

## 반응표면분석법에 의한 양파유 미세캡슐화 공정의 최적화

홍은미 · 유문균<sup>1</sup> · 노봉수<sup>2</sup> · 장판식\*서울산업대학교 식품공학과, <sup>1</sup>서울지방식품의약품안전청, <sup>2</sup>서울여자대학교 식품미생물공학과

## Optimization of Onion Oil Microencapsulation by Response Surface Methodology

Eun-Mi Hong, Mun-Gun Yu<sup>1</sup>, Bong-Soo Noh<sup>2</sup> and Pahn-Shick Chang\*

Department of Food Science and Technology, Seoul National University of Technology

<sup>1</sup>Test and Analysis Laboratory, Seoul Regional Food and Drug Administration<sup>2</sup>Department of Food and Microbial Technology, Seoul Women's University

Using agar and gelatin as wall materials, onion oil was microencapsulated using the extrusion spraying technology. A sensitive methodology was developed for quantitative determination of the microencapsulation yield through ethyl acetate extraction and gas chromatographic analyses. Optimal conditions for the microencapsulation process consisting of the ratio of [core material, Cm] to [wall material, Wm] ( $X_1$ ), temperature of dispersion fluid ( $X_2$ ), detergent concentration in dispersion fluid ( $X_3$ ), and concentration of emulsifier ( $X_4$ ) were determined using response surface methodology. The regression model equation for the yield of microencapsulation ( $Y$ , %) of onion oil could be predicted as  $Y = 97.028571 - 0.775000 (X_1) - 0.746726 (X_1) \cdot (X_1) - 1.100000 (X_3) \cdot (X_2)$ . The optimal conditions for the microencapsulation of the onion oil were determined as the ratio of [core material] to [wall material] of 4.5 : 5.5 (w/w), the temperature of dispersion fluid of 17.1°C, detergent concentration in dispersion fluid of 0.03%, and the concentration of emulsifier of 0.42%. Results revealed the most stable microcapsule of onion oil could be formed with the highest yield of microencapsulation (more than 95%) under optimal conditions.

**Key words:** onion oil, microencapsulation, RSM, emulsifier

## 서 론

최초의 캡슐화는 주로 저장, 수송, 취급 등의 용이성을 향상시키기 위하여 시작되었으며, 이후 여러 물질에 대한 다양한 캡슐화 방법이 계속적으로 연구·개발되어 왔다. 미세캡슐화(Microencapsulation) 기술분야에서의 연구는 1980년대에 이르러 활발하게 진행되기 시작하였으며, 현재는 식품산업에서 뿐만 아니라 제약 및 농약산업과 화학산업 등에서도 널리 이루어지고 있다<sup>(1)</sup>.

미세캡슐화 기술은 고체, 액체, 기체상의 물질을 특정 조건하에서 조절된 속도로 내용물을 방출할 수 있도록 특정한 물질(material)이나 조직(system)내부에 포장하는 기술을 말하며, 이 미세한 포장단위를 미세캡슐(microcapsule)이라고 지칭하며 크기는 수  $\mu\text{m}$  단위에서 수백  $\mu\text{m}$ 로 다양하고, 모양

은 구형이 이상적이지만 캡슐화되기전 원래의 물질구조에 따라 크게 영향을 받는다. 미세캡슐 내부에 존재하면서 코팅되는 물질을 중심물질(core material), 중심 물질을 감싸는 물질을 피복물질(wall material)이라고 지칭하는데, 피복물질로서는 butter fat, agar, gelatin, gum-물질, maltodextrin, caseinate 등의 지방질, 단백질 혹은 탄수화물 등을 사용하고 있다. 이 피복물질은 단일물질로 구성되는 경우보다는 두 가지 이상으로 혼합된 피복물질로 만들어지는 경우, 미세캡슐 내부에 함유되는 중심물질의 주변환경에 대한 저장 안정성이 더욱 향상되는 것으로 보고되고 있다<sup>(2-7)</sup>.

식품공업에서 미세캡슐화 기술은 향기성분이나 비타민, 필수지방산, 미생물, 효소 등을 빛, 산소, 수분 등으로부터 보호하여 손실을 줄이고, 독성, 냄새, 맛을 은폐시키거나 고형화시켜 취급을 간편하게 하고, 내용물의 용출속도를 조절하는 등의 목적으로 이용되고 있으며, 최근에는 각종 피복물질을 사용하여 중심물질을 주변의 열악한 환경으로부터 보호할 뿐만 아니라 체내에서의 기능성 향상을 위한 기능성 미세캡슐 제조분야에도 응용되고 있다. 미세캡슐화 기술에는 여러 가지 종류가 있지만 그 중 가장 널리 사용되고 있는 것은 분무 건조에 의한 미세캡슐화이다<sup>(8)</sup>. 이 방법에 의해 생

\*Corresponding author : Pahn-Shick Chang, Department of Food Science and Technology, Seoul National University of Technology, 172 Kongneung-dong, Noweon-gu, Seoul 139-743, Korea  
Tel: 82-2-970-6437  
Fax: 82-2-976-6460  
E-mail: pschang@snut.ac.kr

산되어진 미세캡슐은 취급이 간편하다는 장점은 있지만, 온도가 높아짐에 따라 중심물질 및 피복물질들의 변패 정도가 증가하기 때문에 캡슐 외부의 피복물질은 물론이거니와 내부에 존재하는 중심물질의 안정성이 급격히 감소하는 결전적인 단점이 지적되어왔다.

