(19)대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(51) 。Int. Cl.
A23F 3/16 (2006.01)

(11) 공개번호 10-2007-0045137
(43) 공개일자 2007년05월02일

(21) 출원번호 10-2006-0104743
(22) 출원일자 2006년10월26일
심사청구일자 2006년10월26일

(30) 우선권주장 1020050101381 2005년10월26일 대한민국(KR)

(71) 출원인 고려대학교 산학협력단
서울 성북구 안암동5가1 고려대학교 내

(72) 발명자 김경헌
경기 성남시 분당구 정자동 121 상록마을 우성아파트 310-1305
박형석
경남 창녕군 대합면 소야리 672
이희진
경기 안산시 상록구 사동 1345-1 요진아파트 203-101
신민혜
인천 남동구 구월동 342-1 신세계아파트 4-704
김선형
광주 북구 운암동 일신2차 아파트 101동 412호

(74) 대리인 현종철

전체 청구항 수 : 총 6 항

(54) 카페인이 제거된 녹차 분말의 제조방법 및 그 방법에 의해제조된 녹차 분말

(57) 요약

카페인이 제거된 녹차 분말의 제조방법이 제공된다.

본 발명은 카페인이 최대한 제거되고 카테킨의 소실은 최소화되도록 확립된 최적 조건으로 초임계유체 추출하는 것을 특징으로 하며 본 발명에 따른면 녹차에 함유된 카페인은 최대한 제거하면서도 유용성분인 카테킨의 소실은 최소화하여 카페인만 선택적으로 제거된 녹차 분말을 제조할 수 있다.

대표도

도 2

특허청구의 범위

청구항 1.

(a) 건조 녹차 분말을 초임계유체추출기에 공급하는 단계;

(b) 상기 분말에 추출에 사용되는 초임계유체 1kg 당 20~90㎖의 에탄올을 투입하여 침지시키는 단계;

(c) 상기 에탄올에 침지된 녹차 분말에 추출기내 총 공극부피 1ℓ당 70㎖/min~210㎖/min의 부피유속을 갖는 초임계유체를 상기 추출기내의 체류시간이 4~20분의 조건으로 투입하여 60~80℃의 온도, 150~300bar의 압력에서 20~60분간 추출함으로써 카페인을 제거하는 단계;

(d) 상기 (b) 단계 및 (c) 단계를 3 내지 8회 반복하는 단계; 및

(e) 상기 (d) 단계에서 카페인이 제거된 녹차 분말을 건조하는 단계를 포함하는 카페인이 제거된 녹차 분말의 제조방법.

청구항 2.

제1항에 있어서, 상기 초임계유체는 이산화탄소이고 상기 이산화탄소의 부피유속은 77.5㎖/min~204㎖/min인 것을 특징으로 하는 카페인이 제거된 녹차 분말의 제조방법.

청구항 3.

제1항에 있어서, 상기 (d) 단계의 반복회수가 5회인 것을 특징으로 하는 카페인이 제거된 녹차 분말의 제조방법.

청구항 4.

제 1항에 있어서, 상기 (a) 단계의 녹차 분말의 입자크기는 425~1,000㎛인 것을 특징으로 하는 카페인이 제거된 녹차 분말의 제조방법.

청구항 5.

제 1항에 있어서, 상기 (e)단계 이후에, 제2 초임계유체추출기에 카페인이 제거되지 않은 건조 녹차 분말을 공급한 후, 상기 추출기내 총 공극부피 1ℓ당 70㎖/min~210㎖/min의 초임계유체를 상기 추출기내의 체류시간 4~20분의 조건으로 투입하여 30~70℃의 온도, 70~100bar의 압력에서 20~60분간 추출함으로써, 향기성분을 추출한 후, 상기 향기 성분이 함유되어 있는 초임계 유체를 상기 (e)단계가 완료되어 카페인이 제거된 녹차 분말이 들어 있는 초임계유체추출기로 공급하고 온도 및 압력을 상온 및 상압으로 낮춤으로써 상기 카페인이 제거된 녹차 분말의 향기를 복원하는 단계를 더 포함하는 것을 특징으로 하는 카페인이 제거된 녹차 분말의 제조방법.

청구항 6.

제 1항 내지 제 5항 중 어느 한 항의 방법에 따라 제조되고, 초임계유체 추출 전 녹차 분말의 초기함량 대비 카페인의 잔존함량이 40% 미만이고 카테킨의 잔존 함량이 60% 이상인 것을 특징으로 하는 녹차 분말.

명세서

발명의 상세한 설명

발명의 목적

발명이 속하는 기술 및 그 분야의 종래기술

본 발명은 카페인이 제거된 녹차 분말의 제조방법 및 그 방법에 의해 제조된 녹차 분말에 관한 것으로서, 더욱 상세하게는 카페인이 최대한 제거되고 카테킨의 소실은 최소화되도록 확립된 최적 조건으로 초임계유체 추출하는 것을 특징으로 하는 카페인이 제거된 녹차 분말의 제조방법 및 그 방법에 의해 제조된 녹차 분말에 관한 것이다.

녹차는 차나무(*Camellia sinensis*)에서 수확한 차엽을 발효하지 않고 찌거나 볶은 차를 일컫는 것으로 반발효차인 우롱차 및 발효차인 홍차와 구별된다. 녹차의 주요 특이성분으로는 카테킨, 카페인 및 정유성분 등이며, 차나무의 품종, 수확시기 및 차 제조법에 따라 그 성분의 변화가 다양하다.

녹차의 주요성분 중 하나인 카테킨류는 에피갈로카테킨(epigallocatechin: EGC), 에피카테킨(epicatechin: EC), 에피갈로카테킨 갈레이트(epigallocatechin gallate: EGCG), 에피카테킨 갈레이트(epicatechin gallate: ECG) 등으로 구분된다. 상기 카테킨류는 인체에 유익한 여러 가지 생리학적 기능을 가지는 것으로 알려져 있는데, 예를 들어, 항산화(Joshi S et al., *Biomed. Environ. Sci.* 17(4):402-409, 2004; Cai Y J et al., *Chem. Phys. Lipids* 12(1-2):109-117, 2002; Liu Z Q et al., *Chem. Phys. Lipids* 106(1):53-63, 2000), 항암(Moyers S. B et al., *Nutr. Rev.* 62(5):204-211, 2004), 항염증(Tedeschi E et al., *Ann. NY Acad. Sci.* 973:435-437, 2002; Trompezinski S et al., *Arch. Dermatol. Res.* 295(3):112-116, 2003), 항노화(Cooper R. et al., *J. Altern. Complement Med.* 11(3):521-528, 2005), 항균 및 항바이러스(Yanagawa Y et al., *Curr. Microbiol.* 47(3):244-249, 2003; Stapleton P. D. et al., *Int. J. Antimicrob. Agents* 23(5):462-467, 2004; Fassina G. et al., *AIDS* 16(6):939-941, 2002) 활성을 가지고 있는 것으로 보고 되고 있다. 이들 카테킨류 화합물 중 항산화 효과는 에피갈로카테킨 갈레이트(이하 EGCG라 함)이 가장 높고, 에피갈로카테킨(이하 EGC라함), 에피카테킨 갈레이트(이하 ECG라함) 및 에피카테킨(이하 EC라함) 순서로 항산화효과를 보인다는 것이 밝혀졌다.

