

명세서

발명의 명칭: 카테킨 프리 차수 및 이를 포함하는 조성물 기술분야

- [1] 본 발명은 카테킨 프리 차수, 이를 포함하는 조성물 및 카테킨 프리 차수의 제조방법에 관한 것이다.

배경기술

- [2] 차수(tea water)는 동백나무과의 카멜리아 시넨시스(*Camellia sinensis*)의 싹이나 잎을 우려낸 것으로서 기원전부터 기호 식품으로서 음용되어 왔고, 차수에 함유된 카테킨류, 아미노산, 비타민 C, 베타-카로틴, 식이섬유 등 유효 성분들의 유익한 약리적인 메커니즘이 점점 넓고 다양하게 밝혀지고 있다. 특히, 차에 함유되어 있는 성분에 의한 항산화 작용, 항노화 작용, 항암 작용, 혈중 콜레스테롤 저하 작용, 중금속 해독 작용, 충치 예방 및 구취 제거 작용 등의 효과들이 입증되면서 크게 주목받고 있다.
- [3] 이 중 차 카테킨은 화학구조상 하이드록시기(-OH)가 많이 존재하기 때문에 여러물질과 쉽게 결합하는 성질이 있어 항산화, 항암, 심혈관질환 예방, 해독작용 등의 효과가 있으며, 이로 인해 녹차의 유용성분 중 하나로 알려지면서 카테킨을 고농도로 함유하기 위한 차수(tea water)의 제조방법이 활발히 연구되고 있다.
- [4] 그러나, 카테킨은 떫은맛을 내어 음료로서 차의 기호성을 떨어뜨릴 뿐만 아니라, 상기와 같은 많은 하이드록시기(-OH)의 존재로 인해 차를 실온에 보관할 경우 산화되어 갈색으로 변하는 갈변현상이 발생한다. 더욱이 카테킨은 차에 포함된 다른 유효성분인 카페인 등의 체내 흡수를 방해하기도 한다.
- [5] 따라서 카테킨이 포함된 차수를 사용하여 화장품 또는 의약을 제조할 경우 차수를 산화시켜 차수내 포함된 다른 유효성분들을 변화시켜 실질적으로 그 유효성분들의 효능이 저하될 뿐만 아니라, 이취 및 변색을 야기한다는 문제가 있다.
- [6] [선행기술문헌]
- [7] 한국공개특허 제2013-0010984호
- [8] 한국공개특허 제2013-0022471호

발명의 상세한 설명

기술적 과제

- [9] 본 발명은 화장품 또는 의약으로서 사용하기 위한 카테킨 프리 차수(catechin-free tea water) 및 이를 포함하는 조성물, 그리고 차수의 제조방법을 제공하고자 한다.

과제 해결 수단

- [10] 상기의 목적을 달성하기 위하여 본 발명의 구현예들은 카테킨을 차수 총

중량에 대하여 1 중량% 이하로 포함하는 카테킨 프리 차수를 제공한다.

- [11] 또한, 본 발명의 구현예들은 상기 카테킨 프리 차수를 포함하는 피부 외용제 조성물, 및 피부 장벽 기능 회복용 또는 피부 보습용 조성물을 제공한다.

- [12] 본 발명의 다른 구현예들은 상기와 같은 카테킨 프리 차수를 제조하는 방법으로, 생차잎을 증열처리하여 효소를 불활성화하고 착즙하여 차즙을 수득하는 단계, 및 상기 착즙한 차즙을 카테킨 제거공정을 통하여 카테킨을 제거한 다음 차수를 수득하는 단계를 포함하는 카테킨 프리 차수의 제조방법을 제공한다.

발명의 효과

- [13] 본 발명에 따른 카테킨 프리 차수는 가공되지 않은 생차잎을 증열처리하여 효소를 불활성화시킴으로써 차잎의 산화를 방지하고, 이후 카테킨 제거 공정을 통하여 카테킨을 제거한다. 이를 통해 화장료 또는 의약 조성물에 포함할 경우 카테킨이 산화되어 차수가 산화되는 것을 방지할 수 있다. 따라서 본 발명에 따른 상기 차수를 포함하는 조성물이 이취 및 변색되는 것을 방지할 수 있으므로, 식품 분야뿐만 아니라 화장료, 의약 등 다양한 산업분야에서 안정적인 활용이 가능하다.

- [14] 또한, 본 발명에 따른 카테킨 프리 차수는 카테킨이 제거됨으로써 변색, 변취되는 것을 막아주며, 생차잎으로 유래된 미네랄, 아미노산 및 유리당류를 풍부하게 함유하여 우수한 피부 장벽 기능 회복 또는 피부 보습 효과를 제공할 수 있다.

도면의 간단한 설명

- [15] 도 1은 본 발명의 일 구현예에 따른 카테킨 프리 차수를 제조하여 이를 포함하는 화장료 조성물을 제조하기까지의 제조공정도이다.
- [16] 도 2는 본 발명의 실시예 1에 포함된 카테킨 함량을 분석하기 위한 카테킨 GC, EGC, C, CAF, EC, EGCG, GCG, ECG 및 CG 표준품에 대한 HPLC 분석데이터(표준곡선)를 나타낸 도이다.
- [17] 도 3은 본 발명의 실시예 1의 HPLC 분석결과를 나타낸 것으로, 실시예 1에 카테킨이 포함되어 있지 않음을 보여주는 도이다.
- [18] 도 4는 상기 카테킨 표준품에 대한 도 2 및 본 발명의 실시예 1에 대한 도 3을 종합하여 하나의 그래프로 나타낸 도이다.
- [19] 도 5는 무처리군(non-treat), 양성대조군(positive control), 본 발명의 일 구현예에 따른 카테킨 프리 차수(실시예 1) 및 두물차(비교예 1)의 각질형성세포에서의 펠라그린(Filaggrin) 유전자의 발현정도를 농도별로 비교하여 나타낸 그래프이다.
- [20] 도 6은 본 발명의 일 구현예에 따른 카테킨 프리 차수(실시예 1)의 시간경과에 따른 경표피수분손실량(Trasnepidernal Water Loss, g/m²h) 정도를 대조군(control)과 비교하여 나타낸 그래프이다.

