소하여 sCO_2의 용매화 능력이 감소되었기 때문으로 판단하였다.

속슬렛 추출법, 가압 유체 추출법, sCO_2 추출법 등을 활용하여 SCG 내 다량 함유되어 있는 지질을 추출한 후 PHA들을 합성 및 생산하는 연구가 진행되고 있다(Fig. 2)[46-49]. PHA는 미생물들이 탄소원을 저장하기 위해 세포 내에서 미생물들이 생산한 3-하이드록시알카노에트(3-hydroxyalkanoate)들이 에스터(ester)결합을 형성하여 생성된

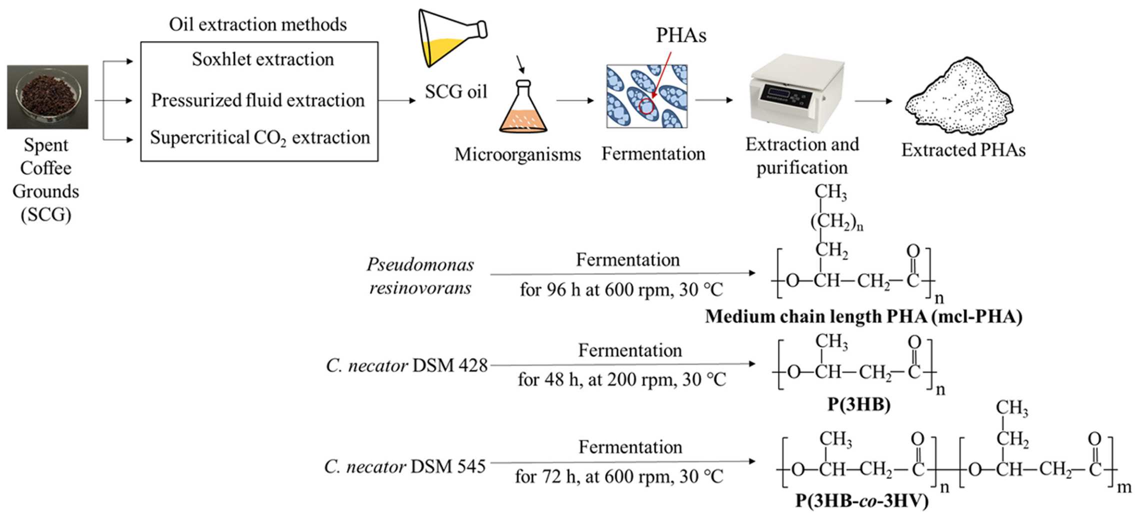

Fig. 2. Synthesis of PHAs using the lipids extracted from SCGs[46-49].

열가소성의 천연 고분자이다[46]. 하이드록시산(hydroxy acid) 단량체의 탄소원자에 따라 짧은 사슬을 가진 PHA(탄소수 3~5, short chain length, scl-PHA), 중간 사슬을 가진 PHA (탄소수 6-14, medium chain length, mcl-PHA) 및 긴 사슬을 가진 PHA(탄소수: 15개 이상, long chain length, lcl-PHA)로 분류할 수 있다[46]. Kang 등[47]은 n-헥산을 용매로 하여 속슬렛 추출법을 통해 SCG로부터 지질을 추출한 후, 추출된 SCG 지질을 기질로 하여 *Pseudomonas resinovorans* 를 통해 PHA의 생산 가능성을 확인하였다. 추출된 SCG 지질은 주로 팔미트산, 스테아르산, 올레산 및 리놀레산과 같은 지방산으로 구성되어 있는 것으로 나타났으며, SCG 지질은 mcl-PHA 생산에 효과적인 것으로 나타났다. Cruz 등[48]은 sCO_2 추출법을 활용하여 SCG로부터 지질을 추출한 후 추출된 SCG의 지질을 *Cupriavidus necator* DSM 428 배양을 위한 유일한 탄소원으로 사용하여 poly(3-hydroxybutyrate) (P(3HB))를 제조하였다. 생산된 P(3HB)의 수율은 78.4 wt%로 확인되었으며, 분자량은 234,000 g/mol이며, 다분산지수(poly dispersity index: PDI)는 1.2로 보고되었다. 제조된 P(3HB)필름의 유리전이온도와 녹는점은 각각 8.41°C와 172.3°C으로 보고되었다. 또한, P(3HB) 필름의 기계적 특성으로서 인장강도는 16.0 MPa, 연신율 1.3% 및 영률은 1.0 GPa으로 보고되었다. Ingram 등[49]은 n-헥산을 용매로 하여 속슬렛 추출법을 통해 SCG로부터 지질을 추출하였으며, 추출된 지질을 기질로 하여 *Cupriavidus necator* DSM 545를 통해 poly(3-hydroxybutyrate-*co*-3-hydroxyvalerate)(P(3HB-*co*-3HV))의 생산 가능성을 확인하였다. SCG에서 추출한 지질을 기질로 하여 배양된 세포 내 89.6 wt%의 P(3HB-*co*-3HV)를 축적한 것으로 확인되

