

## 한외여과 공정에 의한 알로에 베라 겔의 농축

백진홍 · 김성아 · †이신영  
(주)김정문알로에 과학연구소 † 강원대학교 생물공학과  
(접수 : 2007. 9. 12., 게재승인 : 2008. 4. 13.)

### Concentration of Fresh Gel from *Aloe vera* L. by Using Ultrafiltration Process

Jin-Hong Baek, Sung-A Kim, and Shin-Young Lee†  
KJM Aloe R&D Center, † Department of Bioengineering and Technology, Kangwon National University  
(Received : 2007. 9. 12., Accepted : 2008. 4. 13.)

The concentration of fresh gel from *Aloe vera* L. by using ultrafiltration (UF) process was investigated and analyzed. The two membranes (organic and ceramic) with different molecular weight cut-off (MWCO) and modules (flat sheet and tubular) was used. Under optimum operation conditions, ceramic (zirconium dioxide) tubular membrane with MWCO of 50 kDa resulted in higher flux, less fouling, more turbid, higher total solid, higher polysaccharide and less aloin content. Optimum operation conditions were transmembrane pressure of 1.0 bar, feed velocity of 240 L/hr and temperature of 23°C. Volume concentration factor of aloe gel was 3.13 at permeate flux of 51.1 L/m<sup>2</sup> · hr after processing time of 1.66 hr. Aloin in fresh aloe gel by UF process was effectively removed as permeate and bioactive polysaccharide content was 2.1 times higher than that of fresh aloe gel. These results allowed a very good level of concentration degree and polysaccharide content. Thus, ultrafiltration process of this study was suitable for the concentration of fresh aloe gel though the aloe concentrate showed both the viscosity decrease and partially separation of liquid layer during storage at 4°C.

**Key Words** : Aloe vera gel, ultrafiltration, concentration, polysaccharide

#### 서론

알로에는 백합과에 속하는 다년초이며, 다육질 잎을 갖는 다즙성의 CAM (Crassulacean Acid Metabolism) 식물로, 3500년 이상 광범위하고 다목적적인 민간 치료제로서 널리 사용되어 왔다(1, 2).

400여종 이상의 알로에가 동정되었는데, 이 중 알로에 베라 (*Aloe vera* Linne)의 주스나 겔은 대표적인 건강기능성 식품 (특히, 건강기능 음료)의 하나이며, 또 제약이나 화장품으로서도 가장 널리 사용되어온 천연소재의 하나이다(3-5).

그 동안 개발된 알로에 잎의 가공법은 여러 가지가 있으나 알로에의 가공 중 유효성분의 손실 및 생물활성의 실활이 매우 높은 특성에 기인하여 소비자가 원하는 유효성분의

농도와 수율, 가공 경비의 효율성, 고형분 함량, 바람직하지 못한 성분의 함유량, 바람직한 특성 (맛, 유효인자의 농도 증가) 등은 매우 차이가 많고, 최종 제품의 효능 및 품질 수준은 천차만별하다고 할 만큼 다른 것이 현실이다.

그동안 밝혀진 알로에의 유효 성분은 약 200여종이 알려져 있지만 알로인 (aloin)과 같은 안트라퀴논류는 가공 중 반드시 제거되어야 하는 성분지표인 반면, 알로에 다당류는 일반적 품질 및 치료적 성질의 지표가 될 수 있다(4-6).

알로에 베라 잎의 유조직에 널리 존재하는 알로에 다당은 과잉의 열이나 가공 시간 및 세균 오염 등 가혹한 또는 불량한 공정에 의해 단순 당으로 분해되므로 결국, 낮은 다당류 수준은 알로에 제품이 가혹하게 (harshly) 조작되었음을 의미한다(7).

아울러, 알로에의 다당류는 광범위한 분자크기로 존재하며, 이 분자크기의 변화는 알로에 치료 효과를 결정한다. 일반적으로 분자량이 적은 것은 항염증 활성효과가 우수한 반면, 분자량이 큰 것은 면역작용에서 뛰어난 효과를 갖는다(8).

일반적으로 열악한 공정에 의한 많은 알로에 제품의 다당류 분자량은 10,000 dalton 정도이며, 1,000이하도 많은 것

† Corresponding Author : Department of Bioengineering and Technology, Kangwon National University, Chuncheon 200-701, Korea

Tel : +82-33-250-6273, Fax : +82-33-243-6350

E-mail : sylee@kangwon.ac.kr

으로 알려지고 있지만, 생물활성이 가장 높은 분자량 범위는 50~2,000 kDa으로 보고되고 있다(8).

따라서 우수한 알로에 제품의 품질 요건은 알로에 중의 알로인과 같은 negative 성분의 잔존 수준을 최소 (6 ppm 이하)로 하면서 생의학적 활성성분인 다당류의 함량이 유효농도 이상의 함량 (650 mg/L이상)을 유지하도록 하며, 분자크기를 크게 높일 수 있는 수준 (50,000~2,000,000 dalton)으로 향상시킨 제품을 얻는 것이 매우 중요하다.

하지만 이의 달성에는 크게 두 가지 문제점, 즉, 하나는 알로에 주스나 겔은 매우 희석된 상태 (수부함량 99.0~99.5%)이므로 유효 고형분 함량이 0.5~1%에 불과하여 기능성 식품화를 위해 유효 고형분 농도를 높인 농축제품의 개발이 필요하다는 것이다. 다른 하나는 알로에의 유효성분이 불안정하여 전 잎 (whole leaf)의 파쇄, 분쇄 혹은 압착에 의해 주스를 얻고, 이 주스의 여과, 농축, 안정화 등의 여러 단계를 거쳐 생산하는 일반적인 알로에의 가공과정 중에 급속히 변질되기 쉬워 이의 방지 기술이 필요하다는 것이다. 특히, 알로에 베라 겔의 다당인 glucomannan은 알로에 내재성 가수분해 효소에 대해 안정화되지 않으면 빠른 분해를 일으키며, pH 변화, 고온 및 미생물 오염에 의해서도 분해된다(9).

그러므로 반드시 유효성분인 다당류의 양과 질을 최대화할 수 있는 안정화 및 경제적 취급이 가능한 농축방법을 확립하는 것이 필수 요소이다. 하지만 통상적인 열에 의한 증발 농축법은 효율적인 농축방법이 아니며, 따라서 상 (phase)의 변화가 일어나지 않아 열에 민감한 성분을 유지할 수 있는 막 여과법(10)의 검토 필요성이 높다.

특히, 한외여과 (ultrafiltration) 막 농축법은 바이오산업 및 식품공업에서 현재 널리 이용되고 있으며, 고분자와 저분자의 분리 및 분획이 용이하고, 실온에서 사용될 수 있다. 따라서 알로에와 같이 열에 민감하며, 분자량이 수십만인 다당과 같은 유효 성분의 농축에 매우 매력적인 기술이다(11-16). 더구나, 비록 농축정도에 한계가 있기는 하지만 공정 중 부산물이 적게 배출되므로 환경친화적이다. 장치의 규모도 통상 설비공간이 크지 않아 간단한 설계로 가능하며, 유연하고 용이한 scale-up이 가능한 장점을 가지므로 더욱 산업적으로 효율적인 농축방법의 하나로 할 수 있다(10,17,18).

하지만 지금까지 알로에 대하여 막분리 기술 (membrane separation technology)을 적용한 연구 보고는 거의 찾아볼 수 없는 바, 신규 검토의 필요성이 매우 높다.

통상, 막의 배제분자량 (MWCO; molecular weight cut off)은 15~20 kDa이고, 크기는 300~1000 kDa, 적게는 3 kDa을 사용하는 것이 알려지고 있다(19). 최적 조건은 수력학적 부피가 분자의 분자량과 직접적으로 관련되지 않더라도 거대분자의 유연성과 분지 (가지)가 구멍을 통한 투과성에 영향을 주며, 따라서 MWCO의 선택이 중요하다. 특히, 생물고분자는 높은 용액 점도를 가지며, 이들의 농도가 제한 값에 도달할 때 겔을 형성할 수 있으므로 막의 재질과 형태가 또한 매우 중요하다(20,21).

그러므로 본 연구에서는 신선한 알로에 용액의 농축을 위해 한외여과 성능 (투과유속, 부피 농축인자, 농축정도, 보유율, 막 오염과 막 투과성의 회복)에 미치는 막 재질, 형태 및 MWCO의 역할을 분석하였다. 아울러, 제거 지표

성분으로서의 알로인 및 유효성분지표로서의 다당류 성분을 조사하여 신선한 알로에의 성분을 유지 또는 증강시킬 수 있는 지를 검토하였다.

## 재료 및 방법

### 신선한 알로에 주스의 조제

초기 알로에 주스는 알로에 베라 잎의 껍질을 제거하고 유 조직 (parenchyma tissue)을 filleting하여 얻었다. 이를 균질기에서 최대 속도로 균질화한 다음, 원심분리 (8000rpm, 30min.)하여 상정액을 취하여 fresh gel 시료로 하였다.

이와 같이 조제한 시료의 초기 고형분 함량은 0.76%이었고, congo red 법(9)으로 측정된 유효 다당 함량은 0.25~0.31 (absorbance at 540 nm)이었다.

### UF 장치 및 조작

알로에의 UF 실험은 실험실 규모의 Satorius (Satocon Mini SM17521, Germany) unit 및 Tami UF system (Tami Industries S.A, France)을 사용하여 수행하였다. 각 장치는 1 L feed reservoir, 공급액 펌프, 여과 카트리지와 막 공급액과 농축액에 대한 압력 게이지로 구성되었다. 전자에서는 길이 13 cm x 폭 12 cm x 두께 7 mm의 flat sheet membrane (polysulfone, cassette module; MWCO = 100 kDa)를, 그리고 후자에서는 external diameter=10 mm, length=250 mm, area=94 m<sup>2</sup>의 tubular membrane (Zirconium dioxide, Tami Valisette module; MWCO= 50, 150 kDa)을 사용하였다.

또, UF 실험은 total recycle mode와 batch concentration mode에 따라 실시하였다. Total recycle mode에서는 농도를 일정하게 유지하기 위해 투과액과 농축액의 흐름을 공급액 탱크로 되돌려 보냈고, batch concentration mode에서는 농축액만을 되돌려 보냈다. Total recycle mode는 서로 다른 조작조건에서 투과속도를 측정하고 농축공정에 대한 최적 조작 조건을 확인하기 위해, 그리고 batch concentration mode는 용액을 농축하기 위해 사용되었다(22)

시료 용액은 펌프를 사용하여 막 모듈로 공급되었고, 공급 속도는 원하는 값으로 조정하였다. 공급액 및 농축액 측 압력은 압력계를 사용하여 측정되었고, 투과액 측에서의 압력은 대기압으로 가정되었다. 실험 중 투과액의 flux는 다음과 같이, 일정시간 동안 얻은 투과액의 부피를 면적과 투과 시간으로 나누어 계산하였다.

$$J = (m_p/\rho_p)/A_m \times t = L/m^2 \text{ hr (LMH)}$$

여기서  $A_m$ 은 막 면적 (m<sup>2</sup>),  $m_p$ 는 투과액 질량 (g),  $\rho_p$ 는 투과액 밀도 (g/L)이다.

또, 이들 측정으로부터 얻은 부피 농축비 (concentration factor 또는 volume reduction factor = initial feed volume / resulting retentate volume)에 의해 평가하였다.

모든 실험은 예비실험을 통해 23°C에서 수행되었고, 달리 서술되지 않는 한 1.8 m/sec의 유속 및 0.2~2.25 bar의 TMP (transmembrane pressure drop)에서 수행되었다.

실험 후 막 모듈은 물로 씻은 다음, 세척액으로 세척하였고, 세척작업이 끝난 후 고정된 조건 (온도 = 20°C, 축 흐름속도 = 4.8 mL/min)에서 막 모듈의 water flux를 측정하였다.