상술한 바와 같이 녹차의 인체에 대한 유용성이 부각되면서 매년 녹차제품 소비가 증가세를 보이고 있다. 이러한 녹차제품으로는 녹차을 그대로 건조한 제품이외에도 녹차 추출물, 가루녹차 등을 들 수 있다. 이 중에서 가루녹차(녹차 분말)은 아이스크림, 케익 등의 식품은 물론, 화장품 등에도 그 자체로서 첨가할 수 있으며, 티백으로 제조하여 엽차로 사용할 수 있고 인공적인 처리가 가해지지 않은 자연 그대로의 제품이라는 특성 때문에 건강을 중시하는 트렌드에 매우 적합하다. 반면, 녹차를 녹차 추출물의 형태로 제조하는 경우에는 티백으로 사용할 수 없고, 추출액 자체로서 장기 보관하기 어려우며 인공적인 처리가 많이 가해졌기 때문에 화학물질 등이 잔류할 염려가 있는 등의 문제가 있다.

한편, 녹차의 또 다른 주 성분인 카페인은 알칼로이드의 일종으로 중추신경을 흥분시키는 등의 약리작용을 나타내기 때문에 수면억제에 사용되고 있으나, 상기 카페인을 과잉섭취하는 경우에는 신경과민, 구역질, 불면(Hindmarch, I. et al., *Psychopharmacology*, 149(3):203-216, 2000), 임산부의 유산(Giannelli, M et al., *Paediatr Perinat Epidemiol.*, 17(4):316-323, 2003; Rasch, V., *Acta Obstet. Gynecol. Scand.* 82(2):182-188, 2003)과 같은 부작용을 일으키는 것으로 알려져 있다. 따라서, 임산부, 유아, 어린이의 경우에는 카페인의 섭취에 주의가 요망된다.

따라서, 녹차에서 카페인을 제거하고 카테킨 성분만을 추출해내기 위한 방법이 다수 보고 되고 있다. 이러한 방법들 중 유기용매 또는 열수를 이용하여 상기 커피 또는 녹차에서 추출액을 추출한 후에 흡착제를 사용하여 카페인이 제거된 카테킨 추출액을 수득하는 방법이 알려져 있다. 예를 들어, 미국등록특허공보 제6,210,679호에는 물 또는 에탄올을 이용하여 녹차분말을 추출한 후 폴리아미드 흡착제를 사용한 역상 매트릭스 칼럼을 이용하여 카테킨만을 흡착시키고 물을 이용하여 나머지 카페인을 포함한 잉여성분을 세척하여 제거한 후, 에탄올을 전개액으로 사용함으로써 카테킨을 탈착 분리한 다음 이를 증류하여 순수한 카테킨만을 수득하는 방법이 개시되어 있다. 그러나 상기 방법은 순수한 카테킨을 분리 정제하는 방법이므로, 약학적인 용도 또는 식품첨가물 등의 용도로는 사용할 수 있지만, 카페인이 제거된 녹차 분말 자체를 수득할 수는 없기 때문에 근래의 자연치환적인 녹차 열풍 추세에는 적합하지 않다.

또한, 대한민국 공개특허공보 제2005-75349호에는 녹차 추출물에 유기용매 및 물의 중량비가 9/1 내지 1/9인 혼합용액을 혼합하여 용해시킨 후 활성탄 및 산성백토 또는 활성백토와 접촉시킴으로써 카페인만을 선택적으로 제거한 녹차 추출액을 제조하는 방법이 개시되어 있다. 그러나 이 방법 또한 수득되는 산물이 녹차분말이 아니라 녹차 추출액 또는 추출물이기 때문에 상기 미국등록특허와 동일한 문제점이 있다.

한편, 초임계유체를 이용한 추출법은 임계 온도 및 임계 압력 이상에 존재하는 기체와 액체의 중간 성격을 갖는 초임계유체를 사용하여 물질을 분리하는 방법으로서 의약품 공업, 식품공업, 화장품·향료 공업, 화학 공업, 에너지 공업 및 기타 다양한 분야에 응용되고 있다.

예를 들어, 대한민국특허 공고 제1996-7092호에는 초임계유체를 이용하여 원두커피에서 카페인을 제거하는 방법이 개시되어 있는데, 최종산물이 커피추출물이 아니라, 원두커피 자체라는 장점이 있는 반면, 이를 녹차에 그대로 적용하는 경우에는 카페인과 함께 수용성 성분인 카테킨도 함께 제거될 우려가 있다.

발명이 이루고자 하는 기술적 과제

따라서, 본 발명이 이루고자 하는 첫 번째 기술적 과제는 천연 녹차 분말에서 카테킨의 잔존량을 최대로 유지시키면서 카페인만을 선택적으로 제거할 수 있는 카페인이 제거된 녹차 분말의 제조방법을 제공하는 것이다.

본 발명이 이루고자 하는 두 번째 기술적 과제는 상기 방법에 의해 제조된 녹차 분말을 제공하는 것이다.

발명의 구성

본 발명은 상기 첫 번째 기술적 과제를 달성하기 위하여,

(a) 건조 녹차 분말을 초임계유체 추출기에 공급하는 단계;

(b) 상기 녹차 분말에 추출에 사용되는 초임계유체 1kg 당 20~90㎖의 에탄올을 투입하여 침지시키는 단계;

(c) 상기 에탄올에 침지된 녹차 분말에 추출기내 총 공극부피 1ℓ당 70㎖/min~210㎖/min의 부피유속을 갖는 초임계유체를 상기 추출기내의 체류시간이 4~20분의 조건으로 투입하여 60~80℃의 온도, 150~300bar의 압력에서 20~60분간 추출함으로써 카페인을 제거하는 단계;

(d) 상기 (b) 단계 및 (c) 단계를 3 내지 8회 반복하는 단계; 및

(e) 상기 (d) 단계에서 카페인이 제거된 녹차를 건조하는 단계를 포함하는 카페인이 제거된 녹차 분말의 제조방법을 제공한다.

본 발명의 일 실시예에 의하면, 상기 초임계유체는 이산화탄소이고 상기 이산화탄소의 부피유속은 77.5㎖/min~204㎖/min일 수 있다.

본 발명의 다른 실시예에 의하면, 상기 (d) 단계의 반복회수는 5회일 수 있다.

본 발명의 또 다른 실시예에 의하면, 상기 (a) 단계의 녹차 분말의 입자크기는 425~1,000㎛인 것일 수 있다.

본 발명의 바람직한 실시예에 의하면, 본 발명에 따른 카페인이 제거된 녹차 분말의 제조방법은 상기 (e)단계 이후에, 제2 초임계유체추출기에 카페인이 제거되지 않은 건조 녹차 분말을 공급한 후, 상기 추출기내 총 공극부피 1ℓ당 70㎖/min~210㎖/min의 초임계유체를 상기 추출기내의 체류시간 4~20분의 조건으로 투입하여 30~70℃의 온도, 70~100bar의 압력에서 20~60분간 추출함으로써, 향기성분을 추출한 후, 상기 향기 성분이 함유되어 있는 초임계 유체를 상기 (e)단계가 완료되어 카페인이 제거된 녹차 분말이 들어 있는 초임계유체추출기로 공급하고 온도 및 압력을 상온 및 상압으로 낮춤으로써 상기 카페인이 제거된 녹차 분말의 향기를 복원하는 단계를 더 포함하는 것일 수 있다.

본 발명은 상기 두 번째 기술적 과제를 달성하기 위하여,

상기 본 발명에 따른 제조방법에 의해 제조되고, 초임계유체 추출 전 녹차분말 중 초기 카페인 및 카테킨류의 함량에 대해 초임계유체 추출 후 녹차 분말 중 카페인의 함량이 40% 미만이고 카테킨류의 함량이 60% 이상인 것을 특징으로 하는 녹차 분말을 제공한다.