Table 3. Utilization of lipids extracted from SCGs

Utilization	Main results	Publication year	Ref.
PHA synthesis	• Oil was extracted from spent coffee grounds (SCGs) using the Soxhlet extraction method • *Pseudomonas resinovoran* as the inoculum was used with SCG oil for producing mcl-PHA	(2023)	[47]
P(3HB) synthesis	• Oil was extracted from spent coffee grounds (SCGs) using supercritical carbon dioxide extraction method • *Cupriavidus necator* DSM 428 as the inoculum was used with SCG oil for producing P(3HB)	(2014)	[48]
P(3HB-*co*-3-HV) synthesis	• Oil was extracted from spent coffee grounds (SCGs) using the Soxhlet extraction method • *Cupriavidus necator* DSM-545 was cultivated with SCG oil for producing P(3HB-co-3HV)	(2021)	[49]
Plasticizer for polymer composites	• Oil was extracted from spent coffee grounds (SCGs) using the Soxhlet extraction method, supercritical carbon dioxide extraction method and pressured fluid extraction method • Extracted oil was epoxidized and employed as a plasticizer for enhance the properties of P(3HB-co-3HV)	(2022)	[43]
	• Oil was extracted from spent coffee grounds (SCGs) using the Soxhlet extraction method PLA/recycle cellulose • The phase separation of between PLA and recycle cellulose was decreased by adding the extracted oil	(2022)	[50]

었으며, 이를 통해 P(3HB-*co*-3HV)의 합성 및 생산을 위한 탄소원으로써 SCG 지질 추출물의 적합성 및 친환경적인 공정의 도입 가능성을 확인하였다 (Table 3).

