

(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2023-0121199

(43) 공개일자 2023년08월18일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)

A23F 3/38 (2006.01) *A23F 3/18* (2006.01)*A23F 3/20* (2006.01)

(52) CPC특허분류

A23F 3/385 (2013.01)*A23F 3/18* (2013.01)

(21) 출원번호 10-2022-0017102

(22) 출원일자 2022년02월09일

심사청구일자 2022년02월09일

(71) 출원인

경희대학교 산학협력단

경기도 용인시 기흥구 덕영대로 1732 (서천동, 경희대학교 국제캠퍼스내)

(72) 발명자

김호철

서울특별시 동대문구 천장산로11길 17 삼성래미안 아파트 1차 204동 1103호 (이문동, 이문삼성래미안아파트)

김영식

서울특별시 송파구 백제고분로37길 8 (석촌동)

윤준

경기도 광명시 오리로975번길 7, 태산하우징 303호 (광명동)

(74) 대리인

특허법인한얼

전체 청구항 수 : 총 12 항

(54) 발명의 명칭 벤토나이트 여과법을 이용한 고탍량 카테킨 함유 디카페인 차류의 제조방법

(57) 요약

본 발명은 벤토나이트 여과법을 이용한 고탍량 카테킨 함유 디카페인 차류의 제조방법 및 상기 방법으로 제조된 디카페인 차류에 관한 것이다.

대표도 - 도1



(52) CPC특허분류

A23F 3/205 (2013.01)

A23F 3/42 (2013.01)

A23V 2002/00 (2023.08)

A23V 2300/02 (2013.01)

A23V 2300/14 (2013.01)

A23V 2300/26 (2013.01)

명세서

청구범위

청구항 1

녹차, 홍차 및 보이차로 구성된 군으로부터 선택되는 차류의 추출물을 벤토나이트와 접촉시키는 단계를 포함하는, 벤토나이트와 접촉시키지 않은 차류의 추출물에 비해 카페인 함량은 90% 이상 감소되고, 총 카테킨 함량은 88% 내지 135% 수준으로 유지 또는 증가된 것인, 디카페인 차류의 제조방법.

청구항 2

제1항에 있어서,

상기 차류의 추출물은 차류의 원물로부터 추출한 원액, 이의 희석액, 이의 농축액, 이로부터 수득한 건조물, 또는 이들 중 어느 한 성분을 포함하는 용액인 것인, 제조방법.

청구항 3

제1항에 있어서,

여과하여 벤토나이트를 제거하는 단계, 건조하는 단계, 또는 둘 모두를 추가로 포함하는 것인, 제조방법.

청구항 4

제1항에 있어서,

용액 상에서 교반하여 수행하는 것인, 제조방법.

청구항 5

제4항에 있어서,

상기 교반은 20분 내지 1시간 동안 수행하는 것인, 제조방법.

청구항 6

제1항에 있어서,

상기 차류의 추출물은 차류 원물을 0 내지 60% 에탄올 용액으로 환류 추출한 것인, 제조방법.

청구항 7

제1항에 있어서,

상기 차류의 추출물은 10 mg/mL 이상의 농도인 것인, 제조방법.

청구항 8

제1항에 있어서,

상기 벤토나이트는 차류의 추출물에 포함된 건조물 중량을 기준으로 2배 내지 50배의 중량으로 사용하는 것인, 제조방법.

청구항 9

제1항에 있어서,

상기 차류의 추출물은 원물을 최초로 환류 추출한 1차 여과액, 상기 1차 여과액으로부터의 잔류물을 추가로 추출하여 수득한 2차 여과액, 또는 1차 여과액과 상기 2차 여과액의 혼합물인 것인, 제조방법.

청구항 10

차류의 추출물 자체에 비해 카페인 함량은 90% 이상 감소되고, 총 카테킨 함량은 88% 내지 135% 수준으로 유지 또는 증가된, 녹차, 홍차 및 보이차로 구성된 군으로부터 선택되는 디카페인 차류.

청구항 11

제10항에 있어서,

제1항 내지 제9항 중 어느 한 항의 방법으로 제조된 것인, 디카페인 차류.

청구항 12

제10항에 있어서,

차류 추출물 자체의 색상을 동등하게 유지하는 것인, 디카페인 차류.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 벤토나이트 여과법을 이용한 고함량 카테킨 함유 디카페인 차류의 제조방법 및 상기 방법으로 제조된 디카페인 차류에 관한 것이다.