따라서, 본 연구에서는 상온의 액체내 분산법에 의한 미세캡슐화 기술을 이용하여 양파로부터 추출한 양파유의 기능적 특성을 원래대로 유지하면서 입안에서는 독특한 향을 남기지 않고 섭취시의 거부감을 제거하며, 공기접촉에 의한 산화로 인하여 저장성이 낮아지는 단점을 해결하고자 하였다. 이에 따라, 양파유를 노화시킨 탄수화물(피복물질)로 미세캡슐화하였으며, 이 때 미세캡슐화 공정에 영향을 미치는 중요한 변수인 중심물질과 피복물질의 농도 비율, 유화제의 농도, 분산매의 온도 및 분산질의 농도 등을 반응표면분석법을 사용하여 최적화하였다.

## 재료 및 방법

### 실험재료

본 실험에 사용된 유화제인 tetraglycerol monostearate(HLB 9.0) 및 polyoxyethylene sorbitan monolaurate(HLB 16.7) 등은 (주)일신유화(서울, 한국)에서 제공하였으며 모두 95.0% 이상의 순도를 갖는 제품을 사용하였다. 피복물질(wall material, Wm)로서는 분말상 agar(Junsei Chemical Co. Ltd., Tokyo, Japan) 및 gelatin(Duksan Pure Chemical Co. Ltd., 김포, 한국)을 사용하였고, 중심물질(core material, Cm)로서는 멕시코산 양파유를 (주)Cas Trading(서울, 한국)에서 구입하여 사용하였다. 피복물질 제조 및 분산액으로 사용한 물은 pH 6.8~7.0의 탈이온화된 2차 증류수이었으며, 기타 시약은 EP 등급 이상을 사용하였다.

안정한 유화액 제조 및 미세캡슐화 수율을 측정하기 위하여 초고속 균질기(ULTRA-TURRAX T25, Janke & Kunkel, Staufen, Germany)와 gas chromatography(HP 6890 II, Hewlett Packard, Waldbronn, Germany)를 사용하였다.

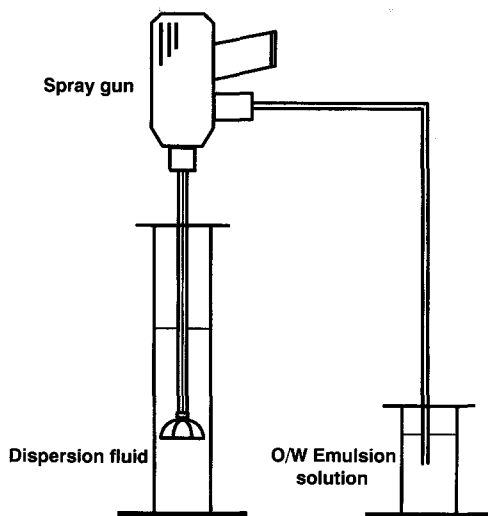


Fig. 1. Schematic representation for the microencapsulation apparatus.

### 피복물질의 제조

60°C 이상의 고온에서 액체화되며 실온에서는 겔화되어 고체화되는 특성이 있는 agar 및 waxy corn starch를 각각 0.50%(w/v) 및 0.25%(w/v)의 농도로 증류수에 넣고 혼합한 후 65°C 항온기에서 천천히 교반하면서 녹임으로써 투명한 호화액을 제조하였으며, 이때 온도를 65°C로 계속 유지하여 고체화되지 않은 상태를 피복물질로 사용하였다.

### 수중유적형 유화액의 제조

먼저 유화액 제조용 시험관 주변의 온도를 65°C로 유지하면서 중심물질(Cm)인 양파유와 유화제(polyoxyethylene sorbitan monolaurate)를 적당량(0.3~0.7%(w/w)) 혼합하여 초고속 균질기(ULTRA-TURRAX T25)를 사용하여 9,500 rpm의 속도로 40초간 강하게 교반한 후, 미리 준비한 피복물질을 혼합하고 다시 9,500 rpm에서 60초간 교반하여 수중유적형 유화액을 제조하였다.

### 양파유의 미세캡슐화

Fig. 1의 장치에서와 같이 압축분무기(W300, Wagner, Germany)를 사용하여 전술한 방법에 의하여 미리 제조한 수중유적형 유화액 20 g을 일정온도(0~20°C)로 유지시킨 분산액(tetraglycerol monostearate가 일정농도로 녹아있는 수용액) 200 mL내로 분무함으로써 미세캡슐화 공정을 완성하였다.

### 양파유 미세캡슐화 수율 측정

미세캡슐화의 수율을 측정하기 위하여 먼저, 시료(양파유 미세캡슐을 함유한 분산액) 10 mL를 뚜껑이 있는 수기에 넣고 ethyl acetate 10 mL를 첨가한 후 100 rpm의 속도로 저어 주면서 캡슐화 되지 않은 양파유를 추출하였다. 5분간 저어 준 후, 다시 5분간 정치시킴으로써 미세캡슐화되지 못한 양파유를 ethyl acetate 층으로 충분히 추출하였다. 추출한 용액(상등액) 1 μL를 gas chromatography에 적용하여 정량분석함으로써 미세캡슐화되지 않은 양파유 함량을 측정하였으며, 아래의 계산식에 대입하여 미세캡슐화 수율을 산출하였다.

