

추출 방법과 조건에 따른 소나무 지엽 추출효율 변화

김동성 · 김형민 · 성용주[†] · 강석구 · 강호양 · 이준우¹ · 김세빈¹ · 박관수¹

접수일(2016년 1월 18일), 수정일(2016년 2월 11일), 채택일(2016년 2월 15일)

Changes in Extraction Efficiency of Pine Needles depending on Extraction Method and the Condition

Dong Sung Kim, Hyung Min Kim, Yong Joo Sung[†], Seog Goo Kang, Ho-Yang Kang,
Jun-Woo Lee¹, Se Bin Kim¹ and Gwan-Soo Park¹

Received January 18, 2016; Received in revised form February 11, 2016; Accepted February 15, 2016

ABSTRACT

The extraction efficiency depending on the extracting methods and the conditions of extraction was investigated. The common steam extraction was compared to the distillation extraction method. The effects of the samples size and the extraction time on the extract yield were also investigated by using UV-Vis spectrophotometer. One of the functional components of pine needle extract as the natural phenol base components were detected by the UV-VIS at around 235 nm wavelength range. The absorbance intensity at around 235 nm wavelength of the pine needle extract was used as the indicator of the extraction efficiency in this experiment.

The distillation extraction showed the higher extract yield than the steam extraction. The grinding treatment of pine needles also resulted in the better extract performance, but the severe grinding showed a little decrease in the extract yield especially in case of the distillation extraction method. More than half of the extract was collected at the first stage of the extraction, that was the first 15 minutes in the total 60 minutes extraction.

Keywords: Pine needle, steam extraction, distillation extraction, UV spectrophotometer

• 충남대학교 농업생명과학대학 환경소재공학과(Dept. of Biobased Materials, College of Agriculture and Life Science, Chungnam Natl. Univ. Daejeon, Republic of Korea)

¹ 충남대학교 농업생명과학대학 산림환경자원학과(Dept. of Environment & Forest Resources, College of Agriculture and Life Science, Chungnam Natl. Univ., Daejeon, Republic of Korea)

[†] 교신저자(Corresponding Author): E-mail: yosung17@cnu.ac.kr

1. 서론

최근 건강에 대한 관심의 증대에 따라 천연물 유래 기능성물질에 대한 수요가 지속적으로 증대되면서 국내 침엽수의 대표 수종 중 하나인 소나무 잎 등의 침엽수 잎의 기능성 추출성분 활용과 수요가 더욱 커지고 있다. 소나무 잎 추출물은 다양한 용도로 활용되고 있는 고부가가치 기능성물질로서, 실제 추출을 통해 얻어지는 소나무 잎 정유(essential oil)는 α -pinene, β -pinene, camphene, bomeol, phellandrene이 포함되어 있고, 이밖에도 플라베놀 및 플라보노이드 류(quercetin, kaempferol), 비타민 등의 많은 종류의 기능성 유기화합물을 포함하고 있는 것으로 알려져 있다.¹⁾ 대표적인 추출성분인 테르펜(terpenes) 성분 등은 곰팡이 및 세균 등의 성장저해 항균능력을 가지고 있는 것으로 보고된 바 있으며, 플라베놀의 항산화제는 혈중콜레스테롤을 낮추는 효능이 있는 것으로 알려져 있기 때문에 건강기능성식품, 창상치료제, 기능성벽지 및 세제, 천연방향제, 천연염색제 등 다양한 용도로 활용되고 있다.^{2,3)}