2.4. 고분자 복합소재의 가소제로써 SCG로부터 추출한 지질 성분의 활용

Williamson 등[43)]은 SCG에서 지질을 추출한 후, 추출된 지질의 기능을 향상시키기 위해 에폭시화 반응(epoxidation reaction)을 통해 에폭시화 된 SCG 추출 오일(epoxidized spent coffee ground oil, ECO)을 제조하였다. P(3HB-*co*-3HV)/천연고무(natural rubber, NR) 혼합물 내 ECO를 첨가하여 가소제로써 ECO의 적용 가능성을 확인하였으며, 혼합물을 사용하여 압출공정을 통해 시트로 제조하고자 하였다. P(3HB-*co*-3HV)/NR 혼합물은 부서지기 쉽고, 가공이 어려운 P(3HB-*co*-3HV)의 특성으로 인해 시트로써 제조되지 못하지만, ECO가 첨가된 ECO/P(3HB-*co*-3HV)/NR 혼합물은 성공적으로 제조되는 것으로 확인되었다. 이는 부서지기 쉽고 견고한 구조를 갖는 P(3HB-*co*-3HV) 매트릭스 내 ECO가 첨가되면, P(3HB-*co*-3HV)간 상호작용을 방해하여 유연한 구조를 갖는 가소화 효과가 발현되는 것으로 판단하였다. Gama 등[50)]은 재활용 종이 커피컵에서 셀룰로오스를 추출 및 제조한 후, 이를 충진제로써 PLA 매트릭스 내 도입하여 복합소재를 제조하였으며, SCG로부터 지질을 추출하여 복합소재의 가소제로 활용하였다. 본 연구에서는 30 wt%의 SCG 지질 추출물이 첨가됨에 따라 복합소재의 소수성 특성은 증가하고, 취성은 감소되는 것으로 나타났다. 이는 복합소재 내 가소제가 첨가됨에 따라 고분자 사슬의 움직임을 증가시켰기 때문으로 판단하였다. 또한, 가소화 효과로 인해 고분자 매트릭스의 분자 간 상호작용이 감소하여 복합소재의 강성 및 인장강도가 감소하는 것으로 보고하였다.

2.5. SCG를 활용한 활성포장재

Min 등[51)] 은 수열 합성법을 이용하여 SCG로부터 carbon dots(CD)을 합성하였고, 자몽씨 추출물(grapefruit seed extract, GSE)과 함께 gelatin/poly(vinyl alcohol) (Gel/PVA) 복합필름에 넣어 활성포장재로의 적용 가능성을 확인하였다. CD는 10 nm이하의 형광 탄소 나노 입자이며, 항산화 특성, 항균 및 항진균 특성이 있다고 보고되고 있다. Gel/PVA/CD 복합필름의 항산화 특성은 Gel/PVA/GSE 복합필름과 Gel/PVA 필름의 항산화 특성보다 우수하며, CD와 GSE를 함께 넣은 Gel/PVA/GSE/CD 복합필름의 항산화 특성이 가장 우수한 것으로 보고되었다. *E. coli* (*Escherichia coli*)와 *L. monocytogenes* (*Listeria monocytogenes*)에 대한 Gel/PVA/CD 복합필름의 항균 특성은 Gel/PVA 필름보다 조금 개선되는 것으로 보고하였다. 또한, Gel/PVA 내 GSE와 CD의 도입은 돼지고기의 안전성과 보관수명 향상에 기여할 수 있음을 시사하였다. Drago 등[52)]은 고온 및 고압공정을 이용하여 SCG로부터 추출물을 제조한 다음 Zein에 첨가하여 전기방사, 캐스팅 및 스핀코팅 방법을 이용하여 시편을 제조하였고, 활성포장재로의 적용 가능성을 확인하였다. 캐스팅 및 스핀코팅 방법으로 제조한 필름의 경우 전기방사방법으로 제조한 필름보다 투명성, 기계적 강도 및 차단 특성이 우수하여 다층필름 제조 시 활성효과를 구현하는 기능층으로 적용 가능할 것으로 보고하였다. 또한, 제조한 필름들을 식품 모사용매인 10%에탄올에 넣은 다음 활성물질인 카페인의 방출량을 확인함으로써 지속가능한 항산화 필름으로의 적용 가능성을 시사하였다.