#### 막 성능의 계산을 위한 변수의 계산

UF 실험의 결과들은 농축정도 (CD : concentration degree)와 보유율 (R : retention)로 나타내었다. CD는 최종 다당 농도와 초기 다당 농도의 비 ( $CD = C_{tr}/C_p$ )로, 그리고 보유율은 공급액에 잔류된 다당의 % [ $R = (1 - C_p/C_r) \times 100$ ]로 나타내었다(23). 여기서  $C_p$ 는 투과액의 다당농도,  $C_r$ 은 농축액의 다당 농도이다.

비가역적 오염 (Irreversible fouling)은 순수한 물 유속의 감소 혹은 실험 전후 관찰된 순수한 물 유속에 대한 비교 값인 fouling index (FI)로 나타내었다(24,25).

$$FI = [(F_{wb} - F_{wa})/F_{wb}] \times 100$$

$F_{wb}$ 는 실험전 순수한 물의 유속이고,  $F_{wa}$ 는 실험후의 순수한 물의 유속이다.

#### 분석

분석은 공급액, 수집된 총 투과액 및 농축액에 대해 이루어졌고, 다음과 같이 유효 다당류의 농도, 총 고형분, anthraquinone 반응 등에 의해 평가하였다.

#### Anthraquinone 존재 유무

Anthraquinone의 존재 유무는 polyhydroxy anthraquinone 복합체 (aloin, aloe-emodin, isobarbaloin 등)의 존재 유무를 판단하는 Borntrager 시험에 의해 조사하였다. 즉 Aloe Lab. of Texas의 지침에 따라 시료 용액 5 mL에 5 N KOH 용액 2-3방울을 넣고 잘 흔든 다음 적갈색의 전개 유무로 판단하였다(26).

#### 유효 다당의 농도

유효 다당류의 농도는 Ebarandu 등(9)이 glucomannan의 결정을 위해 개발한 빠르고 정량적인 비색법에 따라 측정하였다. 즉, 400  $\mu$ L의 시료를 1회용 유리 배양관에 옮기고, 각 관에 4 mL의 Congo red (sodium 4,4'-diphenyl-2,2'-diazo-bis-1-naphthalamino-4-sulfonate) 시약을 첨가하여 온화하게 vortexing 하여 혼합하였다. 이 혼합물을 실온에서 20분간 방치한 후, 이의 흡광도를 분광광도계 (Spectronic Genesys 5, USA)로 540 nm에서 측정하였다.

#### 탁도 및 고형분 함량

탁도는 550 nm에서의 optical density로 구하였고, 총고형분 함량은 각 시료의 수분함량을 70°C의 오븐에서 24시간 동안 제거시킨 후, 건조무게를 측정하여 구하였다.

#### 점도

시료액의 점도는 20~80°C로 유지한 점도 측정용 항온조에서 모세관 점도계 (Canon Fenske)로 측정하였다. 일정량 (10 mL)의 시료액을 점도계에 넣고 20분간 열평형시킨 다음,

시료액이 유하하는 시간을 측정하여 점도를 구하였다. 이 때, 점도의 계산에 필요한 시료 용액의 밀도는 KS A0601의 액체 비중 측정방법에 따라 비중계로 측정하였다.

## 결과 및 고찰

### Flat sheet module을 사용한 한외여과 농축

알로에의 신규 농축공정으로 기대되는 막 농축을 검토하기 위해 polysulfone 재질의 flat sheet membrane module (13cm x 12cm x 7mm; MWCO = 100 kDa)을 사용하여 한외여과 농축을 수행하였다.

TMP=2.25 bar, 초기 유속=500 L/hr, 온도=25°C에서 1 L 용량의 점도가 서로 다른 3종 시료를 농축하면서 투과액 유속 및 부피를 측정한 결과는 Fig. 1과 같다.

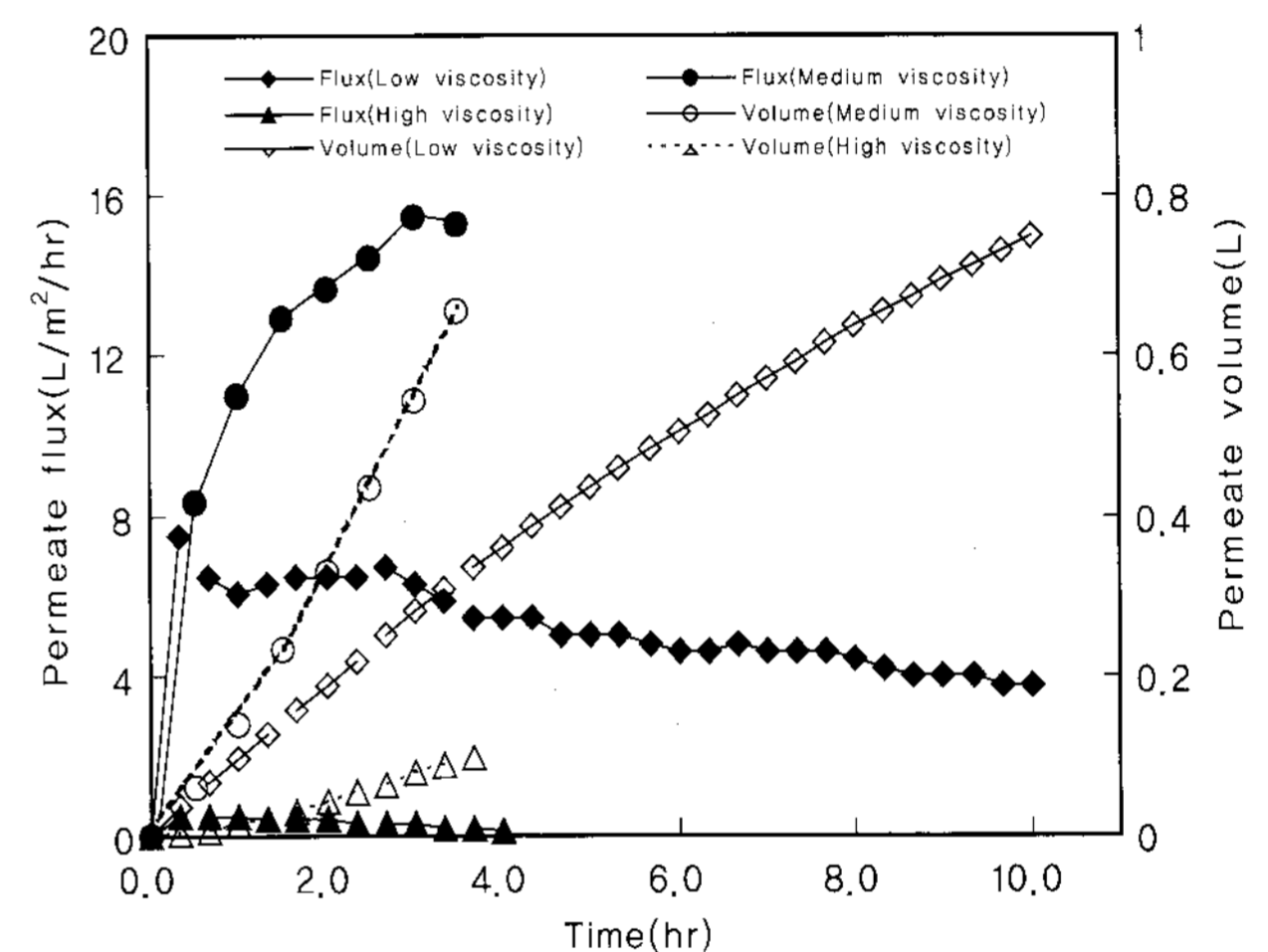


Figure 1. Time course of permeate flux and volume during ultrafiltration of aloe samples with different viscosities.

막 농축법은 알로에의 점도에 크게 의존하여 점성이 매우 낮은 시료 (2~5 cP)는 투과액의 부피가 증가하면서 유속이 초기 1시간에 8.35 L/m<sup>2</sup>/hr로 증가한 다음 서서히 증가하여 3시간 후 15.44 L/m<sup>2</sup>/hr의 최대값에 도달하였으며, 이후 다소 감소였다. 이 때의 농축정도 (CD)는 3.0으로 (Fig. 2) 막 농축이 원활히 수행됨을 보였다. 그러나 중간 점도의 시료 (7~15 cP)는 0.5시간에 7.5 L/m<sup>2</sup>/hr에 도달한 후 서서히 감소하여 4시간 후 5.43 L/m<sup>2</sup>/hr까지 감소하였으며, 이 때의 농축정도는 2.31이었다. 특히, 점성이 매우 높은 시료 (20~30 cP)에서는 최대 투과유속이 0.5 L/m<sup>2</sup>/hr에 불과하였고, 농축 정도도 3시간 후 1.2 정도이었다. 이는 점도가 높은 시료에서의 농도분극, 겔화 및 fouling에 의한 것으로 보인다.

Jorda 등(27)은 biopolymer (arabinoxylan 및 rhamnogalacturonan) 용액의 UF에서 투과유속은 1) 용액의 점도 및 농도분극 전개에 기인한 빠른 감소, 2) 막 오염에 기인한 느린 감소 및 3) 겔화 및 점도증가에 의한 감소의 가속에 따라 세 단계로 감소한다고 하였는데, 알로에의 경우 막 농축 시 관찰되는 낮은 유속은 높은 점도와 관계되는 것으로 보인다.

일반적으로 신선도가 높은 알로에 일수록 점성이 매우 높고, 또 중간 점도이상의 알로에 시료가 제품의 양호한 품질에 요구

되므로 cassette module을 이용한 한외여과는 고점성 알로에의 농축법으로는 부적합한 것으로 판단하였다.

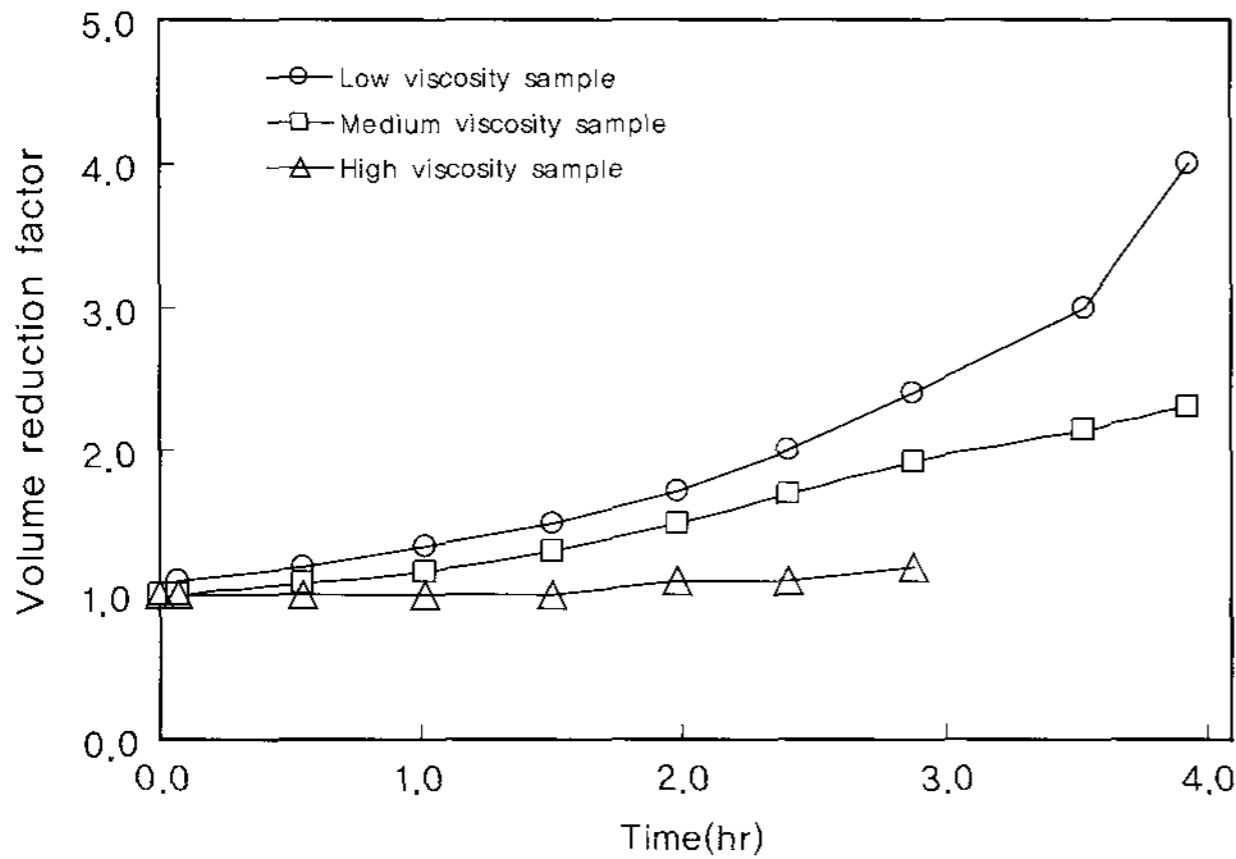


Figure 2. Time course of volume reduction factor during ultrafiltration of aloe samples with different viscosities.