식물체에 포함되어 있는 다양한 기능성 추출물을 추출하기 위한 방법으로는 현재 크게 물리적, 화학적, 효소적 방법 등이 적용되고 있는데 실질적으로 직접 증기를 적용하는 추출법, 증기 증류법, 유기용매 추출법, 초임계 유체 추출법, 기계적 압착을 통한 방법, 마이크로웨이브 적용 추출법, 효소 추출법 등 다양한 추출 방법이 사용되고 있다.⁴⁾ 대표적인 유효성분 추출법으로는 유기용매 추출법을 들 수 있는데, 유기용매 추출 시 유기용매에 잔류에 따른 품질저하 및 장시간 추출에 따른 성분파괴 등이 문제가 될 수 있고, 초임계 유출법을 이용한 추출 시에는 초기 설치비용이 높고, 추출공정운용 시 고에너지 필요에 따른 비용증가가 큰 단점으로 대두될 수 있다.^{5,6)} 압착 추출법은 정유함량이 많은 물질을 채취하는 데에 효과적인 방법으로 활용되고 있으나, 채취 후 불순물이 많아 추가 정제공정이 발생하게 되는 단점이 있어⁷⁾, 기능성 추출물의 효과적인 추출을 위해서는 목표로 하는 물질과 대상물질의 특성을 고려하여 추출방법과 공정을 적절히 적용하여야 한다.⁷⁾

실제 소나무 솔잎의 주요 추출성분 중 향기성분은 테르펜과 다이닐(dienals) 등으로⁸⁾ 추출방법 및 추출용매에 따라 추출양의 차이가 나타나는 것으로 알려져 있으며, 향기성분의 경우 수증기 증류 시 용매 분획에 비해

(29종 분획) 44종의 성분이 추가적으로 분리되어 보고된 바 있으며,^{9,10)} 솔잎에 포함된 플라보노이드(flavonoid) 류 중 proanthocyanidin의 기능성이 우수한 것으로 보고된 바 있다.³⁾

기능성 추출물의 추출 시 시료의 크기 및 추출속도에 따라서 추출물 함량 형태에 영향을 미치는 것으로 알려져 있는데, 분쇄 시 마찰열에 의하여 시료의 온도가 상승하고, 이 때 열에 민감한 성분의 파괴 및 변성이 일어날 수 있다고 보고된 바 있으며,¹¹⁾ 시료의 크기에 따른 영향과,¹²⁾ 추출시료의 입자크기 및 가열온도에 따른 추출 효율 평가가 보고된 바 있다.¹³⁾

이처럼 다양한 식물체로부터 향기성분 및 기능성 추출물의 성분에 대한 다양한 연구 결과가 보고되었으나, 소나무 잎의 향 성분 및 기능성 추출을 위한 추출공정방식의 차이에 따른 추출 효율성에 대한 기초 연구는 미비한 실정이다. 본 연구에서는 소나무 잎의 기능성 유효 추출성분의 추출 공정 효율 특성을 파악하고 이를 통한 고효율 추출 공정의 개발을 위해 솔잎의 크기, 추출공정방식의 차이 및 시간에 따른 구간별 기능성 추출물의 추출특성 등 추출효율 증대를 위한 기반연구를 실시하였다.

2. 재료 및 방법

2.1 공시재료

본 연구에서는 대전 내에서 자생하는 소나무에서 잎을 직접 채취하여 사용하였다. 채집한 솔잎을 약 24시간 동안 항온항습조건에서 기건 시킨 후 생잎을 분말화한 후 10~30 mesh, 30~60 mesh의 크기로 분급한 후 생잎, 10~30 mesh 분급분, 30~60 mesh 분급분 3가지로 나누어 추출효율성 평가를 실시하였다. 실제 분쇄 공정에서 열에 의한 성분 파괴가 나타날 수 있는데,¹¹⁾ 솔잎의 분쇄 처리 시 이를 고려하여 냉각과정을 보완하여 시료를 처리하였다.

2.2 추출방법

2.2.1 용매 추출

용매 및 추출방식에 따른 추출물의 유효 추출 성분 특성을 파악하기 위해 증류수 500 mL, 전건 기준 10 g의 시료를 15분간 침지처리하여 온수추출, 냉수추출, 초음

파추출을 실시하였으며, 50% 에틸알코올 500 mL에 전진 기준 10 g의 시료를 처리하여 알코올추출을 실시하였다. 온수추출 및 알코올추출 시 증발되는 증기와 함께 추출성분의 방출을 차단하기 위해 환류냉각기를 이용하였으며, 초음파 추출은 Vibra-cell 사(VC 505, 500 Watt, Probe number : 630-0310**)의 초음파장치를 이용하였으며, 초음파 처리에 의한 추출온도 상승에 따른 영향을 최소화하기 위해 냉각장치를 적용하여 실험을 실시하였다.

