pISSN 1229-1153 / eISSN 2465-9223 *J. Food Hyg. Saf.*
Vol. 32, No. 4, pp. 284~289 (2017)
https://doi.org/10.13103/JFHS.2017.32.4.284

Journal of Food Hygiene and Safety
Available online at http://www.foodhygiene.or.kr

식품 중 oxidized polyethylene wax 분석법 연구 및 함유량 실태 조사

최승현[1] · 김재민[1] · 최선일[1] · 정태동[1] · 조봉연[1] · 이진하[1] · 이근영[2] · 임호수[2] · 윤상순[2] · 이옥환[1]*
[1]강원대학교 농업생명과학대학 식품생명공학과, [2]식품의약품안전평가원 첨가물포장과

Study on the Analytical Method and Monitoring of the Oxidized Polyethylene Wax in Foods

Seung-Hyun Choi[1], Jae-Min Kim[1], Sun-il Choi[1], Tae-Dong Jung[1], Bong-Yeon Cho[1], Jin-Ha Lee[1], Gunyoung Lee[2], Ho Soo Lim[2], Sang Soon Yun[2], and Ok-Hwan Lee[1]*
[1]*Department of Food Science and Biotechnology, Kangwon National University, Chuncheon, Korea*
[2]*Food Additives and Packaging Division, National Institute of Food and Drug Safety Evaluation, Korea Ministry of Food and Drug Safety, Cheongju, Korea*
(Received May 10, 2017/Revised June 5, 2017/Accepted July 7, 2017)

ABSTRACT - Oxidized polyethylene wax (OPEW) is, one of the food additives, used as a coating agent in citrus fruits and nuts. OPEW is authorized to quantum satis in EU, USA, and is acceptable less than 250 mg/kg in Australia and New Zealand. But OPEW is unauthorized as a food additive in Korea. This study was to establish the analytical method of OPEW and demonstrate the effective application of various food samples. We first conducted to compare the various analytical method including acid value (AV), high temperature gel permeation chromatography (HT-GPC), matrix-assisted laser desorption ionization time-of-flight mass spectrometry (MALDI-TOF/MS), gas chromatography flame ionization detector (GC-FID) and fourier transform infrared spectroscopy (FT-IR). This result indicated that FT-IR spectrum of OPEW treated food sample displayed absorption bands for carbonyl group (C=O, 1714 cm^{-1}), ester group (C-O, 1463 cm^{-1}), aliphatic group (C-H, 2916 cm^{-1}). Furthermore, IR spectrum of OPEW treated food sample showed similar tendency with IR spectrum of OPEW standard. Therefore, it is confirmed that analytical method using FT-IR can be detected on analysis of OPEW in food. As a result of monitoring of 111 samples using established analytical method, OPEW was not detected in the food samples.

Key words : Analytical Method, Coating Agent, Food, FT-IR, Oxidized Polyethylene Wax

산화형 폴리에틸렌 왁스(oxidized polyethylene wax)는 폴리에틸렌 왁스를 산화시켜 얻어지며 지방산, 알코올, 케톤, 에스테르 등 여러 가지 화합물로 생성물의 조성에 따라 용도가 달라진다[1]. 산화형 폴리에틸렌 왁스는 일반적으로 페인트, 도료 등의 공정에서 첨가제로 쓰이며[2,3], 식품에서는 식품의 표면을 코팅하는 용도로 사용되는 물질이다[4]. 식품첨가물로서 산화형 폴리에틸렌 왁스의 NOAEL (No observed adverse effect level) 수준은 유럽식품안전국(European Food Safety Authority, EFSA)에서 여러 독성연구결과를 바탕으로 800 mg/kg bw/day로 설정되었다[5]. 현재 산화형 폴리에틸렌 왁스를 식품첨가물(피막제)로 허용하고 있는 국가로는 유럽, 미국, 호주, 뉴질랜드 등이 있으며, 유럽에서는 신선 과일 및 채소의 표면에 적당량 사용을 허용하며[6], 미국에서도 신선 과일, 채소 및 견과류의 표면에 적당량 사용을 허용하고 있다[7]. 또한, 호주 및 뉴질랜드에서는 과일 및 채소의 표면에 최대 250 mg/kg 이하의 잔류수준으로 식품첨가물로서 사용을 규제하고 있다[8]. 하지만 국내에서 피막제로서 식품첨가물로 사용이 허용된 품목은 유동파라핀, 초산비닐수지, 몰포린지방산염, 올레인산나트륨, 폴리비닐알콜, 폴리비닐피로리돈, 담마검, 밀납, 석유왁스, 쉘락, 쌀겨왁스, 카나우바왁스, 칸델릴라왁스, 폴루란, 피마자유, 폴리에틸렌글리콜 등 16종으로 산화형 폴리에틸렌 왁스는 식품첨가물로 등록되어 있지 않다[9]. 국내 미지정 식품첨가물의 경우 국내에서 사용되고 있지 않더라도 수입식품 중 함유되어 국내에서 유통 될 가능성이 있으므로 사전 예방적 차원에서의 분석법 확립이 절실히 필요하다.