Table 1. Experimental conditions for the analysis of onion oil by gas chromatography

Contents	Conditions
Instrument	HP 6890 II
Column	HP-101 (25 m × 0.32 mm (ID) × 0.30 μm (film))
Detector	Flame ionized detector
Injector temperature	200°C
Detector temperature	230°C
Column temperature	70°C (0 min) $\xrightarrow{5^\circ\text{C}/\text{min}}$ 180°C (22 min) Holding for 5 min $\rightarrow$ 180°C (27 min)
Carrier gas	N <sub>2</sub> gas
Injection volume	1.0 μL
Split ratio	1 : 100

Harangi 등<sup>(9)</sup>과 송<sup>(10)</sup>의 방법에서는 chloroform 추출법을 사용하였는데, 이때의 chloroform은 물보다 비중이 높기 때문에 양과유 미세캡슐 분산수용액보다 아래층으로 위치하게 되며 이러한 현상 때문에 시료 채취의 어려움이 수반된다. 따라서 chloroform(극성지수<sup>(11)</sup>(polarity index) = 4.1)과 극성이 비슷하고 물보다 비중이 낮은 ethyl acetate(극성지수 = 4.4)를 추

출용매로 사용하였다.

한편, 미세캡슐화 공정에 참여하지 못하여 유출되는 양과유를 측정하기 위한 gas chromatography 분석조건을 Table 1에 나타내었으며, 이의 결과를 아래식에 대입하여 양과유 미세캡슐화 수율로 계산하였다.

**Table 2. Coded levels for independent variables in developing experimental data**

Coded X <sub>i</sub>	Variable	Coded level				
		-2	-1	0	+1	+2
X <sub>1</sub>	Ratio of [Cm] : [Wm] <sup>(1)</sup> (w/w)	3:7	4:6	5:5	6:4	7:3
X <sub>2</sub>	Temperature of dispersion fluid (°C)	0	5	10	15	20
X <sub>3</sub>	Detergent <sup>(2)</sup> concentration in dispersion fluid (% w/v)	0.00	0.01	0.02	0.03	0.04
X <sub>4</sub>	Concentration of emulsifier <sup>(3)</sup> (% w/w)	0.3	0.4	0.5	0.6	0.7

<sup>1)</sup>Cm: Core material, Wm: Wall material.

<sup>2)</sup>Detergent: tetraglycerol monostearate.

<sup>3)</sup>Emulsifier: sorbitan monolaurate.

**Table 3. Central composite design consisting of 31 experiments for the study of four experimental factors in coded units**

Run number	Coded variable <sup>(1)</sup>				Process variable <sup>(2)</sup>			
	X <sub>1</sub>	X <sub>2</sub>	X <sub>3</sub>	X <sub>4</sub>	X <sub>1</sub>	X <sub>2</sub>	X <sub>3</sub>	X <sub>4</sub>
1	-1	-1	-1	-1	4:6	5	0.01	0.4
2	+1	-1	-1	-1	6:4	5	0.01	0.4
3	-1	+1	-1	-1	4:6	15	0.01	0.4
4	+1	+1	-1	-1	6:4	15	0.01	0.4
5	-1	-1	+1	-1	4:6	5	0.03	0.4
6	+1	-1	+1	-1	6:4	5	0.03	0.4
7	-1	+1	+1	-1	4:6	15	0.03	0.4
8	+1	+1	+1	-1	6:4	15	0.03	0.4
9	-1	-1	-1	+1	4:6	5	0.01	0.6
10	+1	-1	-1	+1	6:4	5	0.01	0.6
11	-1	+1	-1	+1	4:6	15	0.01	0.6
12	+1	+1	-1	+1	6:4	15	0.01	0.6
13	-1	-1	+1	+1	4:6	5	0.03	0.6
14	+1	-1	+1	+1	6:4	5	0.03	0.6
15	-1	+1	+1	+1	4:6	15	0.03	0.6
16	+1	+1	+1	+1	6:4	15	0.03	0.6
17	-2	0	0	0	3:7	10	0.02	0.5
18	+2	0	0	0	7:3	10	0.02	0.5
19	0	-2	0	0	5:5	0	0.02	0.5
20	0	+2	0	0	5:5	20	0.02	0.5
21	0	0	-2	0	5:5	10	0.00	0.5
22	0	0	+2	0	5:5	10	0.04	0.5
23	0	0	0	-2	5:5	10	0.02	0.3
24	0	0	0	+2	5:5	10	0.02	0.7
25	0	0	0	0	5:5	10	0.02	0.5
26	0	0	0	0	5:5	10	0.02	0.5
27	0	0	0	0	5:5	10	0.02	0.5
28	0	0	0	0	5:5	10	0.02	0.5
29	0	0	0	0	5:5	10	0.02	0.5
30	0	0	0	0	5:5	10	0.02	0.5
31	0	0	0	0	5:5	10	0.02	0.5

<sup>1,2)</sup>X<sub>1</sub>: Ratio of [Cm] : [Wm] (w/w), X<sub>2</sub>: Temperature of dispersion fluid (°C), X<sub>3</sub>: Detergent concentration in dispersion fluid (% w/v), X<sub>4</sub>: Concentration of emulsifier (% w/w)