이하 본 발명을 상세하게 설명한다.

본 발명에 따른 카페인이 제거된 녹차 분말의 제조방법은 초임계유체 이외에 조용매를 사용함으로써 카페인은 최대한 제거하면서도 유용성분인 카테킨의 소실을 최소화할 수 있도록 최적화된 조건으로 초임계유체 추출을 수행하는 것을 특징으로 한다. 이하, 본 발명의 방법을 단계별로 설명하면 다음과 같다.

제1단계: 건조 녹차 분말의 초임계유체 추출기로의 공급

본 발명에서 사용되는 녹차란 차의 신선엽을 가열, 유념 및 건조하여 산화효소(polyphenol oxidase)를 불활성화함으로서 제조한 발효하지 않은 차를 말한다. 상기 녹차는 카테킨을 포함한 폴리페놀 함량이 생엽과 동일한 특징을 가진다.

본 발명에서는 녹차에 함유된 카페인의 추출이 보다 용이하게 수행되도록 하기 위하여 녹차를 분쇄하여 분말 형태로 사용한다. 상기 녹차 분말의 입자크기는 특별히 제한되는 것은 아니지만, 425~1,000㎛이 되도록 하는 것이 바람직하다. 입자크기가 425㎛ 미만인 경우에는 녹차 분말을 추출기에 넣을 때 공극률이 너무 감소하여 뭉쳐지는 현상이 발생하여 이산화탄소가 골고루 녹차 입자 사이에 스며들지 않아서 추출효율이 감소할 수 있으며, 입자크기가 1,000㎛를 초과하는 경우에는, 녹차 분말 입자의 내부 물질전달 저항(Internal mass transfer resistance)이 증가하여 녹차에 함유된 카페인의 제거가 원활하게 이루어지지 않아 공정효율이 떨어질 수 있다.

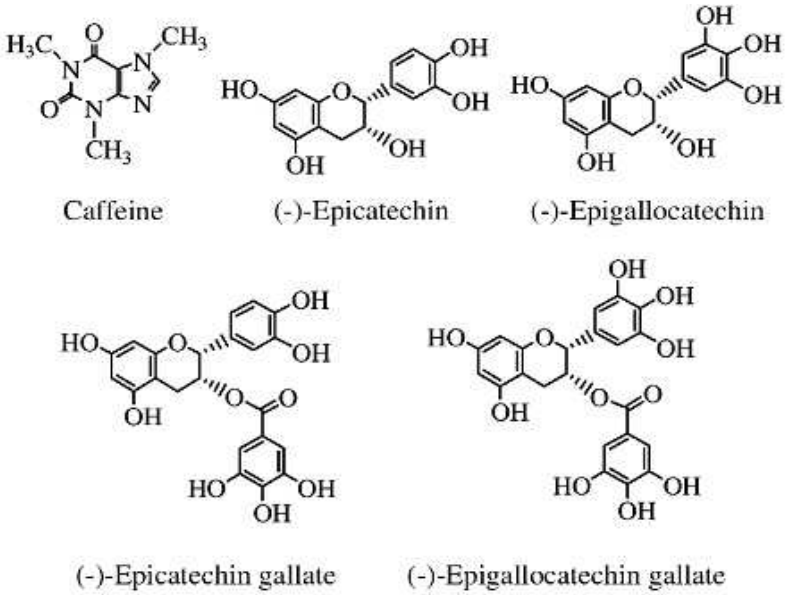
제2단계: 에탄올의 첨가

본 단계는 녹차 분말에 초임계유체 추출의 조용매(cosolvent)로서 에탄올을 첨가하고 녹차 분말을 침지시키는 단계이다. 본 발명에서 '조용매'란 초임계유체 추출시의 추출수율을 개선하기 위해 첨가되는 초임계유체 이외의 용매를 말한다. 상기 에탄올은 초임계유체와 혼합하여 사용하는 것보다 카페인의 선택적 추출효율을 증가시키기 위하여 초임계유체 추출 전에 녹차 분말을 에탄올에 미리 침지시켜 놓는 것이 필요하다. 본 발명에서는 상기 에탄올은 식용 주정을 사용하는 것이 바람직하다.

본 발명의 일 실험예에서는 녹차의 카페인은 제거하면서도 카테킨의 소실을 최소화할 수 있는 최적의 조용매를 결정하기 위하여, 조용매로서 에탄올 또는 물을 사용하여 동일한 공정조건으로 초임계유체 추출을 수행하여 카페인이 제거된 녹차를 수득하고 카페인 및 카테킨 함량을 분석하였다(실험예 2 참조). 그 결과, 조용매로서 물을 사용한 경우가 에탄올을 사용한 경우보다 카페인의 추출이 잘 되지 않는 것으로 나타났으며 카테킨은 오히려 추출이 잘 되는 것으로 나타났다. 따라서, 녹차의 카페인을 선택적으로 제거하기 위한 조용매로는 에탄올을 사용하는 것이 바람직함을 알 수 있었다(표 2 참조).

그 이유는 하기 화학식 1의 카페인과 카테킨의 분자구조를 보면 알 수 있듯이, 카테킨류가 카페인보다 상대적으로 극성이 강하다. 따라서 물보다 극성이 약한 에탄올에 덜 녹게 되고, 카페인은 카테킨류보다 극성이 약하기 때문에 물보다 극성이 약한 에탄올에 더 잘녹게 된다. 즉, 물보다 상대적으로 비극성인 에탄올을 조용매로 사용하게 되면 카페인은 많이 추출되고 카테킨류는 덜 추출되는 것으로 해석할 수 있다.

화학식 1



본 발명에서 상기 에탄올(95%, v/v)의 첨가량은 바람직하게는 초임계유체 1kg에 대하여 20~90㎖, 더욱 바람직하게는 29.4~88.2㎖를 첨가할 수 있다. 이산화탄소에 대한 에탄올의 첨가비가 초임계유체 1kg 당 90㎖를 초과하는 경우에는 녹차에 함유된 카페인 뿐 만 아니라 카테킨의 소실이 증가될 우려가 있고, 초임계유체 1kg 당 20㎖ 미만인 경우에는 카테킨의 소실은 억제되나 카페인의 제거도 원활하게 이루어지지 않는 단점이 있다.

본 발명에서 초임계유체와 조용매인 에탄올의 비율 및 초임계유체의 부피유속과 체류시간이 중요한 요소가 된다. 즉, 본 발명에서는 카페인과 카테킨의 분배계수의 차이에 의해 카페인만이 선택적으로 추출되도록 초임계유체와 조용매의 혼합비율을 조절하였다. 상기 분배계수는 평형점에서 초임계유체 내의 카페인 또는 카테킨의 농도를 최초 녹차 분말 내의 카페인 또는 카테킨 농도로 나눈 값으로 정의된다. 예를 들어, 조용매인 에탄올과 초임계유체인 이산화탄소와의 혼합비율이 29.4~88.2㎖/kg CO_2인 경우 녹차 분말과 상기 초임계유체에 대한 카페인의 분배계수는 70℃, 300bar에서 약 0.03이고 카테킨 분배계수는 약 0.015가 된다. 따라서, 카페인과 카테킨의 분배계수가 차이가 나고 카페인의 분배계수가 더 높으므로 상기 조건에서는 카페인의 추출이 더 효율적으로 일어나 녹차 분말로부터 카페인의 제거정도가 증가하게 된다.

