

분말식초제조를 위한 분무건조공정의 최적화

황성희 · 정용진* · 윤광섭

대구가톨릭대학교 식품공학과, *계명대학교 식품가공학과

Optimization of Spray Drying Process for Manufacturing Dried Vinegar using Response surface methodology

Sung-Hee Hwang, Yong-Jin Jeong* and Kwang-Sup Youn

Department of Food Science and Technology, Catholic University of Daegu, Kyungsan 712-702, Korea

*Department of Food Science and Technology, Keimyung University, Daegu 704-701, Korea

Abstract

This study was conducted to develop processing method for vinegar powder from natural vinegar for encapsulation applications. To optimize the spray drying process, experiment was designed by central composition method to find optimal conditions for manufacturing vinegar powder. The acidity, water absorption, solid content and heat stability of vinegar powder were selected as response variables. The optimal concentration of inclusion complex which was made with vinegar and β -cyclodextrin was determined on 30°bx. On increasing the concentration of β -cyclodextrin as a wall material, the quality of the vinegar was decreased. The optimum conditions of spray drying process for manufacturing vinegar powder were 188~192 °C and 500~600 Lh⁻¹ as inlet temperature and flow rate, respectively.

Key words : vinegar, spray drying, microencapsulation, RSM

서론

최근 우리나라는 경제성장과 더불어 건강에 대한 관심이 높아져 기능성이 가미된 전통식품이 각광받기 시작하였다. 전통식품 중의 하나인 천연식초도 그 대상이 되고 있는데, 현재 천연식초에 대한 소비자 선호도 변화 등을 고려해 볼 때, 천연식초시장의 성장가능성이 무한할 것으로 추정하고 있다. 최근 기능성이 인정되고 있는 식초의 소비량을 증대시키는 방안으로 다양한 활용성을 검토하고 있으며(1) 그 방안의 하나로 스낵제품이나 음료 등에 기능성 소재로 활용이 가능한 분말식초의 제조를 고려할 필요성이 대두되고 있다. 액상식품을 분말화하기 위한 방법으로는 분무건조가 주로 이용되는데 분무건조란 용해 또는 유화된 액상 시료를 열원에 분사하여 순간적으로 건조하는 방법을 말한다(2).

분무건조에 의한 미세캡슐화는 포접시킨 피복물질에 핵물질을 분산시키고 이 혼합물을 고온의 chamber로 분무하는 방법으로 이는 피복물질 용액이 분무시스템에 의하여 미립

화되고 총표면적이 증대되어 열풍과 접촉하면서 급속한 증발을 일으키고 매트릭스 또는 다핵성의 미세캡슐을 형성되면 사이클론 분리기로 이동하여 회수된다(3).

미세캡슐화에 관한 연구로는 Kim 등(4)이 lysozyme을 liposome으로 미세캡슐화시켜 특정조건에서 효소(lysozyme)의 유출 속도를 조절하는 연구에 관해 보고하였고 Kim 등(5)은 어유에 풍부하게 함유된 ω -3계 지방산을 식품에 첨가하기 위해 미세캡슐화를 행하였음을 보고하였다. 또한 Chang 등(6)도 정제어유의 미세캡슐화 공정을 최적화하고 미세캡슐화된 정제어유의 저장안정성에 관한 연구를 보고하였다. 항산화제로 알려진 tocopherol은 열이나 산소 등에 의해 쉽게 산화되는데 이를 방지하기 위한 방안으로 Chang과 Ha 등(7)은 α -tocopherol을 미세캡슐화시켜 안정성을 규명하였고, Cho 등(8)은 향기성분을 미세캡슐화시키는 공정을 최적화하는 연구에 관해 보고하였다. 그리고 Jeon(9)은 붉은 색소 성분인 shikonin을 β -cyclodextrin로 캡슐화시켜 용해도 개선과 안정성 증진에 대해 보고하는 등 지금까지의 미세캡슐화에 관한 연구는 다양하게 행해졌다. 그러나 대부분이 각종 oil류, 향기성분, 색소성분, 효소등의 불용성물질을 미세캡슐화하여 분말화하는 연구가 행해졌지만 천연식초 등과 같은 액상식품을 미세캡슐화하여 분말화하는 연구는 아직 시도되지 못하고 있다.