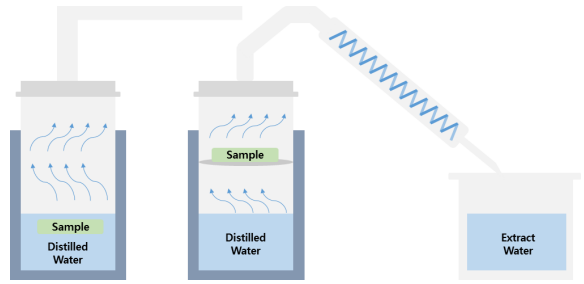
2.2.2 증기 추출

2.2.2.1 스팀 추출

본 실험에 적용된 스팀 추출은 시료에 직접 열을 가하는 것이 아닌 스팀을 발생시켜 스팀이 시료를 통과하며 유효추출 성분을 함께 이송시켜 추출되는 방식이다. 시료를 상치하고 하단의 증류수를 열에 의해 증발하면서 스팀이 발생되어 배출구로 배출되는 순간부터 시간에 따른 추출 특성 평가를 실시하였다. 증류수 1 L, 시료 전진 기준 40 g, 스팀 추출량을 400 ± 25 mL/hr로 조절하여, 시료의 크기 및 추출 시간별로 15, 30, 45, 60 min의 조건에서 추출물을 채취하여 기능성 추출물 추출 효율 평가를 실시하였다.

2.2.2.2 증류 추출

증류추출은 시료를 증류수에 침지하여 시료의 유효성분이 증류수가 가열되면서 물과 함께 증발하여 추출되는 방식으로, 배출구로 증기의 배출이 시작되는 순간부터 시간별 추출효율을 평가하였다. 증류수 1 L, 시료 전진 기준 40 g을 기준으로 증류 추출량을 400 ± 25 mL/hr로 조절하여 증류하였으며, 시료의 크기별, 추출 시간별로 15, 30, 45, 60 min의 조건에서 추출물을 채취하여 기능성 추출물 추출효율 평가를 실시하였다.



(A) Distillation (B) Steam Extraction

Fig. 1. Schematic diagram of an extraction apparatus for steam extraction and distillation extraction.

2.3 추출효율 평가를 위한 추출물의 UV 평가

각 추출조건에서 추출된 추출물의 추출효율을 간접적으로 평가하기 위해 SCINCO사의 UV-Vis spectrophotometer(S-3100, Wavelength Range : 190~1000 nm)를 이용하여 추출액을 특성을 평가하였다. 소나무 잎 추출액의 경우 UV 흡광도 측정 시 220~280 nm에서 최대 흡수 파장을 가지며 이 부분에서 나타나는 UV 흡광은 대체로 천연 페놀류에 의한 것으로서,¹⁴⁾ 이 성분은 다양한 침엽수의 주요 기능성 추출물 중 주요 성분으로 본 연구에서는 전체 UV spectrometer 평가 및 약 230~240 nm의 피크(peak) 정도를 통해 추출액의 추출효율을 평가하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 용매 추출 효율 평가

용매종류 및 추출방식에 따른 소나무 잎의 추출효율 특성 파악을 위해 15분간 온수, 냉수, 초음파, 알코올 추출을 실시하고 각 추출액에 대한 UV 측정을 실시한 결과,

Table 1. The conditions of pine needles extraction experiments.

