Current Research on Agriculture and Life Science (2015) 33(1): 15–18
http://dx.doi.org/10.14518/crals.2015.33.1.005

Online ISSN 2288-0356
Print ISSN 2287-271X

Original Article

Electrospinning Fabrication of Zein/*Poria cocos* extract Nanofiber

Seong Baek Yang and Jeong Hyun Yeum*

Department of Advanced Organic Materials Science & Engineering, Kyungpook National University, Daegu 702-701, Korea

전기방사법을 이용한 zein/복령추출물 나노섬유의 제조

양성백 · 염정현

경북대학교 기능물질공학과

Received: March 16 2015 / Revised: April 14 2015 / Accepted: April 17 2015

Abstract Zein/*Poria cocos* extract nanofibers were prepared based on the electrospinning of aqueous solutions with different *Poria cocos* extract concentrations (0, 5, 10, and 15 wt.%). The electrospinning parameters, including the polymer contents, voltage, and tip-to-collector distance (TCD), were optimized for the fabrication process. The resulting electrospun materials were all characterized using field-emission scanningelectron microscopy (FE-SEM). The diameters of the electrospun zein nanofibers were found to increase when increasing the zein concentration.

Keywords: electrospinning, nanofiber, *Poria cocos*, zein

서 언

최근 나노기술이 발달함에 따라 같은 양으로도 더 높은 효과를 낼 수 있는 나노섬유가 여러 분야에 사용되고 있다. 전기방사기술은 나노섬유제조에 매우 효율적인 방법이며 공정이 간단해 널리 사용되고 있다. 형성된 나노섬유는 높은 표면적과 기공성을 가지고 있어 지지체, 센서, 방호의류 및 촉매제 등 다양한 분야에 사용이 가능하다. 특히 의료 분야는 나노섬유가 널리 사용되는 분야로 나노구조체를 이용하여 조직공학, 약물전달 및 지지체로 사용하고 있다(Vasita et al., 2006). 일반적인 전기방사 공정은 높은 전압을 용액에 가해 jet을 형성하게 되는데, 이렇게 형성된 jet은 정전기적 반발력에 의해 연신되어 나노섬유가 제조된다(Kim et al., 2011; Park et al., 2010). 전기방사는 공정 중 다양한 변수들이 존재하는데, 이러한 변수들을 조절하면 다양한 형태의 섬유가 제조가능하다. 이들 변수 중 고분자 용액의 농도, 전압, 팁과 콜렉터 사이의 거리(TCD)는 제조된 섬유의 형태를 결정하는 중요한 변수들이다. 용액의 농도 및 전압, TCD가 최적화되지 못할 경우 섬유의 직경이 불규칙하고 형태가 불안정하며 비드가 형성될 수 있다(Chuangchote et al., 2006; Hong et al., 2007; Yang et al., 2011).

Zein은 천연고분자로서 옥수수의 주요 저장단백질이고 단백질의 40-50%를 차지한다. 수성알코올용액(60-95%)에 잘 녹는다는 장점을 가지고 있다. Zein과 같은 바이오재료는 세포친화성이 우수하며, 아미노산글루타민 및 프롤린의 존재에 기인하여 타단백질보다 더 소수성 특성을 발현한다. Zein은 소수성을 지니며, 낮은 독성을 가지고, 재생 가능할 뿐만 아니라 생분해성 단백질이기 때문에 포장, 식품, 제약, 화장품 및 생물의학 산업분야에서 널리 이용되고 있다(Jiang et al., 2010; Reddy et al., 2011; Shukla et al., 2001; Tu et al., 2009).