Corresponding author : Kwang-Sup Youn, Department of Food Science and Technology, Catholic University of Daegu, 330 Kumrak 1-ri, Hayang-up, Kyungsan 712-702, Korea
E-mail : ksyoun@cataegu.ac.kr

천연식초를 이용한 분말식초를 제조한다면 천연조미료 및 건강식품의 소재로 활용이 가능하여 소비계층의 확대와 더불어 소비량 또한 증가는 액상 식품의 분말화에 대한 기초 자료를 제공할 수 있을 것이다. 따라서 본 연구에서는 분말식초의 제조방법을 개발하기 위하여 반응표면분석법에 의해 분무건조공정의 최적조건을 찾아 분말식초의 제조가능성을 검토하였다.

재료 및 방법

재료

본 실험에서 핵물질로 사용한 식초는 경북과학대학에서 제조한 감식초를 사용하였으며, pH 3.76, 산도 7.62%, 고형분 양은 4.7이었다. 포접물질로는 β -cyclodextrin(Cyclodex S, 고려식료, Korea)을 사용하였다.

분말식초제조

식초와 포접물질을 혼합하여 homogenizer(T25 Basic, IKA, Germany)로 균질화시켜 액상의 포접물을 만든 후 분무건조기(B-191, Buchi, Swiss)를 이용하여 분말화하였다.

수분함량

분말식초의 수분 함량은 적외선 수분측정기(HG53, Mettler Toledo, U.S.A.)를 이용하여 105℃에서 더 이상 무게 변화가 없을 때까지 건조하여 측정하였다.

적정산도

적정산도는 분말식초 1 g을 증류수 20 mL에 녹여 0.1 N NaOH 용액(F=1.000)으로 pH가 8.2가 될 때까지 중화적정하여 그 적정치(mL)를 acetic acid로 환산하였다.

총당

총당은 phenol-sulfuric acid법(10)에 따라 비색정량하였다. 분말식초 1 g을 10⁴배로 희석한 시료 1 mL에 5% 페놀 1 mL를 가하고 황산 5 mL를 가하여 발색시킨 다음 20분간 방치 후 spectrophotometer(160A, Shimadzu, Japan)를 이용하여 470 nm에서 흡광도를 측정하였다.

열안정성

열안정성은 분말식초 1 g을 취하여 dry oven(50℃)에 5시간 방치 후 적정산도를 측정하여 산도의 잔존율로 열안정성을 나타내었다.

흡습성

분말식초의 흡습성은 분말식초 1 g을 취하여 포화상태로 조절된 데시게이터 내에 3시간 방치한 뒤 흡습된 수분량을 측정하여 분말식초의 흡습정도를 알아보았다.

분무건조공정의 최적화를 위한 실험계획 및 통계처리

본 실험에서 사용된 분무건조기의 성능에 영향을 미치는 인자로는 인입온도, 공기의 flow rate, 시료 pumping speed 그리고 aspirator speed 등을 들 수 있는데, 이중 인입온도와 분무속도를 결정하는 flow rate를 주요 변수로 하여 반응표면분석법(response surface methodology ; RSM)(11)을 이용하여 최적화였다. 중심합성계획법(central composite design)으로 실험을 설계하여 inlet temperature(X₁)와 flow rate(X₂)를 독립변수(X_n)로 하고 Table 1과 같이 -2, -1, 0, +1, +2의 다섯 단계로 부호화하여 분말식초의 품질특성으로 예상되는 수분(Y₁), 산도(Y₂), 총당(Y₃), 흡습성(Y₄), 열안정성(Y₅)을 종속변수(Y_n)로 하였다.