Amount of Flow rate	Sample size	Extraction Method	Time (min)
450 ± 25 mL/hr	Fresh leaves	Steam	0~15 (15)
	10~30 mesh fraction		15~30 (30)
	30~60 mesh fraction	Distillation	30~45 (45)
			45~60 (60)

추출 방법과 조건에 따른 소나무 지엽 추출효율 변화

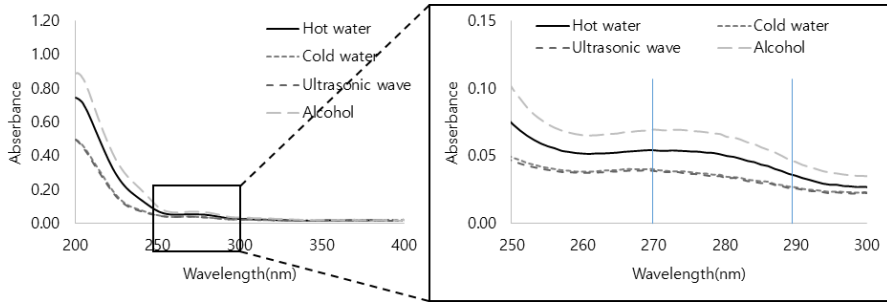


Fig. 2. UV spectrum of pine needle extract depending on the extraction solvents and the extraction methods.

Fig. 2에서 보여지는 것과 같이 약 270~290 nm 사이에서 흡광도 피크(peak)가 나타나는 것을 확인할 수 있었는데, 천연 페놀류의 흡광도가 220~285 nm에서 관측되는 연구결과로 볼 때,¹⁴⁾ 이 피크는 소나무 잎에서 유래하는 천연페놀류 성분으로 판단되었다. 추출액 추출효율을 UV 피크의 강도로 간접적으로 평가한 결과 알코올 추출 시 가장 피크가 높은 값을 나타냈으며, 물을 용매로 추출하는 경우에는 온수추출에서 가장 높은 피크 값이 나타나는 것을 확인하였다. 초음파 처리는 소나무 잎의 기능성 물질 추출효율에 영향을 미치지 않는 것으로 확인되었다.

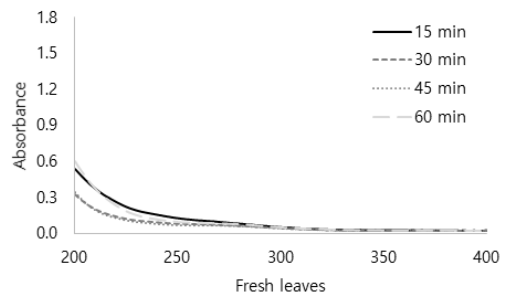
3.2 스팀 추출 효율 평가

3.2.1 시료 크기에 따른 기능성 추출물 추출효율 변화

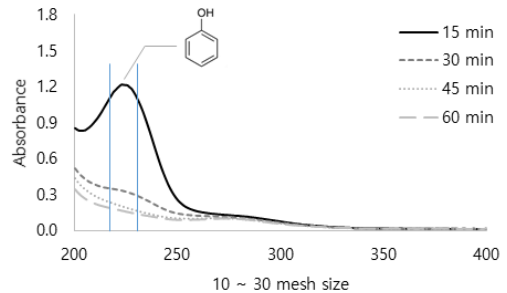
시료크기에 따라 스팀 추출 구간 별(15, 30, 45, 60 min) 스팀 추출 효율평가를 실시하여 추출액의 UV 스펙트럼을 Fig. 3에 나타내었다. 추출액의 평가결과 생잎에 비해 분쇄된 시료에서 추출효율이 높게 나타나는 것을 알 수 있었는데, 분쇄된 시료의 경우 분쇄처리에 의해 시료의 비표면적이 증가하고 조직의 파괴가 발생됨에 따라 스팀의 솔잎 내부 침투가 용이하게 되면서 상대적으로 높은 추출 특성을 나타내는 것으로 판단되었다.