국내외 커피찌꺼기에 관한 관리 및 사업화 현황

커피찌꺼기를 친환경적인 방법으로 수거 및 처리하거나, 새로운 자원으로써 다양한 재활용 방법과 활용 방안의 모색 및 마련에 대한 필요성이 강조되고 있다[53)]. 이러한 관점에서 국내에서는 커피 부산물에 대한 관리방안이 마련되고 있다. 2018년부터 환경부에서는 커피전문점 등에서 배출되는 커피찌꺼기를 분리수거 대상품목에 포함하였으며, 커피찌꺼기를 순환자원으로 인정하고, 재활용 활성화를 위해 순환자원 인정제도 해설서를 제시하고 있다[54,55)]. 국내 기업 '포이엔'은 커피 부산물을 회수 및 운송하여 재활용 공정을 통해 연료, 유기질 비료 및 바이오 플라스틱으로 가공하는 비즈니스 모델을 구축하고 있는 사회적 기업으로 스타벅스 코리아와 함께 '커피박 화분키트' 증정 캠페인 등의 프로젝트를 진행하고 있다. '커피큐브' 기업에서는 주로 폐기되는 커피찌꺼기를 재활용하여 친환경적인 커피점토로 바꿔주는 '커피트레인' 기계를 제작·판매하며, 커피트레인 기계를 활용하여 벽돌, 테이블, 연필 등의 다양한 제품을 개발하고 있다. 영국 런던의 경우 카페가 밀집한 시내에 커피찌꺼기 수집기를 배치하고 커피전문점에서 커피찌꺼기를 배출하면 '앤젤 AIM(angel AIM)'이라는 스타트업이 수거하여, 영국의 바이오에너지 생산기업인 '바이오빈 (bio-bean)'에 전달하는 시스템을 구축하였다. 바이오빈은 연간 50,000톤의 커피찌꺼기를 처리를 할 수 있다고 보고하고 있으며, 커피찌꺼기를 활용하여 바이오 디젤, 바이오 에탄올 및 펠렛을 생산하고 있다[56-58)]. 스위스의 경우 커피찌꺼기 수거시스템을 주도적으로 운영하고 있으며, 대표적인 커피 제조업체인 네슬레(Nestlé)와 함께 커피찌꺼기를 바이오 에너지로 활용하는 체계를 구축하였다. 네슬레는 수거업체에서 커피전문점에서 배출되는 커피찌꺼기를 수거 및 운송하면 이를 펠렛 형태로 제조하여 바이오 에너지로 활용하고 있다[59,60)]. 정부가 커피찌꺼기를 안전하고 쉽게 활용할 수 있도록 가이드

라인을 제시함으로써, 연구자들과 산업계에서는 커피찌꺼기를 활용한 제품들을 개발하고자 노력하고 있는 것을 확인할 수 있다. 따라서, 커피찌꺼기를 활용한 바이오 복합소재와 이를 활용한 다회용 컵 및 용기 등과 같은 응용제품이 개발되어 일부 석유계 기반 일회용 플라스틱 포장제품을 대체할 수 있을 것으로 기대한다.

요 약

환경문제에 대한 관심이 증가함에 따라 지속가능한 소재에 대한 요구가 증가하고 있다. 전 세계적으로 커피는 가장 많이 소비되는 음료이며, 커피음료의 가공 및 소비로 발생하는 커피 부산물에는 셀룰로오스, 헤미셀룰로오스, 리그닌, 지질 및 생리활성물질 등이 풍부하지만 대부분 폐기되는 실정이다. 따라서, 많은 연구자들이 커피 부산물을 고부가가치 소재로 개발하기 위하여 노력하고 있다. 본 총설에서는 고분자/커피 은피 복합화 연구, 커피 은피로부터 셀룰로오스 추출 및 응용연구, 고분자/커피찌꺼기 복합화 연구, 커피찌꺼기로부터 셀룰로오스 추출 및 이를 활용한 연구, 커피찌꺼기로부터 지질 추출 및 이를 활용한 PHAs합성, 가소제로써 커피찌꺼기로부터 추출한 지질의 응용가능성 연구 등에 대하여 조사하였다. 선행 연구에서는 커피 부산물인 커피 은피 및 커피찌꺼기 자체를 고분자와 혼합하여 복합소재를 제조하고 물성을 평가하는 연구는 광범위하게 수행되고 있는 것으로 확인되었다. 하지만, 커피 은피 및 커피찌꺼기로부터 나노셀룰로오스를 추출하거나, 상대적으로 친수성인 커피 부산물과 소수성인 석유계 고분자 또는 생분해성 고분자와 복합화 시 상용성 개선과 관련된 커피 부산물의 표면 개질 및 상용화제 도입 등의 연구는 부족함을 확인하였다. 또한 커피 부산물로부터 추출한 지질을 활용하여 PHAs를 합성하는 연구가 일부 진행되고 있지만 합성된 PHAs를 활용하여 포장소재로의 제조 및 응용에 관한 추가적인 연구가 필요하다고 사료된다. 또한, 커피찌꺼기의 발생량 대비 국내외 관리방안 마련 및 제품 적용 시 안전성 평가방법에 관한 연구는 거의 실시되지 않아 이에 대한 추가적인 연구가 필요하다고 판단된다.

