

## 추출조건이 계피추출액의 유효성분함량에 미치는 영향

김나미 · 고성룡 · 최강주 · 김우정\*

한국인삼연초연구소, \*세종대학교 식품공학과

**초록** : 계피추출액의 유효성분과 가용성물질의 용출량에 미치는 추출온도, 시간, 용매첨가량, 추출횟수 등의 영향을 조사하였다. 일반성분과 cinnamic acid, cinnamic aldehyde, eugenol 함량은 추출온도가 20°C에서 80°C로 높아짐에 따라 증가하였고 100°C에서는 큰 변화가 없었다. 80°C에서 10시간 추출하는 동안 6시간 이상에서는 일반성분과 cinnamic acid, cinnamic aldehyde, eugenol 함량의 증가율이 낮았고 용매첨가량에 있어서는 계피중량의 5~40배 첨가구까지의 일반성분과 유효성분의 용출량이 증가하다가 그 이상의 용매첨가에 의해서는 완만한 증가를 보였으며 추출횟수는 1~2회로 하는 것이 이들 성분의 용출에 효율적이었다 (1992년 9월 28일 접수, 1993년 1월 4일 수리).

계피는 녹나무과에 속하는 계피나무의 껍질을 말하며 재배지역과 품종에 따라 종류가 다양한데 스리랑카산 *Cinnamomum Zeylanicum* Nees 껍질을 "True-cinnamon", 그밖의 중국, 인도네시아, 일본 등에서 나는 여러가지 품종의 껍질을 "Cassia-cinnamon"이라 하여 크게 두 가지로 구분한다.<sup>1)</sup> 품종에 따라 성분 및 품질상의 차이가 있으나 주요성분인 cinnamic aldehyde, cinnamic acid, eugenol 등은 강한 향기와 독특한 맛을 내며 진정작용, 말초혈관확장, 해열, 권위, 항산화작용, 미생물 생육억제 등의 약리효능을 발휘하는 것으로 알려져 있어서 오래전부터 향신료, 가향제, 장내 가스제거제, 방부제 뿐 아니라 한방에서도 중요한 약재로 사용되어왔다.<sup>2-4)</sup> 우리나라의 경우 계피는 태국, 인도네시아, 중국에서 수입하는데 90년도에는 녹용, 녹각, 감초 다음으로 수입량이 많은 생약재로 조사되어 있다.<sup>5)</sup>

최근 계피는 약리효능과 독특한 맛과 향을 이용한 소화건위제 등의 의약품이나 건강보조식품으로 가공되고 있으며, 제품의 형태는 현대인의 편익위주의 기호추세에 따라서 복용이 간편하고 흡수가 빠른 액상제품이 많아지고 있다.<sup>6,7)</sup> 현재까지 계피의 약리 및 성분에 관하여는 많은 연구가 행하여졌으나<sup>8-10)</sup> 계피의 가용성 물질 및 유효성분을 효과적으로 추출하여 제품화하는 가공방법에 관한 연구로는 추출 중 점조성물질의 생성을 감소시켜 여과분리를 용이하게 한 Schwartzman 등<sup>11,12)</sup>의 보고가 있을 뿐 산업적, 기업적 제한요인 때문에 연구내용이

발표되지 못하는 경우도 있어서 보고문이 극히 부족한 실정에 있다.

본 연구에서는 액체형태의 건강보조식품이나 의약품에 이용하기 위한 계피 extracts를 조제하는데 있어서 추출용매를 물과 70% 에탄올로 하였을 때 추출온도, 시간, 용매량, 추출회수 등의 조건이 계피의 가용성 물질 및 유효성분의 용출에 미치는 영향을 검토하여 효율적인 추출조건을 설정하고자 하였다.

### 재료 및 방법

#### 재료

본 실험에 사용한 계피는 중국산 수입품을 시중 건재상에서 구입하여 20~32 mesh의 분말로 분쇄하여 사용하였다. 추출용매로 사용한 물은 이온 교환수지를 통과시킨 증류수를, 에탄올은 99.9%의 1급 시약용, cinnamic acid와 eugenol은 Sigma사 제품, cinnamic aldehyde는 Aldrich사 제품을 사용하였다.