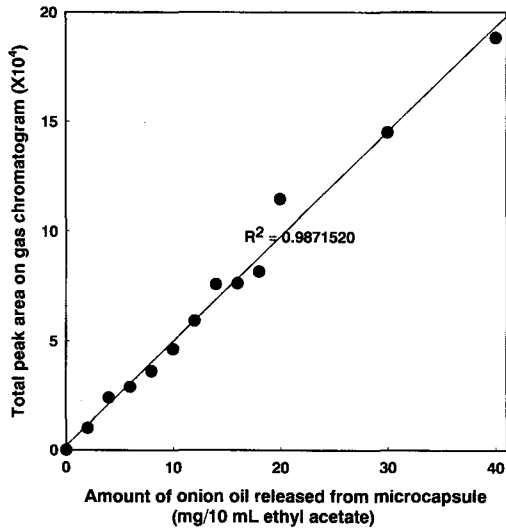


Fig. 2. Standard curve for the determination of the yield of microencapsulation by gas chromatography.

$$\text{미세캡슐화 수율(\%)} = 1 - \left( \frac{\text{미세캡슐화 되지 않고 유출된 양파유의 총 함량}}{\text{미세캡슐화에 사용한 양파유의 총 함량}} \right) \times 100$$

**반응표면 분석을 위한 실험설계**

양파유 미세캡슐화를 위한 제반조건들의 최적화 작업은 중심합성계획법(central composite design)<sup>(12-14)</sup>에 따라 설계하였고, 반응표면 회귀분석을 위하여 Statistical Analysis System (SAS) program(SAS Institute Inc., Cary, NC, U.S.A)을 사용하였다.

양파유 미세캡슐화에 영향을 미치는 변수인 [Cm] : [Wm]의 비율, 유화제의 농도, 분산액내의 detergent 농도 및 분산액의 온도를 각각의 독립변수로 설정하고, 각 변수들을 -2, -1, 0, +1, +2의 다섯 단계로 부호화하여 실험값을 Table 2에 나타내었는데, 각각의 독립변수에 대한 실험영역은 미세캡슐화 공정의 직전단계인 양파유 함유 유화제에서의 예비 실험 결과를 이용하여 설정하였다. 이러한 code와 변수를 이용하여 중심합성계획의 2차 모형으로 작성하였으며, Table 3에 표현한 총 31개의 실험구를 수행하였다.

**반응표면분석에 의한 미세캡슐화 조건의 최적화**

중심합성계획법에 따라 설계한 실험구(Table 3)에 의하여 도출한 결과인 미세캡슐화의 수율을 RSREG(response surface analysis by least-square regression)<sup>(15-17)</sup>를 이용하여 통계분석하고, 3차원분석을 통하여 미세캡슐화 조건의 최적화를 실시하였다.

양파유의 미세캡슐화 공정 최적화에 관련된 독립변수인 [Cm] : [Wm]의 비율(X<sub>1</sub>), 분산액의 온도(X<sub>2</sub>)와 분산액내의 detergent 농도(X<sub>3</sub>), 유화제 농도(X<sub>4</sub>)와 종속변수인 미세캡슐화 수율(Y, %)에 대한 표본회귀모형식은 다음과 같다.

$$Y = b_0 + \sum_{i=1}^4 b_i X_i + \sum_{i=1}^4 b_{ii} X_i^2 + \sum_{i=1}^3 \sum_{j=i+1}^4 b_{ij} X_i X_j$$

Table 4. Response of independent variables to the experiment for the microencapsulation of the onion oil

Run number	Coded variable <sup>1)</sup>				Dependent variable (Yield of microencapsulation (%))
	X <sub>1</sub>	X <sub>2</sub>	X <sub>3</sub>	X <sub>4</sub>	
1	-1	-1	-1	-1	97.9
2	+1	-1	-1	-1	97.0
3	-1	+1	-1	-1	94.9
4	+1	+1	-1	-1	91.9
5	-1	-1	+1	-1	94.0
6	+1	-1	+1	-1	94.0
7	-1	+1	+1	-1	95.6
8	+1	+1	+1	-1	92.8
9	-1	-1	-1	+1	98.3
10	+1	-1	-1	+1	97.2
11	-1	+1	-1	+1	92.8
12	+1	+1	-1	+1	95.4
13	-1	-1	+1	+1	96.3
14	+1	-1	+1	+1	89.4
15	-1	+1	+1	+1	93.7
16	+1	+1	+1	+1	93.8
17	-2	0	0	0	96.5
18	+2	0	0	0	93.2
19	0	-2	0	0	95.6
20	0	+2	0	0	96.2
21	0	0	-2	0	94.6
22	0	0	+2	0	96.9
23	0	0	0	-2	95.5
24	0	0	0	+2	98.7
25	0	0	0	0	95.6
26	0	0	0	0	96.7
27	0	0	0	0	96.5
28	0	0	0	0	96.8
29	0	0	0	0	95.9
30	0	0	0	0	96.7
31	0	0	0	0	95.0

<sup>1)</sup>X<sub>1</sub>, X<sub>2</sub>, X<sub>3</sub>, and X<sub>4</sub> are the same as described in Table 3.

여기서 Y는 반응(종속)변수, X<sub>i</sub>, X<sub>j</sub>는 독립변수, b<sub>0</sub>는 절편, b<sub>i</sub>, b<sub>ii</sub>, b<sub>ij</sub>는 회귀계수이다.

**결과 및 고찰**

**양파유 미세캡슐화 수율 측정을 위한 표준곡선의 작성**

양파유 미세캡슐화의 수율을 산출하기 위한 표준곡선을 작성하기 위하여 ‘양파유 미세캡슐화 수율 측정’에서 언급한 방법에 의하여 얻어진 ethyl acetate 추출액을 사용하여 gas chromatography를 수행함으로써 Fig. 2의 결과를 완성하였다.