복령(茯苓)의 학명은 *Poria cocos*로서 분류학적으로 진정담자균강, 동담자균아강(모균아강), 민주름버섯목, 구멍장이버섯과에 속한다. 주로 소나무뿌리에서 자라난 균핵으로, 내부의 색깔에 따라서 백색이면 백복령, 담홍색이면 적봉령이라 한다. 예로부터, 지라를 건강하게 하고, 안정제로 쓰이며, 태열안정의 효과가 있을 뿐만 아니라 몸을 따뜻하게 한다고 전해지고 있다. 소화성 궤양, 근육경련, 갈증, 현훈, 정신불안, 실면증에 효과적이며, 한약재로강장, 이뇨, 진정 등에 효능이 있어, 신장병, 방광염, 요도염에 이용되었다. 또한 접촉성 피부염 억제

*Corresponding author: Jeong Hyun Yeum
Tel: 82-53-950-5739; Fax: 82-53-950-6744
E-mail: jhyeum@knu.ac.kr

This is an Open Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0/) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.
© 2015 Institute of Agricultural Science and Technology, Kyungpook National University

작용 효과가 밝혀져있다.

복령추출물은 위기능 장애를 완화시키는 효과뿐만 아니라 강장효과를 가진다. 한방의학에서 복령추출물은 진정제 및 이뇨제로 분류된다. 또한, 복령추출물은 기력회복을 위한 한방조제의 중요한 성분중의 하나로서 사용된다. 최근 몇 년 동안의 복령추출물의 약제학적 효능과 관련된 연구 및 실험에 따르면, 복령추출물은 종양 억제에 탁월한 효능이 있으며, 만성 질환으로 고통받는 사람의 면역력을 향상시키고 위와 장을 보하는 효과가 있는 것으로 밝혀졌다.

천연고분자/천연추출물 복합체는 천연고분자가 갖는 장점들과 천연추출물의 특성을 동시에 발현할 수 있으며, 소량의 천연추출물만으로도 그 특성이 확연히 드러나게 된다. 천연고분자는 우수한 인체친화성 및 친환경성을 지니고 있고, 복령추출물은 항산화성을 가지고 있어 화장품 분야에 적용가능하며, 특히 제7조된 천연고분자/복령추출물 나노섬유는 넓은 표면적을 지니고 있어 고기능성의 마스크팩으로 적용가능하다. 현재 여러 분야에서 천연고분자와 추출물을 혼입한 복합체가 연구 및 개발되고 있다. 본 연구에서는 복령추출물을 혼입한 zein 나노섬유를 제조하였고 형태학적 특성에 대하여 분석하였다.

재료 및 방법

1. 재료

(1) 나노섬유의 원료

본 연구에 사용된 zein(Tokyo Chemical Co. Ltd., Japan)의 경우 분자량이 35,000인 것을 사용하였으며, 용매의 경우 대정화학에서 제조된 에탄올과 메탄올을 구입하여 사용하였다.

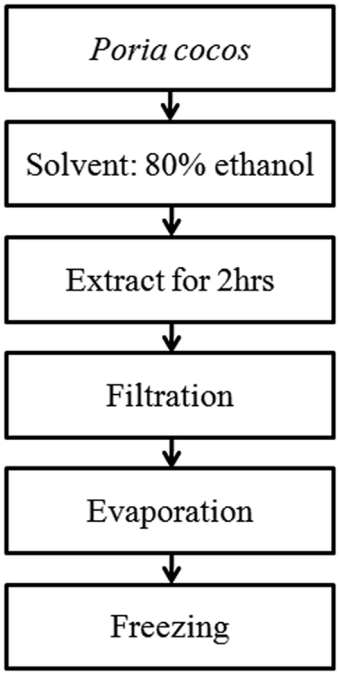

Figure 1. Schematic representation of *Poria cocos* extract process.

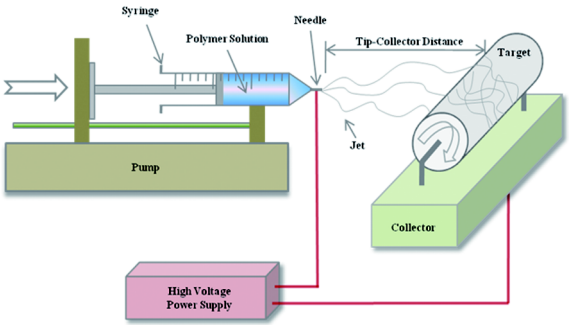

Figure 2. Schematic representation of the electrospinning process.