**Tubular module을 사용한 한외여과 농축**

Flat sheet membrane module은 알로에의 한외여과 농축에 부적합하였으므로 ceramic (zirconium dioxide) 재질의 tubular module (O.D = 10 mm, length = 250 mm; MWCO = 150 kDa 및 50 kDa)을 사용하여 중간점도 이상의 알로에 용액에 대한 한외여과 농축을 다음과 같이 수행하였다.

**MWCO=150 kDa 막에 의한 UF 실험**

**투과액 유속에 미치는 TMP의 영향**

투과액 유속 (permeate flux)에 미치는 TMP (transmembrane pressure drop) 및 axial flow rate의 효과를 조사하기 위해 total recycle mode에 따라 UF 실험을 실시하였다.

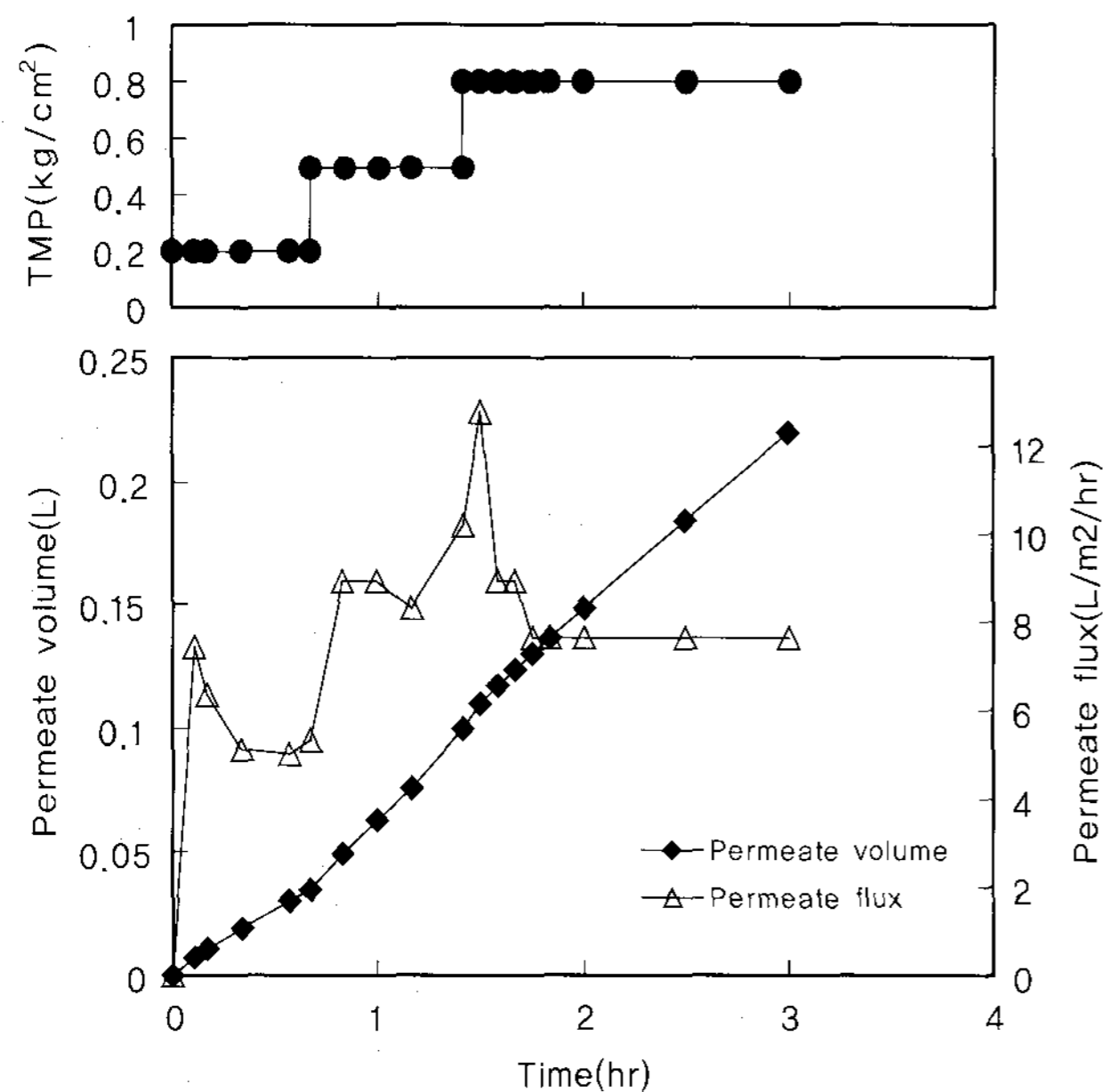


Figure 3. Time course of permeate volume and flux (Operating condition : T=30°C, TMP=0.2~0.8 bar, Initial feed flow rate=240 L/hr).

Fig. 3은 적용된 TMP에 대한 정상상태에서의 투과액 유속을 보여준다. 낮은 압력에서는 투과액 유속이 적용 압력에 비례하나, 압력이 증가할수록 직선형의 flux-pressure 거동에서 벗어나 압력에 무관하게 되었다. TMP=0.5 bar에서 limiting flux에 도달하였으며, 더 이상의 압력증가는 투과액 속도의 증가를 보이지 않았다. Limiting flux의 존재는 공급액이 막을 통해 대류됨에 따라 일어나는 농도분극 현상에 관계된다. 점성 및 젤라틴 층의 형성도 막 저항에 부과해서 투과액 속도의 추가적인 저항으로 작용한다.

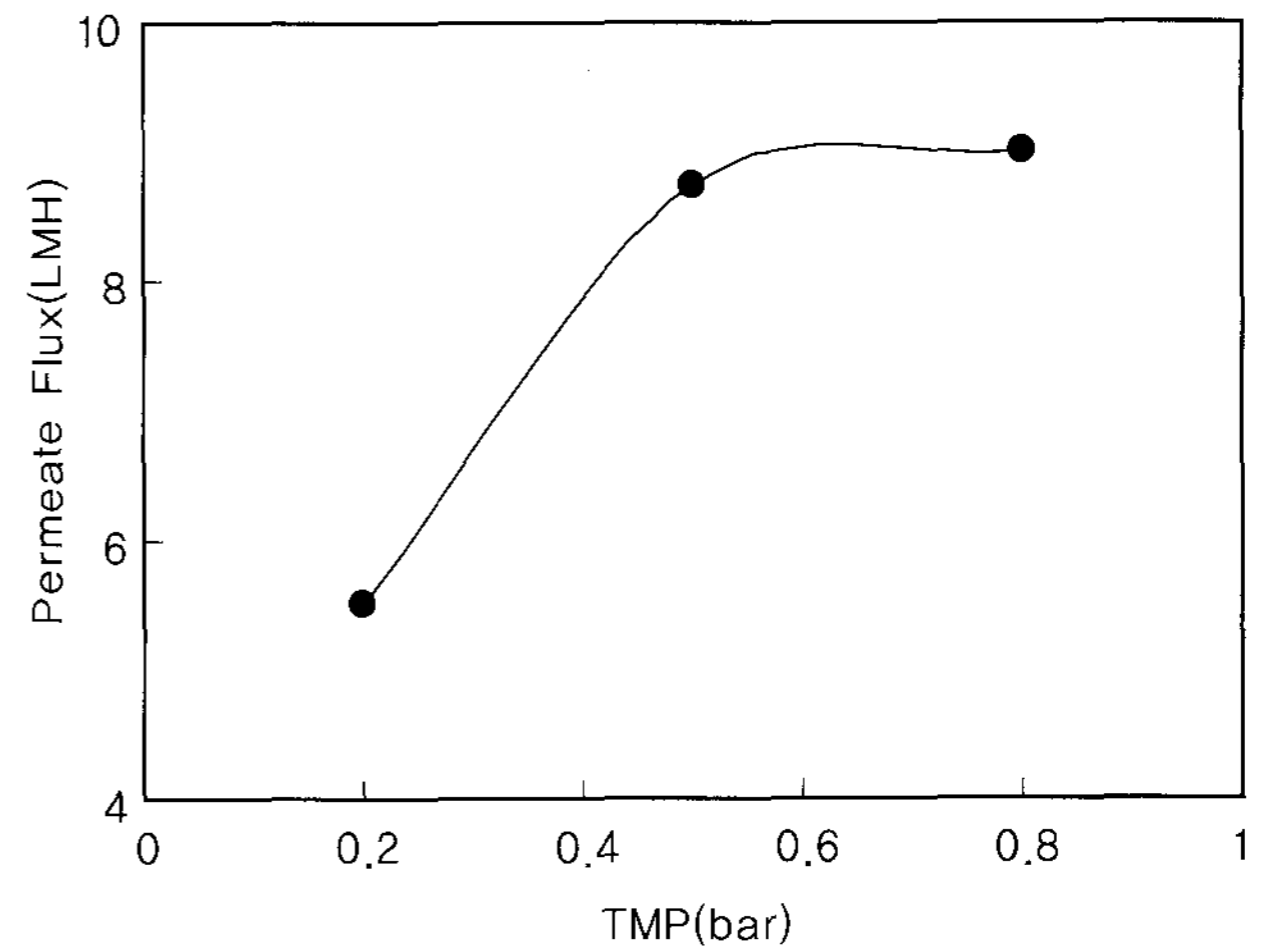


Figure 4. Effect of transmembrane pressure on permeate flux during ultrafiltration of aloe juice.

한편, Fig. 4는 TMP를 변화시키면서 투과액의 유속 변화를 살펴본 결과로서 각 TMP에서 투과속도가 급격히 증가한 다음 감소하는 일반적 경향을 보였다. 통상, 투과속도는 용액 물성 및 공급액 유속에 따라 의존하는 제한 값까지의 압력 (TMP<sub>lim</sub>)에 따라 증가하는데, TMP<sub>lim</sub> 이외에 막 오염도 크게 중요하게 되고 속도 감소가 가속화되는 것으로 알려져 있다(22).

Fig. 3의 결과와 함께 TMP=0.5 bar에서 투과유속의 감소가 가장 적었으므로 이하의 실험에서의 TMP는 0.5 bar로 하였다.

**투과속도에 미치는 온도의 효과**

투과액 속도는 온도의 영향을 받는다. 이는 조작온도가 상승할 때 공급액 점도가 감소하고 고분자의 확산계수가 증가하므로 이들 두 인자의 효과에 의해 물질전달을 향상시키고, 따라서 투과유속을 증가시킨다. 알로에의 경우 30°C 이상의 고온 처리는 바람직하지 않는데, 예비실험 결과, 본 UF 장치의 경우 한외여과 중 9°C 정도의 온도 상승이 일어나므로 초기 온도는 23°C로 하였다.

**투과액 유속에 미치는 공급액 속도의 영향**

공급액 속도는 한외여과막 성능에 대한 또 다른 중요 매개 변수이다. TMP 제한 값은 현탁액 물성 및 공급액 유속에 의존한다. 통과 흐름속도 (cross-flow velocity)는 막 표면에서 전단응력에 영향을 주고 결과적으로 퇴적 입자의 제거속도가 유속 감소에 책임이 있다(22).