감사의 글

이 성과는 정부(과학기술정보통신부)의 재원으로 한국연구재단(No.2020R1G1A1101282)의 지원을 받아 수행되었으며 이에 감사드립니다.

참고문헌

1. Garcia, C.V. and Kim, Y-T. 2021. Spent coffee grounds and coffee silverskin as potential materials for packaging: a review. J. Polym. Environ. 29: 2372–2384.
2. Sisti, L., Celli, A., Totaro, G., Cinelli, P., Signori, F., Lazzeri, A., Bikaki, M., Corvini, P., Ferri, M., Tassoni, A. and Navarini, L. 2021. Monomers, materials and energy from coffee by-products: a review. Sustainability. 13: 6921.
3. Hoseini, M., Cocco, S., Casucci, C., Cardelli, V. and Corti, G. 2021. Coffee by-products derived resources. a review. Biomass Bioenergy. 148: 106009.
4. Durán-Aranguren, D.D., Robledo, S., Gomez-Restrepo, E., Arboleda Valencia, J.W. and Tarazona, N.A. 2021. Scientometric overview of coffee by-products and their applications. Molecules. 26: 7605.
5. Serna-Jiménez, J.A., Siles, J.A., de los Ángeles Martín, M. and Chica, A.F. 2022. A review on the applications of coffee waste derived from primary processing: strategies for revalorization. Processes. 10: 2436.
6. Nam, G., Kim, M-S. and Ahn, J.W. 2017. Analyses for current research status for the coffee by-product and for status of coffee wastes in Seoul. J. Energy Eng. 26: 14-22.
7. Esquivel, P. and Jiménez, V.M. 2012. Functional properties of coffee and coffee by-products. Food Res. Int. 46: 488-495.
8. Hejna, A. 2021. Potential applications of by-products from the coffee industry in polymer technology-current state and perspectives. Waste Manag. 121: 296-330.
9. Murthy, P.S. and Madhava Naidu, M. 2012. Sustainable management of coffee industry by-products and value addition-a review. Resour. Conserv. Recycl. 66: 45-58.
10. Klingel, T., Kremer, J.I., Gottstein, V., Rajcic de Rezende, T., Schwarz, S. and Lachenmeier, D.W. 2020. A Review of coffee by-products including leaf, flower, cherry, husk, silver skin, and spent grounds as novel foods within the European Union. Foods. 9: 665.
11. Iriondo-DeHond, A., Iriondo-DeHond, M. and Del Castillo, M.D. 2020. Applications of compounds from coffee processing by-products. Biomolecules. 10: 1219.
12. Campos, R.C., Pinto, V.R.A., Melo, L.F., Da Rocha, S.J.S.S. and Coimbra, J.S. 2021. New sustainable perspectives for “coffee wastewater” and other by-products: a critical review. Future Foods. 4: 100058.
13. Forcina, A., Petrillo, A., Travaglioni, M., Chiara, S.D. and Felice, F.D. 2023. A comparative life cycle assessment of different spent coffee ground reuse strategies and a sensitivity analysis for verifying the environmental convenience based on the location of sites. J. Clean. Prod. 385: 135727.
14. Mata, T.M., Martins, A.A. and Caetano, N.S. 2018. Bio-refinery approach for spent coffee grounds valorization. Bioresour. Technol. 247: 1077-1084.
15. Franca, A.S. and Oliveira, L.S. 2022. Potential uses of spent coffee grounds in the food industry. Foods. 11: 2064.
16. Oliveira, G., Passos, C.P., Ferreira, P., Coimbra, M.A. and Gonçalves, I. 2021. Coffee by-products and their suitability for developing active food packaging materials. Foods 10: 683.
17. Jiménez-Zamora, A., Pastoriza, S. and Rufián-Henares, J.A.

