

明 細 書

発明の名称： 青海苔香を有する茶芳香付与液状組成物

技術分野

[0001] 本発明は茶芳香付与液状組成物に関し、より具体的には、青海苔香を有する茶芳香付与液状組成物に関する。

背景技術

[0002] 茶葉を加工して得られる茶飲料は、日本のみならず世界中で幅広く飲用されている。茶飲料は、ペットボトルや缶などの容器に殺菌充填された容器詰め飲料として販売されていたり、或いは、乾燥及び粉末化をして粉体の形態にし、水や湯などで溶解して飲用するものとして販売されていたりする。様々な種類の茶飲料において、近年では芳香付与原料が使用され、茶飲料の香味の更なる改善が図られている。特に、優れた香味を有する芳香付与原料は、茶飲料の製造業者の間では強く望まれている。

[0003] 茶飲料に対する芳香付与原料としては、例えば、ジメチルスルフィド、リナロール、青葉アルコール、カフェイン及びタンニンが所定の量比で含まれる緑茶飲料用の原料液が開示されている（特許文献1）。また、芳香付与原料を使用した茶飲料として、カフェイン濃度を50ppm以下とした容器詰め緑茶飲料が開示されており、当該緑茶飲料では、ジメチルスルフィドを含有し、且つカフェイン低減処理が行われた茶濃縮物が用いられている（特許文献2）。また、芳香付与原料の製造においても様々な工夫が施されており、例えば、茶葉を原料とした場合に、茶葉を水蒸気蒸留して回収した留出液と、留出残渣を水で抽出した抽出液とを混合する工程を含む茶エキスの製造方法も開示されている（特許文献3）。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開2007-110990号公報

特許文献2：特開2016-111970号公報

特許文献3：特開2008-92817号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0005] 茶飲料の中でいわゆる高級緑茶が有する特徴的な芳香として、青海苔香と呼ばれるものがある。しかしながら、青海苔香に特化した優れた芳香を有する芳香付与原料はこれまでほとんど知られていない。そこで、本発明は、青海苔香を有し、且つその香りが持続して感じられる芳香付与原料を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

- [0006] 上記課題を解決すべく本発明者らは鋭意検討した結果、従来はジメチルスルフィドが青海苔の香りを有することが知られていたところ、これに β -イオノンを組み合わせて存在させることによって、高級茶らしい青海苔香がより良く感じられることを見出した。そして、本発明者らは、ジメチルスルフィド及び β -イオノンの含有比率を特定の範囲となるように調整することによって、その高級茶らしい青海苔香が持続して感じられることを見出した。これらの知見に基づき、本発明者らは本発明を完成するに至った。

- [0007] 本発明は、これに限定されるものではないが、以下に関する。

(1) ジメチルスルフィド及び β -イオノンを含む、 β -イオノン含有量のジメチルスルフィド含有量に対する重量比が0.01～3.5である、茶芳香付与液状組成物。

(2) α -イオノン、 β -シクロシトラール、(z)-3-ヘキセノール、1-ペンテン-3-オール及びネロリドールからなる群より選択される一以上の芳香成分をさらに含有する、(1)に記載の組成物。

(3) (1)又は(2)に記載の組成物を含む、飲食品。

(4) 飲料である、(3)に記載の飲食品。

発明の効果

- [0008] 本発明によれば、青海苔香を有し、且つその香りが持続して感じられる芳

香付与原料を提供することができる。本発明の茶芳香付与液状組成物は、飲料の原料として使用することができ、飲料全般において高級茶らしい青海苔香を効果的に付与することができる。特に、本発明の茶芳香付与液状組成物は、ペットボトルや缶などに充填された容器詰め飲料への青海苔香の付与に有効である。

- [0009] また、本発明の茶芳香付与液状組成物は、飲料だけでなく食品に対しても利用可能である。茶風味を有する食品は、近年その数や種類は増加傾向にある。本発明の茶芳香付与液状組成物を利用して、例えば、ケーキ、カステラ、キャンディー、クッキー、ゼリー、プリン等の菓子類に対して、高級茶らしい青海苔香を付与することができる。

発明を実施するための形態

- [0010] (茶芳香付与液状組成物)

本発明の茶芳香付与液状組成物について、以下に説明する。なお、特に断りがない限り、本明細書において用いられる「ppm」、「ppb」、及び「重量%」は、重量／容量 (w/v) の ppm、ppb、及び重量%をそれぞれ意味する。