*Correspondence to: Ok-Hwan Lee, Department of Food Science and Biotechnology, Kangwon National University, Chuncheon 24341, Korea
Tel: 82-33-250-6454, Fax: 82-33-259-5565
E-mail: loh99@kangwon.ac.kr

식품 중 피막제를 분석하는 방법으로는 일반적으로 GC를 이용한 분석법이 보고되고 있으나[10], 산화형 폴리에틸렌 왁스의 경우 상온에서 용해되지 않고 고온에서 용해되는 성질 때문에 기기분석 시 고온 조건을 유지해야하는 어려움이 있다. 산화형 폴리에틸렌 왁스와 유사한 특성을 가진 고밀도폴리에틸렌(High density polyethylene, HDPE) 분석법 자료 등이 보고되어 있으나[11], 식품 중 산화형 폴리에틸렌 왁스를 분석하기 위한 공인된 전처리 및 분석법이 마련되어 있지 않다.

따라서 본 연구는 식품 중 국내 미지정 피막제인 산화형 폴리에틸렌 왁스를 분석하기 위한 다양한 분석방법으로 산가(Acid value), HT-GPC, MALDI-TOF/MS, GC-FID, FT-IR을 이용하여 검토하였으며, 시중에 유통되는 과일 및 견과류에서 산화형 폴리에틸렌 왁스의 사용여부를 모니터링 하였다.

Materials and Methods

대상시료

국내유통 및 수입식품에서 피막제를 사용했을 가능성이 있는 식품군을 선별하여 실험에 사용하였다. 과일(밀감, 오렌지, 자몽, 사과, 아보카도, 석류) 25건 및 견과류(땅콩, 아몬드, 호두, 피스타치오, 피칸, 캐슈넛) 86건으로 이루어진 국내산 22종, 수입산 89종의 식품 시료를 국내외 대형마트에서 구입하여 실험에 사용하였다.

표준물질 및 시약

산화형 폴리에틸렌 왁스(oxidized polyethylene wax, OPEW) 표준물질은 Luwax OA, OA2 (BASF, Ludwigshafen, Germany)를 사용하였으며 Table 1과 같다. Dithranol, IAA (trans-3-indoleacrylic acid), 2,5-DHB (2,5-dihydroxybenzoic acid), CHCA (α-cyano-4-hydroxycinnamic acid), xylene은 Sigma-Aldrich Co. (St. Louis, MO, USA)에서 구입하여 사용하였다. 이외 모든 시약은 모두 analytical grade 시약을 사용하여 분석하였다.

Table 1. Characteristics of oxidized polyethylene wax

	Oxidized polyethylene wax	
	Luwax OA	Luwax OA2
Physical form	Pastilles	Powder
Melting point	94-104°C	103-112°C
Dropping point	101-107°C	107-113°C
Ball hardness	150-300 bar	20-30 N/mm^2
Acid value	19-25 mg KOH/g	19-25 mg KOH/g
Density (23°C)	ca. 0.96 g/cm^3	ca. 0.96 g/cm^3
Molar mass	ca. 2700 g/mol	ca. 2800 g/mol

산가

산가는 미국재료시험협회(ASTM)의 D1386-98 방법[12]에 따라 시험하였다. 시료 1 g에 50 mL의 xylene을 넣은 후 가온하면서 용융시켜 시료가 완전히 용융상태가 되면 페놀프탈레인을 넣고 0.1 N KOH 용액으로 적정하였다. 용액이 최소 10초 이상 적색으로 변할 경우를 종말점으로 하여 계산하였다. 계산은 다음식을 이용하여 계산하였으며, 2회 반복하여 측정하였다.