2015. Revalorization of coffee by-products. Prebiotic, antimicrobial and antioxidant properties. LWT - Food Sci. Technol. 61: 12-18.
18. Narita, Y. and Inouye, K. 2014. Review on utilization and composition of coffee silverskin. Food Res. Int. 61: 16-22.
19. Sung, S.H., Chang, Y. and Han, J. 2017. Development of polylactic acid nanocomposite films reinforced with cellulose nanocrystals derived from coffee silverskin. Carbohydr. Polym. 169: 495-503.
20. Zarrinbakhsh, N., Wang, T., Rodriguez-Uribe, A., Misra, M. and Mohanty, A.K. 2016. Characterization of wastes and coproducts from the coffee industry for composite material production. BioResources. 11: 7637-7653.
21. Hejna, A., Barczewski, M., Kosmela, P., Mysiukiewicz, O. and Kuzmin, A. 2021. Coffee silverskin as a multifunctional waste filler for high-density polyethylene green composites. J. Compos. Sci. 5: 44.
22. Sarasini, F., Tirillò, J., Zuorro, A., Maffei, G., Lavecchia, R., Puglia, D., Dominici, F., Luzi, F., Valente, T. and Torre, L. 2018. Recycling coffee silverskin in sustainable composites based on a poly(butylene adipate-co-terephthalate)/poly(3-hydroxybutyrate-co-3-hydroxyvalerate) matrix. Ind. Crop. Prod. 118: 311-320.
23. Sarasini, F., Luzi, F., Dominici, F., Maffei, G., Iannone, A., Zuorro, A., Lavecchia, R., Torre, L., Carbonell-Verdu, A. and Balart, R. 2018. Effect of different compatibilizers on sustainable composites based on a PHBV/PBAT matrix filled with coffee silverskin. Polymers. 10: 1256.
24. Sypabekova, M., Hagemann, A., Rho, D. and Kim, S. 2023. Review: 3-aminopropyltriethoxysilane (APTES) deposition methods on oxide surfaces in solution and vapor phases for biosensing applications. Biosensors. 13: 36.
25. Ghazvini, A.K.A., Ormondroyd, G., Curling, S., Saccani, A. and Sisti, L. 2022. An investigation on the possible use of coffee silverskin in PLA/PBS composites. J. Appl. Polym. Sci. 139: e52264.
26. Alghooneh, A., Amini, A.M., Behrouzian, F. and Razavi, S.M.A. 2017. Characterisation of cellulose from coffee silverskin. Int. J. Food Prop. 20: 2830-2843.
27. Liu, X., Sun, H. and Leng, X. 2023. Coffee silverskin cellulose-based composite film with natural pigments for food packaging: physicochemical and sensory abilities. Foods. 12: 2839.
28. Sohn, J.S., Ryu, Y., Yun, C-S., Zhu, K. and Cha, S.W. 2019. Extrusion compounding process for the development of eco-friendly SCG/PP composite pellets. Sustainability. 11: 1720.
29. Marques, M., Gonçalves, L.F.F.F., Martins, C.I., Vale, M. and Duarte, F.M. 2022. Effect of polymer type on the properties of polypropylene composites with high loads of spent coffee grounds. Waste Manag. 154: 232-244.
30. Essabir, H., Raji, M., Laaziz, S.A., Rodrique, D., Bouhfid, R. and Qaiss, A.E.K. 2018. Thermo-mechanical performances of polypropylene biocomposites based on untreated, treated and compatibilized spent coffee grounds. Compos. B. Eng. 149: 1-11.