[21] 도 7은 본 발명의 일 구현예에 따른 카테킨 프리 차수(실시예 1)의 시간경과에 따른 경표피수분손실량(Trasnepidermal Water Loss, g/m²h)의 변화정도를 대조군(control)과 비교하여 나타낸 그래프이다.

[22] 도 8은 본 발명의 일 구현예에 따른 카테킨 프리 차수(실시예 1)의 시간경과에 따른 피부 수분량 변화(Skin hydration change, A.U) 정도를 대조군(control)과 비교하여 나타낸 그래프이다.

발명의 실시를 위한 최선의 형태

[23] 2014년 2월 28일에 출원된 한국 특허 출원번호 10-2014-0024064호는 모든 목적으로서 전체가 본 명세서에 참조로 포함된다. 또한 본 출원은 그 전체가 본 명세서에서 참조로 포함되는 한국 특허 출원번호 10-2014-0024064호의 이익을 주장한다.

[24] 본 명세서에서 "피부"라 함은, 동물의 체표를 덮는 조직을 의미하는 것으로서, 얼굴 또는 바디 등의 체표를 덮는 조직뿐만 아니라, 두피와 모발을 포함하는 최광의의 개념이다.

[25] 본 명세서에서 "차수(tea water)"란 넓게는 차잎에서 비롯된 모든 액체를 의미하는 것으로, 구체적으로 이는 가공 전 혹은 가공 후 차잎을 우린 물, 차잎 추출물, 차잎을 가열하여 발생하는 증기를 냉각한 액, 차잎을 증열한 후 냉수나 이온수를 첨가하여 추출한 액 등을 들 수 있다. 상기 차수는 차잎에 포함된 수분뿐만 아니라 사람에게 유익한 성분을 함유한다.

[26]

[27] 이하 본 발명을 상세하게 설명한다.

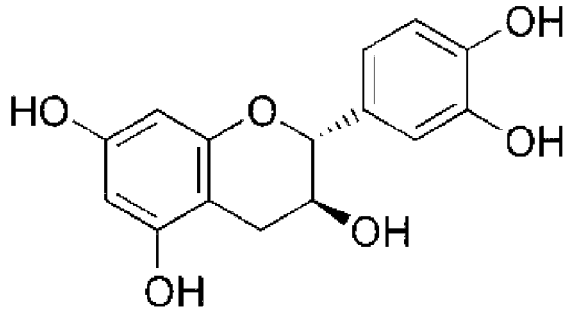
[28] 본 발명의 구현예들은 카테킨을 차수 총 중량에 대하여 1 중량% 이하로 포함하는 카테킨 프리 차수(catechin-free tea water)를 제공한다. 구체적으로, 본 발명의 구현예들은 카테킨을 0.5, 0.3, 0.1, 0.01 또는 0.0001 중량% 이하, 보다 구체적으로는 카테킨을 완전히 제거하여 전혀 포함하지 않는 차수를 제공할 수 있다.

[29] 본 발명의 구현예들에 따른 "생차잎"은 가공하지 않은 차잎을 의미한다. 그리고 이때 "차잎"은 카멜리아 시넨시스(*Camellia sinensis*)의 싹이나 잎을 의미하는 것으로, 그 품질 또는 종류를 구분하지 않는다. 구체적으로 수확 시기에 따른 봄차, 여름, 가을차 모두 사용 가능하며 용도에 따라 차광막을 씌워 엽록소 양을 증가시킨 옥로차를 사용하는 것도 가능하나, 이에 한정되는 것은 아니다. 건조된 차잎 또는 가공된 차잎의 경우는 차잎에 높은 온도가 가해짐으로써 본래의 차잎에 함유된 수분, 휘발성분 및 기타 수용성 성분이 손실된다는 문제가 있지만, 본 발명의 경우 생차잎을 사용하기 때문에 미네랄 및 아미노산이 풍부하게 포함되어 있어, 피부에 적용시 우수한 피부 장벽기능 회복 및 보습증진 효과를 제공할 수 있다.

[30] 상기 카테킨(catechin)은 하기 화학식 1의 구조를 갖는 성분으로서,

구체적으로는 갈로카테킨(GC), 에피갈로카테킨(EGC), 카테킨(C), (CAF), 에피카테킨(EC), 에피갈로카테킨 갈레이트(EGCG), 갈로카테킨 갈레이트(GCG), 에피카테킨 갈레이트(ECG), 카테킨 갈레이트(CG) 등이 차 카테킨으로 지칭된다.

[31] 화학식 1



[32] 일반적으로 차잎의 총 건중량 중 10~15%가 차카테킨 함량이며 이 중에서 EGCG가 50~60%를 차지하고 있으나 제배 기후, 토양 또는 녹차의 종에 따라 함량의 차이가 있는 것으로 알려져 있다. 상기 카테킨은 상기 화학식 1에 나타난 바와 같이 많은 하이드록시기(-OH)를 가지고 있어, 카테킨 자체는 항산화효능 등 인체에 유용한 효능을 가지고 있는 반면, 차수 내에 카테킨이 포함될 경우에는 상기 하이드록시기로 인해 실온에 보관할 경우 다른 유효성분들의 활성을 저하시키고 카테킨이 산화되면서 차수를 이취 및 변색시킨다는 문제가 있다. 따라서 화장품 원료로 사용시 안정성 확보가 어렵다.