Acid value = (5.61 × A × N)/B

A: KOH 용액 규정농도(0.1 N)

B: 시료의 양(g)

N: KOH 용액의 사용량(mL)

HT-GPC

산화형 폴리에틸렌 왁스는 상온에서 유기용매에 완전히 용해되지 않아 일반적인 GPC 시스템을 이용할 수 없으며, 컬럼부터 검출기까지 모든 기기가 고온을 유지해야 분석이 가능하기 때문에 high-temperature GPC를 이용하여 분자량 분석을 진행하였다. 미국재료시험협회(ASTM)의 D6474-12 방법[13]에 따라 시험하였으며, 표준물질을 TCB에 가온하여 용해한 후 PL-GPC 220 High Temperature GPC/SEC system (Agilent Technologies, Santa Clara, CA, USA) 분석기기를 이용하여 160°C에서 RI 디텍터를 사용하여 분석하였다.

MALDI-TOF/MS

3~5 mg의 산화형 폴리에틸렌 왁스를 바이알에 옮긴 후 toluene, tetrahydrofuran 1 mL씩 넣어준 뒤 60°C의 열을 가해주어 시료용액을 제조하였다. 시료 용액 0.5 μL와 Dithranol, IAA, DHB, CHCA 등의 매트릭스 용액 0.5 μL를 각각 혼합하여 MALDI 7090 (Shimadzu corporation, Kyoto, Japan) 기기를 사용하여 분석하였다.

GC-FID

산화형 폴리에틸렌 왁스의 지방산 구성을 확인하고자 식품공전의 지방산분석 제2법[14]을 일부 변형하여 추출 용매로 xylene을 사용하여 전처리하였다. 아몬드 시료에 250, 1,000, 5,000 ppm 농도의 산화형 폴리에틸렌 왁스 표준품을 첨가하여 지방산 구성을 비교하였다. 분석기기는 GC FID-7890B (Agilent Technologies, Santa Clara, CA, USA) 분석기기를 사용하여 분석하였다.

FT-IR

산화형 폴리에틸렌 왁스는 폴리에틸렌(polyethylene, PE) 왁스의 산화형태로, 제조시 카르보닐기(C=O)가 생성된다[15]. 따라서 산화형 폴리에틸렌 왁스를 피막한 시료와 피막하

지 않은 시료의 표면을 긁어낸 후 카르보닐기 및 작용기의 관찰을 통하여 식품 중 산화형 폴리에틸렌 왁스의 사용여부를 정성분석 하였다. 분석에 사용한 기기는 FT-IR Frontier (PerkinElmer, Waltham, MA, USA)이며 400~4,000 cm^{-1} 범위에서 분해능 4 cm^{-1}, 스캔 횟수 4회의 조건으로 측정하였다. 실험의 재현성을 확인하기 위하여 3회 반복하여 측정하였다.

식품 중 산화형 폴리에틸렌 왁스 사용 실태조사

다양한 분석법의 검토결과 산화형 폴리에틸렌 왁스의 정성분석이 가능한 FT-IR 분석법을 이용하여 국내 유통 및 수입식품 중 대상 검체인 과일 및 견과류를 구입하여 산화형 폴리에틸렌 왁스의 사용실태를 조사하였다.

Results and Discussion

산가

유럽식품안전국(European Food Safety Authority, EFSA)에서는 산화형 폴리에틸렌 왁스의 산가기준을 70 미만으로 하고 있으며[5], 미국식품의약국(Food and drug administration, FDA)에서는 9~19로 규정하고 있다[7]. 호주, 뉴질랜드의 사용 허용기준인 250 mg/kg 농도로 산화형 폴리에틸렌 왁스를 첨가한 아몬드 시료와 첨가하지 않은 아몬드 시료, 표준물질 Luwax OA, Luwax OA2의 산가를 측정한 결과, Luwax OA와 Luwax OA2에서 각각 23.5 mg KOH/g, 25.2 mg KOH/g로 나타났다. 아몬드 시료에서는 1.12 mg KOH/g의 산가가 확인되었으나 아몬드에 산화형 폴리에틸렌 왁스를 첨가한 시료 모두에서 산가가 1.12 mg KOH/g로 산가의 변화가 나타나지 않아 호주, 뉴질랜드의 최대 허용기준을 사용하였을 경우 산가 측정결과로는 혼입여부의 판단이 어려울 것으로 판단되었다(Table 2).