#### 계피추출액의 조제

추출용매를 물과 70% 에탄올로 하여 추출온도는 20~100°C, 추출시간은 2~10시간, 추출용매량은 계피원료중량의 5~60배, 추출횟수는 1~5회로 구분하여 추출한 다음 5~10°C에서 8,000×g로 20분간 원심분리한 상정액을 일정부피로 정용하여 계피추출액으로 조제하였다.

**유효성분 정량**

Cinnamic acid와 cinnamic aldehyde 및 eugenol 함량은 원료 1~2g에 해당하는 계피 추출액 20~40 ml를 취하여 50°C 이하에서 감압농축으로 에탄올을 제거한 후 농축액을 30 ml의 증류수에 용해하여 분액여두에 옮기고 30 ml의 ethyl ether로 3회 추출하여 ether층을 회수하였다. Ether층은 증류수 30 ml로 세척한 다음 50°C 이하에서 감압농축하여 건조시키고 HPLC로 분석하였다. 표준시약으로 작성한 검량곡선에 의하여 peak 면적으로 시료중의 유효성분 함량을 정량하였으며 이때 사용한 HPLC는 Waters Associates Model 244를, column은  $\mu$ -Bondapak C<sub>18</sub>을, 이동상은 아세토니트릴/물/초산(40 : 60 : 2, v/v)을 사용하여 UV-280 nm에서 검출하였다.

**고형분 수율 및 일반성분**

계피추출액 중의 고형분 수율은 추출액 일정량을 취하여 105°C로 건조시켜서 고형분 함량을 구한 다음 해당추출액 제조에 사용된 건물량 기준의 원료량에 대한 백분율로서 고형분 수율을 나타내었다. 일반성분으로서 단백질, 지방, 회분은 A.O.A.C.방법<sup>13)</sup>에 준하였고, 환원당은 DNS법<sup>14)</sup>으로 분석 정량하였으며 측정된 성분함량은 추출액 조제에 사용된 원료 건물량 100 g에 대한 %로 표시하였고 원료의 수분함량은 4.75%이었다.

**결과 및 고찰**

**유효성분의 용출**

계피 추출시 계피의 효율적인 추출을 위하여 12가지의 용매로 추출하였을 때 향산화능과 phenol물질, 고형분 수율 등이 가장 높았던 70% 에탄올<sup>15)</sup>과 식품추출에 일반적으로 사용하는 물을 용매로 하여 추출시간은 4시간, 용매첨가량은 20배로 고정하고 추출온도를 20°C~100°C로 구분하여 계피 추출액을 조제하였을 때 유효성분의 용출변화는 Fig. 1과 같다.

물 추출액의 경우 eugenol은 60°C까지 현저히 증가하다가 그 이후에는 큰 변화가 없었고, cinnamic acid는 약간씩 지속적으로 증가하다가 60°C 이상에서는 별 변화가 없었다. Cinnamic aldehyde의 추출량은 20°C에서는 48.26 mg/100 g이었다가 60°C에서는 107.04 mg/100 g의 많은 양이 용출되어 최대치를 나타내었고 그 이상의 온도구에서는 점차 감소하여 높은 온도의 열에 불안정함을 알 수 있었다. 3가지 성분 중에서는 eugenol의 용출이 온도증가에 가장 많은 영향을 받으며 고온에서 안정한 것으로 나타났다. 70% 에탄올은 전반적으로 물보다 2~3배의 높은 추출능력을 보였다. Cinnamic acid와 eugenol의 추출량은 온도상승에 따라 지속적으로 증가하였으나 20°C의 낮은 온도에서 용출량이 41.52 mg/100