배경 기술

[0003] 동서양에서 오랫동안 기호음료로 음용되어 온 녹차, 홍차 및 보이차에 대한 연구가 계속되어 오면서 녹차, 홍차 및 보이차에 다량 함유되어 있는 카테킨 성분의 혈중 콜레스테롤 저하, 체지방 감소 효과가 주목받고 있으며, 특히 녹차, 홍차 및 보이차의 카테킨 중 EGCG(Epigallocatechin gallate)와 ECG(Epicatechin-3-gallate) 성분은 다른 카테킨류 성분보다 더욱 강한 활성을 나타내는 것으로 알려져 있다. 하루 약 3 내지 5g 녹차, 홍차 및 보이차 원물 섭취는 다양한 암 예방에 도움을 줄 수 있다는 보고도 있다. 이러한 녹차, 홍차 및 보이차의 다양한 효과를 바탕으로 최근에는 카테킨 성분을 고함량 함유한 녹차, 홍차 및 보이차 원물 및 추출물을 이용한 건강기능식품, 의약품 등의 개발도 활발하게 이뤄지고 있다. 그러나, 찻잎, 특히 어린 찻잎에는 카테킨이 다량 함유되어 있는 동시에 카페인도 약 5% 정도 함유되어 있는데, 카페인은 중추신경 흥분을 유도할 수 있어 수면 억제, 속쓰림, 신경과민 등의 부작용을 야기할 수 있다. 이 때문에, 카테킨의 함량을 높이면서 카페인을 제거하는 EGCG/ECG 고함유, 디카페인 녹차, 홍차 및 보이차 추출물의 제조방법에 대한 연구가 활발하게 이뤄지고 있다. 식약처에서는 "식품 등의 표시기준 - III. 개별표시사항 및 표시기준 - 1.식품 - 자. 음료류 (1) 다류, (2) 커피"에서 카페인 함량을 90% 이상 제거한 제품은 탈카페인(디카페인) 제품으로 표시할 수 있다고 기재하여 다류

와 커피의 디카페인 기준을 제시한 바 있다.

[0004] 기존에 사용되어 온 디카페인 제법으로는 에틸아세테이트 등 비극성이 높은 유기용매를 이용해서 분획하거나 열수를 이용해서 카페인을 먼저 용출시키거나 초임계 추출법을 이용해 카페인을 제거하는 방법이 보고되어 있다. 그러나 기존 방법은 제조공정 상 설비 부하가 과대하거나 최종 제품의 유기용매의 잔류문제가 있을 수 있으며, 수율이 낮아 대량 제조 공정에서 효율성이 낮다는 단점이 있다. 이 방법들은 카페인을 제거할 수 있지만 카테킨, 특히 활성이 높은 EGCG와 ECG의 함량도 함께 낮아질 수 있다. 또한, 활성백토 또는 산성백토를 이용해서 카페인을 선택적으로 제거하는 방법도 보고되어 있으나, 색상이 악화되는 문제가 있다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0006] 본 발명자들은 90% 이상의 카페인을 제거하되 카테킨 함량은 유지 또는 증가시킨 차류의 제조방법을 발굴하고자 예의 연구 노력한 결과, 차류의 추출물을 벤토나이트와 접촉시킴으로써 카페인 함량은 현저히 감소된 한편 카테킨 함량은 차류의 추출물 자체와 동등 수준을 유지하거나 보다 증가된 차류를 제조할 수 있음을 확인하고, 본 발명을 완성하였다.

과제의 해결 수단

[0008] 본 발명에서 개시되는 각각의 설명 및 실시형태는 각각의 다른 설명 및 실시 형태에도 적용될 수 있다. 즉, 본 발명에서 개시된 다양한 요소들의 모든 조합이 본 발명의 범주에 속한다. 또한, 하기 기술되는 구체적인 서술에 의하여 본 발명의 범주가 제한된다고 할 수 없다.

[0009] 또한, 당해 기술분야의 통상의 지식을 가진 자는 통상의 실험만을 사용하여 본 발명에 기재된 본 발명의 특정 양태에 대한 다수의 등가물을 인지하거나 확인할 수 있다. 또한, 이러한 등가물은 본 발명에 포함되는 것으로 의도된다.

[0010] 아울러, 본 발명의 명세서 전체에 있어서, 어떤 부분이 어떤 구성 요소를 "포함"한다고 할 때, 이는 특별히 반대되는 기재가 없는 한 다른 구성 요소를 제외하는 것이 아니라 다른 구성 요소를 더 포함할 수 있는 것을 의미한다.

[0012] 이하, 본 발명을 보다 자세히 설명한다.

[0014] 본 발명의 제1양태는 녹차, 홍차 및 보이차로 구성된 군으로부터 선택되는 차류의 추출물을 벤토나이트와 접촉시키는 단계를 포함하는, 벤토나이트와 접촉시키지 않은 차류의 추출물에 비해 카페인 함량은 90% 이상 감소되고, 총 카테킨 함량은 88% 내지 135% 수준으로 유지 또는 증가된 것인, 디카페인 차류의 제조방법을 제공한다.

[0015] 예컨대, 본 발명의 제조방법은 상기 방법에 의해 벤토나이트와 접촉시키지 않은 차류의 추출물에 비해 카페인 함량이 90% 내지 100% 감소된 디카페인 차류를 제공할 수 있다. 예컨대, 본 발명의 제조방법에 따라 제조되는 디카페인 차류는 벤토나이트와 접촉시키지 않은 차류의 추출물에 비해 카페인 함량이 90% 내지 98%, 또는 90 내지 97% 감소된 것일 수 있으나, 이에 제한되지 않는다.