(2) 복령추출물의 제조

복령을 응달에서 건조시킨 후 분쇄하여 실험재료로 사용하였으며, 상온에서 2시간동안 80%의 에탄올로 추출하였다. 추출 후 여과포에 여과한 후 농축시켰다. 농축시킨 복령추출물을 40이하의 온도에서 감압하에 증발시킨 후 동결건조시켰다. 복령추출물을 제조하는 모식도는 Figure 1과 같다.

2. Zein/복령추출물 용액 제조

zein/복령추출물 전기방사 용액을 제조하기 위하여 zein을 에탄올에 용해시켰다. 본 연구에 사용된 zein 농도는 15, 20, 25, 30 wt.%이었다. 우선 복령추출물을 상온에서 30분 동안 교반기를 이용하여 에탄올에 용해시켰다. 복령추출물을 에탄올에 용해시킨 다음, zein을 복령추출물용액에 첨가하여 30분 정도 교반하였다. 복령추출물의 함량은 zein의 무게대비 5, 10, 15 wt.%로설정하였다.

3. 전기방사를 이용한 zein/복령추출물 나노섬유의 제조

전기방사의 전압장치는 (주)청파EMT 사의 CPS-60K02VIT 모델을 사용하였고 실린지 펌프는 KD scientific사의 KDS100 모델을 사용하였다. 주사기에 용액을 넣고 실린지 펌프에 장착한 후 0.1 mL/h의 속도로 용액을 방출하면서 방사를 하였다. 본 실험에서는 zein의 농도에 따른 나노섬유 형태변화를 통해 최적조건을 확립하였고, zein 나노섬유 방사의 최적조건을 기준으로 전압과 TCD의 거리변수의 변화에 따른 형태변화를 분석하였다. 전기방사의 모식도는 Figure 2와 같다.

4. 분석방법

제조된 나노섬유의 형태를 관찰하기 위하여 가로, 세로 5 mm 크기로 잘라 백금으로 코팅하여 주사전자현미경(FE-SEM)(S-4300, Hitachi, Ltd., Japan)을 이용하여 표면을 관찰하였다. Zein 나노섬유의 직경은 FE-SEM으로 촬영된 나노섬유를 Adobe Photoshop 5.0 프로그램을 이용하여 측정하였다.

결과 및 고찰

Figure 3은 전기방사로 제조된 zein의 함량 변화에 따른 나노섬유 형태변화를 나타낸 FE-SEM 사진으로 zein의 함량은 각각 (a)15, (b)20, (c)25, (d)30 wt.%의 농도 변화를 주었다.

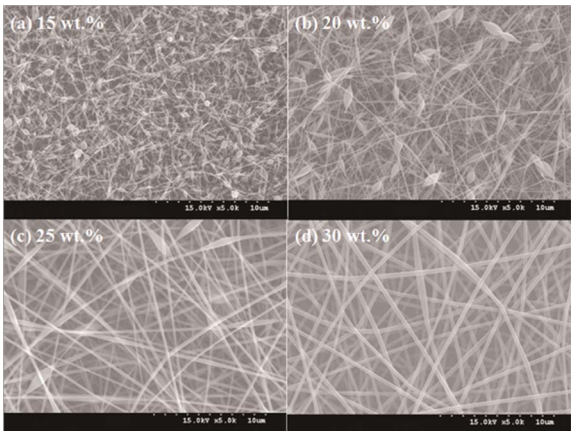

Figure 3. FE-SEM images of electrospun zein nanofibers prepared by different zein concentrations of (a) 15 wt.%, (b) 20 wt.%, (c) 25 wt.% and (d) 30 wt.% (TCD=15 cm and applied voltage=10 kV).