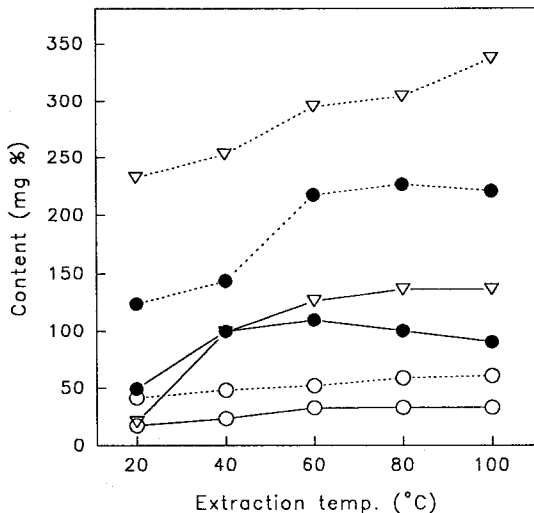


Fig. 1. Effects of temperature on cinnamic acid, cinnamic aldehyde and eugenol in cinnamon extracts prepared with H<sub>2</sub>O (solid line) and 70% ethanol (dotted line). ○—○, Cinnamic acid; ●—●, Cinnamic aldehyde; ▽—▽, Eugenol.

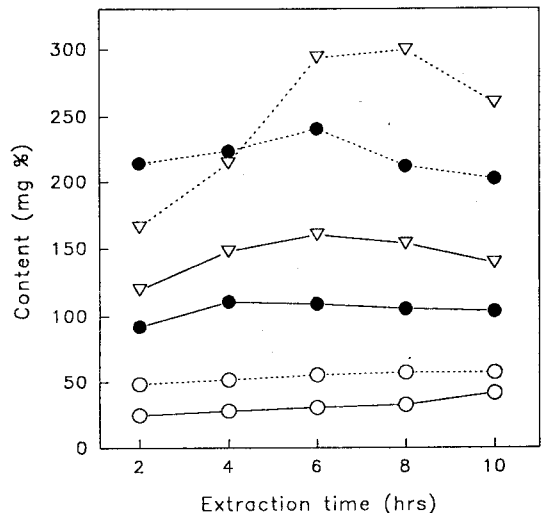


Fig. 2. Effects of extraction time on cinnamic acid, cinnamic aldehyde and eugenol in cinnamon extracts prepared with H<sub>2</sub>O (solid line) and 70% ethanol (dotted line). ○—○, Cinnamic acid; ●—●, Cinnamic aldehyde; ▽—▽, Eugenol.

g, 232.16 mg/100 g으로 많은 양이 용출되었고 물 추출보다는 온도상승에 따른 증가폭이 완만하다. Cinnamic aldehyde는 80°C까지는 20°C 추출구의 약 1.8배로 용출량이 증가하다가 100°C 추출시에 약 1.7배로 약간 감소하여 물 추출시보다는 에탄올로 추출할 때 온도상승에 의한 용출량의 변화는 적지만 고온에서의 분해율이 낮아 안정한 것을 알 수 있었다. 최 등<sup>16)</sup>도 물과 70% 에탄올에 의한 3가지 성분의 추출량을 비교할 때 70% 에탄올이 현저히 높았다고 하였다.

추출시간의 영향을 조사하기 위하여 추출온도는 80°C, 용매첨가량은 원료중량대비 20배로 고정하고 추출시간을 2~10시간으로 구분하여 추출액을 조제하였을 때(Fig. 2) 물 추출액의 경우 cinnamic acid는 시간 경과에 따라 지속적으로 증가하여 10시간 추출시에 2시간 추출구의 약 1.6배 수준을 나타낸 반면 cinnamic aldehyde는 4시간 이후 오히려 감소하여<sup>17)</sup> 10시간 추출시에 4시간 추출구의 약 0.9배가 되었고 eugenol의 용출량도 6시간 이상 추출하면 감소하여 8시간과 10시간 추출시에 각각 6시간 추출액의 약 0.86배와 0.87배가 용출되었다. 70% 에탄올 추출에서도 유사한 경향을 나타내어 cinnamic acid는 추출시간이 길어질수록 약간씩 증가하였고 cinnamic aldehyde와 eugenol은 각각 6시간과 8시간 이상의 추출액에서는 용출량이 감소하여서 이 두가지 성분은 80°C의 온도로 추출할 때 물에서 보다는 70% 알콜에서 열에

견디는 시간이 길지만 추출용매에 관계없이 계피의 유효성분은 시간경과에 따른 용출량의 변화량이 적고 4~8 시간 이상에서는 용출량이 감소하여서 추출시간을 4시간 이상 하는 것은 비효율적인 것으로 판단되었다.