[0017] 본 발명의 용어, "카페인(caffeine)"은 알칼로이드의 일종인 메틸크산틴 계열의 중추신경계통 각성제로서, 가장 널리 사용되는 향정신성 약물(psychoactive drug)이다. 카페인은 쓴맛이 있는 백색의 결정성 퓨린으로 화학적으로 DNA 및 RNA의 아데닌, 구아닌 염기와 관련이 있다. 카페인은 커피, 차, 콜라 등의 음료에 함유되어 있고, 주로 졸음을 완화하거나 예방하고 각성 효과를 나타내기 위해 섭취한다. 이와 같이 카페인은 긍정적인 효과를 기대하고 섭취하기도 하지만, 어떤 사람들은 카페인을 섭취하면 수면 장애나 불안을 겪기도 하며, 임산부에 좋지 않은 영향을 끼치는 것으로 알려져 있다. 따라서, 이러한 사람들을 위한 기호식품으로서 카페인이 다량 제거된,

디카페인 제품이 생산되고 있다.

- [0018] 본 발명의 용어, "디카페인(decaffeine, decaffeination)"은 커피콩, 코코아, 차잎 등과 같이 카페인을 함유하는 물질로부터 카페인을 제거하는 과정을 지칭한다. 이와 같이 디카페인 과정을 거친 제품을 디카페인 또는 탈카페인 제품이라 칭하는데, 식약처에서는 "식품 등의 표시기준 - III. 개별표시사항 및 표시기준 - 1.식품 - 자. 음료류 (1) 다류, (2) 커피"에서 카페인 함량을 90% 이상 제거한 제품을 탈카페인(디카페인) 제품으로 표시할 수 있다고 기재하여 다류와 커피의 디카페인 기준을 제시하고 있다.
- [0019] 본 발명의 용어, "카테킨(catechin)"은 폴리페놀의 일종인 항산화제로서, 식물의 2차대사물이다. 이는 플라보노이드(flavonoids)의 화학적 패밀리의 일부분인 플라반-3-올(flavan-3-ols) 군에 속하는 화합물이다. 흔히 녹차를 마실때 느끼게 되는 떫고 씹쌀한 맛을 내는 물질로서 통상 타닌이라고도 불린다. 특히 녹차의 타닌 성분을 카테킨이라고 하는데, 이는 커피나 감, 포도 등의 타닌과는 상이하다. 이러한 카테킨 성분은 체지방 감소는 물론 인체의 노화를 늦추며, 암의 예방 및 치료에 탁월한 효과를 지닌다. 예컨대, 카테킨은 비타민 E의 20배에 해당하는 항산화 작용을 발휘하며 이에 따라 활성산소의 생성 및 효소 작용을 저해하여 노화를 방지하는 한편 다양한 생리기능을 활발하게 함으로써 당뇨병이나 고혈압, 동맥경화, 심근경색 등 활성산소로 인해 유발되는 다양한 질환의 발병률을 낮추는 것으로 알려져 있다. 뿐만 아니라 카테킨은 손상된 세포의 노화를 늦추고 새로운 세포의 재생을 촉진함으로써 멜라닌 색소 축적을 막아 미백효과를 발휘하기도 한다.
- [0020] 예컨대, 상기 카테킨은 EGCG(Epigallocatechin gallate) 및 ECG(Epicatechin-3-gallate)를 주로 포함할 수 있으나, 이에 제한되지 않는다.
- [0021] 상기 "EGCG(Epigallocatechin gallate)"는 카테킨의 일종으로 에피갈로카테킨과 갈산(gallic acid)의 에스테르 유도체이며, 강력한 항산화 작용을 하는 것으로 알려져 있다. 또한 EGCG는 차류 중의 가장 풍부한 카테킨인 폴리페놀로서 인간 건강 및 질환에 영향을 미치며, 다양한 건강보조식품에 사용되고 있다. 이의 인체에 대한 유의한 효과가 있다고 알려져 있으며, 구체적으로, 신종플루 등에 작용하여 항바이러스 효과를 발휘하여 치료효과를 나타내기도 하며, 전립선암의 성장을 저해하고, 백혈병을 치료하며, 당뇨를 예방 및 지연하고, 고지혈증이나 동맥경화를 예방하는 효과를 갖는다고 알려져 있다.
- [0022] 상기 "ECG(Epicatechin-3-gallate)"는 플라보노이드류의 플라반-3-올로서, 녹차, 메밀, 및 포도 등에 존재한다고 알려져 있다. 이는 다른 많은 플라보노이드와 마찬가지로, 다소 친화력이 낮기는 하나, 오피오이드 수용체의 비선택적 길항제로 작용하는 것이 확인되었다. ECG는 강력한 자유라디칼제거제로서 콜라게나아제와 엘라스타아제 효소를 억제함으로써 노화방지 효과를 나타낼 수 있다. 또한, 인간의 결장직장(colorectal) 세포에 항증식효과를 나타내므로 암의 화학요법에 사용될 수 있다.
- [0023] 본 발명의 용어, "벤토나이트(bentonite)"는 주로 몬모릴로나이트로 구성된 흡수성 팽창 점토(adsorbent swelling clay)이다. 벤토나이트는 화산재가 바다의 해수와 함께 다져져서 재결정화되는 퇴적암작용에 의해 형성된 점토광물(aluminum silicate clay)로서 미립자 구조를 가지며 양이온 교환성이 탁월하고 팽윤성이 뛰어나다. 많은 양의 물의 흡수해 원래 부피의 최대 12배까지 팽윤되며 점도가 높아 젤과 같은 상태가 된다. 벤토나이트는 제지 공정 등에 수처리 용도로 사용되거나, 과립형 동물사료 등에 바인더로 사용되기도 하며, 강도 변화 없이 혼합물 처리를 향상시키고 가소성을 증가시키기 위해 시멘트 혼합물에 첨가하기도 하는 등 다양한 분야에 사용되고 있다.
- [0025] 예컨대, 본 발명의 제조방법에 사용되는 상기 차류의 추출물은 차류의 원물로부터 추출한 원액, 이의 희석액, 이의 농축액, 이로부터 수득한 건조물, 또는 이들 중 어느 한 성분을 포함하는 용액일 수 있으나, 이에 제한되지 않는다.
- [0027] 예컨대, 본 발명의 제조방법은 여과하여 벤토나이트를 제거하는 단계, 건조하는 단계, 또는 둘 모두를 추가로 포함할 수 있다. 이외에 상품의 품질 개선 및/또는 보관/취급의 용이성 등을 위한 추가적인 처리 공정도 포함할 수 있으나, 이에 제한되지 않는다.
- [0029] 예컨대, 본 발명의 제조방법은 용액 상에서 수행할 수 있다. 나아가, 차류의 추출물 및 벤토나이트를 포함하는