Table 1. Levels of operation conditions in experimental design for spray drying of vinegar

X _i	Operation condition	Level				
		-2	-1	0	1	2
X ₁	Temperature (°C)	140	155	170	185	200
X ₂	Flow rate (L/h)	400	500	600	700	800

결과 및 고찰

포접물의 농도 결정

먼저 분말식초 제조시 핵물질과 포접물질을 혼합한 포접물의 최적 농도를 결정하기 위해 감식초 200 mL에 포접물질인 β -cyclodextrin을 첨가하여 20, 25, 30, 35 °bx로 제조한 포접물을 분무건조하였다. 이 때의 제조된 분말식초의 품질 특성으로 분말의 품질 특성을 나타내는 수분함량과 흡습성과 식초의 품질지표가 될 수 있는 총산, 그리고 포접물질 양을 나타내는 총당과 가공적성이나 저장성의 지표로 열안정성을 고려하여 분말식초의 품질 특성을 측정된 결과는 Table 2에 나타내었다. 수분함량은 포접물의 농도에 따라 2.43~3.57% 정도로 큰 차이를 보이지 않았고 흡습성의 경우 25 °bx이상의 농도에서 6.1~6.4%로 유사한 경향을 보였으나 20 °bx 농도로 제조된 분말식초의 흡습성이 7.8%로 높게 나타났다. 포접물질의 첨가량이 증가할수록 핵물질을 포집하는 능력이 높다고 보고한 Rosenberg 등(12)의 연구와는 달리 포접물의 농도가 높을수록 산의 양이 감소하였는데 이는 농도가 높을수록 β -cyclodextrin함량이 증가하고 포접물

의 농도가 낮은 시료에 비해 상대적으로 식초의 양이 감소했기 때문이라 생각된다. 분말식초의 열안정성을 나타내는 적정산도의 변화는 20 °bx와 25 °bx의 경우 87.5%, 86.8%의 경향을 보이는 반면 30 °bx, 35 °bx의 경우 94.6%, 95.3%로 높은 열안정성을 나타내었다. 분말식초제조시 35 °bx의 농도일 때 분말식초특성이 우수한 것으로 나타났지만 포접물질의 농도가 증가할수록 포접물질의 맛이 강하게 나타나 식초의 고유한 관능적인 특성이 저하되므로 35 °bx의 농도보다 30 °bx의 농도의 경우가 분말식초제조에 적합한 것으로 나타났다. 이는 분무건조시 피복물질의 첨가비율이 높을수록 핵물질이 가지는 본래의 관능적인 특성이 약해진다는 Kim 등(13)의 보고와 유사한 결과를 나타내었다.

Table 2. Characteristics of vinegar powders made of various concentrations of β -cyclodextrin

°Brix	Moisture content %	Titrateable acidity %	Water absorption %	Heat stability (Titrateable acidity) %
20	2.88	6.79	7.8	87.5
25	3.57	6.67	6.4	86.8
30	2.43	5.97	6.4	94.6
35	2.92	5.47	6.1	95.3

공정조건에 따른 품질변화특성

분무건조공정을 최적화하고자 Table 1과 같은 실험조건에서 분무건조를 행하여 얻어진 품질 특성의 변화를 알아보았다. 인입온도와 flow rate에 따른 적정산도의 변화를 Fig. 1에 나타내었다. 온도가 증가할수록 적정산도가 증가하는 경향을 보였으며 flow rate에 따라서는 500~600 L/h 사이에서 높은 값을 나타내었다. 총당의 변화는 Fig. 2에 나타내었는데 실험구간내에서 정상점이 안장점을 나타내어 다시 능선 분석을 통하여 실험구간내에서 최소점을 나타내는 건조조건을 찾았다. 총당에 대한 온도의 영향은 150℃ 이하의 온도 구간에서는 온도가 증가함에 따라 감소하는 경향을 나타내었으나 150℃ 이상의 온도에서는 온도가 증가할수록 증가하는 경향을 보였고 flow rate는 600~700 L/h의 구간에서 총당 함량이 많았다. Fig. 3은 인입온도와 flow rate에 따른 수분 흡수량의 변화를 알아본 결과로서 주어진 실험구간내에서 최대점을 찾을 수 있었으며 이때의 공정조건은 온도 180℃, flow rate 550 L/h 인 것으로 나타났다. 온도와 flow rate에 따른 열안정성의 변화에 대해 알아본 결과는 Fig. 4와 같으며 모든 구간에서 90%이상의 열안정성을 나타내 열에 의한 산도의 손실은 크지 않음을 알 수 있었다. 열안정성은 온도가 증가할수록, 그리고 flow rate가 증가할수록 안정성이 더 높아지는 것으로 나타났으나, flow rate의 증가보다는 높은 온도에서 제조한 분말식초의 열안정성이 더 높은 것으로 나타났다.