따라서 투과액의 유속에 미치는 공급액 속도의 영향을 살펴 보았으며, 그 결과는 Fig. 5와 같다.

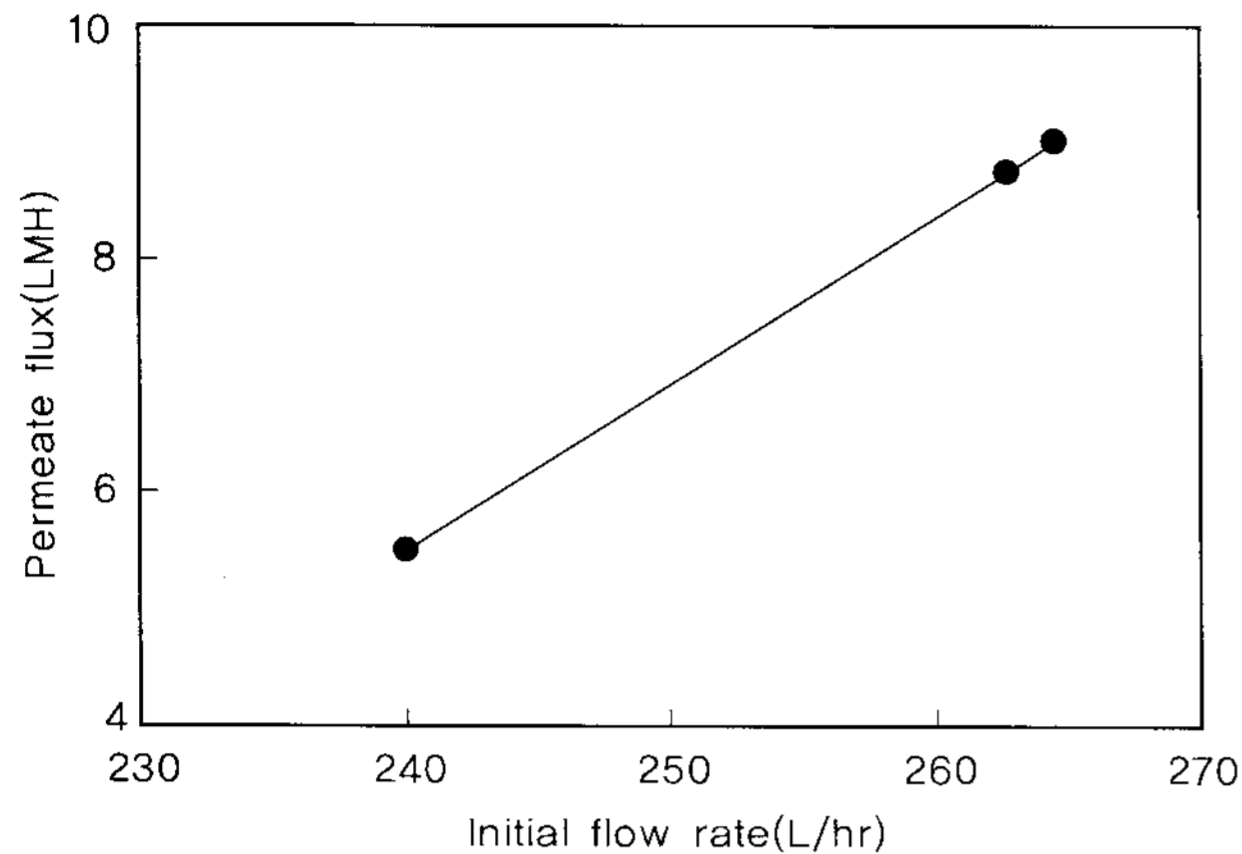


Figure 5. Effect of initial feed flow rate on permeate flux during ultrafiltration of aloe juice.

이 자료는 온도 23°C, TMP 0.5 bar에서 투과액 속도에 미치는 축 공급액 속도의 영향을 나타낸 것으로 투과액의 유속은 공급액의 유속이 증가할수록 증가하였다. 즉, 240 L/hr의 공급액 속도일 때 투과유속은 5.5 L/m<sup>2</sup>/hr이었으나 263~265 L/hr일 경우는 8.74~9.01 L/m<sup>2</sup>/hr로 증가하였다. 이하의 실험에서는 막 표면에서의 전단응력의 영향을 고려하여 240 L/hr의 공급액 속도로 수행하였다.

**Batch concentration mode에 의한 알로에의 농축 실험**  
이상의 실험 결과를 토대로 batch concentration mode에 따른 UF 농축실험은 온도 23°C, TMP=0.5 bar 및 공급액속도 240 L/hr의 속도에서 수행되었다. 이 때 순수한 물의 투과 유속은 약 64 L/m<sup>2</sup>/hr이었다.

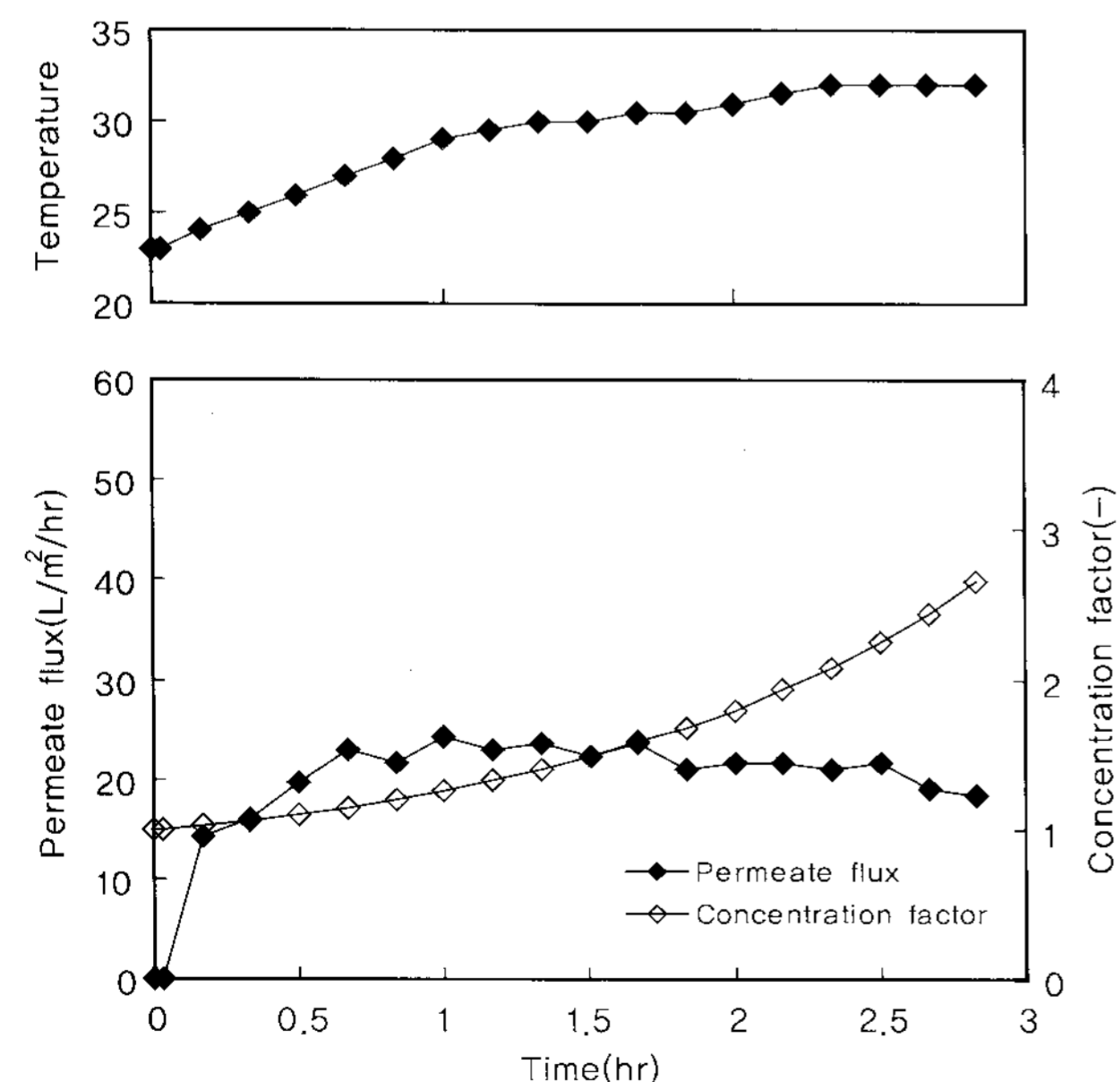


Figure 6. Time course of permeate flux and concentration factor during ultrafiltration of aloe juice according to batch concentration mode (operating conditions : TMP= 0.5 bar, Axial flow rate=288 L/hr, T=23°C).

Fig. 6은 한외여과 농축 중 투과액 속도 및 농축인자의 경시변화 결과로, volume reduction factor (VRF, 초기 공급액 부피와 농축액 부피의 비)는 초기 1에서 2.83시간 후 2.7까지 조작시간과 함께 점차적으로 증가하였다. 반면, 투과액 속도는 부피감소인자 (농축인자)의 증가에 따라 증가하다가 농도분극 및 겔층의 형성에 기인하여 서서히 감소하는 경향을 보였다. 즉, 1시간 후 24.25 L/m<sup>2</sup>/hr의 최대값을 보인 후 조작 시간과 함께 점차적으로 2.83시간 후 18.5 L/m<sup>2</sup>/hr로 감소하였다. 하지만 이러한 투과유속은 막의 투과도 (순수한 물)와 관련지어 고려하면 비교적 높은 유속이라 할 수 있다. Fig. 7에서 보는 바와 같이, 투과유속은 농축인자가 증가되어도 투과유속의 감소 폭은 적어 농도분극 및 겔 층의 형성이 미미함을 보였으며, 따라서 flat sheet module에서와는 달리, 알로에 농축의 가능성을 보였다.