제3단계: 초임계유체 추출

본 단계는 에탄올에 침지된 녹차 분말을 초임계유체를 이용하여 추출하는 단계이다. 본 발명에서 '초임계유체'란 일반적인 조건에서는 기체 상태이나 임계 온도와 임계 압력 이상에서는 유체인 것을 말하며, 본 발명에서 사용될 수 있는 초임계유체는 특별히 제한되는 것은 아니며, 예를 들어, 이산화탄소, 질소, 아산화질소, 메탄, 에틸렌, 프로판 또는 프로필렌 등을 사용할 수 있으나, 이산화탄소는 대량구입이 가능하고, 비교적 저렴하며, 비폭발성이고, 식품가공용으로 충분히 안전하다는 장점 때문에 특히 바람직하다. 상기 이산화탄소는 임계온도가 31℃이고 임계압력이 72.8기압이다.

상기 초임계유체를 이용한 추출은 카페인은 제거되면서도 카테킨의 소실은 최소화되도록 확립한 최적 조건으로 수행할 수 있다. 바람직하게는, 상기 초임계유체 추출은 추출기 내 총 공극부피 1ℓ당 70㎖/min~210㎖/min, 바람직하게는 77.5㎖/min~204㎖/min의 부피유속의 초임계유체를 사용하고, 초임계유체의 추출용기 내 체류시간 4~20분의 조건으로 20~60분간 수행할 수 있다.

추출기 내 총 공극부피란 시료를 제외한 나머지 공간의 부피와 시료 내의 공극의 부피를 합한 개념이다.

시료 내의 공극의 부피는 이하의 방법으로 측정할 수 있다. 100ml짜리 메스실린더에 입자크기 425~710㎛의 녹차 시료 10g을 넣은 후 눈금을 측정하고(21ml) 95% 에탄올(v/v)을 녹차시료 높이 만큼 찰 때까지 넣는 후 얼마만큼 넣었는지 측정한다(13ml). 그 다음 상기 에탄올로 인해 증가된 부피(1ml)를 측정한 다음, 하기식에 대입하여 시료 내의 공극률을 구한다.

$$\text{공극률}(\%)=\{13\text{ml}(\text{에탄올양})-1\text{ml}(\text{증가된부피})\} \div 21\text{ml}(\text{초기시료부피}) \times 100$$

$$=57.14\ \%$$

다음으로, 초기시료부피인 21ml에 상기 공극률인 57.14%를 곱하면 시료 내의 공극부피를 구할 수 있고, 이에 시료를 제외한 나머지 공간의 부피인 79ml를 더하면 추출기 내의 총 공극부피(91ml)를 구할 수 있다.

한편, 초임계 유체의 부피유속은 단위 시간당 어느 정도의 초임계 유체의 부피가 추출기 내의 빈공간과 시료의 공극 사이를 지나게 되는지에 대한 척도인데 이는 질량유속값을 밀도로 나누어 환산하면 구할 수 있다. 상기 부피유속에 영향을 미치는 변수는 압력과 온도인데, 상기 압력 및 온도에 따라 초임계유체의 밀도가 변하기 때문이다. 예를 들어, 100ml(총공극부피 91ml)의 추출기에서 300bar, 70℃, 8.5g/min의 질량유속을 갖는 이산화탄소 초임계유체의 경우 상기 압력 및 온도에서의 이산화탄소의 밀도가 0.78g/cm^3이므로 부피유속은 10.9ml/min에 해당하며, 이는 총 공극부피 91ml에 해당하는 값이므로 이를 총 공극부피 1ℓ에 대한 값으로 환산하면 119.78ml/min이 된다.

또한, 체류시간(Residence Time)이라 함은 상기에서 추출용기 내의 총 공극부피를 초임계유체의 부피유속으로 나누어 구할 수 있다. 예를 들어, 100ml(총공극부피 91ml)의 추출기에서 300bar, 70℃, 10.9ml/min의 부피유속을 갖는 이산화탄소 초임계유체의 경우 체류시간은 8.35분에 해당한다. 상기 체류시간은 이산화탄소의 압력과 온도 및 입자크기에 따라 달라진다.

바람직하게는 본 발명에서 사용되는 초임계유체의 총량은 상기 건조 녹차 분말 1kg에 대하여 20～50kg, 바람직하게는, 30～40kg을 사용할 수 있다.

상기에서 초임계유체의 부피유속이 70㎖/min 미만이고 추출시간이 60분을 초과하는 경우에는 추출시간이 과도하게 소요되어 생산성과 경제성이 떨어지며, 유속이 210㎖/min을 초과하고 추출시간이 20분 미만인 때에는 카페인 제거가 잘 이루어지지 않을 우려가 있다.

상기 체류시간은 4～20분인 것이 바람직한데, 체류시간이 4분 미만인 때에는 카페인의 추출효율이 낮아질 염려가 있고, 20분을 초과하는 때에는 추출공정시간이 불필요하게 길어져 생산성이 낮아지는 문제점이 있다.

한편, 상기 초임계유체 추출시 추출온도 및 추출압력은 주용매로 사용되는 초임계유체가 형성되는 온도 및 압력범위라면 특별히 제한되는 것은 아니지만, 온도는 녹차 분말의 품질에 손상을 줄 정도로 높은 온도는 바람직하지 않으며, 압력 역시 과다하게 고가의 장비를 사용해야 할 정도로 높은 압력은 바람직하지 않다. 예를 들어, 초임계유체로서 이산화탄소를 사용하는 경우에 추출온도 및 압력은 60～80℃ 및 150～300bar가 바람직하다. 특히 후술하는 바와 같이, 온도가 60℃ 미만인 때에는 카페인의 추출속도가 느릴 뿐만 아니라 카테킨의 추출비율과 카페인의 추출비율이 거의 비슷하기 때문에 바람직하지 않다.

제4단계: 추출공정의 반복

본 발명에 따른 카페인이 제거된 녹차 분말의 제조방법은 상기 20～60분간의 추출공정을 3회 내지 8회 반복하는 것에 의해 카페인의 선택적 추출 효율을 높일 수 있다. 이는 추출용기 내의 초임계유체와 조용매인 에탄올의 비율을 초기에 소정의 값으로 조절하더라도 초임계유체를 계속 추출용기에서 흘려줌에 따라 상기 비율이 바뀌기 때문에 이를 조정함으로써 카페인의 선택적 추출비를 증가시키기 위함이다. 후술하는 바와 같이, 3회 반복추출에 사용되는 에탄올 총량을 한번에 투입하고 3회 반복추출시와 동일한 추출공정조건 하에서 상기 3회 반복추출에 소요되는 시간과 동일한 시간동안 한번에 추출하는 경우에는 카페인의 선택적 제거가 어렵다.(실험예 4 참조). 이러한 추출공정은 하나의 추출용기 내에서 반복적으로 이루어질 수 있지만, 복수개의 추출용기를 구비함으로써, 추출공정이 연속적으로 이루어지도록 할 수도 있다. 상기 추출시간이 20분 미만인 때에는 추출이 잘 되지 않을 염려가 있고 60분을 초과하는 때에는 공정효율이 떨어질 수 있다. 도 4에는 본 발명에서 사용되는 추출장치의 사진을 도시하였다.

제5단계: 녹차의 건조

본 단계는 초임계유체 추출이 완료된 녹차를 건조함으로써 시료에 함유된 수분이나 용매 성분을 제거하는 단계이다. 상기에서 건조온도 및 건조시간은 특별히 한정되는 것은 아니며, 예를 들어 80～105℃에서 8～12시간 동안 건조할 수 있다.