[33] 그러나 본 발명에 따른 구현예들은 효소가 불활성화된 생차잎에서 유래한 차수, 구체적으로 생차잎을 증열처리 한 후 카테킨을 제거하여 얻은 차수를 제공할 수 있다. 예를 들면, 증열처리 후 카테킨을 흡착 및 여과 처리하여 카테킨을 제거하여 얻은 차수를 제공할 수 있다. 이때 본 발명의 일 구현예에 따라 불활성화된 효소는 폴리페놀 옥시다아제(Polyphenol Oxidase)를 포함할 수 있다.

[34]

[35] 구체적으로, 본 발명의 구현예들은 상기와 같은 카테킨 프리 차수를 제조하는 방법으로, 생차잎을 증열처리하여 효소를 불활성화하고 착즙하여 차즙을 수득하는 단계, 및 상기 착즙한 차즙의 카테킨 제거공정을 통하여 카테킨을 제거한 다음 차수를 수득하는 단계를 포함한다. 본 발명의 상기 제조방법을 도 1을 참조로 하여 구체적으로 살펴보면 하기와 같다.

[36] 먼저, 본 발명의 일 구현예로서 상기 차즙을 수득하는 단계는 생차잎(raw material)의 효소를 불활성화한 다음 차즙을 수득하며, 이때 상기 생차잎은 산소에 의한 산화를 방지하기 위하여 냉장보관한 것을 사용할 수 있다.

[37] 또한, 본 발명의 일 구현예에 따른 상기 차즙을 수득하는 단계는 생차잎을 증기에 접촉시켜 증열처리(steaming)하여 생차잎의 효소를 불활성화할 수

있으며, 이때 상기 증열처리 온도는 90~110°C, 구체적으로 95~105°C, 보다 구체적으로 97~103°C일 수 있다. 또한, 증열시간은 0.1~3 분, 구체적으로 0.1~2분, 보다 구체적으로 25초~35초 일 수 있다. 본 발명은 상기 증열 처리를 통해 효소를 불활성화시켜 차잎에서 산화를 막을 수 있을 뿐 아니라, 식물 세포 조직을 연하게 만들어 차즙의 수득율도 높일 수 있다. 상기 온도 및 시간 범위를 초과할 경우 열에 의한 산화가 진행되며, 상기 온도 및 시간 범위 미만일 경우에는 효소 불성화가 100% 진행되지 않아 효소에 의한 산화가 진행될 수 있다.

[38] 본 발명의 일 구현예에 따른 효소가 불활성화된 생차잎을 착즙(juice extraction)하여 차즙(juice)을 수득하는 단계에서 착즙하는 방법은 압착 효과를 이용한 기어식 착즙, 프레스식 착즙, 분쇄식 착즙 및 효소 분해식 착즙으로 이루어진 그룹에서 선택된 하나 이상의 방법, 구체적으로는 프레스식 착즙일 수 있다.

[39] 본 발명의 일 구현예에 따른 상기 카테킨 제거공정은, 상기 착즙한 차즙에 포함된 카테킨을 포함하는 이취 및 변색성분을 흡착하는 탈취 및 탈색단계(Deodorization & Decoloration), 및 상기 탈취 및 탈색 단계를 거친 차즙을 여과필터로 여과하여, 상기 차즙 내에 포함되어 있는 흡착된 카테킨을 포함하는 이취 및 변색성분 및 잔여 고형분을 제거하는 여과단계(Filtration)를 포함할 수 있다.

[40] 일 구현예로서, 상기 탈취 및 탈색단계는 규조토 및 활성탄 중 하나 이상으로 카테킨을 포함하는 이취 및 변색성분을 흡착하는 것을 포함할 수 있으며, 상기 이취 및 변색성분에는 예를 들어 엽록소와 같은 색을 포함하는 성분들이 포함된다. 구체적으로 상기 규조토를 이용한 이취 및 변색성분의 흡착방법은 상기 착즙한 차즙을 규조토에 통과시키는 것을 포함하며, 상기 활성탄을 이용한 이취 및 변색성분의 흡착방법은 상기 착즙한 차즙에 활성탄을 투입하여 반응시키는 것을 포함한다. 본 발명의 다른 일 구현예로서 상기 탈취 및 탈색단계는 유기용매를 이용한 침전, 고압처리 등을 통하여 카테킨을 비롯한 이취 및 변색성분을 제거하는 것을 포함할 수 있으며, 이외 카테킨을 제거할 수 있는 방법이라면 상기 방법에 한정되지 않고 제한없이 사용될 수 있다.

[41] 일 구현예로서 상기 여과 단계는 공극크기가 0.2~1.5 μm , 보다 구체적으로는 1 μm 인 여과필터에 상기 탈취 및 탈색단계를 거친 차즙을 통과시켜 차즙 내에 포함되어 있는 흡착된 카테킨을 포함하는 이취 및 변색성분 및 잔여 고형분을 제거할 수 있다.

[42] 또한, 본 발명의 일 구현예에 따른 상기 차수를 수득하는 단계는 차즙으로부터 카테킨을 제거한 다음, 물, 유기용매 또는 이들의 혼합물을 이용하여 수용성 성분 추출하여 차수를 수득하는 단계를 더 포함할 수 있다. 일 구현예로서 상기 유기용매는 예를 들어 1,3 부틸렌 글리콜(1,3-Butylene Glycol), 1,3 프로필렌 글리콜(1,3 propylene Glycol)과 같은 폴리올류를 포함할 수 있으며, 그 농도는 0.1~12%를 예로 들 수 있다.