본 연구의 예비실험결과, 미세캡슐내의 중심물질인 양파유 함량은 전체 분산액내에 3~7%(평균 5%) 수준으로 포함되어 있으며, 미세캡슐화 수율은 90% 이상의 수준으로 유지되는 것으로 판명되었다. 따라서, 본 연구에서의 양파유 미세캡슐화 수율 산출에 적합한 표준곡선을 완성하기 위해서는 미세캡슐화 수율이 90~100%인 구간을 정량화 할 수 있는 예민성(sensitivity)이 요구되었으며, Fig. 2의 표준곡선으로부터는

**Table 5. Values of regression coefficient calculated for the yield of microencapsulation of the onion oil**

Independent variable <sup>1)</sup>	Coefficient	t-Value	Significant level (P)
Constant	+97.028571	+132.1	
X	-0.775000	-1.953	<0.1
X <sub>2</sub>	-0.500000	-1.260	<0.1
X <sub>3</sub>	-0.466667	-1.176	
X <sub>4</sub>	+0.216667	+0.546	
X <sub>1</sub> X <sub>1</sub>	-0.746726	-2.054	<0.1
X <sub>2</sub> X <sub>1</sub>	+0.362500	+0.746	
X <sub>2</sub> X <sub>2</sub>	-0.484226	-1.332	
X <sub>3</sub> X <sub>1</sub>	-0.450000	-0.926	
X <sub>3</sub> X <sub>2</sub>	+1.100000	+2.264	<0.1
X <sub>3</sub> X <sub>3</sub>	-0.521726	-1.435	
X <sub>4</sub> X <sub>1</sub>	+0.087500	+0.180	
X <sub>4</sub> X <sub>2</sub>	+0.137500	+0.283	
X <sub>4</sub> X <sub>3</sub>	-0.325000	-0.669	
X <sub>4</sub> X <sub>4</sub>	-0.184226	-0.507	
R <sup>2</sup>		0.8666	
F		1.494	
Probability		0.1090	

<sup>1)</sup>X<sub>1</sub>, X<sub>2</sub>, X<sub>3</sub>, and X<sub>4</sub> are the same as described in Table 3.

미세캡슐화 수율 95~100% 사이의 구간까지도 예민하게 분석할 수 있음을 알 수 있었는데, 향 후 모든 실험에서는 gas chromatography 결과와 Fig. 2의 표준곡선으로부터 미세캡슐화 되지 못하고 유출되는 양파유를 정량분석함으로써, 양파유 미세캡슐화 수율을 계산하여 공정 최적화 작업에 이용하였다.

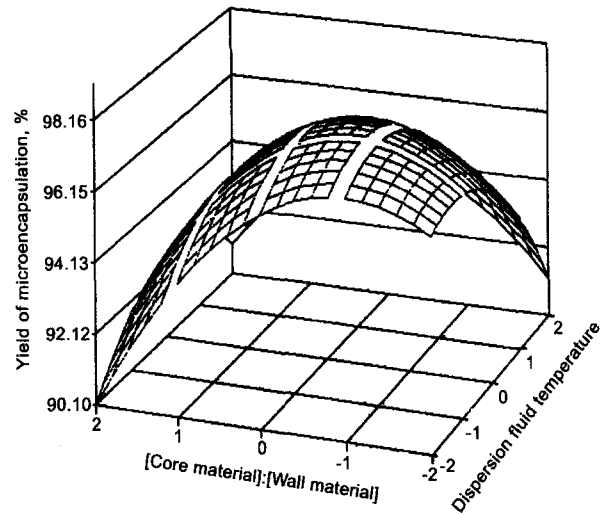
**반응표면분석법에 의한 양파유 미세캡슐화 공정 변수간의 관계분석**

중심합성계획법에 의하여 설계된 31개의 실험 조건하에서 양파유를 미세캡슐화 시킨 후 수율을 측정된 결과는 Table 4와 같다.

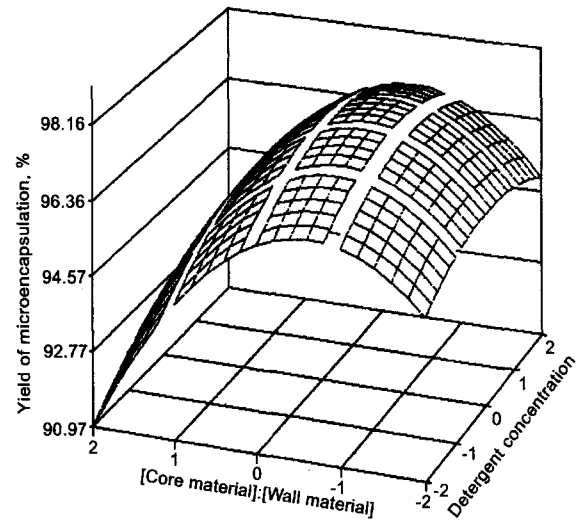
Table 4를 바탕으로 RSREG 처리하여 나타난 결과는 Table 5와 같으며, 4가지 독립변수(X<sub>1</sub>: [중심물질, Cm]: [피복물질, Wm]의 비율(w/w), X<sub>2</sub>: 분산액의 온도(°C), X<sub>3</sub>: 분산액내의 detergent 농도(% w/v), X<sub>4</sub>:유화제의 농도(% w/w))가 각각 변화함에 따른 미세캡슐화의 수율 Y에 대한 회귀식은 다음과 같이 표현되었다.