제6단계: 향기의 복원

본 단계는 상기 건조된 녹차 분말에 향기를 복원함으로써 풍미를 향상시키는 단계이다. 통상 녹차의 향기는 휘발성 성분으로서 카페인 제거시에 상당량이 함께 제거되기 때문에 카페인이 제거되기 이전과 카페인이 제거된 이후의 녹차 분말의 풍미의 차이가 없도록 하는 공정을 추가적으로 수행하는 것이 바람직하다.

따라서, 본 단계에서는 카페인이 제거된 녹차 분말이 들어 있는 상기 초임계유체추출기와 별도로 제2 초임계유체추출기를 구비하고 카페인이 제거되지 않은 건조 녹차 분말을 공급한 후, 상기 추출기내 총 공극부피 1ℓ당 70㎖/min～210㎖/min의 초임계유체를 상기 추출기내의 체류시간 4～20분의 조건으로 투입하여 30～70℃의 온도, 70～100bar의 압력에서 20～60분간 추출함으로써, 향기성분을 추출한 후, 상기 향기 성분이 함유되어 있는 초임계 유체를 공급라인을 통하여 상기 카페인이 제거된 녹차 분말이 들어 있는 초임계유체추출기로 공급하고 온도 및 압력을 상온 및 상압으로 낮춤으로써 상기 카페인이 제거된 녹차 분말의 향기를 복원한다.

초임계유체추출기와 제2 초임계유체추출기의 크기는 같거나 다를 수 있으나, 동일한 크기로 설정하는 것이 후술하는 바와 같이 공정효율상 바람직하다. 향기 성분을 추출하는 상기 제2 초임계유체추출기 내에는 조용매인 에탄올을 사용하지 않고 단순히 초임계유체만을 사용하며 30～70℃의 온도, 70～100bar의 압력에서 향기 성분을 추출하는데, 상기 추출온도 및 추출압력은 초임계유체가 형성되는 온도 및 압력범위라는 조건과 휘발성인 향기 성분만이 추출되어야 하고 카페인 및 카테킨이 함께 추출되지 않아야 한다는 조건을 만족해야 한다. 초임계유체로서 이산화탄소를 사용하는 경우에 추출온도 및

압력은 30~70℃ 및 70~100bar인데 온도가 70℃를 초과하거나 압력이 100bar를 초과하는 때에는 향기 성분과 함께 카페인 및 카테킨이 추출될 염려가 있으며 따라서, 후속 공정에서, 이미 카페인이 제거된 녹차 분말에 다시 카페인이 흡착될 염려가 있다.

한편, 향기 성분이 포함되어 있는 초임계유체는 이미 카페인이 제거된 녹차 분말이 들어 있는 상기 초임계유체추출기로 공급된 후 상기 초임계유체추출기의 온도 및 압력을 상온 및 상압으로 낮추게 되는데, 이는 향기 성분의 초임계유체에 대한 용해도를 낮추어 녹차 분말에 대한 상기 향기 성분의 흡착량을 증가시키기 위함이다.

본 발명에 따른 카페인이 제거된 녹차 분말의 제조에서는 상기 초임계유체추출기(제1 초임계유체추출기)와 제2 초임계유체추출기를 구비하고 최초에 상기 제1 초임계유체추출기에서 카페인을 제거한 후에, 상기 제2 초임계유체추출기에서 향기 성분을 추출한 후 이를 상기 제1 초임계유체추출기로 공급하여 향기를 복원한 다음, 다시 상기 향기 성분이 추출되고 남은 녹차 분말이 담겨 있는 제2 초임계유체추출기에 에탄올을 투입하여 녹차 분말을 침지시키고 압력 및 온도를 조절함으로써 카페인을 제거한 후, 상기 제1 초임계유체추출기에 새로이 카페인이 제거되지 않은 녹차 분말을 투입하여 향기 성분을 추출하는 연속적인 공정에 의하는 것이 공정효율면에서 바람직하다. 즉, 카페인이 제거되지 않은 녹차 분말은 향기 성분 추출공정과 카페인 제거 공정 및 향기 복원 공정을 차례로 거침으로써 최종적으로 카페인이 제거된 녹차 분말을 얻을 수 있다.

본 발명에 따른 카페인이 제거된 녹차 분말은 초임계유체 추출 전 녹차 분말의 초기 함량 대비 카페인의 잔존 함량 비율이 40% 미만이고 카테킨의 잔존 함량 비율이 60% 이상인 것을 특징으로 한다. 상기 카페인 함량과 카테킨의 함량은 본 발명에 따른 추출공정을 몇 회 반복하느냐에 따라 조절이 가능한데, 카테킨의 함량을 최대로 유지시키면서 카페인의 함량을 최저로 조절할 경우 초임계유체 추출 전 녹차 분말의 초기 함량 대비 카페인인 잔존 함량이 10% 정도이고 카테킨의 잔존 함량이 60% 이상인 녹차 분말을 제조할 수 있다.

따라서, 본 발명에 따라 제조된 녹차 분말은 소량의 카페인을 함유하면서도 천연 녹차 분말에 함유되어 있는 카테킨을 60% 이상 함유하고 있기 때문에 녹차의 유용한 효능을 그대로 유지시키면서도 카페인에 의한 부작용을 억제할 수 있다.

이하, 바람직한 실시예를 들어 본 발명을 더욱 상세히 설명하지만, 본 발명이 이에 의해 제한되는 것은 아니다.

<실시예 1>

건조 녹차(두물차, 보성녹차시험장, 한국) 20g을 막자사발로 분쇄한 다음 710㎛ 체를 통과하되 425㎛ 체에 걸리는 입자를 추출시료로 사용하였다. 상기에서 분쇄된 녹차 중 10g을 취하고 여기에 조용매로서 에탄올(식용 주정 95%, v/v)을 주용매인 이산화탄소에 대해 29.4㎖/kg CO_2에 해당하는 양 만큼 첨가하여 골고루 혼합하고 녹차가 침지되도록 하였다. 에탄올에 침지된 녹차를 100㎖의 초임계 추출용기에 넣고 추출압력 300bar, 추출온도 70℃, 이산화탄소 유속 8.5g/min(이는 추출용기 내 총 공극부피 1ℓ당 119.78ml CO_2/min의 부피유속에 해당함), 체류시간 8.35분의 조건으로 초임계유체 추출을 40분간 수행하였다. 그 다음 상기 조용매 침지 및 초임계유체 추출단계를 동일한 조건으로 3회 반복 수행하였다. 마지막으로 상기 녹차 분말을 회수하고 105℃의 건조오븐에서 12시간 동안 건조하여 수분 및 에탄올 성분을 제거하였다.

<실시예 2>

초임계유체 추출단계를 4회를 수행한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 녹차 분말을 제조하였다.

<실시예 3>

초임계유체 추출단계를 5회를 수행한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 녹차 분말을 제조하였다.

<실시예 4>

초임계유체 추출단계를 6회를 수행한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 녹차 분말을 제조하였다.

<실시예 5>

초임계유체 추출단계를 7회를 수행한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 녹차 분말을 제조하였다.

<실시예 6>

초임계유체 추출단계를 8회를 수행한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 녹차 분말을 제조하였다.

<실시예 7>

조용매로서 에탄올(식용 주정 95%, v/v)을 88.2㎖/kg CO_2에 해당하는 양으로 첨가하여 녹차 분말을 침지시킨 것을 제외하고는 상기 실시예 3과 동일한 방법으로 녹차 분말을 제조하였다.