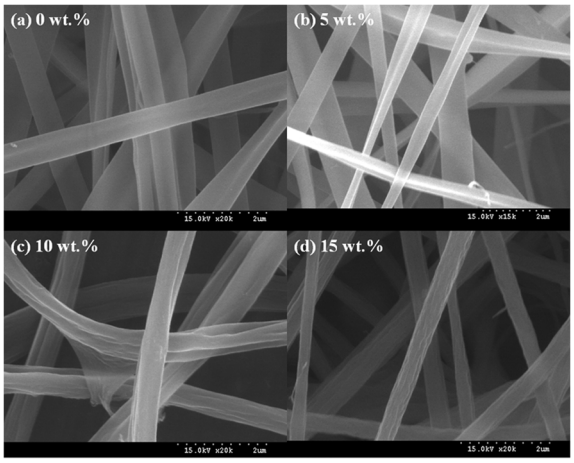

Figure 4. FE-SEM images of electrospun zein nanofibers containing with different *Poria cocos* extracts (a) 0 wt.%, (b) 5 wt.%, (c) 10 wt.% and (d) 15 wt.% (zein concentration=30 wt.%, applied voltage=17.5 kV, TCD=15 cm).

Figure 3(a)의 경우에는 비드가 많이 생겼고, Figure 3(b,c)의 경우에는 농도가 높아짐에 따라 비드수가 점점 줄어들었고, Figure 3(d)의 경우에는 균일한 형태의 나노섬유가 제조되었다. 균일한 형태의 나노섬유를 제조하기 위하여 전기방사의 3대 공정변수 중 전압과 TCD는 고정하였고, 농도만을 변화시켜 30 wt.%에서 균일한 형태의 나노섬유를 제조할 수 있었다. 이 결과를 봤을 때 zein의 최적 방사조건은 전압 17.5 kV, TCD는 15 cm, 농도는 30 wt.%임을 알 수 있었다.

Figure 4는 복령추출물의 함량 변화에 따른 zein 나노섬유 형태 변화를 나타낸 FE-SEM 사진으로 복령추출물의 함량은 zein 고형분에 대하여 (a)0, (b)5, (c)10, (d)15 wt.%의 농도변화를 주었다. Figure 4(a)의 경우에는 나노섬유의 표면이 매끈한 형태였고, 복령추출물을 혼입한 Figure 4(b,c,d)의 경우에는 나노섬유의 표면에 주름이 잡히는 것을 관찰할 수 있었다. 특히 복령추출물의 함량이 증가할수록 나노섬유의 표면에 주름의 수가 더 많아지는 것을 알 수 있었는데, 이것은 복령추출물이 zein과 혼합시 나노섬유 내부에 약간의 클러스터를 형성하는 것으로 예측된다.

Figure 5는 전압의 변화에 따른 zein/복령추출물 나노섬유 형태변화를 나타낸 FE-SEM 사진으로 전압을 (a)15, (b)17.5, (c)20 kV로 설정하였다. Figure 5(a)의 경우에는 전하밀도가 낮아서 비드가 다량 형성된 것을 알 수 있었고, Figure 5(b)의 경우에는 균일한 형태의 나노섬유가 제조되었다. Figure 5(c)의 경우에는 두께가 두껍고, 퍼진 형태의 불균일한 나노섬유가 형성됨을 알 수 있었다. Zein의 농도가 30 wt.%이고, 혼입된 복령추출물의 농도가 고분자 고형분 대비 15 wt.% 포함되었을 경우 전압이 최적조건의 전압보다 낮아질수록 비드가 형성되었는데 이것은 전기방사시 전압이 줄어들어 전하밀도, 표면장력이 낮아진 것에 기인한다. 최적조건의 전압보다 높은 전압이 가해졌을 경우에는 전하밀도가 상승하게 되고 나노섬유에 가해지는 표면장력이 증가하므로 직경이 굵으면서 다소 불균일한 나노섬유가 형성된다.