- [0011] 本発明の一態様は、ジメチルスルフィド及びβ-イオノンを含有し、β-イオノン含有量のジメチルスルフィド含有量に対する重量比が0.01～3.5である茶芳香付与液状組成物である。かかる構成を採用することにより、茶芳香付与液状組成物において青海苔香が呈され、その香りが持続して感じられるものとなる。ここで、本明細書における「青海苔香」とは、ほのかな香ばしさ、甘さ、及び磯の様な匂いが混じりあった香りを意味する。

- [0012] 本明細書において「茶芳香付与液状組成物」とは、茶葉を原料として得られる芳香成分（茶葉由来の芳香成分）を含んでなり、飲料や食品等の対象において希釈又は分散用として使用され、当該対象に対して茶葉由来の芳香を付与することができる液状の組成物を意味する。

- [0013] 本発明において原料となる茶葉は、ツバキ科ツバキ属の植物 (*Camellia sinensis* (L) O.Kuntze など) から得られる葉を用いることができる。本発明で

は、緑茶の茶葉が好適に用いられる。一般的に緑茶を製茶する際には、まず、摘茶後の生茶葉が、蒸熱処理→粗揉→揉捻→中揉→精揉→乾燥の各工程を経て荒茶とされる。さらにこの荒茶が、篩分け→切断→火入れ乾燥→選別→合組→の各工程を経て仕上茶となる。本発明でいう茶葉とは、ツバキ科ツバキ属の生茶葉が前記工程を経た後のものであり、例えば、荒茶、煎茶、玉露、かぶせ茶、碾茶、番茶、ほうじ茶、等の蒸し製の不発酵茶のすべてが包含される。また、本発明において茶葉は、複数種類の茶葉をブレンドして使用してもよい。本発明では、特に、かぶせ茶、玉露、碾茶などの摘採前に日光を遮光し被覆栽培した茶葉を用いることが好ましい。

[0014] 本発明の茶芳香付与液状組成物は、ジメチルスルフィド及び β -イオノン含有する。ジメチルスルフィドは、組成式 $(\text{CH}_3)_2\text{S}$ で表される有機硫黄化合物であり、海苔の香り成分として知られている。また、 β -イオノンは、テルペノイドの一種であるイオノンにおいて、二重結合の位置が異なる3種類の異性体の中の一つであり、スミレの花のような香りやセダー油様の香りを有することが知られている。

[0015] 本発明の茶芳香付与液状組成物において、 β -イオノン含有量のジメチルスルフィド含有量に対する重量比は0.01～3.5である。上述した通り、ジメチルスルフィドは海苔の香りを呈する芳香成分であることは知られているが、ジメチルスルフィドのみでは、トップノートに感じられる青海苔香の香ばしい香りのみが強調され、玉露のような上質な茶飲料において感じられる青海苔香を達成することは難しい。かかるジメチルスルフィドに対して上記重量比で β -イオノンを組み合わせることで、玉露のような上質な茶飲料の飲み終わりに感じられる華やかな甘い芳香が付与され、芳香のバランスの優れた厚みのある青海苔香が感じられるようになる。また、芳香のバランスが整うことによって、トップからラストにわたって青海苔香の良い香りが持続して感じられるようになる。

[0016] 本発明の茶芳香付与液状組成物における β -イオノン含有量のジメチルスルフィド含有量に対する重量比は、好ましくは0.02以上、0.05以上

、0.10以上、0.15以上、0.20以上、0.25以上、0.30以上、0.35以上、0.40以上、0.45以上、又は0.50以上である。また、本発明の茶芳香付与液状組成物における β -イオノン含有量のジメチルスルフィド含有量に対する重量比は、好ましくは3.3以下、3.0以下、2.8以下、2.5以下、2.3以下、2.0以下、1.8以下、1.5以下、1.3以下、又は1.0以下である。典型的には、本発明の茶芳香付与液状組成物における β -イオノン含有量のジメチルスルフィド含有量に対する重量比は、好ましくは0.05～3.0、より好ましくは0.1～2.5、さらにより好ましくは0.2～2.0である。

[0017] 本発明の茶芳香付与液状組成物におけるジメチルスルフィドの含有量は、特に限定されないが、例えば50ppb以上であり、好ましくは100ppb以上、500ppb以上、1000ppb以上、2000ppb以上、3000ppb以上、5000ppb以上、7000ppb以上、10000ppb以上、又は13000ppb以上である。ジメチルスルフィドの含有量が前記範囲内であることにより、青海苔香が発揮されるようになる。茶芳香付与液状組成物におけるジメチルスルフィドの含有量の上限值は、特に制限されない。例えば、当該含有量は、1000000ppb以下、800000ppb以下、又は500000ppb以下である。本発明の茶芳香付与液状組成物におけるジメチルスルフィドの含有量は、典型的には、50～1000000ppb、好ましくは1000～800000ppb、より好ましくは3000～800000ppbである。