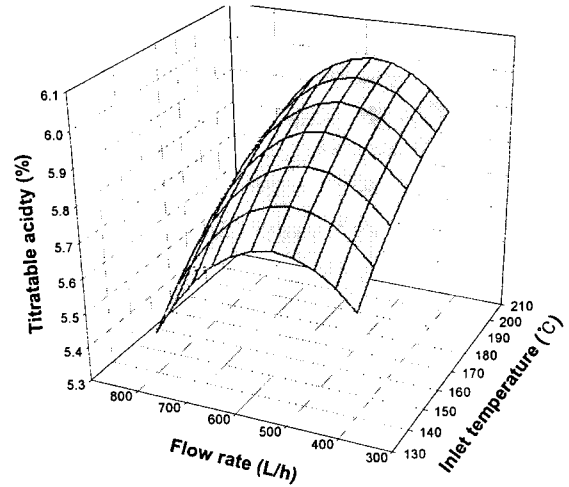


Fig. 1. Response surface for the effect of inlet temperature and flow rate on titrateable acidity of vinegar powder.

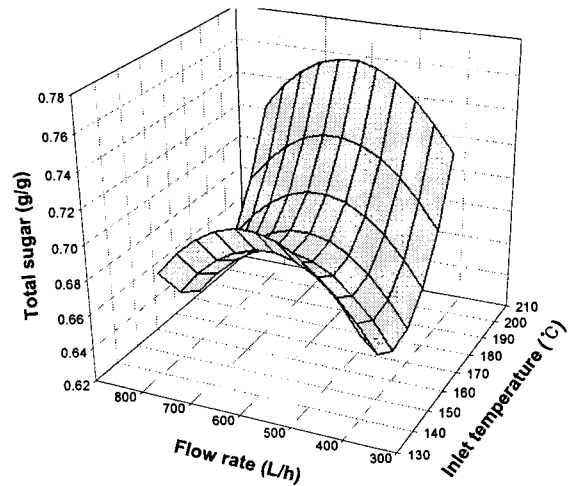


Fig. 2. Response surface for the effect of inlet temperature and flow rate on total sugar of vinegar powder.

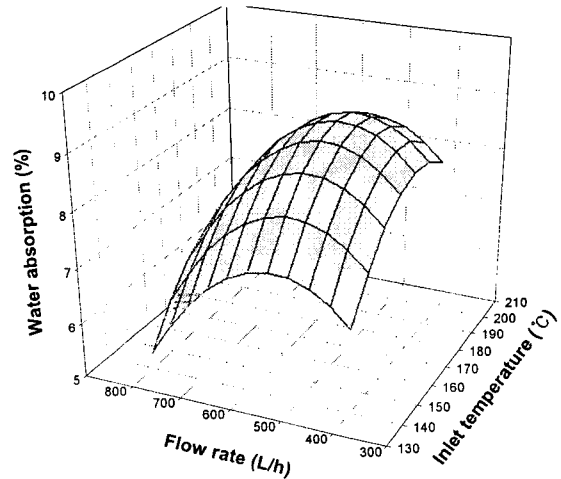


Fig. 3. Response surface for the effect of inlet temperature and flow rate on water absorption of vinegar powder.

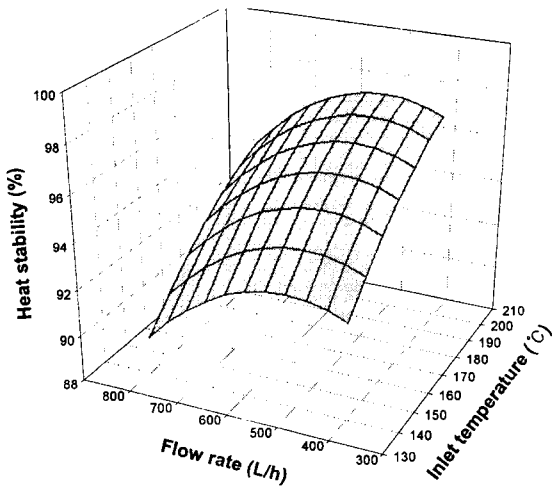


Fig. 4. Response surface for the effect of inlet temperature and flow rate on heat stability of vinegar powder.