용액을 교반함으로써 접촉을 촉진시킬 수 있으나, 이에 제한되지 않는다.

- [0031] 예컨대, 본 발명의 제조방법에 있어서, 상기 교반은 20분 내지 1시간 동안 수행할 수 있으나, 이에 제한되지 않는다.
- [0032] 본 발명의 구체적인 실시예에서는, 교반 시간이 증가함에 따라 카페인 제거율이 증가하는 것을 확인하였다.
- [0034] 예컨대, 본 발명의 제조방법에 있어서, 상기 차류의 추출물은 차류 원물을 0 내지 60% 에탄올 용액으로 환류 추출한 것일 수 있으나, 이에 제한되지 않는다.
- [0035] 본 발명의 구체적인 실시예에서는, 다양한 함량의 에탄올을 용매로 사용하여 추출한 추출물에 대해 상기 공정을 적용한 결과, 추출 용매의 에탄올 함량이 낮을수록 카페인 제거율이 증가하는 것을 확인하였다.
- [0037] 예컨대, 본 발명의 제조방법에 있어서, 상기 차류의 추출물은 10 mg/mL 이상의 농도일 수 있으나, 이에 제한되지 않는다.
- [0038] 본 발명의 구체적인 실시예에서는, 다양한 농도의 차류 추출물에 대해 상기 공정을 적용한 결과, 추출물의 농도가 높을수록 카페인 제거율이 증가하는 것을 확인하였다.
- [0040] 예컨대, 본 발명의 제조방법에 있어서, 상기 벤토나이트는 차류의 추출물에 포함된 건조물 중량을 기준으로 2배 내지 50배의 중량으로 사용할 수 있으나, 이에 제한되지 않는다.
- [0041] 본 발명의 구체적인 실시예에서는, 다양한 중량비로 벤토나이트를 첨가하여 상기 공정을 수행한 결과, 추출물의 건조물 중량에 대한 벤토나이트의 사용량이 증가할수록 카페인 제거율이 증가하는 것을 확인하였다.
- [0043] 예컨대, 본 발명의 제조방법에 있어서, 상기 차류의 추출물은 원물을 최초로 환류 추출한 1차 여과액, 상기 1차 여과액으로부터의 잔류물을 추가로 추출하여 수득한 2차 여과액, 또는 1차 여과액과 상기 2차 여과액의 혼합물일 수 있으나, 이에 제한되지 않는다.
- [0044] 본 발명의 구체적인 실시예에서는, 환류 추출을 반복 수행하여 본 발명의 공정을 수행하였을 때, 보다 적은 양의 벤토나이트로도 우수한 카페인 제거 효과를 달성할 수 있음을 확인하였다.
- [0046] 본 발명의 제2양태는 차류의 추출물 자체에 비해 카페인 함량은 90% 이상 감소되고, 총 카테킨 함량은 88% 내지 135% 수준으로 유지 또는 증가된, 녹차, 홍차 및 보이차로 구성된 군으로부터 선택되는 디카페인 차류를 제공한다.
- [0048] 예컨대, 본 발명의 디카페인 차류는 제1양태의 방법에 따라 제조될 수 있으나, 이에 제한되지 않는다.
- [0050] 나아가, 본 발명의 디카페인 차류는, 디카페인화 이전의 차류 추출물 자체의 색상을 동등하게 유지하는 것을 특징으로 한다. 상기 디카페인 차류가 식품류의 일종임을 고려할 때, 원물 추출물의 색상을 유지하는 것은 소비자의 선택에 영향을 미치는 중요한 요소일 수 있다.
- [0051] 본 발명의 구체적인 실시예에서는 벤토나이트와 접촉시켜 디카페인화한 경우 차류, 예컨대 보이차의 원물 추출물의 색상을 동등하게 유지하는 반면, 벤토나이트 대신에 백토 또는 몬모릴로나이트 등의 다른 점토류와 접촉시킨 경우에는 여과하여 상기 점토류를 제거한 이후에서 원물 추출물의 색상과는 상이한 회색 내지는 검은색을 띠는 것을 확인하였다(도 1).