- [43] 본 발명의 구현예들에 따라 상기와 같이 제조된 카테킨 프리 차수는 카테킨에 의해 차수가 산화되는 것이 방지됨으로써 생칫알에 포함된 다른 생리활성적으로 유용한 성분들의 변화를 방지할 수 있다. 따라서 차수가 이취 및 변색되는 것이 방지될 뿐만 아니라, 다른 유용한 성분들의 효능이 효과적으로 발휘될 수 있다.
- [44] 이에, 본 발명의 구현예들은 상기와 같은 카테킨 프리 차수를 포함하는 피부 외용제 조성물을 제공한다. 또한, 본 발명의 다른 구현예들은 상기와 같은 카테킨 프리 차수를 포함하는 피부 장벽 기능 회복용 또는 피부 보습용 조성물을 제공한다. 그리고 일 구현예로서 상기 조성물은 카테킨 프리 차수를 조성물 총 중량에 대하여 0.01~100 중량%, 구체적으로 0.015, 0.1, 1, 10, 20, 30, 40, 50 또는 60 중량% 이상 및 100, 90 또는 80 중량% 이하로 포함할 수 있다.
- [45] 상기 피부 장벽 기능이란 화학물질, 대기오염물질, 건조한 환경, 자외선 등 외부환경으로부터의 다양한 자극으로부터 피부를 보호하고 피부를 통한 체내 수분의 과도한 발산을 막는 보호 기능을 의미하는 것으로, 이러한 기능은 각질형성세포로 구성된 각질층(Stratum corneum, horny layer)이 정상적으로 형성되어 있을 경우에만 그 기능을 유지할 수 있다. 구체적으로, 상기 각질형성세포는 오래된 각질세포가 피부에서 탈락되고 새로운 각질세포가 그 기능을 대신하게 되는 각화(keratinization) 과정(표피세포의 분화) 중에 천연보습인자(Natural moisturizing factor; NMF)와 세포간 지방질(세라마이드, 콜레스테롤, 지방산)을 생성하면서 각질층을 형성하여 각질층이 견고함과 유연성을 가지게 하여 피부 장벽(skin barrier)으로서의 기능을 보유하게 한다. 그러나 이러한 각질층은 과도한 세안이나, 목욕 등의 생활 습관적 요소나, 건조한 대기 오염 물질 등의 환경적인 요인, 그리고 아토피성 피부나 노인성 피부 같은 내인성 질환 등으로 인해 쉽게 그 기능이 손실될 수 있으며, 피부 장벽 기능의 와해는 피부건조증, 아토피 피부염, 접촉성 피부염, 건선 등의 다양한 피부 질환을 유발하게 된다.
- [46] 그러나 본 발명의 구현예들에 따른 카테킨 프리 차수는 생칫알에서 유래된 각질형성세포의 분화 촉진능을 갖는 미네랄, 아미노산, 유리당류 등이 풍부히 포함되어 있고 카테킨이 제거되어 있으므로, 차수가 산화되지 않고 그 효능을 효과적으로 발휘할 수 있어, 이를 포함하는 조성물은 우수한 피부 장벽 기능의 회복 또는 강화 효과와 피부 보습 효과를 제공할 수 있다.
- [47] 본 발명의 구현예들은 상기 카테킨 프리 차수를 포함하는 화장료 조성물, 또는 피부 장벽 기능 회복용 또는 피부 보습용 화장료 조성물을 제공할 수 있다.
- [48] 구체적으로, 본 발명의 구현예들에 따른 화장료 조성물은 화장품학 또는 피부 과학적으로 허용 가능한 매질 또는 기제를 함유할 수 있다. 이는 국소 적용에 적합한 모든 제형으로, 예를 들면, 용액, 겔, 고체, 반죽 무수 생성물, 수상에 유상을 분산시켜 얻은 에멀전, 유상에 수상을 분산시켜 얻은 에멀전, 멀티에멀전, 현탁액, 마이크로 에멀전, 마이크로캡슐, 미세과립구 또는,

이온형(리포솜) 및 비이온형의 소낭 분산제의 형태로, 또는 크림, 스킨, 로션, 파우더, 연고, 스프레이, 클렌저 또는 콘실 스틱의 형태로 제공될 수 있다. 본 발명에 따른 조성물은 또한 포말(foam)의 형태로 또는 압축된 추진제를 더 함유한 에어로졸 조성물의 형태로도 사용될 수 있다. 이들 조성물은 당해 분야의 통상적인 방법에 따라 제조될 수 있다.

- [49] 상기 화장료 조성물은 상기한 물질 이외에 주 효과를 손상시키지 않는 범위 내에서 바람직하게는 주 효과에 상승 효과를 줄 수 있는 다른 성분들을 함유하는 것도 무방하며, 본 발명의 유효 성분 이외에 다른 성분을 기타 화장료 조성물의 제형 또는 사용 목적에 따라 당업자가 어려움 없이 적의 선정하여 배합할 수 있다. 예컨대, 상기 화장료 조성물은 그 효과를 증가시키기 위하여 피부 흡수 촉진물질을 함유할 수 있다. 또한, 본 발명의 화장료 조성물은 수용성 비타민, 유용성 비타민, 고분자 펩티드, 고분자 다당, 스펅고 지질 및 헤초 엑기스로 이루어진 군에서 선택된 물질을 포함할 수 있다.
- [50] 뿐만 아니라, 본 발명의 화장료 조성물은 상기 필수 성분과 더불어 필요에 따라 통상 화장료 조성물에 배합되는 다른 성분을 포함할 수 있고, 이의 예로서 유지 성분, 보습제, 에몰리언트제, 계면 활성제, 유기 및 무기 안료, 유기 분체, 자외선 흡수제, 방부제, 살균제, 산화 방지제, 식물 추출물, pH 조정제, 알콜, 색소, 향료, 혈행 촉진제, 냉감제, 제한(制汗)제, 정제수 등을 들 수 있다. 본 발명의 화장료 조성물에 포함될 수 있는 기타 배합 성분은 이에 한정되는 것은 아니고, 또한 상기 성분의 배합량은 본 발명의 목적 및 효과를 손상시키지 않는 범위 내에서 가능하다.
- [51] 상기 화장료 조성물은 제형이 특별히 한정되지 않으며, 목적하는 바에 따라제형을 적절히 선택할 수 있다. 예를 들어, 유연 화장수(스킨로션 및 밀크로션), 영양 화장수, 에센스, 영양 크림, 마사지 크림, 파우더, 립스틱, 메이크업 베이스, 파운데이션, 패취, 분무제, 팩, 젤, 에센스, 아이 크림, 아이 에센스, 클렌징 크림, 클렌징 폼, 클렌징 워터, 클렌저, 보디로션, 보디크림, 보디오일 및 보디 에센스로 이루어진 군으로부터 선택된 하나 이상의 제형으로 제조될 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [52] 본 발명의 구현예들은 상기 카테킨 프리 차수를 포함하는 의약 조성물, 또는 피부 장벽 기능 회복용 또는 피부 보습용 의약 조성물을 제공할 수 있다.
- [53] 구체적으로, 본 발명에 따른 조성물을 의약품에 적용할 경우에는, 상용되는 무기 또는 유기 담체를 가하여 고체, 반고체 또는 액상의 형태로 경구 투여제 혹은 비경구 투여제로 제제화 할 수 있다. 본 발명의 조성물을 상법에 따라서 실시하면 용이하게 제제화할 수 있으며, 계면 활성제, 부형제, 착색제, 향신료, 안정화제, 방부제, 보존제, 수화제, 유화 촉진제, 현탁제, 삼투압 조절을 위한 염 및/또는 완충제, 기타 상용하는 보조제를 적당히 사용할 수 있다.
- [54] 상기 경구 투여를 위한 제재로서는 정제(錠劑), 환제(丸劑), 과립제(顆粒劑), 연질 및 경질 캡셀제, 산제, 세립제, 분제, 액제, 유탁제(乳濁濟), 시럽제, 펠렛제