$$Y = 97.028571 - 0.775000(X_1) - 0.746726(X_1) \cdot (X_1) - 1.100000(X_3) \cdot (X_2)$$

이 때의 결정계수(coefficient of determination, R<sup>2</sup>)는 0.8666이고 유의성은 0.1090로서 ±10% 수준에서 인정되었다. 이러한 유의 수준은 일반적인 생화학 실험에서의 유의수준인 ±5% 이내의 범위는 벗어나지만, 식품공학적인 한계수준인 ±15~20% 유의수준의 범위에는 속하는 것이므로 ±10% 수준에서 채택하기로 하였다. 여기서 독립변수 중 X<sub>2</sub>(분산액의 온도, °C), X<sub>3</sub>(분산액내의 detergent 농도, %), X<sub>4</sub>(유화제의 농도, %) 등의 단일항들이 나타내는 계수들은 모두 10<sup>-3</sup>이하



**Fig. 3. Response surface on the yield of microencapsulation versus the ratio of [core material] : [wall material] (X<sub>1</sub>) and dispersion fluid temperature (X<sub>2</sub>).**



**Fig. 4. Response surface on the yield of microencapsulation versus the ratio of [core material] : [wall material] (X<sub>1</sub>) and detergent concentration in dispersion fluid (X<sub>3</sub>).**

의 매우 낮은 값을 갖는 것으로 판명되었으며, 따라서 이러한 요인들은 미세캡슐화 수율에 큰 영향을 미치지 못한 것으로 나타나 회귀식에서 제외하였다.

독립변수의 좌표를 직접 읽어 최적값을 구하고자 두 독립변수 상호간의 관계를 나머지 변수는 0(zero) 수준으로 두고 3차원으로 도식하여 Fig. 3~Fig. 8의 결과를 얻었다.

3차원 분석에 있어서 [Cm]:[Wm]의 비율과 분산액 온도의 관계는 정상점(stationary point)이 최대점(maximum point)으로서, 각각 [Cm]:[Wm]의 비율은 4.6:5.4(w/w) 및 분산액 온도는 7°C 근처에서 미세캡슐화 수율이 가장 높았고 (Fig. 3), [Cm]:[Wm]의 비율과 분산액내의 detergent 농도와의 관계는 각각 4:6(w/w) 및 0.024%(w/v) 부근이 최적조건으로 확인되었으며(Fig. 4), [Cm]:[Wm]의 비율과 유화제 농도와의 관계에서는 각각 4.6:5.4(w/w) 및 0.6%(w/v) 부근에

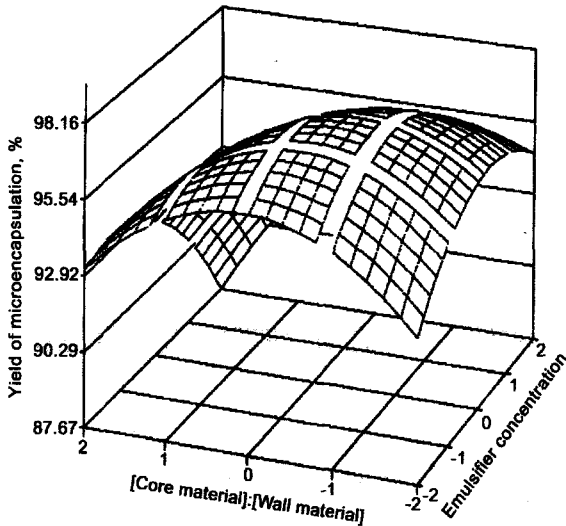


Fig. 5. Response surface on the yield of microcapsulation versus the ratio of [core material] : [wall material] ( $X_1$ ) and concentration of emulsifier ( $X_4$ ).

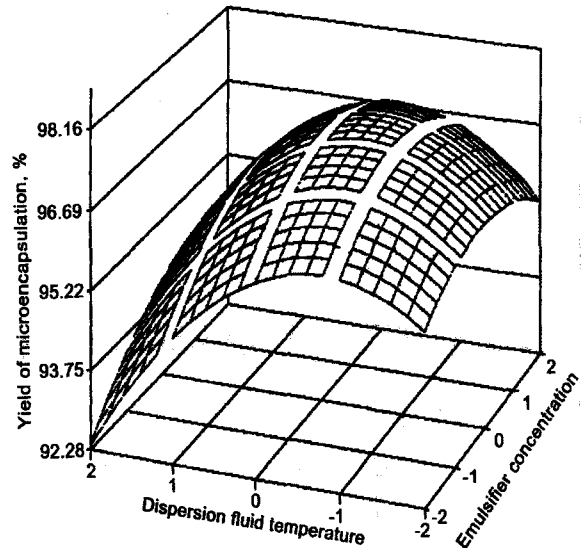


Fig. 7. Response surface on the yield of microcapsulation versus dispersion fluid temperature ( $X_2$ ) and concentration of emulsifier ( $X_4$ ).