발명의 효과

[0053] 본 발명의 제조방법은 차류의 추출물을 포함하는 용액에 벤토나이트를 첨가하여 접촉시킨 후 여과하는 간단한 공정으로 카페인 함량은 90% 이상 감소시키면서 유용한 카테킨 함량은 차류 추출물 자체와 유사 또는 보다 증가된 함량으로 포함하는 차류를 제공할 수 있다. 특히, 동일한 방법을 커피에 적용한 경우에 비해 차류에서 10% 이상 높은 카페인 제거율을 나타내는 바, 선택적으로 디카페인 차류의 제조에 유용하게 적용할 수 있다.

도면의 간단한 설명

[0055] 도 1은 차류의 원물 추출액에 다양한 점토류를 가한 후 여과하여 수득한 여과액의 색상을 나타낸 도이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0056] 이하 본 발명을 실시예를 통하여 보다 상세하게 설명한다. 그러나 이들 실시예는 본 발명을 예시적으로 설명하기 위한 것으로 본 발명의 범위가 이들 실시예에 한정되는 것은 아니다.

[0058] 실시예 1: 환류 추출 용매 중의 에탄올 함량에 따른 효과

[0060] 추출 용매에 따른 효과를 확인하기 위하여, 각각 0%, 30%, 50% 및 70% 에탄올을 이용하여 환류 추출하여 동결건조한 보이차 분말을 100 mg 취하여, 5 mL의 50% 메탄올에 용해시켜 준비하였다. 상기 각 용액에 벤토나이트를 500 mg 씩 첨가하여 30분 동안 교반한 후 여과하고, 여과액을 동결건조하여 추출물을 제조하였다. HPLC를 이용하여, 벤토나이트 처리 전과 후 시료에 대해 상기 추출물 중의 카페인 및 EGCG, ECG 등의 카테킨 함량을 측정하고, 이로부터 카페인 제거율 및 카테킨류의 보유율을 산출하여, 하기 표 1에 나타내었다. 표 1에 나타난 바와 같이, 50% 이하의 에탄올로 환류 추출한 시료들은 90% 이상의 카페인 제거율을 나타내는 동시에 98% 이상의 총 카테킨 보유율을 나타내었다.

표 1

벤토나이트 첨가량 (mg)	추출조건 (% EtOH)	카페인 함량 (mg/g)	총 카테킨 함량 (mg/g)	EGCG 함량 (mg/g)	ECG 함량 (mg/g)	카페인 제거율 (%)	총 카테킨 보유율 (%)	EGCG 보유율 (%)	ECG 보유율 (%)
-	0	63.6	138.7	51.9	44.6	-	-	-	-
	30	66.7	232.6	94.8	76.7				
	50	67.7	263.7	112.4	84.5				
	70	74.2	298.0	124.1	92.1				
500 (5배)	0	4.4	136.4	51.5	42.4	93.0	98.3	99.1	95.1
	30	5.9	229.4	93.2	75.7	91.2	98.6	98.3	98.7
	50	6.5	259.3	109.7	83.4	90.4	98.3	97.6	98.7
	70	8.7	290.1	120.4	90.9	88.2	97.4	97.0	98.8

[0063] 실시예 2: 벤토나이트 처리 시간에 따른 효과

[0065] 벤토나이트 처리 시간에 따른 효과를 확인하기 위하여, 50% 에탄올을 이용하여 환류 추출하여 동결건조한 보이차 분말을 100 mg 취하여, 상기 실시예 1에서와 같이, 벤토나이트를 첨가되 교반시간을 각각 10분 및 30분으로 조절하였다. 벤토나이트 처리 전과 후 시료에 대해 상기 추출물 중의 카페인 및 EGCG, ECG 등의 카테킨 함량을 측정하고, 이로부터 카페인 제거율 및 카테킨류의 보유율을 산출하여, 하기 표 2에 나타내었다. 표 2에 나타난 바와 같이, 30분 동안 교반하여 충분히 접촉시킨 경우 90.4%의 카페인 제거율을 나타내는 동시에 약 98.3%의 총 카테킨 보유율을 나타낸 반면, 단지 10분 동안 교반한 경우에는 88.3% 이하로 감소된 카페인 제거율을 나타내었다. 이는 동일한 양의 벤토나이트를 사용하더라도 접촉 시간을 충분히 길게 함으로써 증가된 카페인 제거율

을 달성할 수 있음을 나타낸다.