3.2.2 추출시간 별 기능성 추출물 추출 효율 비교

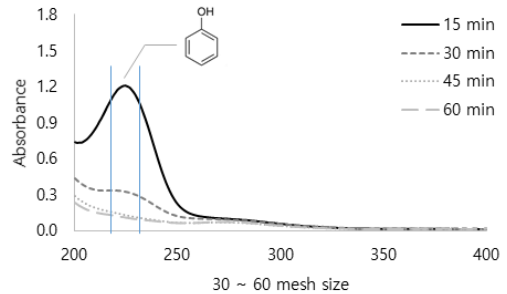
스팀 추출을 실시하면서 각 시간 단계별로 추출되어 나오는 시료를 각각 채취하여 추출효율 특성을 비교평가 하였다. 각 시간 구간 별(15, 30, 45, 60 min) 스팀 추출액의 UV 스펙트럼에서 기능성추출물의 함량을 나타내는 235 nm의 흡광도값을 정리하여 Fig. 4에 나타내었다. 실제 솔잎의 스팀 추출에서 초기에 추출되어 나오는 15 분까지의 추출액에서 가장 높은 흡광도값을 나타내는



(a) Untreated Fresh leaves



(b) 10~30 mesh fraction



(c) 30~60 mesh fraction

Fig. 3. UV spectrum of pine needle extract obtained from the steam extraction depending on the sample size and the extraction times.

것을 알 수 있는데 이를 통해 실제 기능성추출이 초기단계에서 급격히 발생하고 그 이후에는 감소하는 경향을 나타내는 것을 확인할 수 있었다.

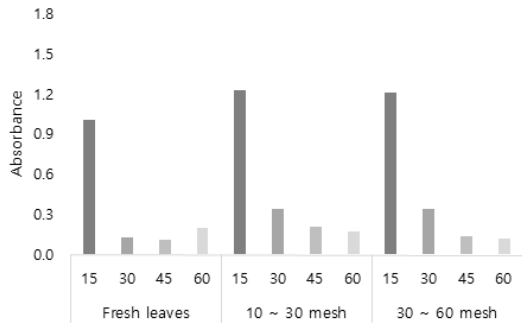


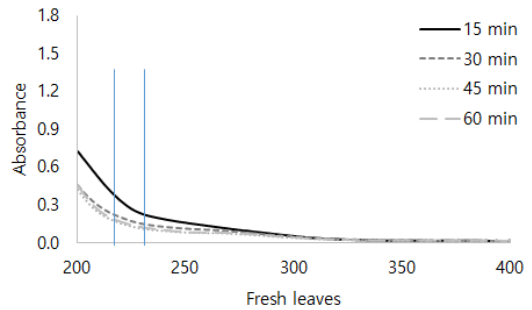
Fig. 4. UV absorbance at 235 nm wavelength of pine needle extract obtained from the steam extraction depending on the sample size and the extraction times.

3.3 증류추출에서 시료 크기 및 추출시간에 따른 기능성 추출물 추출효율 변화

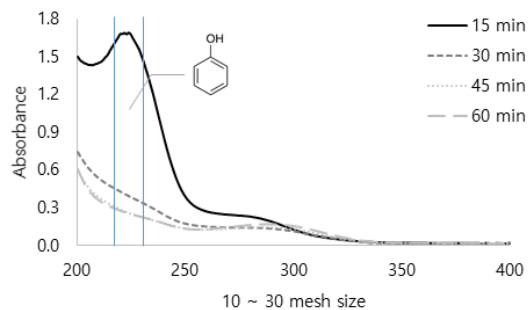
시료를 증류수에 침지한 후 가열하여 추출하는 증류추출 방식에서 시료의 크기 및 추출 시간에 따른 추출효율 변화를 평가하여 Fig. 5에 나타내었다. 추출조건에 따라 추출액의 추출효율은 증류 추출에서의 경우에도 스팀 추출시와 같은 경향을 나타내는 것을 확인할 수 있는데, 시료의 분쇄에 의해 추출효율이 증대하고 추출액의 추출은 초기 추출단계에서 집중적으로 이루어지는 것으로 나타났다. 특히, 증류 추출의 경우에는 10~30 mesh 크기분에서 가장 높은 추출 특성을 나타내는 것을 확인할 수 있었는데, 열에 민감한 성분의 파괴 및 변성이 일어날 수 있다는 기존 연구결과를 볼 때,¹¹⁾ 30~60 mesh 크기분의 경우 과도한 분쇄에 의한 휘발성 추출물의 손실에 의한 영향으로 상대적으로 낮은 추출효율이 나타나는 것으로 판단되었다. 이러한 경향은 스팀추출에서보다 증류추출조건에서 더욱 확연히 나타나는 것을 알 수 있었다.