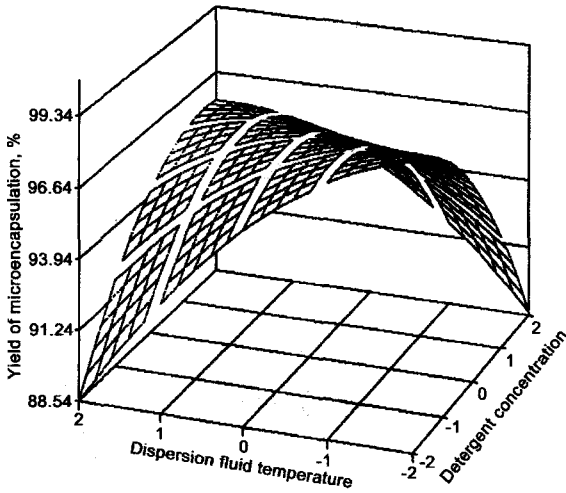


Fig. 6. Response surface on the yield of microcapsulation versus dispersion fluid temperature ( $X_2$ ) and detergent concentration in dispersion fluid ( $X_3$ ).

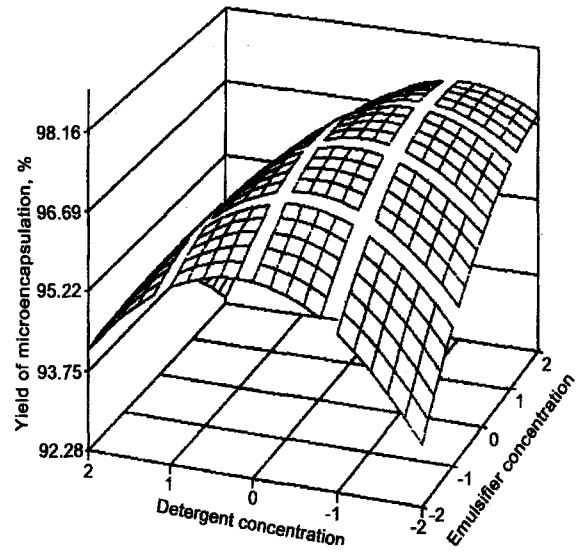


Fig. 8. Response surface on the yield of microcapsulation versus detergent concentration in dispersion fluid ( $X_3$ ) and concentration of emulsifier ( $X_4$ ).

서 미세캡슐화의 수율이 가장 높았다(Fig. 5).

또한, 분산액 온도와 분산액내의 detergent 농도와의 관계에서는 중심점이 안장점(saddle point)을 나타내므로 최적 조건을 파악하기가 어려우나 어떠한 조건에서도 미세캡슐화 수율이 비슷한 값을 나타내어 미세캡슐화 수율변화에 큰 영향을 미치지 못하는 것으로 사료되었으며(Fig. 6), 분산액 온도와 유화제 농도와의 관계는 각각 15°C 및 0.6%(w/w) 부근에서 최적조건으로 확인되었고(Fig. 7), 분산액내의 detergent 농도와 유화제 농도와의 관계에서는 각각 0.03%(w/v) 및 0.7% (w/w) 부근에서 미세캡슐화 수율이 가장 높은 것으로 나타났다(Fig. 8).

한편, 3차원 분석에 의한 미세캡슐화의 최적 조건보다 더욱 세밀하고 정확한 조건을 구하기 위하여 정준분석을 수행하였다.

**반응표면분석에 의한 양파유 미세캡슐화 공정의 최적 조건 확정**

양파유 미세캡슐화의 최적 조건을 확정하기 위하여 정준 분석(canonical analysis)을 수행하여 Table 6과 같은 결과를 얻었다.

Table 6에 나타난 암호화된 값(coded value)들을 실제값(uncoded value)으로 변환시켜 양파유 미세캡슐화를 위한 최적 조건으로 결정하였으며, 이러한 최적조건에 의하여 양파유 미세캡슐화를 위한 극대 수율 예측값 95.7%를 산출하였다. 한편, 극대수율 예측값 95.7%를 검증하기 위하여 최종적으로 결정된 최적조건하에서 양파유 미세캡슐화를 실제 수행한 결과 96.2%의 실측값을 얻었는데, 이는 유의수준 ±5.0%

**Table 6. Critical values from the canonical analysis of response surface based on the coded data**

Variable <sup>1)</sup>	Coded value <sup>2)</sup>	Uncoded value <sup>3)</sup>
X <sub>1</sub>	-0.488189	4.5 : 5.5 = 0.818
X <sub>2</sub>	+1.419935	17.1
X <sub>3</sub>	+1.741834	0.0374
X <sub>4</sub>	-0.828433	0.42

<sup>1)</sup>X<sub>1</sub>, X<sub>2</sub>, X<sub>3</sub>, and X<sub>4</sub> are the same as described in Table 3.

<sup>2)</sup>The coded value can be obtained from the statistical process.

<sup>3)</sup>The uncoded value can be translated from the coded value.

범위에 속하는 것으로 확인되었다. 따라서, Table 6에 나타낸 실제값(uncoded value)을 양과유 미세캡슐화를 위한 최적조건으로 확정하였으며, 확정한 미세캡슐화 공정조건들은 각각 [Cm] : [Wm]의 비율은 4.5 : 5.5(w/w), 분산액의 온도는 17.1°C, 분산액내의 detergent 농도는 0.037%(w/v), 유화제의 농도는 0.42%(w/w)였다.

이상의 정준분석 결과 중에서 유화제의 최적 농도 0.42% (w/w)는 전술한 바 있는 3차원분석 결과(0.6~0.7%(w/w))와는 차이를 나타내었는데, 이는 Fig. 6의 결과에서 안장점을 나타내는 현상이 파급되는 효과에 기인한 것으로 추측된다.