표 2

교반시간 (분)	추출물 농도 (mg/mL)	벤토나 이트 첨가량 (mg)	카페인 함량 (mg/g)	총 카테킨 함량 (mg/g)	EGCG 함량 (mg/g)	ECG 함량 (mg/g)	카페인 제거율 (%)	총 카테킨 보유율 (%)	EGCG 보유율 (%)	ECG 보유율 (%)
-	20	-	67.7	263.7	112.4	76.7	-	-	-	-
10	(5배)	500	7.9	268.8	112.2	86.9	88.3	101.9	99.9	102.8
30			6.5	259.3	109.7	83.4	90.4	98.3	97.6	98.7

실시예 3: 벤토나이트 첨가량에 따른 효과

50% 에탄올을 이용하여 환류 추출하여 동결건조한 보이차 분말을 50 mg 취하여, 5 mL의 50% 에탄올에 용해시켜 준비하였다. 상기 용액에 각각 250 mg, 500 mg, 1.0 g, 및 2.0 g의 벤토나이트를 첨가하여 30분 동안 교반한 후 여과하고, 여과액을 동결건조하여 추출물을 제조하였다. HPLC를 이용하여, 벤토나이트 처리 전과 후 시료에 대해 상기 추출물 중의 카페인 및 EGCG, ECG 등의 카테킨 함량을 측정하고, 이로부터 카페인 제거율 및 카테킨류의 보유율을 산출하여, 하기 표 3에 나타내었다. 표 3에 나타난 바와 같이, 추출물 농도 10 mg/mL 용액에 대해 추출물 중량의 20배 이상 중량의 벤토나이트를 첨가한 경우 92% 이상의 카페인 제거율을 나타내는 동시에 88% 이상의 총 카테킨 보유율을 나타내었다. 반면, 동일 농도의 추출물 용액에 대해 추출물 중량의 10배 이하 중량으로 벤토나이트를 첨가한 경우 카페인 제거율은 90%의 감소된 값을 나타내었다. 이는 농도가 일정한 보이차 추출물의 카페인 제거 공정에 사용되는 벤토나이트의 양이 증가함에 따라 카페인 제거율이 증가함을 나타낸다.

표 3

추출물 농도 (mg/mL)	벤토나이트 첨가횟수	벤토나이트 첨가량 (mg)	카페인 함량 (mg/g)	총 카테킨 함량 (mg/g)	EGCG 함량 (mg/g)	ECG 함량 (mg/g)	카페인 제거율 (%)	총 카테킨 보유율 (%)	EGCG 보유율 (%)	ECG 보유율 (%)
10 (5 mL)	-	-	65.9	283.1	85.5	73.7	-	-	-	-
	1회	250 (5배)	11.0	254.2	76.3	66.4	83.3	89.8	89.3	90.1
		500 (10배)	7.0	258.1	75.0	65.3	89.3	91.2	87.7	88.7
		1000 (20배)	5.0	254.8	77.4	67.7	92.5	90.0	90.5	91.9
		2000 (40배)	4.2	249.5	75.3	69.4	93.6	88.1	88.1	94.2

실시예 4: 추출물 농도에 따른 효과

추출 용액 중 추출물의 농도에 따른 효과를 확인하기 위하여, 50% 에탄올을 이용하여 환류 추출하여 동결건조한 보이차 분말을 25 mg, 50 mg 및 100 mg 씩 취하여, 각각 5 mL의 50% 에탄올에 용해시켜 준비하였다. 상기 각각의 용액에 500 mg의 벤토나이트를 첨가하여 30분 동안 교반한 후 여과하고, 여과액을 동결건조하여 추출물을 제조하였다. HPLC를 이용하여, 벤토나이트 처리 전과 후 시료에 대해 상기 추출물 중의 카페인 및 EGCG, ECG 등의 카테킨 함량을 측정하고, 이로부터 카페인 제거율 및 카테킨류의 보유율을 산출하여, 하기 표 4에 나타내었다. 표 4에 나타난 바와 같이, 추출물 농도가 10 mg/mL 이하인 용액에 대해서는 추출물 중량의 10배 또는 20배 중량의 벤토나이트를 첨가여도 90%의 카페인 제거율을 달성하지 못한 반면 추출물 용액의 농도가 20 mg/mL 이상인

경우 동일 중량의 벤토나이트(추출물 중량의 5배)를 첨가여도 93% 이상의 높은 카페인 제거율을 나타내었다. 이는 동일 중량의 벤토나이트를 사용하더라도 보다 높은 농도의 보이차 추출물 용액을 이용함으로써 카페인 제거율을 향상시킬 수 있음을 나타낸다.