3.4 추출방법에 따른 추출효율 비교

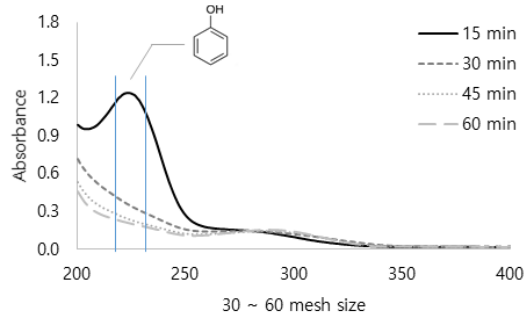
스팀 및 증류추출법에 따른 추출효율 비교를 실시하였다. 추출액의 UV 스펙트럼을 측정하여 기능성추출물이 존재하는 235 nm 파장에서의 흡광도 값을 각 조건별로



(a) Fresh leaves



(b) 10~30 mesh size



(c) 30~60 mesh size

Fig. 5. UV spectrum of pine needle extract obtained from the distillation extraction depending on the sample size and the extraction times.

정리하여 Fig. 6에 나타내었다. 흡광도 값을 비교한 경우를 통해 알 수 있듯이 전체적으로 증류추출의 경우 스팀추출의 경우보다 추출효율이 높게 나타나는 것을 확인할 수 있었는데 증류추출의 경우에는 시료가 증류수 속에 침지된 상태이기 때문에 시료내부로의 수분 유입이 용이하고 이에 따라 추출효율이 증가하는 것으로 판단되었다.

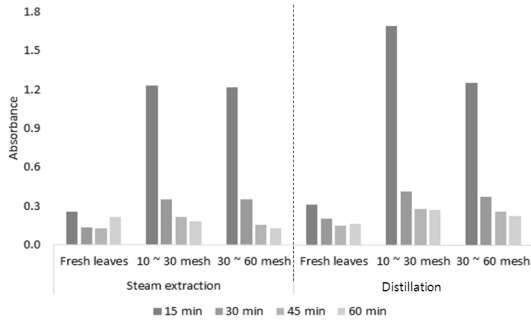


Fig. 6. UV absorbance at 235 nm wavelength of pine needle extract obtained from the steam extraction depending on the sample size and the extraction times.

4. 결론

다양한 기능성추출물을 포함하고 있는 솔잎으로부터 기능성추출물의 추출효율 증대 방안을 모색하기 위하여 추출방법과 추출조건에 의한 추출효율변화를 각 추출액의 UV 흡광도 변화를 통해 비교평가 하였다. 시료에 스팀을 적용하여 추출하는 스팀추출방식과 시료를 침지시켜 가열하여 추출하는 증류추출 방법을 비교한 결과 증류추출에서 유효 성분의 추출효율이 높게 나타났는데 이는 증류 추출 시에 스팀 추출에 비해 수분의 내부 침투에 따른 유효성분의 용출이 용이하기 때문인 것으로 판단되었다. 솔잎의 크기별 추출효율을 비교한 결과 분쇄된 시료에서 추출효율이 높게 나타났으며 증류추출의 경우에는 10~30 mesh 크기분의 추출 시에 가장 높은 추출 특성을 나타내는 것을 확인할 수 있었다. 두 가지 추출방법에서 모두 유효성분의 추출은 추출초기단계에서 집중적으로 이루어지는 것을 단계별 추출액의 특성비교를 통해 확인할 수 있었다. 향후 이러한 추출방식과 조건에 의한 추출효율 평가결과들을 토대로 솔잎과 같은 침엽수 잎 추출공정의 효율성 증대방안을 모색해볼 수 있을 것으로 판단되었다.