Table 2. Acid value of food matrix and oxidized polyethylene wax

Sample	Acid value
Almond (n = 1)	1.12
Almond (n = 2)	1.12
OPEW treated Almond (n = 1)	1.12
OPEW treated Almond (n = 2)	1.12
OPEW	23.50

HT-GPC

산화형 폴리에틸렌 왁스와 같은 합성 고분자 물질은 하나의 분자량을 갖지 않고 많은 분자량의 분포를 이루게 된다. HT-GPC 분석은 합성고분자물질의 분자량을 측정하여 수평균분자량(Mn), 중량평균분자량(Mw)값을 확인하고 분산도[polydispersity (PD), Mn/Mw]의 값을 통해 합성고분자의 중합비를 확인하는 것으로, OPEW 표준물질인 Luwax OA 및 OA2의 수평균분자량 및 중량평균분자량을 측정하여 분자량 범위를 확인하였다(Fig. 1). Luwax OA 및 OA2의 분산도 값이 약 3.4로 나타났으며(Table 3), 수평균분자량 값은 표준물질 성적서의 2,700~2,800 g/mol과 다소 차이가 있었다. 이는 GPC를 이용한 고분자의 분석

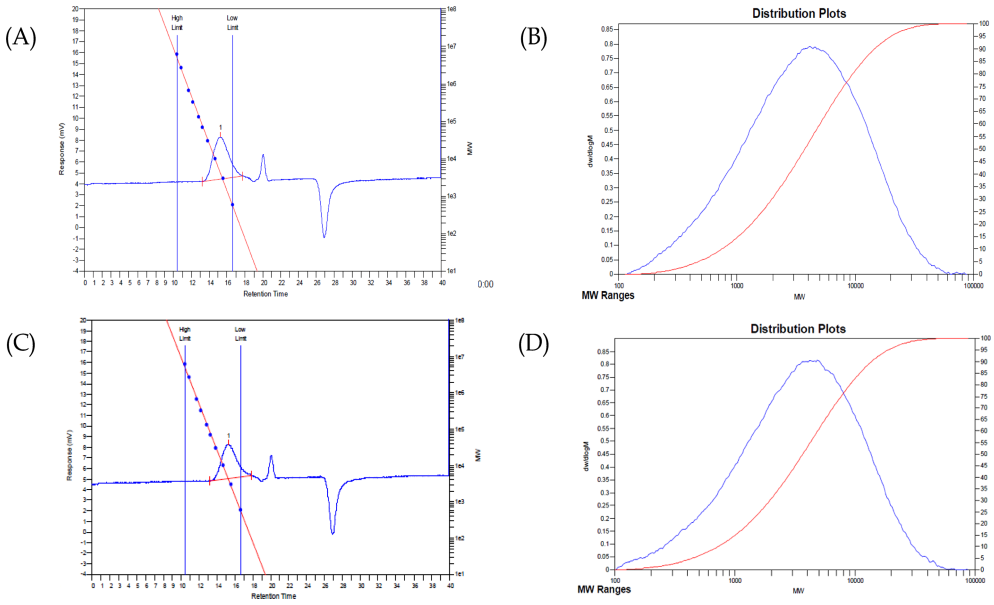

Fig. 1. The results of HT-GPC analysis. (A) chromatogram of Luwax OA, (B) calibration of molecular weight of Luwax OA (C) chromatogram of Luwax OA2, (D) calibration of molecular weight of Luwax OA2.