표 4

추출물 농도 (mg/mL)	벤토나이트 첨가횟수	벤토나이트 첨가량 (mg)	카페인 함량 (mg/g)	총 카테킨 함량 (mg/g)	EGCG 함량 (mg/g)	ECG 함량 (mg/g)	카페인 제거율 (%)	총 카테킨 보유율 (%)	EGCG 보유율 (%)	ECG 보유율 (%)
	-	-	65.9	283.1	85.5	73.7	-	-	-	-
5	1회	500	13.4	274.7	83.3	71.6	79.6	97.1	97.4	97.2
10			7.0	258.1	75.0	65.3	89.3	91.2	87.7	88.7
20			4.6	265.7	79.6	71.9	93.0	93.1	93.1	97.7

실시예 5: 반복 환류 추출 혼합물에 대한 효과

20 g 보이차 원물을 위하여 50% 에탄올로 환류 추출한 1차 보이차 추출액을 여과지로 여과하였다. 추출 후 남은 잔류물에 50% 에탄올을 추가하여 추가로 환류 추출한 2차 보이차 추출액을 여과지로 여과하였다. 상기 수득한 1차 및 2차 여과액을 합하여 40 g 또는 65 g의 벤토나이트를 첨가하여 30분 동안 교반한 후 여과하고, 여과액을 동결건조하여 추출물을 제조하였다. HPLC를 이용하여, 벤토나이트 처리 전과 후 시료에 대해 상기 추출물 중의 카페인 및 EGCG, ECG 등의 카테킨 함량을 측정하고, 이로부터 카페인 제거율 및 카테킨류의 보유율을 산출하여, 하기 표 5에 나타내었다. 표 5에 나타난 바와 같이, 벤토나이트 미첨가시에 비해 벤토나이트 첨가시 90% 이상의 높은 카페인 제거율을 나타내는 한편, 총 카테킨 보유율 및 EGCG와 ECG 보유율이 모두 120% 이상 높게는 136% 이상까지 오히려 증가하는 것으로 나타났다. 이러한 경향은 보다 많은 양의 벤토나이트를 사용한 시료에서 보다 현저하게 나타났다. 이는 벤토나이트를 사용하는 본 발명의 카페인 제거 공정이 카페인이 90% 이상 제거된 디카페인 차류의 제조에 유용하며, 특히 카페인을 선택적으로 제거하는 동시에 카테킨 함량이 풍부한 차류를 제공할 수 있음을 나타낸다.

표 5

벤토나이트 첨가횟수	벤토나이트 첨 가량	카페인 함량 (mg/g)	총 카테킨 함량 (mg/g)	EGCG 함량 (mg/g)	ECG 함량 (mg/g)	카페인 제거율 (%)	총 카테킨 보유율 (%)	EGCG 보유율 (%)	ECG 보유율 (%)
-	-	54.1	333.8	86.6	100.4	-	-	-	-
1회	추출 원물량의 2배	5.2	100.6	108.4	123.8	90.4	120.0	125.2	123.3
1회	추출 원물량의 3.25배	3.4	424.0	118.0	132.8	93.7	127.0	136.3	132.3

실시예 6: 반복 환류 추출물의 개별 처리에 의한 시너지 효과

20 g 보이차 원물을 위하여 50% 에탄올로 환류 추출한 1차 보이차 추출액을 여과지로 여과하였다. 추출 후 남은 잔류물에 50% 에탄올을 추가하여 추가로 환류 추출한 2차 보이차 추출액을 여과지로 여과하였다. 상기 수득한 1차 여과액에 각각 40 g 또는 65 g의 벤토나이트를 첨가하여 30분 동안 교반한 후 여과하고, 2차 여과액에는 각각 10 g 또는 15 g의 벤토나이트를 첨가하여 30분 동안 교반한 후 여과하여, 수득한 1차 및 2차 여과액을 모아 동결건조하여 추출물을 제조하였다. HPLC를 이용하여, 벤토나이트 처리 전과 후 시료에 대해 상기 추출물 중의

카페인 및 EGCG, ECG 등의 카테킨 함량을 측정하고, 이로부터 카페인 제거율 및 카테킨류의 보유율을 산출하여, 하기 표 6에 나타내었다. 표 6에 나타난 바와 같이, 1차 여과액 및 2차 여과액에 각각 보다 각각 원물의 1.5배 또는 2.5배, 및 0.5배 또는 0.75배에 상응하는 양의 벤토나이트를 첨가하여 디카페인 공정을 수행하고 이들을 합하여 평균 카페인 제거율 및 평균 총 카테킨 보유율을 산출한 바, 각각은 모두 90% 이상 94.3%까지의 높은 카페인 제거율을 나타내는 동시에 121% 이상 131.5%까지의 카테킨 보유율을 나타내었으며, 이때 개별 카테킨 EGCG 및 ECG 보유율은 각각 최대 145.8% 및 131.5%에 이르렀다.