31. Tan, M.Y., Nicholas Kuan, H.T. and Lee, M.C. 2017. Characterization of alkaline treatment and fiber content on the physical, thermal, and mechanical properties of ground coffee waste/oxobiodegradable HDPE biocomposites. Int. J. Polym. Sci. 2017: 1-12.
32. Moustafa, H., Guizani, C. and Dufresne, A. 2017. Sustainable biodegradable coffee grounds filler and its effect on the hydrophobicity, mechanical and thermal properties of biodegradable PBAT composites. J. Appl. Polym. Sci. 134: 44498.
33. Suaduang, N., Ross, S., Ross, G.M., Pratumshat, S. and Mahasaranon, S. 2019. Effect of spent coffee grounds filler on the physical and mechanical properties of poly(lactic acid) bio-composite films. Mater. Today Proc. 17: 2104-2110.
34. Lee, H.J., Lee, H.K., Lim, E. and Song, Y.S. 2015. Synergistic effect of lignin/polypropylene as a compatibilizer in multiphase eco-composites. Compos. Sci. Technol. 118: 193-197.
35. Wu, C-S. 2015. Renewable resource-based green composites of surface-treated spent coffee grounds and polylactide: characterisation and biodegradability. Polym. Degrad. Stab. 121: 51-59.
36. Gaidukova, G., Platnieks, O., Aunins, A., Barkane, A., Ingrao, C. and Gaidukovs, S. 2021. Spent coffee waste as a renewable source for the production of sustainable poly (butylene succinate) biocomposites from a circular economy perspective. RSC Adv. 11: 18580-18589.
37. Wu, C-S. 2017. Modulation of the interface between polyester and spent coffee grounds in polysaccharide membranes: preparation, cell proliferation, antioxidant activity and tyrosinase activity. Mater. Sci. Eng. C. 78: 530-538.
38. Mendes, J.F., Martins, J.T., Manrich, A., Sena Neto, A.R., Pinheiro, A.C.M., Mattoso, L.H.C. and Martins, M.A. 2019. Development and physical-chemical properties of pectin film reinforced with spent coffee grounds by continuous casting. Carbohydr. Polym. 210: 92-99.
39. Xu, H., Sanchez-Salvador, J.L., Balea, A., Blanco, A. and Negro, C. 2022. Optimization of reagent consumption in TEMPO-mediated oxidation of Eucalyptus cellulose to obtain cellulose nanofibers. Cellulose. 29: 6611–6627.
40. Oh, H.W. and Lee, S.H. 2022. A study on film manufacturing methods and quality characteristics using coffee by-products. Food Eng. Prog. 26: 105-111.
41. Kanai, N., Honda, T., Yoshihara, N., Yoshihara, N., Oyama, T., Naito, A., Ueda, K. and Kawamura, I. 2020. Structural characterization of cellulose nanofibers isolated from spent coffee grounds and their composite films with poly(vinyl alcohol): a new non-wood source. Cellulose. 27: 5017-5028.
42. Hibbert, S., Welham, K. and Zein, S.H. 2019. An innovative method of extraction of coffee oil using an advanced microwave system: in comparison with conventional soxhlet extraction method. SN Appl. Sci. 1: 1467.
43. Williamson, K., Banker, T., Zhao, X., Ortega-Anaya, J., Jimenez-Flores, R., Vodovotz, Y. and Hatzakis, E. 2022. Spent coffee ground oil as a valuable source of epoxides and