등을 들 수 있다. 이들 제형은 유효 성분 이외에 희석제(예: 락토오스, 텍스트로오스, 수크로오스, 만니톨, 솔비톨, 셀룰로오스 또는 글리신), 활택제(예: 실리카, 탈크, 스테아르산 및 그의 마그네슘 또는 칼슘염 또는 폴리에틸렌 글리콜), 또는 결합제(예: 마그네슘 알루미늄 실리케이트, 전분 페이스트, 젤라틴, 트라가칸스, 메틸셀룰로오스, 나트륨 카르복시메틸셀룰로오스 또는 폴리비닐피롤리돈)를 함유할 수 있다. 경우에 따라 전분, 한천, 알긴산 또는 그의 나트륨 염과 같은 붕해제, 흡수제, 착색제, 향미제, 또는 감미제 등의 약제학적 첨가제를 함유할 수 있다. 상기 정제는 통상적인 혼합, 과립화 또는 코팅 방법에 의해 제조될 수 있다. 또한, 상기 비경구 투여제는 예를 들어, 피부 외용제일 수 있으며, 주사제, 점적제, 로션, 연고, 젤, 크림, 현탁제, 유제, 좌제(坐劑), 패취 또는 분무제 제형일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.

[55] 본 발명에 따른 상기 의약 조성물은 경구, 비경구, 직장, 국소, 경피, 정맥내, 근육 내, 복강 내, 피하 등으로 투여될 수 있다. 또한, 상기 유효 성분의 적용량은 치료받을 대상의 연령, 성별, 체중과, 치료할 특정 질환 또는 병리 상태, 질환 또는 병리 상태의 심각도, 투여 경로 및 처방자의 판단에 따라 달라질 것이다. 이러한 인자에 기초한 적용량 결정은 당업자의 수준 내에 있다.

[56] 본 발명의 구현예들은 상기 카테킨 프리 차수를 포함하는 피부 장벽 기능 회복용 또는 피부 보습용 식품 조성물을 제공할 수 있다. 상기 식품 조성물은 그 제형이 특별히 한정되지 않으며 고형물, 드링크제일 수 있다.

[57]

[58] 이하, 실시예, 비교예 및 시험예를 들어 본 발명의 구성 및 효과를 보다 구체적으로 설명한다. 그러나 이들 실시예, 비교예 및 시험예는 본 발명에 대한 이해를 돕기 위해 예시의 목적으로만 제공된 것일 뿐 본 발명의 범주 및 범위가 하기 실시예, 비교예 및 시험예에 의해 제한되는 것은 아니다.

[59]

[60] [실시예 1] 카테킨 프리 차수의 제조

[61] 본 발명의 일 구현예로서 카테킨 프리 차수를 하기의 방법에 따라 제조하였다.

[62] 먼저, (주)장원으로부터 구매한 녹차 생차잎(생엽) 1kg을 채엽한 후 1시간이 경과하기 전에 100°C까지 30초간 증열처리하여 효소를 불활성화한 후, 상기 효소를 불활성화한 생차잎을 냉장 이송하여 압착(프레스) 방식으로 착즙하여 차즙(착즙액) 3kg을 수득하였다.

[63] 그 다음, 카테킨을 제거하기 위하여 상기 차즙을 규조토에 여과시킨 후, 이를 공극크기가 1 μ m인 카트리지 필터를 이용하여 여과하였다. 여기에 활성탄을 투입하여 반응시킨 후, 다시 1 μ m인 카트리지 필터를 이용하여 여과하였다. 그리고 상기 차즙과 물을 1:99의 비율로 혼합하여 상온에서 2시간 동안 1회 추출하여 2톤의 카테킨 프리 차수를 추출하였다.

[64] 그 다음, 상기 카테킨 프리 차수에 미생물 발생 방지를 위해 1,3 프로판디올의 원료인 퍼만디올(Fermandiol)과 바이오시트로액(Biocitro liquid)을 첨가하여,

카테킨 프리 차수(실시예 1)을 제조하였다.