### 요 약

생체내에서 각종 생리활성이 있는 양과유의 기능성 및 저장성 향상을 위하여 agar와 gelatin이 혼합되어 있는 물질을 피복물질로 사용하여 양과유(중심물질)를 미세하게 캡슐화하는 작업을 수행하였으며, 먼저 양과유 미세캡슐화 수율을 예민하게 측정할 수 있는 방법을 ethyl acetate 추출 및 gas chromatography 기술을 사용하여 확립하였다. 확립된 미세캡슐화 수율 측정법을 사용하여 양과유 미세캡슐화를 위한 제반 공정조건들, 즉 [중심물질, Cm] : [피복물질, Wm]의 비율(X<sub>1</sub>), 분산액의 온도(X<sub>2</sub>, °C), 분산액내의 detergent 농도(X<sub>3</sub>, %(w/v)), 유화제의 농도(X<sub>4</sub>, %(w/w)) 등의 최적화를 수행하였으며, 공정 최적화를 위해서는 반응표면분석법(response surface methodology, RSM)을 이용하였다.

RSREG 처리 결과, 4가지 독립변수가 각각 변화함에 따른 미세캡슐화 수율(Y, %)에 대한 회귀식은  $Y = 97.028571 - 0.775000(X_1) - 0.746726(X_1) \cdot (X_1) - 1.100000(X_3) \cdot (X_2)$ 으로 표현되었으며, 반응표면분석 결과 양과유 미세캡슐화를 위한 최적화 조건으로서 [중심물질, Cm] : [피복물질, Wm]의 비율은 4.5 : 5.5(w/w), 분산액의 온도는 17.1°C, 분산액내 detergent 농도는 0.037%(w/v), 유화제(sorbitan monolaurate, HLB 16.7)의 농도는 0.42%(w/w)인 것으로 판명되었으며(미세캡슐화 수율의 최대 예측값은 95.7%), 이상의 최적조건하에서 양과유 미세캡슐화를 실제 수행한 결과 96.2%의 미세캡슐화 수율 실측값을 얻을 수 있었다.

따라서, RSM에 의하여 결정된 미세캡슐화 최적 조건은 ±5% 오차범위내에서의 높은 신뢰성을 갖는 것으로 판명되

었으며, 실제 미세캡슐화 공정에 적용 가능한 것으로 판단되었다.

### 감사의 글

본 연구 내용은 2000년도 한국과학재단 기초과학연구사업 (R01-2000-00194) 연구비 지원에 의하여 얻은 결과이므로 이에 감사드립니다.

### 문 헌

- Kim, J.W., Hong, J.W. and Byun, D.S. Oxidation stability model of fish oil. *J. Korean Soc. Food Nutr.* 24: 384-388 (1994)
- Chang, P.S. Structure of Lipids p. 30. In: *Lipid Chemistry*. Seoul National University of Technology press, Seoul (1998)
- Han, D.S., Yi, O.S. and Shin, H.K. Effect of naturally occurring antioxidants on the oxidative stability of fish oil. *Korean J. Food Sci. Technol.* 23: 433-436 (1991)
- Risch, S.J. Encapsulation. pp. 2-7. In: *Encapsulation and Controlled Release of Food Ingredients*. American Chemical Society symposium series No 590, Washington, DC, USA (1995)
- Versic, R.J. Flavor Encapsulation. pp. 1-6. In: *Flavor Encapsulation*. American Chemical Society symposium series No. 370, Washington, DC, USA (1988)
- Kim, H.J., Lee, K.W., Baick, S.J., Kwak, H.S. and Kang, J.O. Studies on the microencapsulation of ω-3 polyunsaturated fatty acid. *Korean J. Food Sci. Technol.* 28: 743-749 (1996)
- Claypool, L.L. Functional role of components of dairy products in processed cereal products. pp. 83-89. In: *Dairy Products for the Cereal Processing Industry*. American Association of Cereal Chemists (1984)
- Pauletti, M.S. and Amestoy, P. Butter microencapsulation as affected by composition of wall material and fat. *J. Food Sci.* 64: 279-282 (1999)
- Harangi, J. and Nanasi, P. Measurement of the oil in inclusion complexes with cyclodextrin by means of capillary gas chromatography. *Analytica Chimica Acta* 156: 103-109 (1984)
- Song, S.H. Optimum condition for microencapsulation of garlic oil and red pepper oleoresin. M.S. thesis, Seoul National University, Seoul, Korea (1992)
- Snyder, L.R. Classification of the solvent properties of common liquids. *J. Chromatogr.* 92: 223-229 (1974)
- Chang, P.S. and Cho, G.B. Optimization of the conditions for the O/W emulsion containing ω-3 polyunsaturated fatty acid. *Korean J. Food Sci. Technol.* 30: 1114-1119 (1998)
- Han, D.S. Characteristics of lipase from *Candida rugosa* and hydrolysis of triglycerides by the enzyme in the AOT-isooctane reversed micellar system. Ph.D. dissertation, Korea Advanced Institute of Sci. and Technol., Seoul (1986)
- Park, D.G. p. 354. In: *Experimental Design*, Jayu academy, Seoul (1995)
- Baek, H.H. and Cadwallader, K.R. Enzymatic hydrolysis of crayfish processing by-products. *J. Food Sci.* 60: 929-935 (1995)
- SAS Institute, Inc. SAS User's Guide. Statistical Analysis System Institute, Cary, NC, USA (1990)
- Park, J., Rhee, K.S., Kim, B.K. and Rhee, K.C. Single-screw extrusion of defatted soy flour, corn starch and raw beef blends. *J. Food Sci.* 58: 9-20 (1993)

(2002년 3월 22일 접수)