epoxidation derivatives: quantitation and characterization using low-field NMR. LWT. 165: 113719.
44. Coelho, J.P., Filipe, R.M., Robalo, M.P., Boyadzhieva, S., Cholakov, G.S. and Stateva, R.P. 2020. Supercritical CO2 extraction of spent coffee grounds. Influence of co-solvents and characterization of the extracts. J. Supercrit. Fluids. 161: 104825.
45. Ahangari, B. and Sargolzaei, J. 2013. Extraction of lipids from spent coffee grounds using organic solvents supercritical carbon dioxide. J. Food Process. Preserv. 37: 1014-1021.
46. Mahato, R.P., Kumar, S. and Singh, P. 2023. Production of polyhydroxyalkanoates from renewable resources: a review on prospects, challenges and applications. Arch. Microbiol. 205: 172.
47. Kang, B-J., Jeon, J-M., Bhatia, S.K., Kim, D-H., Yang, Y-H., Jung, S. and Yoon, J-J. 2023. Two-stage bio-hydrogen and polyhydroxyalkanoate production: upcycling of spent coffee grounds. Polymers. 15: 681.
48. Cruz, M.V., Paiva, A., Lisboa, P., Freitas, F., Alves, V.D., Simões, P., Barreiros, S. and Reis, M.A.M. 2014. Production of polyhydroxyalkanoates from spent coffee grounds oil obtained by supercritical fluid extraction technology. Bioresour. Technol. 157: 360-363.
49. Ingram, H.R. and Winterburn, J.B. 2021. Anabolism of poly(3-hydroxybutyrate-co-3-hydroxyvalerate) by Cupriavidus necator DSM 545 from spent coffee grounds oil. N. Biotechnol. 60: 12-19.
50. Gama, N., Ferreira, A. and Evtuguin, D.V. 2022. New poly(lactic acid) composites produced from coffee beverage wastes. J. Appl. Polym. Sci. 139: 51434.
51. Min, S., Ezati, P., Yoon, K.S. and Rhim, J-W. 2023. Gelatin/poly(vinyl alcohol)-based functional films integrated with spent coffee ground-derived carbon dots and grapefruit seed extract for active packaging application. Int. J. Biol. Macromol. 231: 123493.
52. Drago, E., Pettinato, M., Campardelli, R., Firpo, G., Lertora, E. and Perego, P. 2022. Zein and spent coffee grounds extract as a green combination for sustainable food active packaging production: an investigation on the effects of the production processes. Appl. Sci. 12: 11311.
53. Hong, H.S., Kim, Y., Oh, M.J., Lee, Y.M., Lee, H.J. and Cha, E.S. 2018. Overview for coffee grounds recycling technology and future concerns. J. Korea Soc. Waste Manag. 35: 587-599.
54. Ministry of Environment. 2018. Framework act on resources circulation, article 9 (Recognition of circular resources). 16172.
55. Ministry of Environment. 2022. Enforcement decree of the framework act on resources circulation, article 6 (Simplification of procedures and method for recognizing circular resources). 33186.
56. Mayson, S. and Williams, I.D. 2021. Applying a circular economy approach to valorize spent coffee grounds. Resour. Conserv. Recycl. 172: 105659.
57. Yeoh, L. and Ng, K.S. 2022. Future prospects of spent coffee ground valorisation using a biorefinery approach. Resour. Conserv. Recycl. 179: 106123.
58. Atabani, A.E., Mahmoud, E., Aslam, M., Naqvi, S.R., Juchelková, D., Bhatia, S.K., Badruddin, I.A., Yunus Khan, T.M., Hoang, A.T. and Palacky, P. 2023. Emerging potential of spent coffee ground valorization for fuel pellet production in a biorefinery. Environ. Dev. Sustain. 25: 7585-7623.
59. Woo, D-G., Kim, S.H. and Kim, T.H. 2021. Solid fuel characteristics of pellets comprising spent coffee grounds and wood powder. Energies. 14: 371.
60. Solomakou, N., Tsafrakidou, P. and Goula, A.M. 2022. Valorization of SCG through extraction of phenolic compounds and synthesis of new biosorbent. Sustainability. 14: 9358.

투고: 2023.12.05 / 심사완료: 2023.12.14 / 게재확정: 2023.12.28