Table 3. The results of average molecular weight by HT-GPC

Analytes	Mp[1)]	Mn[2)]	Mw[3)]	Mz[4)]	Mv[5)]	PD[6)]
Luwax OA	4084	1784	6057	13889	5203	3.39518
Luwax OA2	4842	1677	5779	12979	4984	3.44603

[1)]Mp: molecular weight corresponding to that of the maximum of the chromatographic peak
[2)]Mn: number average molecular weight
[3)]Mw: weight average molecular weight
[4)]Mz: Z average molecular weight
[5)]Mv: viscosity average molecular weight
[6)]PD: polydispersity

시 컬럼 종류와 같은 분석조건에 따라 분석치가 달라질 수 있으며, 이로 인한 실험실간 재현성이 낮기 때문이다[16]. 따라서 GPC 분석을 통한 고분자 물질의 분자량의 분산도만으로 식품 중 산화형 폴리에틸렌 왁스의 사용여부는 판단하기 어려울 것으로 판단된다.

MALDI-TOF/MS

MALDI-TOF/MS (matrix-assisted laser desorption ionization time of flight mass spectroscopy) 분석방법은 시료 중에 존재하는 불순물에 크게 영향을 받지 않고 일반적으로 시료를 매트릭스와 혼합하여 결정화 시키는 간편한 전처리 방법을 사용하며 주로 생성되는 이온이 단일 전하를 띠는 이온이므로 스펙트럼이 간단해 고분자와 같은 혼합물의 분자량 측정에 사용 된다[17]. 산화형 폴리에틸렌 왁스의 분석을 위한 매트릭스로 합성고분자 측정에 많이 쓰이는 Dithranol, IAA, DHB, CHCA를 사용하여 분석하였다. 또한, 이온화를 돕기 위해 Na^+을 첨가하여 분석하였으나 모든 방법에서 이온화가 이루어지지 않았다. 레이저 세기를 120 이상으로 조사 하였을 경우, 700~2,000 *m/z* 사이에 peak가 관찰되었지만 mass range와 패턴이 산화형 폴리에틸렌 왁스와 다르며 이는 높은 레이저 에너지에 의한 매트릭스 및 주변 물질의 cluster 발생이나 산화형 폴리에틸렌 왁스의 분열로 인한 결과로 판단된다(Fig. 2). 또한, IAA를 매트릭스로 사용한 경우, 600~1,500 *m/z* 사이에서 143 *m/z* 반복 패턴을 보이지만 표준물질인 Luwax OA, OA2의 mass range (2,700~2,800 *m/z*)와 큰 차이를 보였다. 따라서 MALDI-TOF/MS를 이용한 산화형 폴리에틸렌 왁스의 분석은 어려움이 있음이 확인되었다.

GC-FID

식품공전의 지방산분석법을 이용하여 산화형 폴리에틸렌 왁스의 지방산 조성을 확인하였다. 산화형 폴리에틸렌 왁스는 에테르에 용해되지 않고 xylene에 70°C 이상의 온도에서 용해되므로 전처리 시 두 추출용매를 이용하여 비교한 결과 xylene을 사용하였을 때 산화형 폴리에틸렌 왁스 표준물질에서 C11:0, C15:1 지방산이 추출됨을 확인하였다(Fig. 3). 이는 피막제로서 산화형 폴리에틸렌 왁스를 사용할 가능성이 있는 과일 및 견과류에 흔히 볼 수 없는 지방산이지만, 견과류(아몬드) 시료에 호주, 뉴질랜드의 허용기준인 250 ppm과 1,000 ppm농도로 산화형 폴리에틸렌 왁스를 첨가하였을 때 C11:0 및 C15:1 지방산 피크가 관찰되지 않았고, 5,000 ppm 이상 첨가될 경우에만 피크가 관찰되는 점으로 미루어 두 지방산을 이용하여 시료에 산화형 폴리에틸렌 왁스가 사용되었다고 판단하기에 어려움이 있다.

FT-IR

산화형 폴리에틸렌 왁스는 폴리에틸렌(polyethylene, PE)을 산화시켜 제조할 수 있는데, 이때 carbonyl group (C=O)이 형성되어 FT-IR 분석 시 carbonyl band가 나타난다. 따라서 산화형 폴리에틸렌 왁스의 사용 가능성이 있는 과일