분무건조공정 조건의 최적화

분무건조에서 가장 중요한 공정변수인 인입온도와 flow rate를 독립변수로 하여 중심합성계획법에 의해 얻어진 실험 조건에서 제조한 분말식초의 품질특성을 나타내는 수분함량, 산도, 총당, 흡습량, 열안정성 등을 종속변수로 하여 실험한 결과를 Table 3에 나타내었다. 이 실험 결과를 이용하여 얻어진 각 종속변수의 이차회귀모형의 회귀계수를 Table 4에 나타내었는데 각 종속변수의 교차항이나 제곱항의 계수 값이 너무 작아 일차항만으로도 회귀식을 도출할 수 있었다. 분무건조시 독립변수가 각 종속변수에 미치는 영향을 알아본 결과, 인입온도보다는 flow rate가 더 중요한 변수임을 알 수 있으며 특히, 분말식초의 총당이나 산도에는 두 독립변수 모두 5%이내의 유의성이 있는 것으로 나타났다 (Table 5). Garlic oil의 분무건조시 온도가 oil retention에 큰 영향을 끼치지 않았다는 Song 등(14)의 보고와 유사한 결과를 나타내었으나 volatile retention에 있어서 온도가 증가함에 따라 캡슐 표면의 volatile retention은 감소하고 전체 volatile retention은 증가하여 온도가 증가함에 따라 캡슐형성능이 우수하다고 보고한 Bhandari 등(15)의 결과와는 상이한 결과를 나타내었다. Table 6에서는 각 공정변수에 따른 종속변수의 최적점을 나타내었다. 이 값들은 정상점에서의 예측값들로서 정상점에서의 공정변수의 조건을 나타내고 있다. 각 종속변수 모두 주어진 실험 조건에서 최대, 최소점을 나타내었으나 당함량은 안장점을 나타내어 능선분석을 통하여 실험조건내에서의 최소점을 찾아 나타내었다. 분말식초의 품질특성을 나타내는 수분함량, 산도, 당함량, 흡습량, 열안정성 등에 대한 이차 회귀모형의 적합도는 0.3649, 0.8641, 0.9373, 0.6298, 0.6884로 산도와 당함량에서는 5%이내의 유의성이 있는 것으로 나타났으나 수분함량에 대해서는 유의성을 찾기가 어려웠다. 따라서 분무건조공정의 공정조건을

최적화하기 위해서는 종속변수 중 분말식초의 품질에 영향을 끼치면서 회귀식이 유의성이 있다고 판단되는 산도와 당함량, 흡습량 그리고 열안정성을 종속변수로 하여 최적조건을 찾고자 하였다.

Table 3. Experimental data for moisture content, titratable acidity, total sugar, water absorption and heat stability for different coded values of operation conditions

No.	Temp.	Flow rate	Variables				Heat stability (Titratable acidity) %
			Moisture content %	Titratable acidity %	Total sugar g/g	Water absorption %	
1	185	600	1.84	5.85	0.636	8.9	99.2
2	155	600	3.02	5.67	0.595	7.8	93.7
3	170	700	2.62	5.59	0.557	8.2	93.3
4	170	500	2.10	5.96	0.606	9.9	96.2
5	170	600	3.23	5.79	0.631	8.1	94.9
6	170	600	2.75	5.78	0.603	8.7	95.4
7	200	600	2.32	5.89	0.678	8.5	96.4
8	140	600	2.77	5.61	0.639	7.4	93.0
9	170	800	2.68	5.45	0.515	7.1	93.1
10	170	400	2.46	5.69	0.605	7.6	95.0

Table 4. Regression coefficients of second order polynomials^{a)} representing relationships between indicated response variables(Yn) and independent variables of operation temperature(i or j=1) and flow rate(i or j=2)

Coefficients	Variables				
	Moisture content %	Titratable acidity %	Total sugar g/g	Water absorption %	Heat stability (Titratable acidity) %
β_{k0}	-1.987	1.921	1.842	-31.049	50.379
β_{k1}	0.046	0.024	-0.0189	0.335	0.323
β_{k2}	0.005	0.006	0.001	0.034	0.043
β_{k11}	-	-	-	-	-
β_{k12}	-	-	-	-	-
β_{k22}	-	-	-	-	-

$$Y_n = \beta_o + \sum_{i=1}^k \beta_i X_i + \sum_{i=1}^k \sum_{j=1}^k \beta_{ij} X_i X_j + \epsilon$$