<실시예 8>

건조 녹차(두물차, 보성녹차시험장, 한국) 20g을 막자사발로 분쇄한 다음 710㎛ 체를 통과하되 425㎛ 체에 걸리는 입자를 추출시료로 사용하였다. 상기에서 분쇄된 녹차 중 10g을 취하고 초임계 추출용기에 넣고 추출압력 100bar, 추출온도 50℃, 이산화탄소 유속 8.5g/min(이는 추출용기 내 총 공극부피 1ℓ당 119.78ml CO_2/min의 부피유속에 해당함), 체류시간 8.35분의 조건으로 초임계유체 추출을 수행하며 향기 성분을 추출하고 상기 추출용기에서 흘러나오는 이산화탄소를 상기 실시예 1에서 제조된 카페인이 제거된 녹차 분말이 들어 있는 또 다른 초임계 추출용기에 공급하고 40분간 흡착단계를 거쳐 향기가 복원된 녹차 분말을 얻었다.

<비교예 1>

초임계유체 추출단계를 1회만 수행한 것을 제외하고 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 녹차 분말을 제조하였다.

<비교예 2>

초임계유체 추출단계를 2회만 수행한 것을 제외하고 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 녹차 분말을 제조하였다.

<비교예 3>

조용매로서 에탄올 대신에 물을 29.4㎖/kg CO_2에 해당하는 양으로 첨가하여 녹차 분말을 침지시킨 것을 제외하고는 상기 실시예 6과 동일한 방법으로 녹차 분말을 제조하였다.

<비교예 4>

조용매로서 에탄올 대신에 물을 88.2㎖/kg CO_2에 해당하는 양으로 첨가하여 녹차 분말을 침지시킨 것을 제외하고는 상기 실시예 7과 동일한 방법으로 녹차 분말을 제조하였다.

<비교예 5>

초임계유체추출 온도를 50℃로 낮춘 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 녹차 분말을 제조하였다.

<비교예 6>

건조 녹차(두물차, 보성녹차시험장, 한국) 20g을 막자사발로 분쇄한 다음 710㎛ 체를 통과하되 425㎛ 체에 걸리는 입자를 추출시료로 사용하였다. 상기에서 분쇄된 녹차 중 10g을 취하고 여기에 조용매로서 에탄올(식용 주정 95%, v/v)을 주용매인 이산화탄소에 대해 88.2㎖/kg CO_2에 해당하는 양 만큼 첨가하여 골고루 혼합하고 녹차가 침지되도록 하였다. 에탄올에 침지된 녹차를 100㎖의 초임계 추출용기에 넣고 추출압력 300bar, 추출온도 70℃, 이산화탄소 유속 8.5g/min(이는 추출용기 내 총 공극부피 1ℓ당 119.78ml CO_2/min의 부피유속에 해당함), 체류시간 8.35분의 조건으로 초임계유체 추출을 120분간 수행하였다. 마지막으로 상기 녹차 분말을 회수하고 105℃의 건조오븐에서 12시간 동안 건조하여 수분 및 에탄올 성분을 제거하였다.

<실험예 1>

카페인을 제거한 녹차의 카페인 및 카테킨 함량 분석

카페인이 제거되지 않은 녹차 분말과, 상기 실시예 1 내지 6, 비교예 1 및 2에서 카페인을 제거한 녹차 분말에 대하여 카페인, 에피카테킨(EC), 에피갈로카테킨(EGC), 에피갈로카테킨 갈레이트(EGCG) 및 에피카테킨 갈레이트(ECG)의 함량을 HPLC를 이용하여 분석하였다.

이를 위해 먼저 HPLC 분석용 시료를 다음과 같은 방법으로 제조하였다. 건조 녹차(두물 덖음차, 보성녹차 시험장, 한국) 10g을 막자사발에 넣고 분쇄한 다음 425㎛의 체를 통과한 분쇄물 200mg을 취한 후 100㎖ 용량의 삼각 플라스크에 넣고 30%(v/v) 에탄올 수용액 20㎖를 첨가하였다. 또한, 실시예 1 내지 6, 비교예 1 및 비교예 2에서 수득한 녹차에도 동일하게 에탄올 수용액을 첨가하였다. 이를 교반형 항온수조(바이오프리, 한국)에 넣고 100rpm으로 교반하면서 35℃에서 30분 동안 추출하였다. 추출이 완료된 후 이를 여과지(110㎛, Advantec)로 여과한 후 여과액을 13,000rpm, 4℃에서 10분간 원심분리하였다. 상등액을 회수하고 주사 여과기(Hydrophilic PTEE, Advantec, Dublin, CA, 미국)로 재여과하여 바이알에 넣은 후 분석 시까지 -70℃에서 보관하였다.

HPLC 분석은 Hypersil ODS 컬럼(5㎛, 4.6 × 100mm, Thermo Electron Corporation, Bellefonte, PA, 미국)을 이용하였으며 이동상으로는 0.5%(v/v) 초산 수용액(A 용매)과 30%(v/v) 아세토나이트릴을 0.5%(v/v) 초산에 용해한 용액(B 용매)을 사용하였고 농도구배(gradient)를 주었다. 농도구배 조건으로는 B 용매를 0%에서 100%로 25분간 변화시켰다. 컬럼 오븐의 온도는 20℃로 하였고 실험의 시작과 종료시 온도를 40℃로 유지시켰다. 성분의 검출은 UV/비져블 검출기(UV/Visible detector)를 사용하여 280nm에서 수행하였다. 분석을 독립적으로 7회 수행한 후 분석결과를 평균± 표준편차로 나타내었다.

HPLC로 분석된 시료의 카페인 및 카테킨의 곡선 면적을 농도로 환산하기 위하여 카페인(100%), 에피카테킨(97%), 에피갈로카테킨(98.3%), 에피갈로카테킨 갈레이트(94.4%) 및 에피카테킨 갈레이트(99.5%)(Sigma, 미국)를 물에 용해하여 각 농도별로 희석한 후 HPLC로 분석하여 표준곡선을 작성하였으며, 분석결과를 하기 표 1, 도 1a, 도 1b 및 도 2에 나타내었다.

[표 1]

	카페인 및 카테킨 함량(mg/g 건조녹차) (초기함량 대비 잔존농도 비%)					
	카페인	EGC	EC	EGCG	ECG	총카테킨
추출전의 녹차 분말	37.04±0.67 (100)	83.48±2.61 (100)	10.01±0.20 (100)	138.42±2.98 (100)	25.63±1.02 (100)	257.54±1.70 (100)
비교예 1	27.55±1.45 (74.39±3.93)	58.60±3.00 (76.86±1.53)	8.00±0.92 (80.03±1.22)	121.46±2.10 (87.75±1.41)	22.42±1.34 (87.49±1.26)	210.48±1.84 (81.72±1.35)
비교예 2	22.93±1.30 (61.97±3.53)	49.53±2.53 (59.34±2.60)	6.98±0.06 (69.86±1.02)	121.17±2.78 (87.54±1.24)	22.39±1.94 (91.27±1.57)	200.07±1.82 (77.68±1.60)
실시예 1	14.02±0.40 (37.91±1.08)	44.16±1.03 (52.90±1.04)	6.53±0.13 (65.30±1.30)	106.58±3.33 (74.25±3.24)	20.04±0.87 (78.21±3.40)	177.31±1.34 (68.84±2.24)
실시예 2	9.68±0.62 (26.18±1.69)	41.81±0.28 (50.08±0.34)	5.95±1.29 (59.50±1.99)	103.25±2.60 (74.59±1.88)	19.34±0.10 (75.46±0.40)	170.35±1.06 (66.14±1.15)
실시예 3	7.98±0.08 (21.42±0.27)	37.81±1.22 (45.28±1.03)	5.75±0.96 (57.50±2.62)	103.05±5.22 (74.46±3.77)	19.12±1.09 (74.60±1.27)	165.73±2.12 (64.35±2.17)
실시예 4	4.03±0.08 (10.90±0.23)	37.02±0.58 (44.35±0.70)	5.71±1.44 (57.10±1.49)	102.54±2.36 (74.08±1.70)	17.67±0.75 (68.94±0.92)	162.94±1.28 (63.26±1.20)
실시예 5	3.19±0.15 (8.63±0.42)	35.01±0.72 (41.94±0.86)	5.46±0.72 (54.54±1.23)	99.57±1.54 (71.93±1.09)	16.79±0.80 (65.51±1.13)	156.83±0.94 (60.90±1.07)
실시예 6	3.03±0.14 (8.21±0.38)	34.12±0.59 (40.87±0.71)	5.31±0.26 (53.04±1.60)	98.78±1.81 (71.36±1.12)	16.19±1.09 (63.17±1.11)	154.40±0.93 (60.00±1.13)