용매의 첨가비율이 이들 3성분의 추출에 미치는 영향을 검토하기 위하여 추출온도를 80°C, 추출시간을 4시간으로 하고 용매첨가량을 계피원료중량의 5~60배량으로 구분 첨가하여 계피추출액을 조제하였을 때(Fig. 3) 물과 70% 에탄올 모두 cinnamic aldehyde와 eugenol은 20배까지 현저히 증가하다가 그 이상의 용매첨가비에서 완만하여졌다. 물 추출액의 경우에는 3가지 성분 모두 용매첨가량이 증가할수록 용출량이 증가하여 물에 대한 용해도 특성을 잘 나타내 주었으며 cinnamic acid, cinnamic aldehyde, eugenol의 용출률이 5배량 첨가시에 비해 20배량 첨가시에 각각 151.7%, 313.6%, 305.3%로 증가하였고 그 이상의 용매첨가비에서는 증가폭이 완만하여져 계피중량의 20배량 첨가가 가장 효율적인 용매량인 것으로 판단되었다. 70% 에탄올 추출액의 경우에도 물 추출과 비슷한 경향을 보였지만, 용매량 증가에 의한 성분용출량의 증가폭이 물 추출에 비하여 훨씬 적었다. 20배의 용매첨가를 기준할 때 70% 에탄올은 물 추출보다 cinnamic acid는 2.6배, cinnamic aldehyde는 2.3배, eugenol은 2.5배의 높은 추출효과가 있었다.

Fig. 4는 여러번 추출할 때 효율적인 추출횟수를 찾고

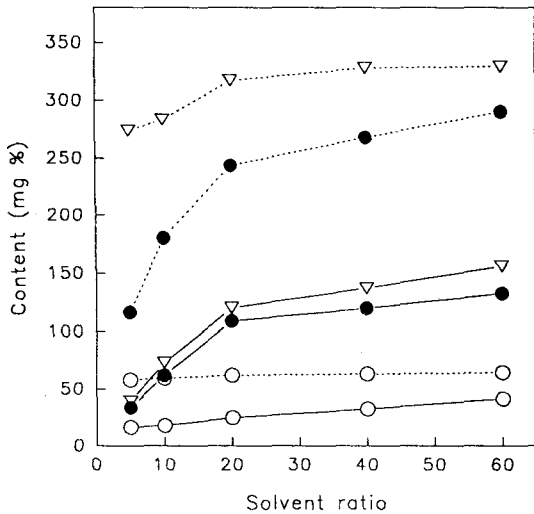


Fig. 3. Effects of solvent ratio to dried cinnamon on cinnamic acid, cinnamic aldehyde and eugenol in cinnamon extracts prepared with H<sub>2</sub>O (solid line) and 70% ethanol (dotted line). ○—○, Cinnamic acid; ●—●, Cinnamic aldehyde; ▽—▽, Eugenol.

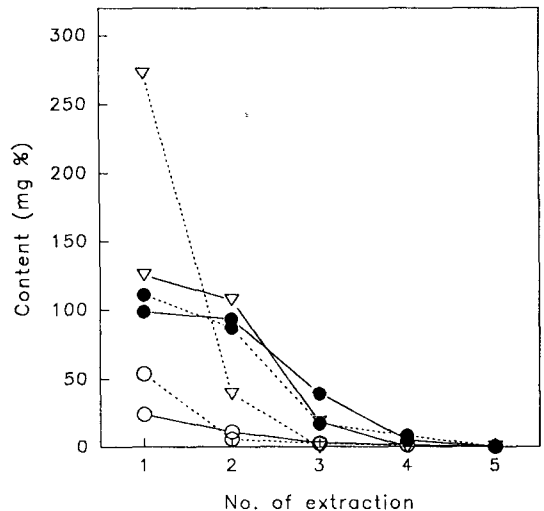


Fig. 4. Contents of cinnamic acid, cinnamic aldehyde and eugenol in cinnamon extracts prepared with H<sub>2</sub>O (solid line) and 70% ethanol (dotted line) as affected by number of extraction. ○—○, Cinnamic acid; ●—●, Cinnamic aldehyde; ▽—▽, Eugenol.