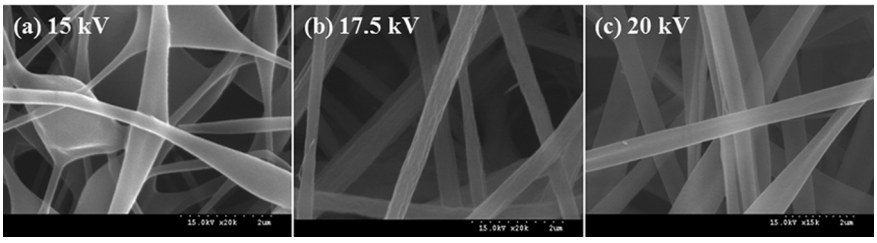

Figure 5. FE-SEM images of electrospun zein/*Poria cocos* extract nanofibers with different applied voltage (a) 15 kV, (b) 17.5 kV and (c) 20 kV (zein concentration=30 wt.%, *Poria cocos* extract concentration=15 wt.%, TCD=15 cm).

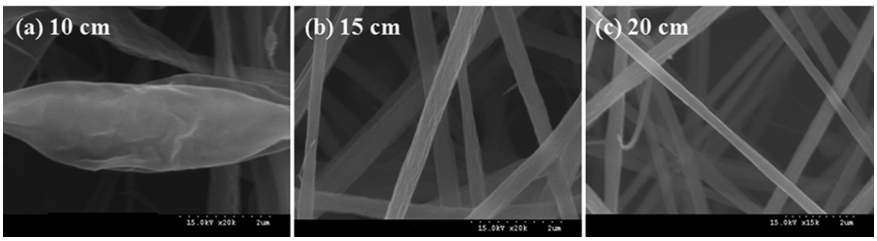

Figure 6. FE-SEM images of electrospun zein/*Poria cocos* extract nanofibers with different TCD (a) 10 cm (b) 15 cm and (c) 20 cm (zein concentration=30 wt.%, *Poria cocos* extract concentration=15 wt.%, applied voltage=17.5 kV).

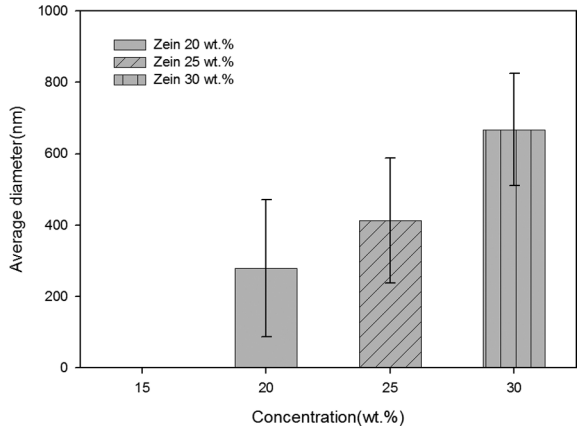

Figure 7. Average diameter of electrospun zein nanofibers prepared by different zein concentration of (a) 15 wt.%, (b) 20 wt.%, (c) 25 wt.% and (d) 30 wt.% (TCD=15 cm and applied voltage=10 kV).

Figure 6은 TCD변화에 따른 zein/복령추출물 나노섬유 형태 변화를 나타낸 FE-SEM 사진으로 거리를 (a)10, (b)15, (c)20 cm로 설정하였다. Figure 6(a)의 경우에는 방사되는 거리가 너무 짧아 용액이 증발하지 못함과 동시에 나노섬유가 펼쳐지는 거리가 짧아서 나노섬유의 접촉면이 서로 엉겨붙어 그물형태를 하고 있었다. Figure 6(b)의 경우에는 균일한 형태의 나노섬유가 제조되었고, Figure 6(c)의 경우에는 직경이 불균일하며 얇은 나노섬유가 형성되었다.