실험 결과, 본 발명의 방법에 따라 초임계유체 추출을 수행하여 제조한 녹차 분말의 경우 카페인 함량은 초임계유체 추출 전 녹차 분말에 함유된 초기함량에 대비 잔존함량의 비율이 8.21% 내지 37.91%인데 비해, 카테킨류는 초기함량 대비 잔존함량의 비율이 60.07% 내지 68.99%로 나타났다. 특히, 항산화효과가 가장 뛰어난 EGCG의 함량은 초기함량 대비 잔존함량 비율이 70% 이상인 것으로 나타났다. 이로부터 본 발명의 방법에 따라 초임계유체 추출을 수행하는 경우 녹차 중에 함유된 카페인이 최대한 제거되면서도 카테킨의 소실은 최소화됨을 확인할 수 있다. 반면, 비교예 1 및 2의 경우 카페인이 카테킨보다 많이 제거되기는 하였지만, 그 제거율이 그다지 높지 않은 것으로 나타났다.

<실험예 2>

녹차의 카페인을 선택적으로 제거하기 위한 최적 조용매의 결정

녹차의 카페인은 제거하면서도 카테킨의 소실을 최소화할 수 있는 최적의 조용매를 결정하기 위하여, 실시예 6, 7 및 비교예 3, 4에 의해 제조된 녹차 분말에 대하여 상기 실험예 1과 동일한 방법으로 카페인 및 카테킨의 함량을 분석하고 그 결과를 하기 표 2에 나타내었다.

[표 2]

	카페인 및 카테킨 함량(mg/g 건조녹차) (초기농도 대비 잔존농도 비%)					
	카페인	EGC	EC	EGCG	ECG	총카테킨
실시예 6	3.03±0.14 (8.21±0.38)	34.12±0.59 (40.87±0.71)	5.31±0.26 (53.04±1.60)	98.78±1.81 (71.36±1.12)	16.19±1.09 (63.17±1.11)	154.40±0.93 (60.00±1.13)
실시예 7	3.73±0.15 (10.09±0.41)	32.01±2.74 (38.28±3.40)	3.68±0.46 (36.86±4.67)	70.38±1.85 (50.85±1.34)	10.77±0.31 (42.05±1.23)	116.84±1.34 (45.36±2.66)
비교예 3	20.85±0.40 (56.36±1.07)	14.52±0.39 (17.40±0.47)	5.08±0.32 (50.81±3.13)	70.39±1.41 (50.64±1.02)	16.59±0.14 (64.73±0.55)	106.58±0.49 (41.38±1.29)
비교예 4	7.79±0.17 (21.05±0.44)	0.00±0.00 (0.00±0.00)	1.07±0.28 (10.70±2.80)	44.68±1.05 (32.28±0.62)	11.35±0.12 (44.29±0.36)	57.10±0.36 (22.17±0.94)

실험 결과, 조용매로서 물을 사용하는 경우 에탄올을 사용하는 경우에 비해 카페인이 훨씬 적게 추출되는 것으로 나타났다. 또한, 물을 사용하는 경우 녹차 분말에서 카테킨의 소실율이 카페인의 소실율과 동일하거나 오히려 높기 때문에 카페인만을 선택적으로 제거할 수 없다는 것을 알 수 있었다. 특히, 비교예 4의 경우 EGC가 완전히 소실되어 잔존량이 없는 것으로 나타났다.

따라서, 녹차에 함유된 카페인만을 선택적으로 제거하기 위해서는 에탄올을 조용매로 사용하는 것이 바람직함을 알 수 있었다.

<실험예 3>

녹차의 카페인을 선택적으로 제거하기 위한 최적 온도의 결정

녹차의 카페인은 제거하면서도 카테킨의 소실을 최소화할 수 있는 최적의 온도를 결정하기 위하여, 실시예 1 및 비교예 5에 의해 제조된 녹차 분말에 대하여 상기 실험예 1과 동일한 방법으로 카페인 및 카테킨의 함량을 분석하고 그 결과를 하기 도 3에 도시하였다. 도 3을 참조하면, 비교예 5의 경우 카페인과 카테킨의 제거율에서 큰 차이가 없기 때문에 카페인만을 선택적으로 제거하기 어려운데 반하여 실시예 1에서는 카페인의 함량이 37.91%임에 반해 카테킨의 총함량은 68.84%이므로 선택적인 카페인 제거가 가능하다는 것을 확인할 수 있다.

<실험예 4>

녹차의 카페인을 선택적으로 제거하기 위한 공정조건의 결정

상기 비교예 6에 의해 제조된 녹차 분말에 대하여 실험예 1과 동일한 방법으로 카페인 및 카테킨의 함량을 분석하고 그 결과를 하기 표 3에 도시하였다.

[표 3]

	카페인 및 카테킨 함량(mg/g 건조녹차) (초기농도 대비 잔존농도 비%)					
	카페인	EGC	EC	EGCG	ECG	총카테킨
비교예 6	1.12 ± 0.21 (2.71±0.50)	60.32 ± 0.11 (41.52±0.08)	17.57± 2.24 (21.55±2.75)	3.34±0.59 (55.61±9.92)	8.29 ± 0.21 (30.41±0.79)	89.52±2.94 (34.42±1.13)

상기 표 3에서 알 수 있듯이, 비교예 6에 의하면 빠른 시간 내에 많은 양의 카페인을 제거할 수 있지만, 카테킨류의 제거량도 높기 때문에 카페인만을 선택적으로 제거하기 어렵다는 것을 확인할 수 있다. 즉, 동일한 에탄올의 양을 사용하더라도 본 발명에서와 같이 에탄올을 소정의 양씩 분배하여 반복추출하는 것이 카페인의 선택적 제거에 유리하다.

<실험예 5>

관능테스트

카페인이 제거되지 않은 녹차 분말과 실시예 8에 의해 제조된 녹차 분말에 대하여 전문적인 5명의 관능시험자를 선정하여 풍미를 테스트한 결과 양자간에 거의 차이가 없다는 것을 확인하였다.

발명의 효과

본 발명에 따른 초임계유체를 이용한 녹차 카페인의 선택적 제거방법은 녹차에 함유된 카페인은 최대한 제거하면서도 유용성분인 카테킨의 소실을 최소화하여 카페인만 선택적으로 제거된 녹차 분말을 제조하는 효과가 있다.

도면의 간단한 설명

도 1a는 본 발명의 방법에 따라 카페인을 선택적으로 제거하기 전의 녹차 분말에 대한 HPLC 분석 결과이다.