Table 5. Analysis of variance showing significance of effects of process variables on moisture content, titratable acidity, total sugar, water absorption and heat stability

Process variables	DF	F-Ratio				
		Moisture content %	Titratable acidity %	Total sugar g/g	Water absorption %	Heat stability (Titratable acidity) %
Temperature	2	1.175	4.915*	10.227*	2.149	3.756
Flow rate	2	0.305	11.043*	17.507**	2.880	0.2450

* Significant 5%

** Significant 1%

Table 6. Predicted levels of process variables yielding optimum response of moisture content, titratable acidity, total sugar, water absorption and heat stability

Process variables	Levels for optimum response				
	Moisture content %	Titratable acidity %	Total sugar g/g	Water absorption %	Heat stability (Titratable acidity) %
Temperature	130.46	214.47	163.14 (167.11)**	181.95	227.93
Flow rate	727.6	521.22	505.84 (799.07)	556.05	518.73
Predicted value	2.99	5.94	0.613 (0.510)	8.92	98.24
R ²	0.3649	0.8641	0.9373	0.6298	0.6884
Significance	0.6148	0.0215	0.0033	0.2146	0.1474
Morphology	Max.	Max.	S.P.*(Min.)	Max.	Max.

* S.P.=Saddle Point

** Values were gained by ridge analysis

최적 분무건조조건을 나타내었다. 주어진 실험조건내에서 분무건조후의 분말식초의 산도는 6.0% 이상, 총당은 0.72~0.74%, 흡습량은 최대가 되는 영역인 8.0% 이상 그리고 열안정성은 96% 이상으로 하는 제한조건을 만족하는 영역은 인입온도가 188~192℃, flow rate는 500~600 L/h인 것으로 나타났다. 따라서 Table 7과 같이 최적 분무건조 공정 조건으로 온도를 190℃, flow rate는 550 L/h로 결정하여 이후 포접물질의 혼합비를 결정하고자 하는 실험을 수행하였다.

Table 7. Optimum operation conditions for maximum responses of titratable acidity, total sugar, water absorption and heat stability by superimposing their contour maps

Operation condition	Range of optimum condition	Optimum condition
Temperature (℃)	188~192	190
Flow rate (L/h)	400~600	550

요 약

천연식초를 이용하여 분말식초의 제조방법을 개발하고 아울러 분말식초의 품질특성 및 제조공정을 평가하여 분말식초의 제조 가능성을 검토하고자 하였다. 식초와 포접물질을 혼합한 포접물의 최적 농도는 피복물질의 양이 많을수록 흡습이 잘 되지 않고 열에도 안정함을 보였으나 포접물질의 양이 증가할수록 포접물질의 맛이 강하게 나타나 식초의 고유한 관능적인 특성이 떨어지므로 포접물의 농도를 30 %로 결정하였다. 분무건조공정을 최적화하기 위해 인입온도와 flow rate를 독립변수로 하고 분말식초의 품질특성을 나타내는 수분, 산도, 흡습성, 당함량, 열안정성 등을 종속변수로 하여 반응표면분석법을 실시한 결과, 분무공정의 최적조건은 inlet temperature는 190℃, flow rate는 550 L/h로 결정할 수 있었다.

감사의 글

이 논문은 2000년도 한국학술진흥재단의 신진교수과제 지원(KRF-2000-G00076)에 의하여 연구된 결과로 이에 감사드립니다.

참고문헌

1. Jeong, Y.J. and Lee, M.H. (2000) A view and prospect of vinegar industry. Food Ind. Nutr., 5, 7-12
2. Masters, K. (1991) Spray drying handbook. Longman