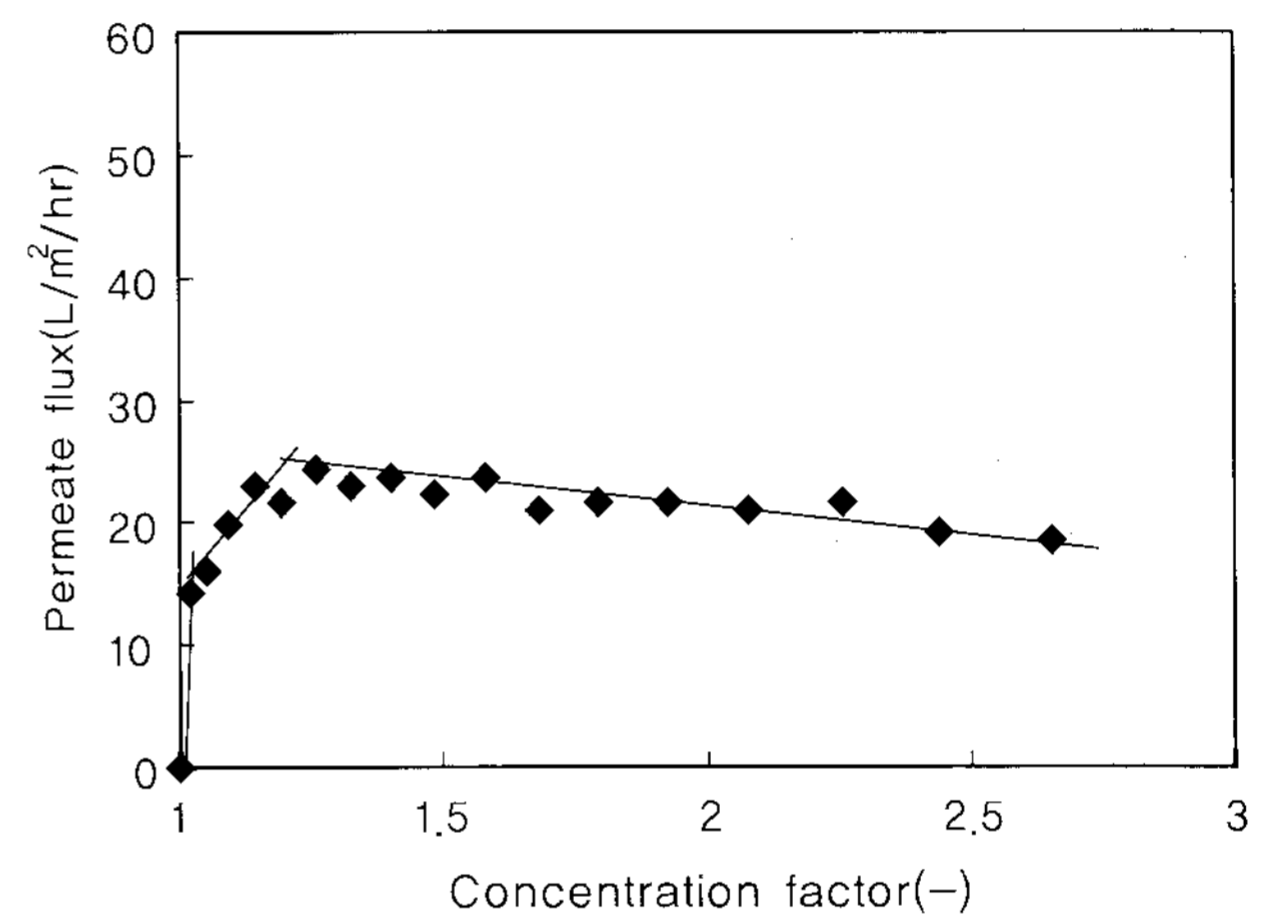


Figure 7. Variation of permeate flux as a function of concentration factor (operating conditions : TMP=0.5 bar, Axial flow rate=288 L/hr, T=23°C).

**분석 평가**

150 kDa zirconium dioxide 관형막을 사용한 알로에 주스의 UF 중 retentate와 permeate의 탁도를 조사한 결과는 Fig. 8과 같다. Retentate (농축액)의 탁도는 조작시간에 따라 크게 증가한 반면, 투과액의 탁도는 무시될 수 있는 정도를 나타내어 고형분이 농축액에 유지됨을 보였다. 알로에의 유효 성분인 다당의 농도를 측정된 결과(Fig. 9), 투과액에서 다당의 함량이 관찰되었으나 농축액에서의 다당 함량은 UF 실험을 종료한 2.88시간 후 약 3.5배나 증가하였다. 농축정도와 보유율 (%)을 살펴본 Fig. 10에서 보는 바와 같이, UF 실험 0.75시간 이후 농축정도가 크게 증가되어 2.88시간 후 3.785의 농축정도를 나타내었으며, 보유율도 90%의 높은 값을 나타내었다. 한편, 자료화하지는 않았으나 농축액에서는 hydroxyanthraquinone의 정색반응 (Borntrager)이 나타나지 않았으나 투과액에서는 양성반응이 관찰되어 본 막공정에 의해 알로에의 negative 물질로 알려진 aloin 등이 제거됨을 확인할 수 있었다. 아울러 UF 실험 전 순수한 물의 유속은 10 mL/min이었으나 실험 후 3.5 mL/min으로 감소되어 fouling index=65%의 막오염을 보였다. 이러한 막 오염은 150 kDa 크기 이하의 고분자나 부분적으로 가수분해된 고분자가 막으로 들어가고 막의 구멍을 막기 때문인데, 300 ppm의 NaOCl 용액으로 15분간 세척 후 10분간

물로 씻어 내었을 때 순수한 물의 유속은 약 11 mL/min나 되어 막의 수력학적 투과성의 완전한 회복 (약 100%)이 세척 처리 후 관찰되었다.

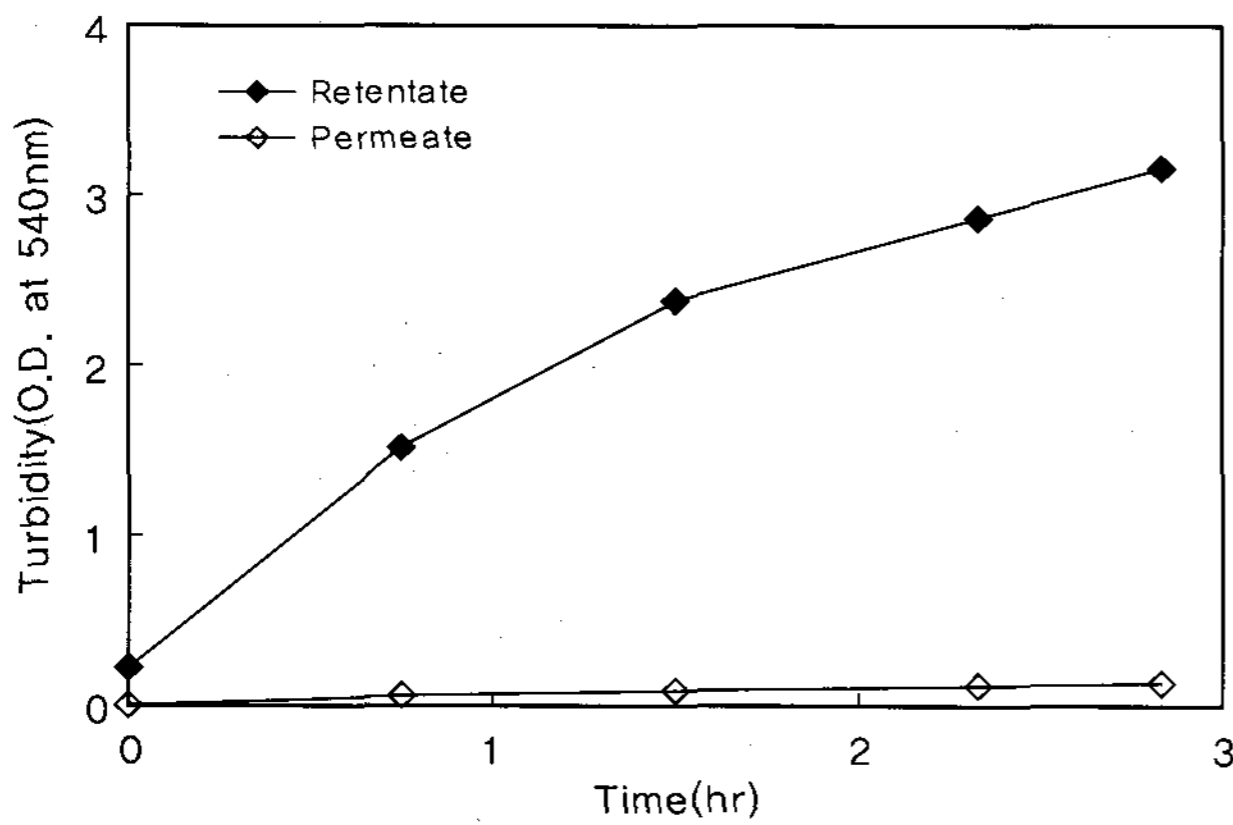


Figure 8. Time course of turbidity in retentate and permeate during ultrafiltration (operating conditions : TMP=0.5 bar, Axial flow rate=288 L/hr, T= 23°C).

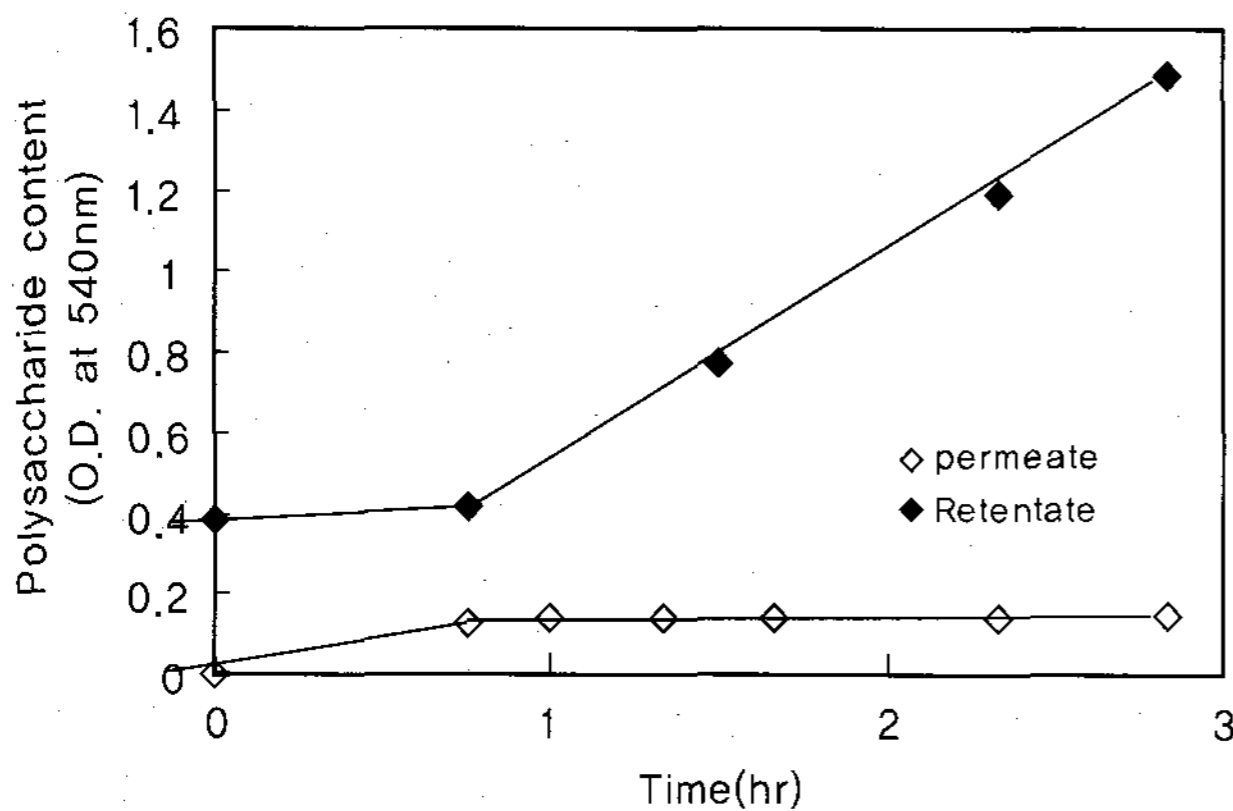


Figure 9. Variation of polysaccharide contents in retentate and permeate during ultrafiltration (operating conditions : TMP=0.5 bar, Axial flow rate= 288 L/hr, T=23°C).