[65]

[66] 상기 제조된 카테킨 프리 차수에 포함된 카테킨의 함량을 HPLC(High Performance Liquid Chromatography)를 이용하여 분석하였다. 구체적으로, 측정방법은 건강 기능 식품 코드 분석방법 가이드(Health Functional Food Code analytical methods guide)에 따르되 주입 및 농도조건을 약간 변경하였으며, HPLC-PDA에 의해 분리 및 정량하였다. HPLC 분석 조건은 아래와 같다.

[67] -HPLC: Waters Alliance 2695 LC (Waters, Milford, MA, USA)

[68] -검출기(Detector): Waters 2996 Photodiode Array detector (280 nm)

[69] -컬럼(Column): Thermo Synchronis C18 (250 x 4.60 mm, 5 μ m) 또는 equivalent, similar column

[70] -유량(Flow rate): 1.0 mL/min

[71] -주입량(Injection): 20 μ l

[72] -컬럼온도(Column Temperature): 40 °C

[73] -챔버온도(Chamber Temperature): 10 °C

[74] - 이동상(Mobile phase): 0.1 % 초산수용액(acetic acid in DW) (solution A), 아세토나이트릴(Acetonitrile) (solution B)

[75] 표 1

[Table 1]

Time	Flow(mL/min)	%A	%B	curve
0.0	1.0	90	10	6
10.0	1.0	90	10	6
30.0	1.0	85	15	6
42.0	1.0	80	20	6
44.0	1.0	5	95	6
45.0	1.0	5	95	6
49.0	1.0	90	10	6
50.0	1.0	90	10	6

[76] HPLC로 분석된 시료(실시예 1)의 카테킨의 곡선면적을 농도로 환산하기 위하여, 카테킨 표준품으로서 갈로카테킨(GC), 에피갈로카테킨(EGC), 카테킨(C), 카페인(CAF), 에피카테킨(EC), 에피갈로카테킨 갈레이트(EGCG), 갈로카테킨 갈레이트(GCG), 에피카테킨 갈레이트(ECG), 카테킨 갈레이트(CG) (Sigma-Aldrich, 미국)를 50 % 메탄올수용액(methanol/DW) 20mL에 용해하여 각 농도별로 희석한 후, HPLC로 분석하였다. 이를 독립적으로 3회 수행한 후 평균하고, 표준곡선을 작성하여 도 2에 나타내었다.

- [77] 그 다음, 본 발명의 실시예 1의 카테킨 프리 차수에 포함된 성분 분석을 독립적으로 2회 수행한 후 평균한 HPLC 분석 데이터를 도 3에 나타내었다. 마지막으로, 상기 도 2의 표준곡선과 도 3의 실시예 1 분석결과를 종합하여 도 4에 나타내었다.
- [78] 그 결과, 도 2의 카테킨 표준품의 HPLC 분석데이터와 비교할 때, 도 3 및 도 4에서 확인할 수 있는 바와 같이 본 발명의 실시예 1의 카테킨 프리 차수에서는 도 2의 피크가 전혀 나타나지 않았으므로, 실시예 1의 차수에는 카테킨이 완전히 제거되어 포함되어 있지 않음을 알 수 있다.
- [79]
- [80] [비교예 1] 일반 차수(두물차)의 제조
- [81] 본 발명의 카테킨 프리 차수의 효과를 비교분석하기 위하여 비교예로서 종래의 일반적인 방법에 따라 두물차를 제조하였다.
- [82] 먼저, (주)장원으로부터 1차 가공(증열 30초, 100°C 증기사용 -> 45분 조유, 95°C 열풍이용 -> 20분 실온 유념 -> 40분 중유 -> 90°C 화실 정유 -> 80°C 열풍 건조)한 녹차를 구매하였다. 그 다음 3일간 물에 냉침하여 추출하고, 합성 방부제를 처리한 다음, 공극크기가 1 μ m인 카트리지 필터를 이용하여 여과하여, 두물차(비교예 1)을 제조하였다.
- [83]
- [84] [실험예 1] 각질형성세포에서 필라그린 유전자 발현 촉진능의 비교
- [85] 본 발명의 일 구현예에 따른 카테킨 프리 차수의 각질형성세포 분화능을 확인하기 위하여, 각질형성세포에서 피부장벽을 구성하는 케라틴결합 단백질인 필라그린(Filaggrin) 유전자 발현 촉진능을 무처리군, 비교예와 비교하는 실험을 아래와 같이 실시하였다.
- [86] 먼저, 정상 인간 케라티노사이트(Normal human keratinocytes, NHKs)를 인비트로젠(Invitrogen, San Diego, CA, USA)으로부터 구입한 다음, 이를 37°C, 습한 대기조건(95% 공기 및 5% CO₂포함)에서 배양하였다. 그 다음, 상기 정상 인간 케라티노사이트에 카테킨 프리 차수(실시예 1) 50, 100, 200ppm (0.005, 0.01, 0.02%), 두물차(비교예 1) 50, 100, 200, 500ppm (0.005, 0.01, 0.02, 0.05%), 양성대조군인 Ca²⁺ 1.2mM를 각각 24시간 동안 처리하고, 리얼타임 PCR을 사용하여 필라그린(FLG)의 mRNA를 발현시켰다.
- [87] 그 결과, 도 5에 나타난 바와 같이, 일반적인 제조방법으로 제조한 비교예인 두물차 및 본 발명의 실시예에 따라 제조된 카테킨 프리 차수 모두 50, 100ppm, 즉 0.005% 및 0.01%의 낮은 농도에서는 필라그린 유전자가 발현되지 않았다. 하지만, 200ppm, 즉 0.02%의 농도에서는 비교예인 두물차의 경우 오히려 필라그린 유전자의 발현정도가 더 감소한데 반해, 본 발명의 실시예인 카테킨 프리 차수는 무처리군(non-treat)보다 필라그린 발현정도가 1.5배 이상 증가한 것을 확인할 수 있다. 또한, 카테킨 프리 차수가 필라그린의 발현을 촉진함으로써 각질형성세포의 분화를 촉진하여 피부 장벽 기능을 회복 또는

강화하고, 보습 효능을 나타냄을 의미한다.