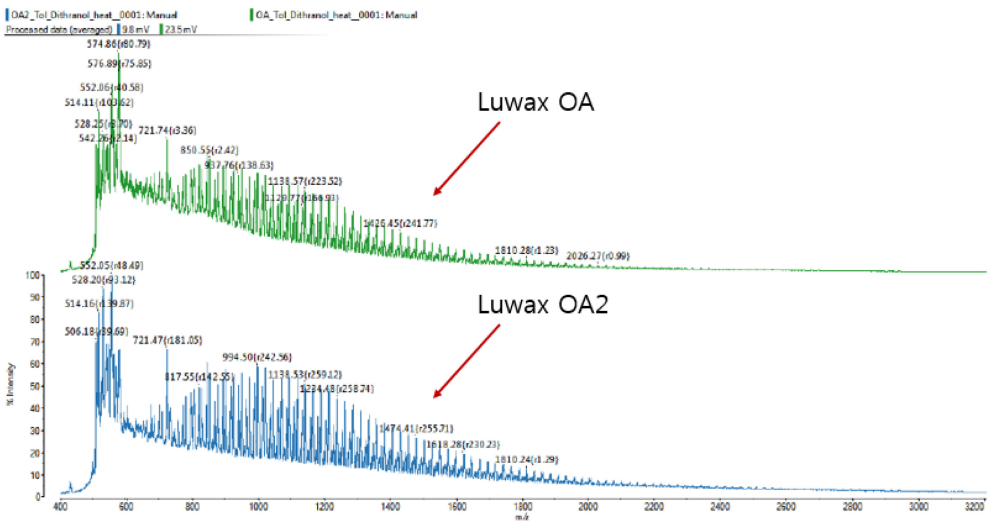

Fig. 2. MALDI-TOF/MS spectrum of OPEW with dithranol matrix.

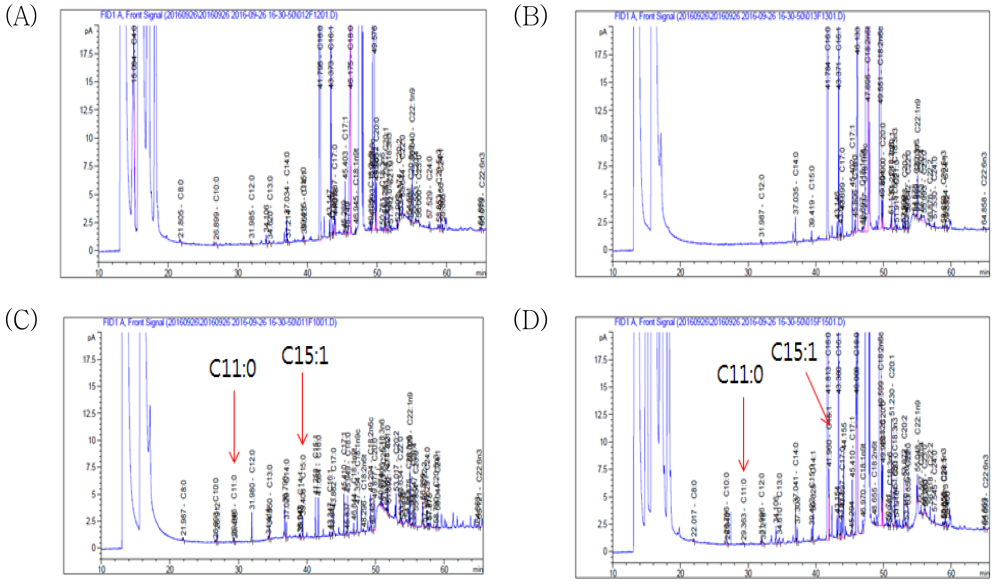

Fig. 3. GC chromatograms of methyl ester of fatty acid. (A) almond, (B) OPEW standard, (C) OPEW spiked with 250 ppm in almond, (D) OPEW spiked with 5,000 ppm in almond.