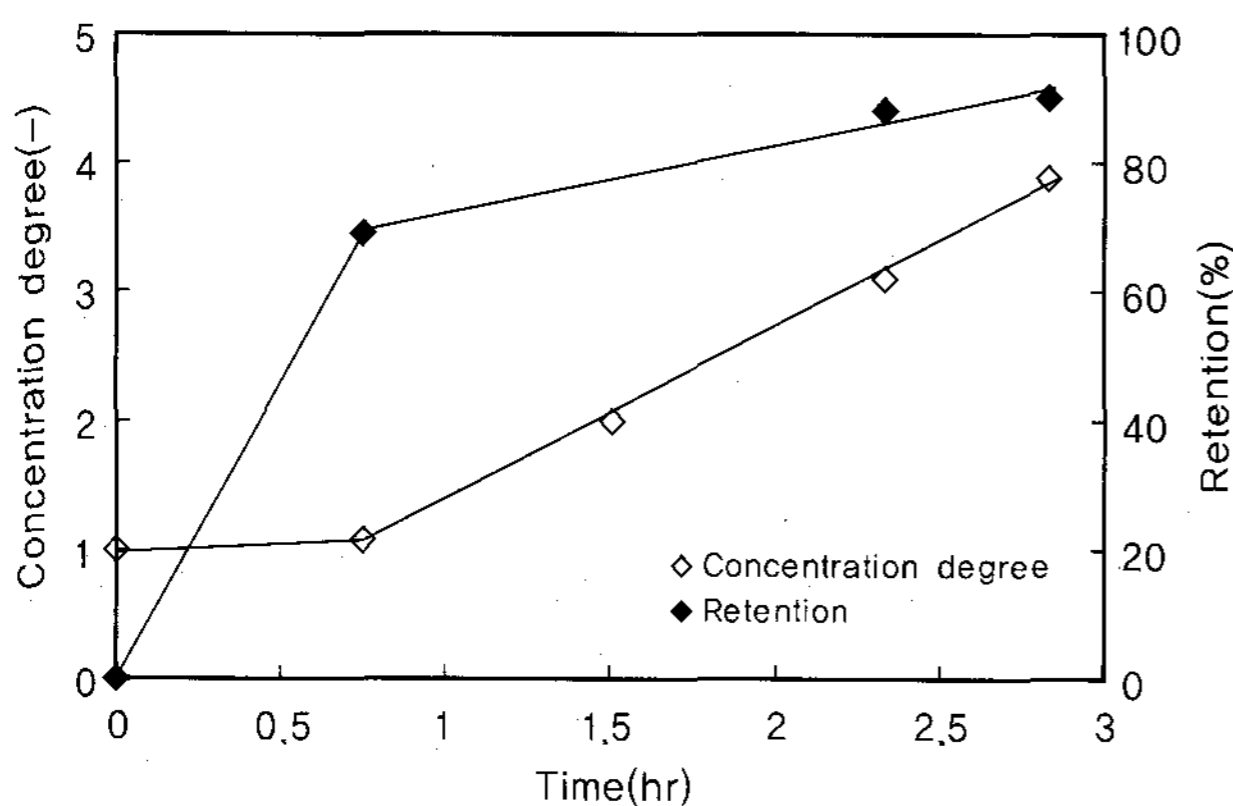


Figure 10. Time course of concentration degree and retention (%) during ultrafiltration (operating conditions : TMP=0.5 bar, Axial flow rate =288 L/hr, T=23°C).

**MWCO=50 kDa 막에 의한 UF 실험**

생물고분자에 대한 한외여과 막의 배제분자량 (MWCO) 은 거대분자의 유연성과 분지 (side chain)가 구멍을 통한 투과성에 영향을 주므로 배제분자량의 선택에 영향을 준다(20-21).

특히, 알로에 용액과 같은 생물고분자 용액은 또한 용액 점도를 가지며, 이들의 농도가 제한 값에 도달할 때 겔을 형성할 수 있으므로 수력학, 특히, 막 형태와 더불어 배제분자량의 역할 분석이 중요하다.

따라서 MWCO=50 kDa의 관형 막을 사용하여 알로에의 막 농축을 수행하였으며, 그 결과는 Fig. 11과 같다.

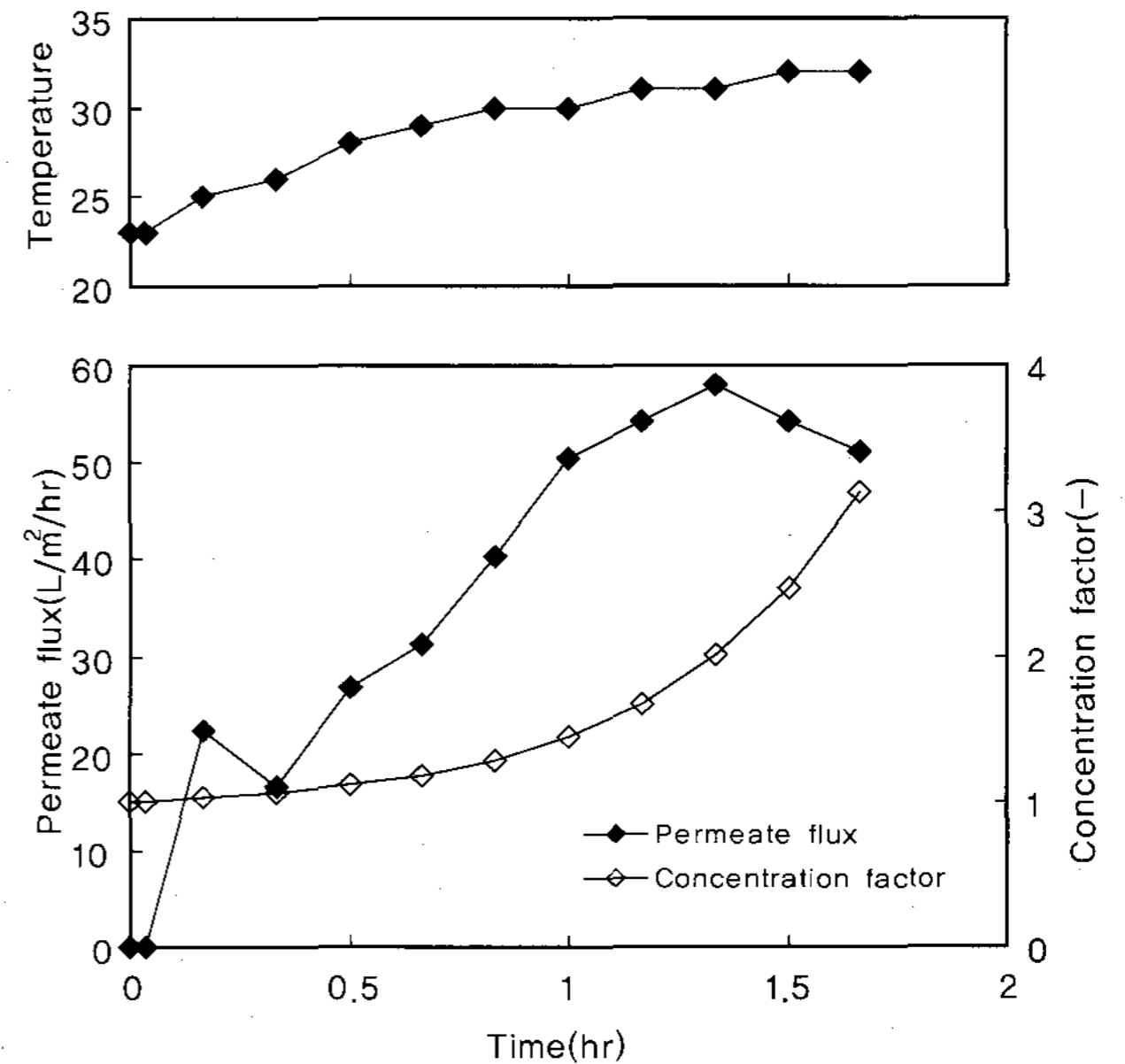


Figure 11. Time course of permeate flux and concentration factor during ultrafiltration of aloe juice according to batch concentration mode (operating conditions : TMP= 1.0 bar, Axial flow rate=288 L/hr, T=23°C).

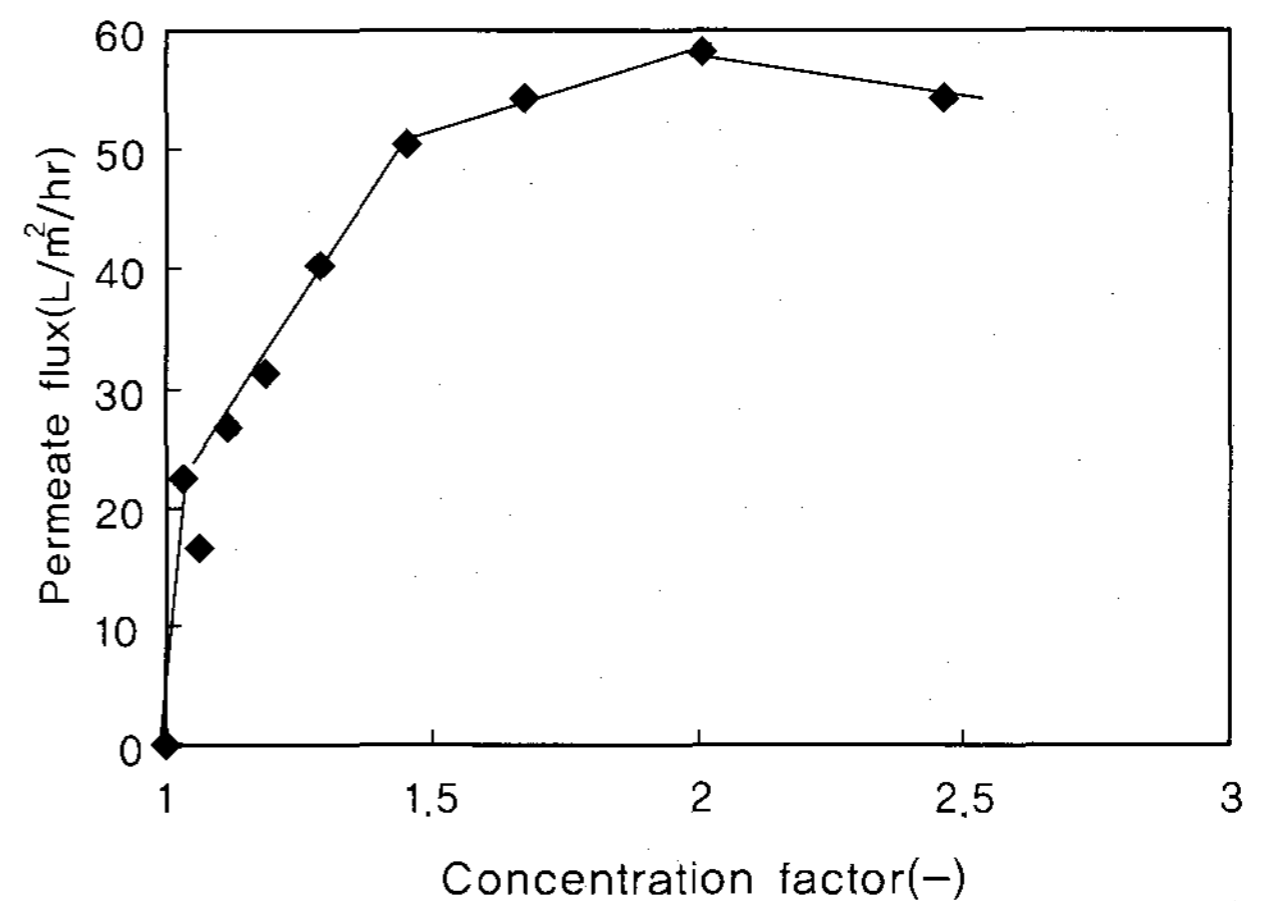


Figure 12. Variation of permeate flux as a function of concentration factor (operating conditions : TMP=1.0 bar, Axial flow rate=288 L/hr, T=23°C).

온도=23°C, 공급액속도=240 L/hr로 150 kDa 막의 사용에서와 동일하였으나 TMP=1 bar로 2배 높은 조건하에서 수행되었다. 투과액 유속과 농축인자의 경시변화(Fig. 12)는 150 kDa 막에서와 같은 경향이었으나 투과액 유속의 증가 기간이 길었고, 더 높은 투과액 유속의 최대값 (58.01 L/m²/hr) 을 나타내었으며, 최대값의 감소 폭은 더 컸다. 이 때 순수한 물의 투과 유속은 281.6 L/m²/hr이었으므로 순수한 물의 투과 유속 약 64 L/m²/hr에서 최대 투과유속 24.25 L/m²/hr을 얻었던

150 kDa 막과 비교해 보면 막 투과성에서 약 2배 이상의 투과속도가 낮아진 것으로 볼 수 있다. 이는 막의 오염 및 농도 분극과 관계되는 것으로 보인다(26). 즉, 막 크기와 비슷한 고분자 또는 부분적으로 가수분해된 고분자가 막으로 들어가 막의 구멍을 막으며, 이후 동일 분자들이 막 표면에 남고 농도 분극층에 들어가는데, 50 kDa 막의 경우 상대적으로 이들 막 크기와 비슷한 고분자들의 농도가 150 kDa 막보다 높아 나타난 것으로 볼 수 있다. 그러나 높은 농축인자(2이상)에서도 최대의 투과액 유속을 유지하였으며(Fig. 12), 조작시간 1.67시간 후 농축액의 탁도는 2.47로 대응하는 시간에서의 150 kDa 막에서와 비슷한 값 범위인 반면, 투과액의 탁도는 무시될 수 있는 정도이어서(Fig. 13) 막 농축이 원활히 수행됨을 보였다.