사 사

본 연구는 산림청 ‘임업기술개발사업(과제번호: S211415L010130)’의 지원에 의하여 이루어진 것입니다.

Literature Cited

- Lee, J. S. and Woo, H. J., A study on natural dye having the effects on the atopic Dermatitis (part II) - pine needles extract -, Textile Coloration and Finishing, 24(3): 196-203 (2012).
- Yun, M. S., Cho, H. M., Yeon, B. R., Choi, J. S. and Kim, S. M., Herbicidal activities of essential oils from pine, nut pine, larch and khingan fir in korea, Wood Turf. Sci. 2(1): 30-37 (2013).
- Lee, O. H., Kim, K. Y., Jang, M. K., Yoo, K. H., Kim, S. G., Kim, M. H. and Lee, S. H., Evaluation of proanthocyanidin contents in total polyphenolic compounds of pine (*pinus densiflora*) needle extracts and their antioxidative activities, Journal of Life Science 18(2): 213-219 (2008).
- Cho, Y. J., Lee, S. K. Ahn, Y. H. and Pyee, J. H., Development of ultrasonication-assisted extraction process for manufacturing extracts with high content of pinosylvin from pine leaves, Journal of the Korean Society for Agricultural Machinery 28(4): 325-334 (2003).
- Lee, K. J. and Um, B. H., Extraction of useful component from natural plants using ultrasound system, Korean J. Biotechnol. Bioeng. 23(2): 101-108 (2008).
- Shin, S. L. and Lee, C. H., Antioxidant activities of ostrich fern by different extraction methods and solvents, Journal of Life Science 21(1): 56-61 (2011).
- Mun, B. K., Study on the analysis of physicochemical characteristics of essential oil and

- the application to the deodorants, Kwangwoon University, p..21 (2006).
8. Kim, Y. K., Chung, K. N. Ishi, H. and Mura-ki, S., Volatile components of pinenut, Korean J. Food Sci. Technol. 18(2): 105-109 (1986).
 9. Kang, S. K., Kang, S. H., Choi, O. J., Kim, Y. W. and Kim, Y. D., Volatile flavor compounds of *pinus densiflora* sieb and zucc according to extracting solvents and steam distillation method, Korean J. Dietary culture 11(3): 403-408 (1996).
 10. Lee, H. J., Cui, C. B., Choi, H. T., Kim, S. H., Ham, Y. A., Lee, D. S. and Ham, S. S., Quality characteristics of the vaporized liquid of water-boiled pine needle, Korean J. Food Preserv. 12(2): 107-111 (2005).
 11. Seo, M. C., Ko, J. Y., Song, S. B., Lee, S. J., Kang, J. R., Kwak, D. Y., Oh, B. G., Yoon, Y. N., Nam, M. H., Jeong, H. S. and Woo, K. S., Antioxidant compounds and activities of foxtail millet, proso millet and sorghum with different pulverizing methods, J. Korean Soc Food Sci Nutr 40(6): 790-797 (2011).
 12. Cho, Y. J., Antioxidant, angiotensinconvert-ing enzyme and xanthin oxidase inhibitory activity of extracts from *saururus chinensis* leaves by ultrafine grinding, Korean journal of food preservation 21(1): 75-81 (2014).
 13. Jung, M. H. and Choi, Y. H., Prediction model for the extraction weights and extraction rate of barley and cassia tora seed tea by different extraction conditions, Agricultural research bulletin of Kyungpook National University 8: 95-106 (1990).
 14. Joen, M. S. and Park, M. J., Components of pine needles extract and functionality of the dyed fabrics, The Research Journal of the Costume Culture 18(2): 371-381 (2010).