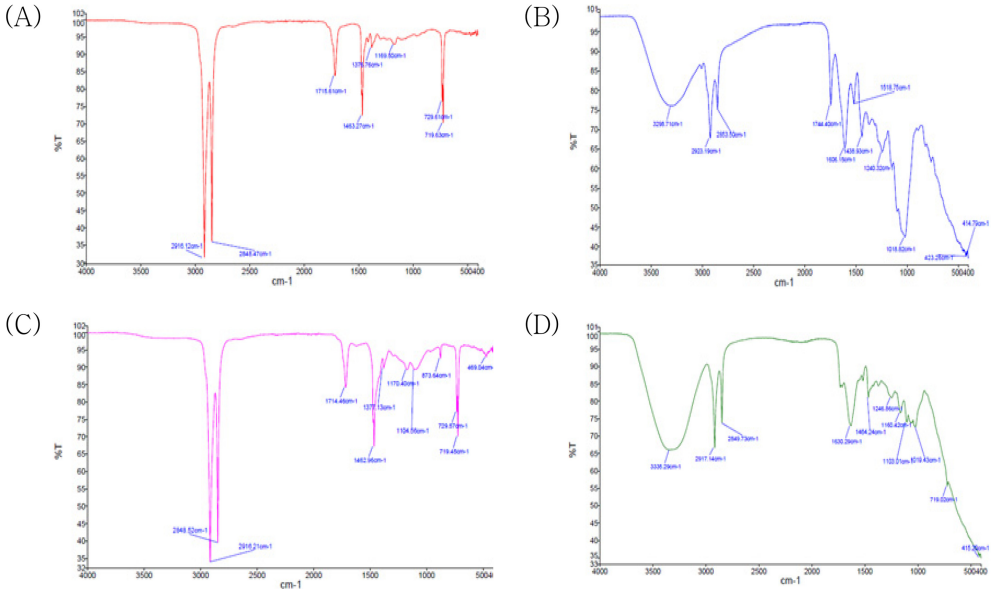

Fig. 4. FT-IR spectrums. (A) OPEW treated almond, (B) almond, (C) OPEW treated mandarin, and (D) mandarin.

(귤, 사과, 미니사과) 및 견과류(땅콩, 아몬드)에 산화형 폴리에틸렌 왁스를 코팅하여 분석한 결과, 산화형 폴리에틸렌 왁스가 코팅된 시료의 표면을 긁어내었을 때에는 FT-IR spectrum에서 carbonyl group (C=O, 1714 cm^{-1}), ester group (C-O, 1463 cm^{-1}), aliphatic group (C-H, 2916 cm^{-1})이 특징적으로 확인되었으며, 과일 및 견과류의 표면을 분석한 결과 C=O, C-O, C-H group이 모두 확인되었고 oxygen group (O-H, 3,300 cm^{-1}) 등이 관찰되었다. 하지만 Fig. 4에서와 같이 산화형 폴리에틸렌 왁스로 피막된 견과류 및 과일의 spectrum (A, C)와 피막 처리되지 않은 과일 표면의 spectrum (B, D)의 spectrum 패턴이 서로 다름을 확인할 수 있었다. 따라서 FT-IR 분석을 이용하여 식품 중 산화형 폴리에틸렌 왁스의 사용여부를 확인하고자 총 111건의 과일 및 견과류 시료의 표면을 긁어내어 FT-IR 분석하여 FT-IR spectrum 패턴을 비교 분석하였다. 그 결과, 실험에 사용된 111건의 시료 중 산화형 폴리에틸렌 왁스를 사용한 시료는 없음을 확인하였다.

Acknowledgement

본 연구는 2016년도 식품의약품안전처(14162MFDS971) 및 2017년도 한국연구재단(NRF-2017R1D1A3B06028469)로 수행되었으며 이에 감사드립니다.