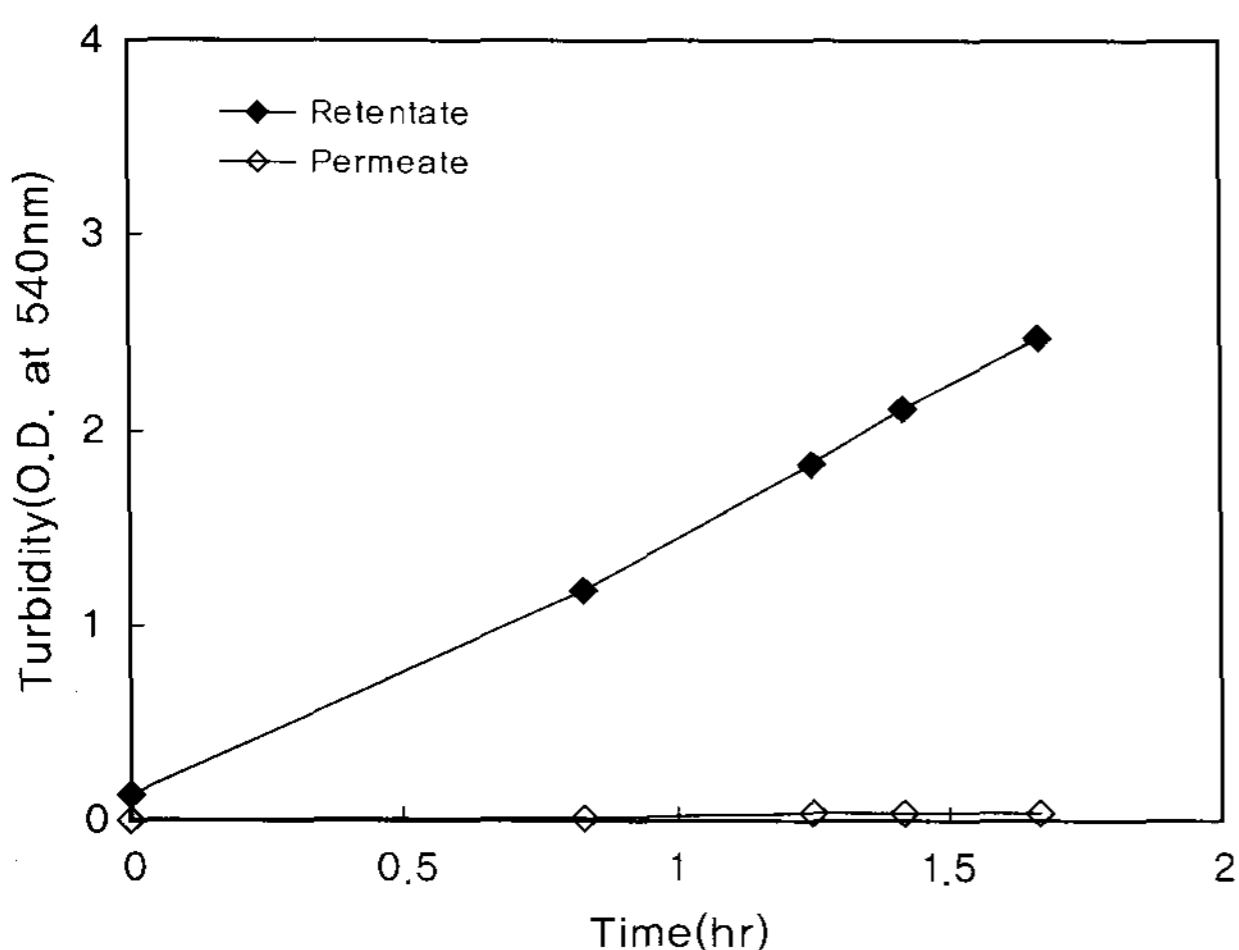


Figure 13. Time course of turbidity in retentate and permeate during ultrafiltration (operating conditions : TMP=1.0 bar, Axial flow rate=288 L/hr, T=23°C).

Fig. 14에서 보는 바와 같이, 알로에의 유효 성분인 다당의 함량은 1.66시간 후 초기값의 2배나 되었고. 이는 대응하는 시간에서 150 kDa막에서와 비슷한 값 범위이다. 투과액에서도 비슷한 다당 함량을 나타내어 다당의 소실이 있음을 보였다.

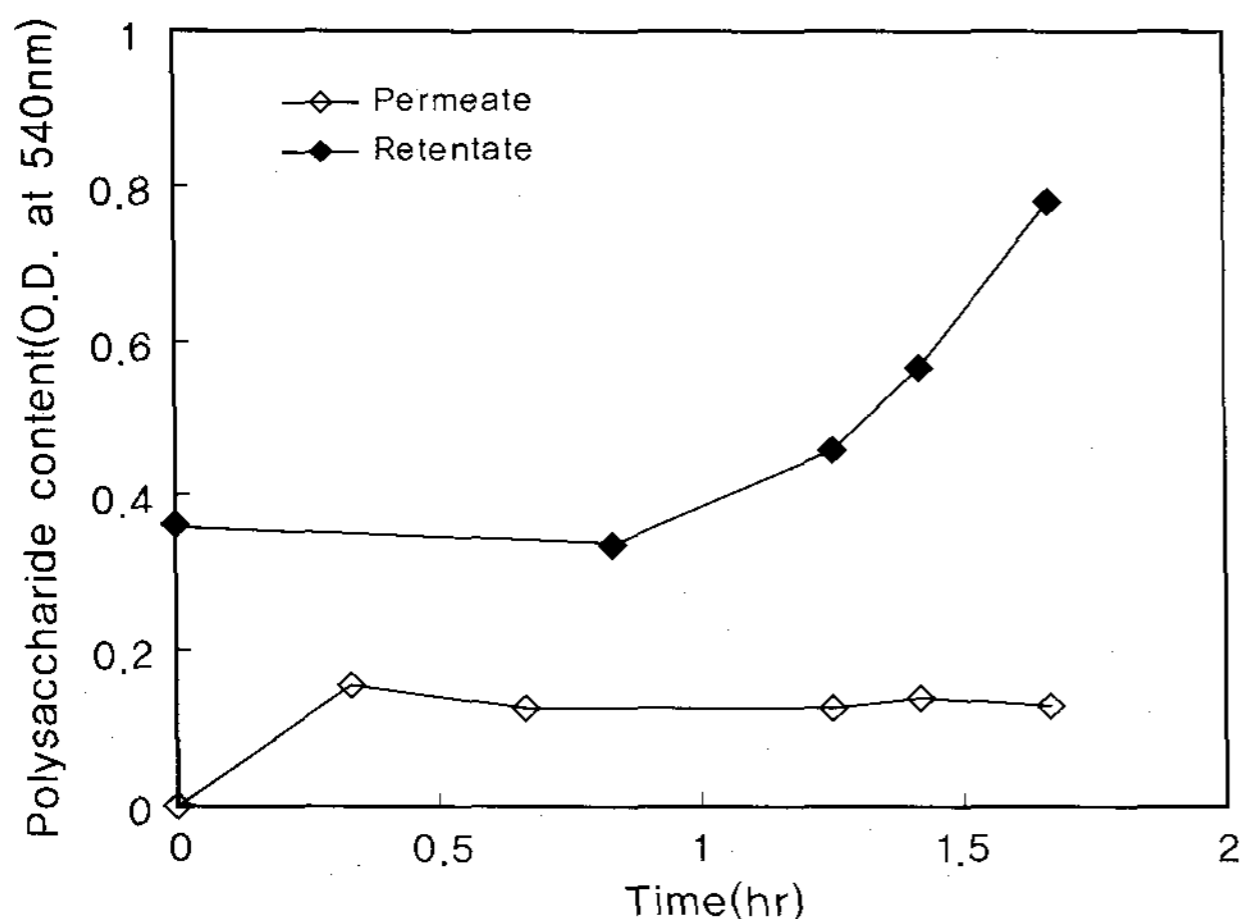


Figure 14. Variation of polysaccharide contents in retentate and permeate during ultrafiltration (operating conditions : TMP=1.0 bar, Axial flow rate=288 L/hr, T=23°C).

농축정도 1.66시간에서 2.16으로 역시 150 kDa에서의 값과 비슷하였으나 보유율 (%)는 대응하는 시간에서 150 kDa의 경우 69%이었으나 50 kDa 막에서는 83.5%의 높은 값을 나타내었다(Fig. 15).

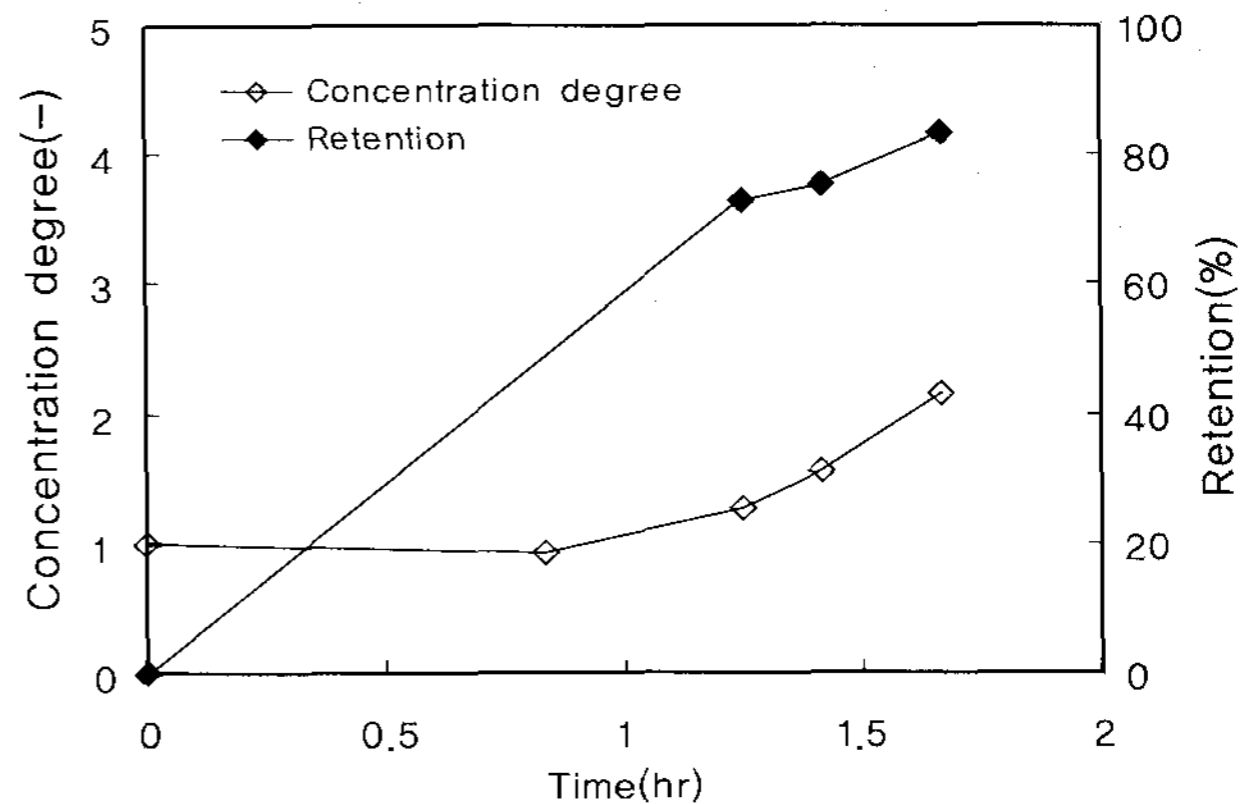


Figure 15. Time course of concentration degree and retention (%) during ultrafiltration (operating conditions : TMP=1.0 bar, Axial flow rate=288 L/hr, T=23°C).