저한 것으로 추출온도를 80°C, 추출용매량은 물 20배, 70% 에탄올 10배로 고정하고, 1시간 간격으로 1~5회 까지 회수별로 추출하였을 때 물의 경우 cinnamic acid는 전체 42.08 mg/100 g 중 1회에 57.93%, 2회에 26.33%가 용출되었고 cinnamic aldehyde는 전체 236.80 mg/100 g 중 1회에 41.70%, 2회에 39.43%가 용출되어 2회까지의 추출로 81~84%를 용출해낼 수 있었다. 70% 에탄올 추출액의 경우는 cinnamic acid가 1회에 85.25%, cinnamic aldehyde는 63.00%, eugenol은 83.37%가 용출되어 물추출보다 추출효율이 훨씬 좋았으며, 2가지 용매 모두 2회의 추출로 대부분의 유효성분이 추출됨을 알 수 있었다.

Table 1. Solid yield and proximate composition of cinnamon extracts prepared with H<sub>2</sub>O and 70% ethanol at different extraction temperature

Solvent	Extraction temp.(°C)	Solid yield	Composition (%)			
			Reducing sugar	Crude protein	Crude fat	Ash
H <sub>2</sub> O	20	3.80	2.70	0.21	0.50	0.58
	40	5.30	3.04	0.43	0.76	0.67
	60	6.07	4.33	0.68	0.75	0.66
	80	7.44	4.61	0.75	0.78	0.73
	100	8.08	4.84	0.73	0.72	0.71
70% EtOH	20	6.84	3.84	0.23	1.42	0.31
	40	9.53	4.40	0.35	1.98	0.43
	60	10.60	5.30	0.44	2.70	0.44
	80	11.56	5.30	0.53	2.53	0.52
	100	12.05	5.54	0.47	2.60	0.57

Table 2. Solid yield and proximate composition of cinnamon extracts prepared with H<sub>2</sub>O and 70% ethanol at different extraction time at 80°C

Solvent	Extraction time(hrs.)	Solid yield	Composition (%)			
			Reducing sugar	Crude protein	Crude fat	Ash
H <sub>2</sub> O	2	5.64	3.80	0.52	0.68	0.63
	4	5.86	3.84	0.55	0.75	0.66
	6	6.20	4.00	0.67	0.75	0.63
	8	6.34	4.24	0.67	0.77	0.67
	10	6.58	4.32	0.68	0.75	0.69
70% EtOH	2	10.33	4.44	0.42	2.19	0.32
	4	11.22	4.86	0.48	2.22	0.32
	6	11.16	4.72	0.48	2.26	0.36
	8	11.46	4.52	0.48	2.27	0.33
	10	11.68	5.16	0.49	2.25	0.37

고형분 수율 및 일반성분 함량

추출온도의 증가에 따른 계피추출액의 고형분 수율은 (Table 1) 물 추출액의 경우 큰폭으로 증가하여 20°C의 3.80%에서 80°C에서는 2배가 되었고, 100°C에서는 증가폭이 약간 낮아졌다. 70% 에탄올 추출은 60°C로 추출할 때 20°C 추출 수율의 약 55%까지 증가하였으며 그 이상의 온도에서는 소폭으로 증가하여 추출액의 고형분 수율은 용매를 물로 할 때가 70% 에탄올을 사용할 때 보다 온도증가에 의한 영향을 더 많이 받으나 동일 온도에서의 추출효율은 낮은 것으로 나타났다. 대체적

Table 3. Solid yield and proximate composition of cinnamon extracts prepared with H<sub>2</sub>O and 70% ethanol at different solvent addition ratio at 80°C