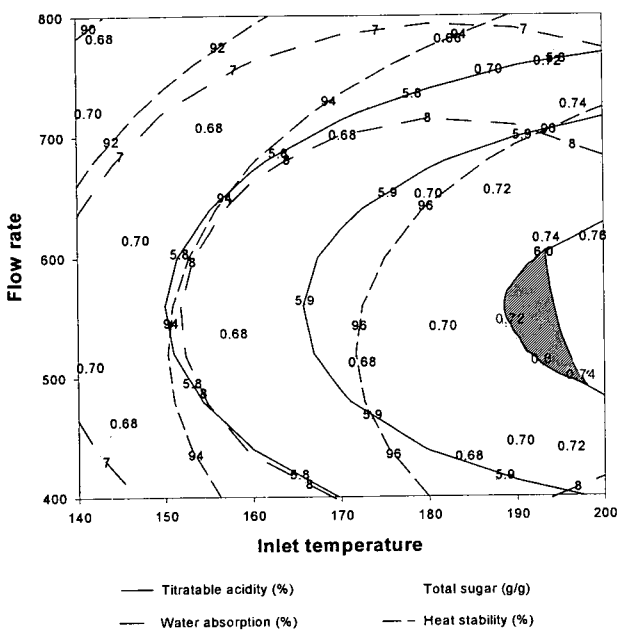


Fig. 5. Superimposed contour map for the effect of inlet temperature and flow rate on titratable acidity, total sugar, water absorption and heat stability.

최적조건 선정

본 실험에서의 공정조건인 인입온도와 flow rate의 변화에 따른 산도, 총당, 흡습량 그리고 열안정성의 변화를 contour map으로 나타내어 최적 조건을 찾고자 하였다. 이들 종속변수를 적절한 제한조건으로 조절을 함으로써 일정한 품질의 분말식초를 얻을 수 있게 되고 이때의 조건을 분무건조 공정의 최적조건이라 할 수 있다. Fig. 5에서는 유의성이 있다고 판단되는 종속변수들의 contour map을 중첩시켜서 구한

- Scientific & Technical
3. Cho, Y.H., Shin, D.S., Park, J.Y. (1997) Microencapsulation Technology in the Food Industry. Food Science and Industry, 30, 98-111
 4. Kim, T.J., Kim, Y.S. and Pyun, Y.R. (1996) Liposome-microencapsulation of lysozyme and its stimulated release. Korean J. Food Sci. Technol., 28, 399-404
 5. Kim, C.H., Lee, K.W., Baick, S.C., Kwak, H.S. and Kang, J.O. (1996) Studies on the microencapsulation of ω -3 polyunsaturated fatty acid. Korean J. Food Sci. Technol., 28, 743-749
 6. Chang, P.S. and Ha, J.S. (2000) Optimization of fish oil microencapsulation by Response surface methodology and its storage stability. Korean J. Food Sci. Technol., 32, 646-653
 7. Chang, P.S., Ha, J.S., Roh, H.J. and Choi, J.H. (2000) Optimization of conditions for the microencapsulation of α -tocopherol and its storage stability. Korean J. Food Sci. Technol., 32, 843-850
 8. Cho, Y.H., Shin, D.S. and Park, J.Y. (2000) Optimization of emulsification and spray drying process for the microencapsulation of flavor compounds. Korean J. Food Sci. Technol., 32, 132-139
 9. Jeon, M.N. (1999) Improved aqueous solubility and chemical stabilities of an inclusion complex, SCIC derived from shikonin and β -cyclodextrin. Chung Ang Univ. M. S. Thesis.
 10. Dubois, M., Gilles, K.A., Hamilton, J.K., Rebers, P.A. and Smith, F. (1956) Coloric method for determination of sugars and related substances. Anal. Chem., 28, 350-356
 11. Mortgomery, D.C. (1984) Design and analysis of experiments, 2nd ed., John wiley & Sons, New York, USA, 445-474
 12. Rosenberg, M., Kopelman, I.J. and Talmon. Y. (1990) Factors affecting retention in spray-drying microencapsulation of volatile materials. J. Agric. Food Chem., 38, 1288
 13. Kim, Y.S., Hawer, W.D. and Nam, Y.J. (1981) Studies on the flavor of processed garlic products, Agricultural and Fishery Marketing Corporation, 93
 14. Song, S.H., Lee, H.J., Chang, S.J., Woo, G.J. (1993) Microencapsulation of garlic oil wity β -cyclodextrin. Food and Biothchnology, 2, 132-135
 15. Bhandari, B.R., Dumoulin, E.D., Richard, H.M.J., Noleau, I. and Lebert, A.M. (1992) Flavor Encapsulstion by spray drying. J. Food Sci., 57, 217-221

(접수 2002년 3월 22일)