그러나 또 다른 실험 set로 조사한 UF 과정 중 점도 변화를 보면, Fig. 16에서 보는 바와 같이, 농축액의 점도가 6시간 후에도 1.8배 정도만 상승하여 점도저하 현상을 보였고, 이 시료는 냉장 (4°C) 저장 시 일부 층의 분리 현상을 보였으나 이에 대해서는 더 이상 검토하지 않았다. 점도저하 현상은 아마도 Fig. 10에서 살펴본 바와 같이, 온도의 상승으로 인해 가열산화되기 때문이라 생각되나 pilot 장치에서는 온도조절이 가능하므로 해결 가능성이 높다고 생각된다.

아울러, 막의 오염은 약 63%이었으나 150 kDa 막에서와 같은 세척 처리로 약 77%만이 회복되어 세척처리의 개선이 또한 필요함을 보였다.

하지만 종합적인 측면에서 상기 결과들은 bioactive polysaccharide rich 및 aloin free의 알로에 농축액 생산이 적정의 막 공정에 의해 가능함을 보여주는 결과라 할 수 있다. 따라서 막 오염에 대한 세척처리의 대책과 적정 온도 (25°C 이하)를 유지할 수 있도록 막 공정중의 온도를 조절함으로써 점도저하를 방지하면 MWCO=50 kDa에서의 한외여과 공정이 150 kDa의 막 사용시보다 더 유리한 것으로 생각되었다.

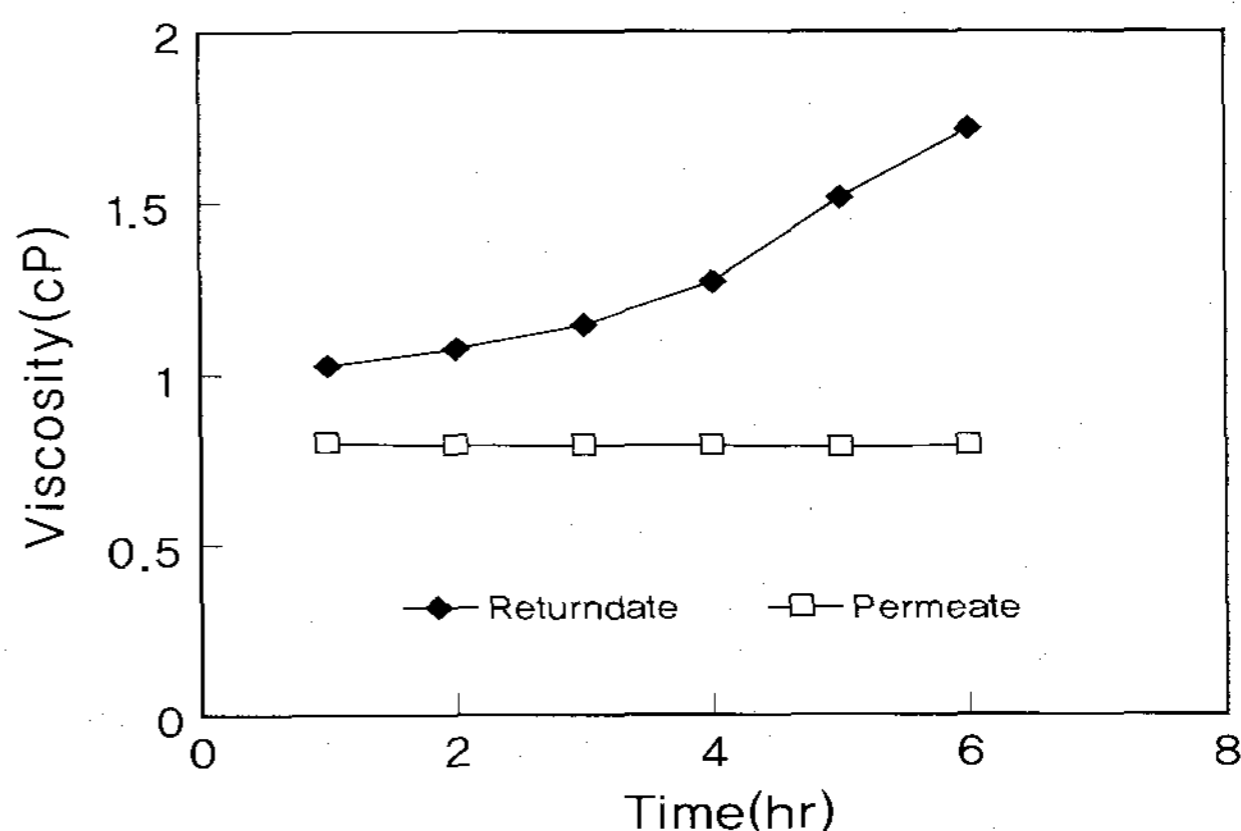


Figure 16. Viscosity changes of retentate and permeate during ultrafiltration of fresh aloe gel.

## 결 론

희석 알로에 용액의 농축을 위해 서로 다른 MWCO 및 모듈 형태 (평판 및 관형)의 한외여과 막 (유기막과 세라믹 막)을 사용하여 한외여과 농축을 조사, 검토하였다. 최적 조건 하에서 50 kDa의 zirconium dioxide tubular 막은 더 높은 유속, 더 낮은 오염, 더 높은 탁도, 더 많은 다당 함량 및 더 적은 알로인 함량의 가장 좋은 결과를 나타내었다. 이 때, 최적 조건은 1 bar의 transmembrane pressure, 240 L/hr의 공급액 속도 및 23°C에서 얻어졌다. 알로에 용액은 UF 1.66 시간 후 51.1 L/m<sup>2</sup> hr의 최종 투과유속으로 부피 농축 비 3.13의 비로 농축되었다. UF 공정은 농축제품의 알로인의 제거 및 생물활성 다당의 함량이 생 알로에 보다 2.1배 높은 농축액으로서의 양호한 수준을 허용하였으며, 또, 조작시간의 증가에 의해 보다 더 높은 농축도와 다당 함량을 지닌 고 품질의 제품을 얻을 수 있을 것으로 판단되었다. 이들 결과는 비록 점도 수준이 저하하고 저온 (4°C) 저장 시 일부 층 분리 현상이 관찰되었지만 매우 양호한 농축도 및 다당 함량 수준을 나타내어 본 실험의 한외여과 공정이 알로에 겔의 농축에 적합한 것으로 판단되었다.

## 감사의 글

본 연구는 (주)김정문알로에의 연구비 지원에 의해 이루어진 바, 이에 감사드립니다.

## REFERENCES

- Grindlay, D. and T. Reynolds (1986), The Aloe vera phenomenon. A review of the properties and modern uses of the leaf parenchyma gel. *J. Ethnopharmacol.*, 117-151.
- Reynolds, T. and A. C. Dweck (1999), Aloe vera leaf gel: a review update *J. Ethnopharmacol.* **68**, 3-37.
- Dagne, E., D. Bisrat, A. Viljoen, and B. E. Van Wyk (2000), Chemistry of Aloe Species. *Current Organic Chemistry* **4**, 1055-1078.
- Quian, H., C. Liu, K. Eshun, and T. Zhang (2005), Quality and safety assurance in the processing of Aloe vera gel juice. *Food Control* **16**, 95-104.
- Lachenmeier, K., U. Kuepper, F. Musshoff, B. Madea, H. Reusch, and D. W. Lachenmeier (2005), Quality control of Aloe vera beverages. *EJEAFChe.* **4**(4), 1033-1042.
- Esua, M. F. and J. W. Rauwald (2006), Novel bioactive maloyl glucans from Aloe vera gel: Isolation, structure elucidation and *in vitro* bioassays. *Carbohydrate Research* **341**, 355-364.
- Femenia, A., Garcia-Pascual, P., Simal, S., and Rossello, C. (2003), Effects of heat treatment and dehydration on bioactive polysaccharide acemannan and cell wall polymers from *Aloe barbadensis* Miller. *Carbohydrate Polymers* **51**, 397-405.
- Turner, C. E., D. A. Williamson, P. A. Stroud, and D. J. Talley (2004), Evaluation and comparison of commercially available *Aloe vera* L. products using size exclusion chromatography with refractive index and multi-angle laser light scattering detection. *International Immunopharmacology* **4**, 1727-1737.
- Ebarandu, A. R., Luta, G., Edwards, J. A., McAnalley, B. H., and Davis, B. (2005), Quantitative colorimetric analysis of aloe polysaccharides as a measure of *Aloe vera* quality in commercial products. *Journal of AOAC International* **88**(3), 684-691.
- Brüschke, H. (1995), Industrial applications of membrane separation processes. *Pure & Appl. Chem.* **67**(6), 993-1002.
- Mohr, C. M., Engelgau, D. E., Leeper, S. A., and Charboneau, B. L. (1988), *Membrane Applications and Research in Food Processing*. Noyes Data Corp. Park Ridge, NJ.
- Padilla, O. I., and McEllan, M. R. (1989), Molecular weight cut-off of ultrafiltration membranes and the quality and stability of apple juice. *J. Food Sci.* **54**, 1250-1254.
- Shiiba, K., Ijitsu, T., Hara, H., and Okada, K. (1992), Preparation and characterization of water-soluble hemicellulose(arabinoxylan) from wheat bran. *Nippon Shokuhin Kogyo Gakkaishi* **39**(12), 1147-1155.
- Maier, G., Frei, M. Wucherpfennig, K., Dietrich, H., and Ritter, G. (1994), Innovative process for production of ultrafiltered apple juice and concentrates. *Fruit Processing* **94**(5), 134-138.
- Girard, B. and Fukumoto, L. R. (2000), Membrane processing of fruit juices and beverages: A review. *Crit Rev Food Sci Nutr.* **40**(2), 91-157.
- Vladisavljevic, G. T., Vukosavljevic, P., and Bukvic, B. (2003), Permeate flux and fouling resistance in ultrafiltration of depectinized apple juice using ceramic membranes. *Journal of Food Eng.* **60**, 241-247.
- Fukumoto, L. R., Delaquis, P., and Girard, B. (1998), Microfiltration and ultrafiltration ceramic membranes for apple juice clarification. *J. Food Sci.* **63**(5), 845-850.
- Pap, N. (2004), Industrial ecology in food industry. 4803370S Industrial Ecology and Recycling course. Lecture on November 4th 2004.
- Jorda, J., Marechal, P., Rigal, L., and Pontalier, P. Y. (2002), Biopolymer purification by ultrafiltration. *Desalination* **148**, 187-191.
- Garcia, R., Ganter, J., and Carvalho, R. (2000), Solution properties of D-xylans from corn cobs. *Europ. Polymer J.* **36**, 783-787.
- Izydorczyk, M., and Biliaderis, C. (1995), Cereal arabinoxylans: advances in structure and physicochemical properties. *Carbohydrate Polymers* **28**, 33-48.
- Cassano, A. Jiao, B. and Drioli, E. (2004), Production of concentrated kiwifruit juice by integrated membrane process. *Food Res. Int.* **37**, 139-148.
- Warczok, J., Ferrando, M., Lopez, F., and Guell, C. (2004), Concentration of apple and pear juices by nanofiltration at low pressures. *J. Food Eng.* **63**, 63-70.
- Mänttari, M. and Nyström, M. (2000), Critical flux of high molar polysaccharides and effluents from the paper industry. *Journal of Membrane Science*, **170**, 257-273.
- O'Donnell, C., Koegel R. G., and Straub, R. J. (1997), Concentration of phytase in alfalfa juice by ultrafiltration. 1997 Research Summaries. US Dairy Forage Research Center.
- Aloe Lab. of Texas (1983), Test for identity of polyhydroxy anthraquinone complexes in Aloe vera liquid.
- Jorda, J., Marechal, P., Rigal, L., and Pontalier, P. Y. (2002), Biopolymer purification by ultrafiltration. *Desalination* **148**, 187-191.