Figure 7은 zein농도에 따른 나노섬유의 직경을 나타낸 그림으로 zein의 함량이 증가할수록 나노섬유의 직경이 증가함을 보였다. 농도가 15 wt.%의 경우에는 대부분 비드가 형성되어 평균직경을 측정할 수 없었고, 20 wt.%의 경우에는 평균직경이 279 nm였고, 25 wt.%의 경우에는 평균직경이 413 nm였다. 농도 30 wt.%의 경우에는 667 nm의 평균직경을 가지면서 균일한 형태를 제조할 수 있었다.

결 론

본 연구에서는 여러 실험들을 거쳐 전기방사법을 이용하여 천연고분자인 zein 나노섬유 제조시 최적조건을 확립하였으며, 확립된 최적조건으로 복령추출물을 혼입시켜 나노복합섬유의 형태학적 특성을 분석하였다. 제조된 zein 나노섬유는 농도에 따라 300 nm에서 800 nm의 직경을 가졌다. 또한 복령추출물의 함량이 증가할수록 나노섬유의 표면에 주름의 수가 더 증가하는 것을 알 수있었는데, 이것은 복령추출물이 zein과 혼합시 나노섬유 내부에 약간의 클러스터를 형성하는 것에 기인한 것으로 보인다. 복령추출물을 혼입시켰을 경우 17.5 kV의 전압 및 15 cm의 TCD의 경우 균일한 형태의 나노섬유를 제조할 수 있었다. 전압이 15 kV로 감소함에 따라 비드가 형성되었고, TCD가 10 cm로 감소함에 따라 그물형태의 나노섬유가 형성되었다. 제조된 zein/복령추출물 나노섬유는 zein과 복령추출물의 특성을 발현하면서 기존의 나노섬유보다 비표면적을 증가시키므로 고비표면적을 필요로 하는 분야에 적용가능성을 확인하였다. 특히 zein/복령추출물은 우수한 인체친화성, 친환경성 및 항산화성을 지니고 있어 화장품 분야에 적용이 가능한 것으로 보인다.

감사의 글

본 연구는 농림축산식품부 기술사업화지원사업(113042-3)의 지원으로 수행되었습니다.

References

Kim IK, Yeum JH (2011) Electrospinning fabrication and characterization of poly(vinyl alcohol)/waterborne polyurethane/montmorillonite nanocomposite nanofibers. Polymer 35: 553-557.

Park J H, Karim MR, Kim IK, Cheong IW, Kim J W, Bae DG, Cho JW, Yeum JH (2010) Electrospinning fabrication and characterization of poly(vinyl alcohol)/montmorillonite/silver hybrid nanofibers for antibacterial applications. Colloid Polym Sci 288: 115-121.

Yang JH, Yoon NS, Park JH, Kim IK, Cheong IW, Deng Y, Oh W, Yeum JH (2011) Electrospinning fabrication and characterization of poly(vinyl alcohol)/waterborne polyurethane nanofiber membranes in aqueous solution. J Appl Polym Sci 120: 2337-2345.

Chuangchote S, Supaphol P (2006) Fabrication of aligned poly(vinyl alcohol) nanofibers by electrospinning. J Nanosci Nanotechnol 6: 125-129.

Hong KH (2007) Preparation and properties of electrospun poly(vinyl alcohol)/silver fiber web as wound dressings. Polym Eng Sci 47: 43-49.

Vasita R, Katti DS (2006) Nanofibers and their applications in tissue engineering. Int J Nanomedicine 1: 15-30.

Reddy N, Yang Y (2011) Novel green composites using zein as matrix and jute fibers as reinforcement. Biomass Bioenerg 35: 3496-3503.

Shukla R, Cheryan M (2001) Zein: the industrial protein from corn. Ind Crop Prod 13: 171-192.

Tu J, Wang H, Li H, Dai K, Wang J, Zhang X (2009) The in vivo bone formation by mesenchymal stem cells in zein scaffolds. Biomaterials 30: 4369-4376.

Jiang Q, Reddy N, Yang Y (2010) Cytocompatible cross-linking of electrospun zein fibers for the development of water-stable tissue engineering scaffolds. Acta Biomaterialia 6: 4042-4051.