Solvent	Solvent ratio <sup>a)</sup>	Solid yield	Composition (%)			
			Reducing sugar	Crude protein	Crude fat	Ash
H <sub>2</sub> O	5	3.12	0.88	0.32	0.31	0.48
	10	5.04	2.40	0.49	0.49	0.50
	20	6.60	4.24	0.72	0.68	0.57
	40	7.97	6.08	0.72	0.70	0.58
	60	8.30	6.26	0.75	0.79	0.65
70% EtOH	5	8.95	3.01	0.29	1.50	0.31
	10	10.90	4.36	0.40	2.34	0.32
	20	11.24	4.59	0.57	2.48	0.34
	40	12.52	5.08	0.59	2.59	0.41
	60	13.20	5.48	0.62	2.70	0.42

<sup>a)</sup> Solvent ratio: ml of solvent added per gr of cinnamon material

Table 4. Solid yield and proximate composition of cinnamon extracts prepared with H<sub>2</sub>O and 70% ethanol at 80°C

Solvent	No. of extraction	Solid yield	Composition (%)			
			Reducing sugar	Crude protein	Crude fat	Ash
H <sub>2</sub> O	1	6.16	4.36	0.46	0.71	0.66
	2	2.16	1.22	0.32	0.20	0.19
	3	0.92	0.24	-	0.08	0.11
	4	0.60	0.20	-	-	0.05
	5	0.30	0.16	-	-	0.03
70% EtOH	1	10.77	4.52	0.51	2.78	0.58
	2	2.10	1.80	0.05	0.12	0.39
	3	0.95	0.72	-	-	0.11
	4	0.72	0.50	-	-	-
	5	0.41	0.44	-	-	-

으로 전분이나 당 등 수용성 물질이 많이 함유되어 있는 구기자나 인삼 등의 생약재는 친수성 용매로 추출하는 것이 높은 용출율을 보였다(보고<sup>18,19</sup>)와 비교할 때 계피는 70% 에탄올에 잘 용출되어 친수성보다는 소수성 물질이 더 많이 함유되어 있는 것으로 사료된다. 고온에서는 조단백과 조지방함량이 감소하는 경향으로 나타났는데 이는 계피중에 많이 함유되어 있는 탄닌성분과 단백질 간의 침전반응이 촉진되어<sup>20</sup> 단백질 용출율이 감소하였고 cinnamic aldehyde 등의 정유성분이 휘산되어<sup>21</sup> 조지방의 양에 영향을 준 것으로 생각된다.

추출시간의 변화에 따라서는(Table 2) 추출시간이 길어질수록 고형분 수율이 증가하였으나 2시간 추출에 비하여 10시간 추출시의 수율이 물의 경우 16.7%, 70% 에탄올의 경우 13.1%로 소폭 증가하였으며 기타 다른 성분의 용출량도 시간경과에 따라 큰 증가는 없었다. 조지방의 경우는 오히려 다소 감소하는 경향이어서 추출시간은 2시간 정도로 하는 것이 효율적인 것으로 판단되었다(Table 2).

용매첨가량에 의한 계피추출액의 고형분 수율 변화는 Table 3에 보여진 바와 같이 5배량 첨가구에 비하여 물 추출의 경우 10배량 첨가시 약 1.6배, 20배량 첨가시 약 2.1배, 60배량 첨가시 약 2.6배로 증가하였고, 70% 에탄올의 경우 10배량 첨가시 약 1.2배, 60배량에서는 약 1.4배로 증가하여 70% 에탄올보다 물을 용매로 할 때 용매량 증가에 의한 용출량 증가율이 컸으며 물 10~20 배량과 70% 에탄올 10배량을 첨가하는 것이 단위 부피당 고형분 용출 효율이 좋은 것으로 나타났다. 기타 다른 성분의 용출 변화도 고형분 수율과 유사한 경향이었으며 용매량 증가에 따라서 물 추출의 경우에는 환원당의 증가율이 높았고 70% 에탄올 추출에서는 조지방과 조단백질의 증가율이 다소 높았다(Table 3).