표 6

벤토나이트 총 첨가량	추출 회차별 벤토나이트 첨 가량	카페인 함량 (mg/g)	총 카테킨 함량 (mg/g)	EGCG 함량 (mg/g)	ECG 함량 (mg/g)	카페인 제거율 (%)	총 카테킨 보유율 (%)	EGCG 보유율 (%)	ECG 보유율 (%)
-	-	57.6	334.7	88.9	101.6	-	-	-	-
추출 원물량의 2배	1차 1.5배	5.6	409.9	115.0	118.9	90.2	121.5	129.4	117.1
	2차 0.5배								
추출 원물량의 3.25배	1차 2.5배	3.29	440.1	129.6	133.6	94.3	131.5	145.8	131.5
	2차 0.75배								

실시예 7: 녹차에 대한 효과

보이차 대신에 녹차 20 g을 취하여 200 mL의 50% 에탄올로 환류 추출한 추출액을 여과지로 여과하였다. 수득한 여과액에 벤토나이트를 첨가하여 30분 동안 교반한 후, 여과하여 벤토나이트를 제거하고 여과액을 농축 건조시켰다. HPLC로 수득한 건조물 중의 카페인 및 카테킨 함량을 측정하여, 하기 표 7에 나타내었다. 표 7에 나타난 바와 같이, 보이차에서와 같이, 녹차에 대해서도 96.2% 높은 카페인 제거율 및 119%의 높은 총 카테킨 보유율을 나타내었다.

표 7

흡착제	카페인 함량 (mg/g)	총 카테킨 함량 (mg/g)	EGCG 함량 (mg/g)	ECG 함량 (mg/g)	카페인 제거율 (%)	총 카테킨 보유율 (%)	EGCG 보유율 (%)	ECG 보유율 (%)	수율 (%)
-	45.5	270.4	123.5	28.9	-	-	-	-	25.5
벤토나이트	1.7	322.8	144.1	35.0	96.2	119.4	116.6	121.3	19.5

실시예 8: 커피에 대한 디카페인 효과 비교

차류 이외의 카페인 함유 물질에 대해서도 유사한 디카페인 효과를 나타내는지 확인하기 위하여, 커피를 사용하여 유사한 실험을 수행하였다. 구체적으로, 아라비카 커피 원두 20 g을 취하여 200 mL의 50% 에탄올로 환류 추출한 추출액을 여과지로 여과하였다. 수득한 여과액에 벤토나이트를 첨가하여 30분 동안 교반한 후, 여과하여 벤토나이트를 제거하고 여과액을 농축 건조시켰다. HPLC로 수득한 건조물 중의 카페인 함량을 측정하여, 하기 표 8에 나타내었다. 비교를 위해 동일한 방법으로 카페인을 제거한 차류 예컨대, 녹차에 대한 수치도 함께 나타내었다. 표 8에 나타난 바와 같이, 본 발명의 방법을 적용시, 차류에서는 90% 이상의 카페인이 제거되었으나, 커피에 대한 카페인 제거율은 78.9%에 불과하였다. 이는, 디카페인 음료류에 대한 표시기준이 '카페인 함량을 90% 이상 제거한 제품'인 것을 고려할 때, 본 발명의 카페인 제거방법이 선택적으로 차류에 유용한 방법임을 시

사하는 것이다.

표 8

원물	흡착제	카페인 함량(mg/g)	카페인 제거율(%)
녹차	-	57.6	-
	40 g 벤토나이트	5.2	90.9
커피	-	70.6	-
	40 g 벤토나이트	14.9	78.9

실시예 9: 점토의 종류에 따른 색상 비교

20 g 보이차 원물을 취하여 50% 에탄올로 환류 추출한 보이차 추출액을 여과지로 여과하였다. 상기 여과액에 각각 40 g의 벤토나이트, 백토 또는 몬모릴로나이트를 첨가하여 30분 동안 교반한 후, 여과하여 벤토나이트, 백토 및 몬모릴로나이트를 제거하고 원물 추출액과 함께 상기 수득한 3종 여과액의 색상을 비교하고, 사진으로 찍어도 1에 나타내었다. 도 1에 나타난 바와 같이, 벤토나이트와 접촉시킨 여과액의 경우 원물 추출액 자체의 색상을 유지하였으나, 백토나 몬모릴로나이트와 접촉시킨 여과액의 경우 회색 내지는 검은색으로 변화한 것으로 나타났다. 이는 다른 점토류와는 달리 벤토나이트를 처리하여 디카페인화하는 경우, 카페인 함량을 90% 이상 감소시키면서 차류 자체의 색상은 유지할 수 있음을 나타내는 것이다. 특히 최종 생성물이 식품류임을 고려할 때, 이와 같이 본래의 색상을 유지하는 것은 제품의 품질과 밀접하게 연관되는 요소일 수 있다.

이상의 설명으로부터, 본 발명이 속하는 기술분야의 당업자는 본 발명이 그 기술적 사상이나 필수적 특징을 변경하지 않고서 다른 구체적인 형태로 실시될 수 있다는 것을 이해할 수 있을 것이다. 이와 관련하여, 이상에서 기술한 실시 예들은 모든 면에서 예시적인 것이며 한정적인 것이 아닌 것으로서 이해해야만 한다. 본 발명의 범위는 상기 상세한 설명보다는 후술하는 특허 청구범위의 의미 및 범위 그리고 그 등가 개념으로부터 도출되는 모든 변경 또는 변형된 형태가 본 발명의 범위에 포함되는 것으로 해석되어야 한다.

도면

도면1