도 1b는 본 발명의 일 실시예에 따라 카페인을 선택적으로 제거한 후의 녹차 분말에 대한 HPLC 분석 결과이다.

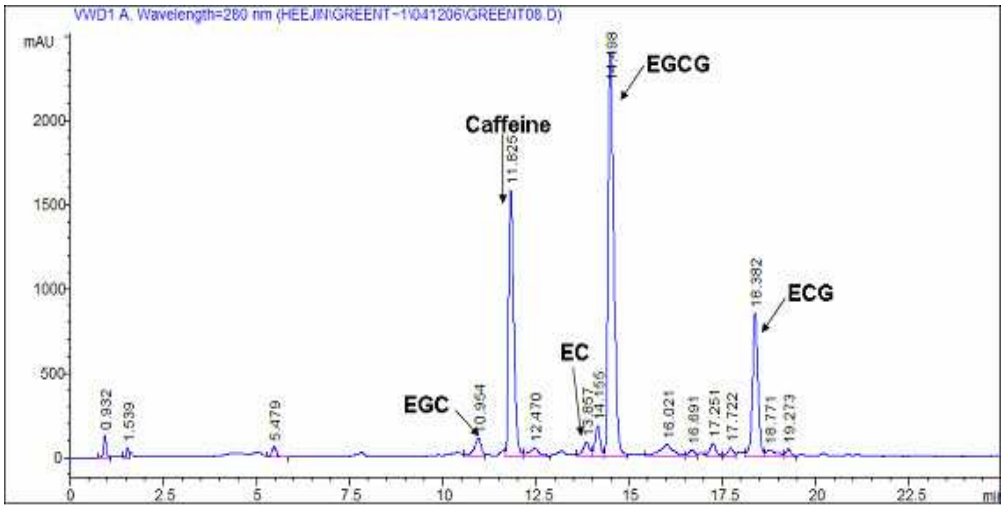
도 2는 본 발명의 일 실시예 및 비교예에서 제조된 녹차 분말의 카페인 및 카테킨의 함량을 분석한 결과이다.

도 3은 본 발명의 실시예 1 및 비교예 5에서 제조된 녹차 분말의 카페인 및 카테킨의 함량을 분석한 결과이다.

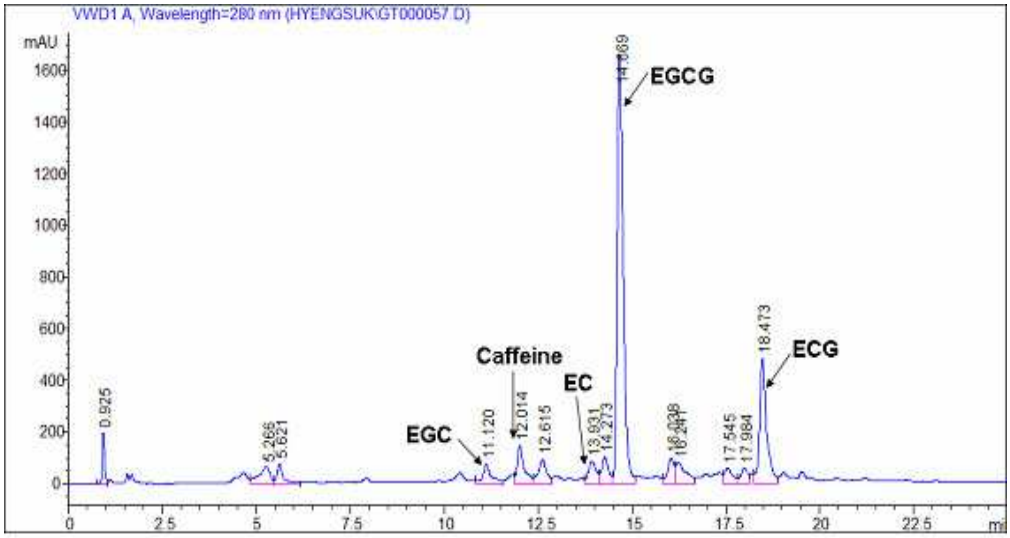
도 4는 본 발명에서 사용되는 추출장치의 사진이다.

도면

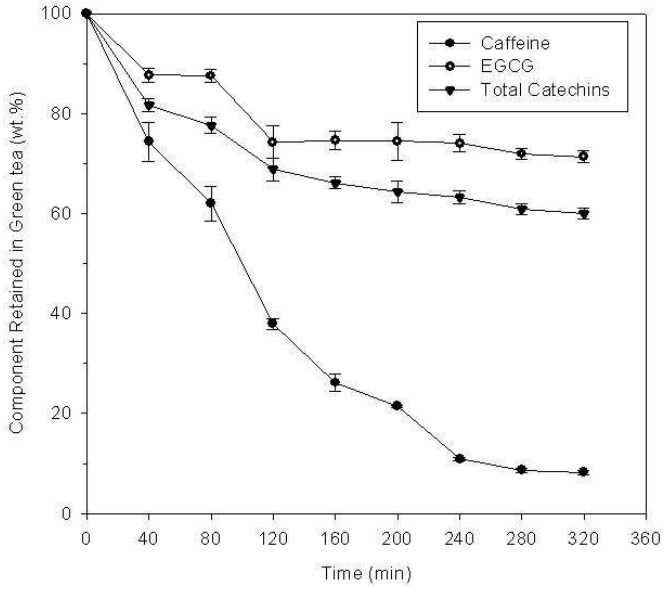
도면1a


VWD1 A, Wavelength=280 nm (HEEJIN\GREENT~1\041206\GREENT08.D)
mAU
EGCG
Caffeine
EC
ECG
EGC
0.932
1.539
5.479
10.964
11.625
12.470
13.857
14.155
14.698
16.021
16.891
17.251
17.722
18.382
18.771
19.273

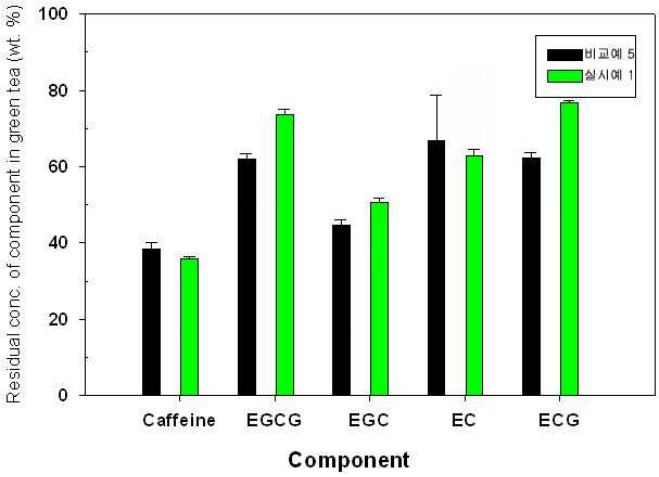
도면1b


VWD1 A, Wavelength=280 nm (HYENGSUK\GT000057.D)
mAU
EGCG
Caffeine
EC
ECG
EGC
0.925
5.266
5.621
11.120
12.014
12.615
13.931
14.273
14.669
16.038
16.247
17.545
17.984
18.473

도면2


Caffeine
EGCG
Total Catechins
Component Retained in Green tea (wt.%)
Time (min)
0
20
40
60
80
100
0
40
80
120
160
200
240
280
320
360

도면3


비교예 5
실시예 1
Residual conc. of component in green tea (wt. %)
Component
Caffeine
EGCG
EGC
EC
ECG
0
20
40
60
80
100

도면4