[88]

[89] [실험예 2] 피부 장벽 기능 회복 효능의 비교

[90] 본 발명의 일 구현예에 따른 카테킨 프리 차수의 피부 손상으로 인해 손상된 피부 장벽 기능의 회복(skin barrier recovery)에 미치는 효능을 확인하기 위하여, 아래의 실험을 실시하였다.

[91] 먼저, 20~50세의 건강한 성인 여성 22명을 선정하였다. 이들의 평균 나이는 38.41세였다. 시험부위의 피부 장벽 기능의 회복능 측정은 5번의 방문(Visit 1-5)시 이루어졌으며, 두번째의 방문(Visit 2)시를 기점으로 총 2주간 하루에 한번씩 매일 같은 시간에 상기 실시예 1을 시험부위에 도포하였다. 다. 이때 경표피수분손실(Transepidermal water loss, TEWL)의 회복정도는 피부 수분 보유능 및 피부 수분 장벽기능을 보여주는 것으로서 수분증산계(Delfin VapoMeter SWL4255, Delfin Technologies Ltd, Finland)로 측정하고, 시험부위를 영상분석장치 (Visioscan VC98, Courage-Khazaka electronic GmbH, Germany)로 촬영하였다. 각 측정 및 촬영시마다 대조군(control)으로서 상기 실시예 1을 도포하지 않은 부위도 함께 측정, 촬영하였다.

[92] 구체적으로, 첫번째 방문시 피부 장벽 손상 패치를 팔뚝의 시험부위에 붙인 다음, 경표피수분손실(Transepidermal water loss, TEWL)의 회복정도를 측정하고, 시험부위를 촬영하였다(Visit 1: day-1). 그 다음날 두번째로 방문하여 패치를 제거한 다음 직 후의 피부 손상정도를 동일한 방법으로 측정 및 촬영하였다(Visit 2: day 0). 그리고 상기 실시예 1을 시험부위에 도포하였다. 그리고 상기 두번째 방문날의 다음날 세번째로 방문하여 상기와 동일한 방법으로 피부 손상정도를 동일한 방법으로 측정 및 촬영하였다(Visit 3: day 1). 그리고 시험부위에 상기 실시예 1을 도포하였다. 그 뒤로 하루에 한번씩 매일 같은 시간에 실시예 1을 시험부위에 도포하였으며, 두번째 방문 후 1주일 뒤에 네번째 방문을 하여 피부 손상정도를 동일한 방법으로 측정 및 촬영하였다(Visit 3: 1 week). 마지막으로 두번째 방문일로부터 2주 뒤 다섯번째 방문을 하여 피부 손상정도를 동일한 방법으로 측정 및 촬영하였다(Visit 5: 2 weeks).

[93] 그리고 상기 다섯번(Visit 1-5)의 상기 수분증산계(VapoMeter)로 측정한 경표피수분손실량(Transepidermal water loss, TEWL) 값을 하기 표 2 및 도 6에 나타내었다. 그리고 이를 분석하여 경표피수분손실량 변화정도(TEWL change)를 도 7에 나타내었다.

[94] 표 2

[Table 2]

	TEWL 차이 (Mean±SD)	
Visit(day)	실시에 1 사용부위	대조군
Visit 1(-1, day-1)	9.51±2.05	9.73±1.94
Visit 2(0, day 0)	23.98±4.56	24.23±4.56
Visit 3(1, day 1)	20.82±5.12	22.92±5.04
Visit 4(8, 1week)	12.78±1.90	15.50±2.24
Visit 5(15, 2 weeks)	9.80±1.75	12.79±1.88

- [95] 그 결과, 도 6 및 도 7에 나타난 바와 같이 본 발명에 따른 카테킨 프리 차수인 실시예 1을 도포한지 하루(Visit 3), 1주일(Visit 4), 2주일(Visit 5)이 경과함에 따라 경표피 수분손실량이 급격히 감소하였다($p<0.05$). 구체적으로 피부 회복 정도가 제품 사용 후 1일 경과시 13.72%, 1주 경과시 45.96%, 2주 경과시 58.68%로 대조군에 비하여 매우 증가하였다.
- [96] 또한, 상기 실시예 1을 사용한 실험자를 대상으로 별도의 설문조사(global assessment of efficacy survey)를 실시한 결과, 피부 수분량, 피부결 개선, 발림성, 흡수성 및 점착성의 항목에서 각각 대상자의 86%, 82%, 45%, 45% 및 91%가 정상 또는 그 이상 효과가 있는 것으로 평가하였으며, 86%는 실시예 1의 향기(fragrance) 또한 정상 또는 그 이상에 체크하였다.
- [97] 이로부터, 본 발명의 구현예들에 따른 카테킨 프리 차수는 피부 장벽 기능 회복 효능이 우수할 뿐만 아니라, 보습, 사용감, 향기와 같은 기호도 또한 우수한 것으로 나타났다.
- [98]
- [99] [실험예 3] 피부 보습 효능의 비교
- [100] 본 발명의 일 구현예에 따른 카테킨 프리 차수의 피부 보습 효능 지속력을 확인하기 위하여, 아래의 실험을 실시하였다.
- [101] 먼저, 20~50세의 건강한 성인 여성 21명을 선정하였다. 이들의 평균 나이는 41.10 ± 4.44 세였다. 시험부위의 피부 수분량 측정은 3번의 방문시 이루어졌으며, 상기 실시예 1은 단 한번 팔뚝의 시험부위에 도포하였다. 이때 피부 수분량은 시험부위를 깨끗이 씻은 다음 30분 동안 20-25°C의 온도, 40-60%의 습도조건에서 수분섭취 없이 코르네오미터(Corneometer CM825, Courage-Khazaka electronic GmbH, Germany)를 사용하여 동일 부위를 3번 반복하여 측정한 다음 그 평균값으로 하였다.
- [102] 구체적으로, 첫번째 방문시 실시예 1을 도포전과 후의 수분보유량을 측정하였다. 첫번째 방문시 실시예 1을 도포한 후 24시간이 되는 때에 수분보유량을 다시 측정하였다. 그리고 상기 첫번째 방문시 실시예 1을 도포한

후 72시간이 되는 때에 마지막으로 수분보유량을 다시 측정하였다. 그리고 측정결과를 하기 표 3 및 도 8에 나타내었다. 이때 도 8의 y축 단위 A.U.는 피부 수분량의 비례값이다.