국문요약

본 연구는 국내 미지정 피막제인 산화형 폴리에틸렌 왁스를 분석하기 위해 다양한 분석방법을 비교, 검토하였으며, 확립된 최적 분석법을 이용하여 시중 유통되는 과일 및 견과류에서 산화형 폴리에틸렌 왁스의 사용여부를 모니터링 하였다. 최적 분석법을 확립하기 위하여 산가, HT-GPC, MALDI-TOF/MS, GC-FID, FT-IR 등을 비교하였다. 산가 측정 결과 산화형 폴리에틸렌 왁스를 첨가한 시료와 첨가하지 않은 시료 모두 산가가 1.12 mg KOH/g로 산가의 변화가 나타나지 않아 산가를 이용한 식품 중 산화형 폴리에틸렌 왁스의 분석은 어려울 것으로 판단되었으며, HT-GPC분석은 표준물질의 분산도 값이 약 3.4로 확인되었으며, GPC를 이용한 분석은 실험실간 낮은 재현성과 컬럼 등 분석조건에 따른 결과 값이 달라질 수 있기 때문에 분자량의 분산도만으로 식품 중 산화형 폴리에틸렌 왁스의 분석은 어려울 것으로 판단되었다. MALDI-TOF/MS 분석은 700~2,000 *m/z*에 peak가 관찰되었지만, 산화형 폴리에틸렌 왁스 성적서에 적혀있는 분자량 범위인 2,700~2,800 *m/z*와 큰 차이를 보여, MALDI-TOF/MS를 이용한 분석 역시 어려울 것으로 판단되었다. GC-FID를 이용한 지방산 분석 결과 산화형 폴리에틸렌 왁스 표준물질에서 과일 및 견과류에서 흔히 볼 수 없는 지방산인 C11:0, C15:1 지방산이 검출되었지만, 제외국 허용기준으로 첨가하여 분석하였을 때 관찰되지 않고, 고농도를 첨가할 경우에만 피크가 관찰되어 GC-FID를 이용한 분석은 어려울 것으로 판단되었다. FT-IR 분석결과 코팅된 견과류 시료와 코팅되지 않은 견과류 시료를 비교하였을 때 코팅된 시료에서 산화형 폴리에틸렌 왁스 표준물질의 spectrum과 일치하는 spectrum을 나타내어, 식품 중 산화형 폴리에틸렌 왁스의 분석은 FT-IR로 분석이 가능함을 확인하였다. 확립된 FT-IR 분석법을 이용하여 국내외 대형마트에서 구입한 111건의 과일 및 견과류를 분석한 결과 산화형 폴리에틸렌 왁스를 사용한 시료가 없음을 확인하였다.

References

1. Culbertson, B.M.: Encyclopedia of Polymer Science and Engineering 9: Maleic and fumaric polymers. Wiley-Interscience, New York, pp. 225-294 (1987).
2. Roberts, T.D., Muhlestein, K.D., Slemons, G.T.: Process for the maleation of polyethylene waxes. U.S. Patent 5551974 (1995).
3. Culbertson, B.M. and Trivedi, B.C.: Maleic Anhydride. Plenum Press, New York, pp. 10-14 (1982).
4. Palou, L., Valencia-chamorro, S.A., Pérez-gago, M.B.: Antifungal edible coatings for fresh citrus fruit: a review. *Coatings* **5**, 962-986 (2015).
5. European food safety authority. Scientific opinion on the re-evaluation of oxidised polyethlyene wax (E 914) as a food additive. *EFSA Journal.,* **13**, 4145 (2015).
6. Commission Regulation. No 1333/2008 oxidised polyethylene wax. European union, Brussels, Belgium (2008).
7. Code of federal regulation. 172.260 oxidized polyethlyene. Food and drug adminstration, Silver spring, USA (2016).
8. Permitted uses of food additives by food type. 4.1.2 Surface treated fruits and vegetables. Federal register of legislation, Australia (2015).
9. Korean food additives code. 4. Use level. Ministry of Food and Drug Safety, Osong, Korea (2015).
10. Waś, E., Szczesnaę, T., Rybak-chmielewska, H.: Determination of beeswax hydrocarbons by gas chromatography with a mass detector (GC-MS) technique. *J. Apic. Sci.*, **58**, 145-157 (2014).
11. Bradley, E and Coulier, L.: An investigation into the reaction and breakdown products from starting substances used to produce food contact plastics. Central Science Laboratory (Great Britain), UK (2007).
12. American Standards and Testing Method International. Standard test method for acid number (empirical) of synthetic and natural waxes. West Conshohocken, USA (2004).
13. American Standards and Testing Method International. Standard test method for determining molecular weight distribution and molecular weight averages of polyolefins by high temperature gel permeation chromatography. West Conshohocken, USA (2004).
14. Korean Food Code 9. General test methods. Ministry of Food and Drug Safety, Osong, Korea (2015).
15. Yang C.H.: A study on the synthesis of oxidized polyethylene wax by controlling reaction parameters. *J. of Korean Oil Chemists' Soc.,* **20**, 141-147 (2003).
16. Park K.H.: Important Key Points in GPC Analylis. *Polym. Sci. Technol.,* **19**, 556-561 (2008).
17. Yoo J.S.: MALDI Mass Spectrometry of Synthetic Polymers. *Polym. Sci. Technol.,* **11**, 305-312 (2000).