회수별 추출액에서의 변화를 보면(Table 4) 고형분 수율은 물 추출의 경우 5회까지의 전체 고형분 함량 중 1회에 60.75%, 2회에 21.30%가 용출되었고, 70% 알콜 추출의 경우에는 1회에 72.04%, 2회에 14.05%가 용출되어 2회까지 80% 이상의 고형분이 추출되는 것으로 나타났다. 일반성분 중 환원당과 조지방, 조단백질은 2~3회에, 조회분은 3~5회에 모두 용출되어 추출횟수는 물과 70% 에탄올 모두 2회의 추출이 바람직한 것으로 판단되었다.

## 참 고 문 헌

1. Brain, M. L.: P. & E.O.R., April, 236(1967)
2. 문관심: 약초의 성분과 이용, 과학 백과사전출판사, 서울, p. 216(1991)
3. 정 섭, 신민교: 도해 향약(생약)대사전, 영림사, 서울, p. 452(1989)
4. 조필형: 일반용 한방처방의 길잡이, 대한과학한방학 연구회, 서울(1980)
5. 성현순, 이 성: 한국의 생약자원 활용을 위한 자료 조사연구, 한국인삼연구소, 대전, p. 55(1991)
6. 육창수: 생약제제의 평가방향에 관한 워크샵, 한국생약학회, 서울, p. 3(1991)
7. 村衫政治: 일본의 생약함유 액제의 시장동향 및 신청방식에 대하여, 한국생약학회, p.(1991)
8. Koshiwata, Y., Nohara, T., Tomimatsu, T. and Nishioka, I.: Chem. Pharm. Bull., 29 : 2686(1981)
9. Nohara, T., Kashiwada, Y. and Nishioka, I.: Phytochemistry, 24 : 1849(1985)
10. Lockwood, G. B.: J. Agric. Fd. Chem., 20 : 747(1972)
11. Schwartzman, G.: Association of Official Agricultural Chemist, 38 : 781(1955)
12. Andree, R. and Brickey, P.: J. of the A.O.A.C., 51 : 518(1968)
13. A.O.A.C.: Official Method of Analysis, 13th ed., Association of Official Analytical Chemists, Washington, D.C., (1980)
14. Colowick, S. P., Kaplan, N. O.: Methods in Enzymology, Vol. 5. Academic Press Inc., New York, p. 149(1955)
15. 김나미, 성현순, 김우정; 한국식품과학회지 투고증 (1992)
16. 최강주, 고성룡, 김석창: 인삼연구보고서, 한국인삼 연구연구소, 대전, p. 132(1991)
17. Rosebrook, D. D., Bolze, C. C. and Barney, J. E.: J. of the A.O.A.C., 51 : 644(1968)
18. 오상룡, 김성수, 민병룡, 정동효: 한국식품과학회지, 22 : 76(1990)
19. 성현순: 고려인삼정의 추출조건이 이화학적 특성에 미치는 영향에 관한 연구, 한양대학교 박사학위 논문 (1983)
20. 우원식: 천연물화학연구법, 민음사, 서울, p. 117(1984)
21. 유경수, 송보완: 생약학회지, 11 : 75(1980)

**Effect of some factors on extraction of effectual components in cinnamon extracts**

Na-Mi Kim, Sung-Ryong Ko, Kang-Ju Choi and Woo-Jung Kim\* ( Korea Ginseng and Tobacco Research Institute, Taejon 305-345, Korea, \*Department of Food Science and Technology, King Sejong University, Seoul 133-747, Korea)

**Abstract :** Effects of temperature, time, solvent addition ratio and number of extraction on contents of effectual components and soluble materials of cinnamon extracts were studied. All of the chemical contents of proximate composition and cinnamic acid, cinnamic aldehyde and eugenol were significantly increased as the extraction temperature increased from 20°C to 80°C, while little change measured at 100°C. During ten hours of extraction at 80°C, more than six hours extraction showed a little increase effects the contents of cinnamic aldehyde, eugenol and proximate components. The ratio of solvents added to dried cinnamon also showed improving effects of chemical properties as the ratio increased from 5 to 40 times. Two times of extractions for 1 hour was found to be effective to recover those components.