[103] 표 3

[Table 3]

	피부 수분량(Mean±SD)	
	대조군(control)	실시예 1 사용부위
실시예 1 사용 전(Before)	33.29±5.57	32.39±6.03
실시예 1 사용 직후(Right after)	32.28±5.73	61.08±10.18
실시예 1 사용 24시간 후(24 hours after)	34.42±5.97	40.87±4.33
실시예 1 사용 72시간 후(72 hours after)	32.38±4.67	34.82±5.38

[104] 그 결과, 상기 표 3 및 도 8에 나타난 바와 같이 본 발명에 따른 카테킨 프리 차수인 실시예 1을 도포한 직후, 24시간, 48시간 후 피부 수분량이 매우 증가하였으며, 모든 대상자에게서 홍반, 발진 또는 가려움 등의 부작용은 나타나지 않았다.

[105] 또한, 상기 실험을 마친 후 실험자를 대상으로 효능 및 사용감에 대한 설문조사(global assessment of efficacy survey)를 실시한 결과, 피부 수분량, 피부결 개선, 흡수성, 점착성, 향기 및 전반적인 사용감의 항목에서 각각 대상자의 71%, 76%, 66%, 85%, 14% 및 57%가 좋음 또는 그 이상 효과가 있는 것으로 평가하였다.

[106] 이로부터, 본 발명의 구현예들에 따른 카테킨 프리 차수는 피부 부작용이 없으면서도 72시간 이상 지속되는 우수한 피부 보습 효능을 가지고 있음을 확인할 수 있다.

청구범위

- [청구항 1] 카테킨을 차수 총 중량에 대하여 1 중량% 이하로 포함하는 카테킨 프리 차수(catechin-free tea water).
- [청구항 2] 제 1 항에 있어서, 상기 차수는 효소가 불활성화된 생차잎에서 유래한 것을 특징으로 하는 카테킨 프리 차수.
- [청구항 3] 제 1 항에 있어서, 상기 차수는 생차잎을 증열처리하여 효소를 불활성화시켜 얻은 것인 카테킨 프리 차수.
- [청구항 4] 제 2 항에 있어서, 상기 불활성화된 효소는 폴리페놀 옥시다아제(Polyphenol Oxidase)를 포함하는 카테킨 프리 차수.
- [청구항 5] 제 1 항에 있어서, 상기 차수는 생차잎에 포함된 카테킨을 흡착 및 여과 처리하여 카테킨을 제거한 차수인 것을 특징으로 하는 카테킨 프리차수.
- [청구항 6] 제 1 항의 카테킨 프리 차수를 포함하는 피부 외용제 조성물.
- [청구항 7] 제 1 항의 카테킨 프리 차수를 포함하는 피부 장벽 기능 회복용 또는 피부 보습용 조성물.
- [청구항 8] 제 6 항 또는 제 7 항에 있어서, 상기 조성물은 카테킨 프리 차수를 조성물 총 중량에 대하여 0.01~100 중량%로 포함하는 조성물.
- [청구항 9] 제 6 항 또는 제 7 항에 있어서, 상기 카테킨 프리 차수는 각질형성세포의 분화를 촉진시키는 것인 조성물.
- [청구항 10] 제 6 항에 있어서, 상기 조성물은 화장품 또는 의약 조성물인 조성물.
- [청구항 11] 제 7 항에 있어서, 상기 조성물은 화장품, 의약 또는 식품 조성물인 조성물.
- [청구항 12] 제 1 항 내지 제 5 항 중 어느 한 항의 카테킨 프리 차수를 제조하는 방법으로,
생차잎을 증열처리하여 효소를 불활성화하고 착즙하여 차즙을 수득하는 단계; 및
상기 착즙한 차즙의 카테킨 제거공정을 통하여 카테킨을 제거한 다음 차수를 수득하는 단계;
를 포함하는 카테킨 프리 차수의 제조방법.
- [청구항 13] 제 12 항에 있어서, 상기 카테킨 제거공정은,
상기 착즙한 차즙에 포함된 카테킨을 포함하는 이취 및 변색성분을 흡착하는 탈취 및 탈색단계; 및
상기 탈취 및 탈색 단계를 거친 차즙을 여과필터로 여과하여, 상기 차즙 내에 포함되어 있는 흡착된 카테킨을 포함하는 이취 및 변색성분 및 잔여 고형분을 제거하는 여과단계;
를 포함하는 카테킨 프리 차수의 제조방법.

- [청구항 14] 제 13 항에 있어서, 상기 탈취 및 탈색단계는 규조토 및 활성탄 중 하나 이상으로 카테킨을 포함하는 이취 및 변색성분을 흡착하는 것을 포함하는 카테킨 프리 차수의 제조방법.
- [청구항 15] 제 13 항에 있어서, 상기 이취 및 변색성분은 엽록소를 포함하는 카테킨 프리 차수의 제조방법.
- [청구항 16] 제 12 항에 있어서, 상기 차즙을 수득하는 단계에서 증열처리조건은 90~110°C의 증열처리온도 및 0.1~3분의 증열처리시간 중 하나 이상을 만족하는 것인 카테킨 프리 차수의 제조방법.