[0018] また、本発明の茶芳香付与液状組成物における β -イオノンの含有量は、特に限定されないが、例えば1ppb以上であり、好ましくは5ppb以上、10ppb以上、50ppb以上、100ppb以上、120ppb以上、150ppb以上、170ppb以上、200ppb以上、220ppb以上、250ppb以上、270ppb以上、300ppb以上、350ppb以上、500ppb以上、700ppb以上、1000ppb以上、1500ppb以上、2000ppb以上、2500ppb以上、又は300

0 p p b以上である。 β -イオノンが前記範囲内の含有量でジメチルスルフィドと共に存在することにより、本発明の茶芳香付与液状組成物は、バランスの良いより優れた青海苔香を発揮することができる。茶芳香付与液状組成物における β -イオノンの含有量の上限值は、特に制限されない。例えば、当該含有量は、7 0 0 0 0 0 p p b以下、5 0 0 0 0 0 p p b以下、3 0 0 0 0 0 p p b以下、2 0 0 0 0 0 p p b以下、又は1 0 0 0 0 0 p p b以下である。本発明の茶芳香付与液状組成物における β -イオノンの含有量は、典型的には、1 ~ 7 0 0 0 0 0 0 p p b、好ましくは1 0 0 ~ 3 0 0 0 0 0 p p b、より好ましくは1 0 0 0 ~ 2 0 0 0 0 0 p p bである。

[0019] 本発明の茶芳香付与液状組成物は、上記のジメチルスルフィド及び β -イオノンに加えて、 α -イオノン、 β -シクロシトラール、(z)-3-ヘキセノール、1-ペンテン-3-オール及びネロリドールからなる群より選択される一以上の芳香成分をさらに含有することができる。これらの芳香成分を本発明の茶芳香付与液状組成物に含有させることにより、より一層バランスの優れた青海苔香が呈されるようになる。

[0020] 本発明の茶芳香付与液状組成物における α -イオノンの含有量は、例えば0.01~100 p p m、好ましくは0.1~100 p p m、より好ましくは1~100 p p mである。本発明の茶芳香付与液状組成物における β -シクロシトラールの含有量は、例えば0.01~100 p p m、好ましくは0.1~100 p p m、より好ましくは1~100 p p mである。本発明の茶芳香付与液状組成物における(z)-3-ヘキセノールの含有量は、例えば0.01~100 p p m、好ましくは0.1~100 p p m、より好ましくは1~100 p p mである。本発明の茶芳香付与液状組成物における1-ペンテン-3-オールの含有量は、例えば0.1~1000 p p m、好ましくは1~1000 p p m、より好ましくは10~1000 p p mである。本発明の茶芳香付与液状組成物におけるネロリドールの含有量は、例えば0.01~100 p p m、好ましくは0.1~100 p p m、より好ましくは1~100 p p mである。

[0021] 本発明において、茶芳香付与液状組成物におけるジメチルスルフィド及び β -イオノンの含有量は、ガスクロマトグラフィー（GC）を用いて測定することができる。また、その分析装置としては、フラッシュGCノーズ HERACLES II（アルファ・モス・ジャパン）が挙げられる。具体的には、下記の条件により各種芳香成分の含有量を測定することができる。

ガスクロマトグラフィー装置：フラッシュGCノーズHERACLES II

カラム1：MXT-5（微極性 10m、180 μ m ID、0.4 μ m）

カラム2：MXT-WAX（高極性 10m、180 μ m ID、0.4 μ m）

キャリアガス流量：水素 1.6mL/min

水素炎イオン化検出器（FID）温度：260℃

インジェクター温度：200℃

オープン温度：40℃（5秒）～1.5℃/秒～250℃（90秒）

注入時間：125秒

トラップ温度：吸着50℃、脱離240℃

トラップ時間：吸着130秒、プレ加熱35秒

測定用サンプルに関する条件は、後述の実施例で示した通りに設定することができる。

[0022] また、本発明において、茶芳香付与液状組成物における α -イオン、 β -シクロシトラール、（ z ）-3-ヘキセノール、1-ペンテン-3-オール及びネロリドールの含有量は、ガスクロマトグラフィー質量分析法（GC/MS）を用いて測定することができる。具体的には、下記の条件により各種芳香成分の含有量を測定することができる。

装置：GC：Agilent Technologies GC7890B

MS：Agilent Technologies 5977A

HS：Gestel MPS

Tube：Tenax TA, Carbon bx1000

カラム：HP-INNOWAX 60m x 0.25mm i.d. df=0.25 μ m

温度条件：40℃（4分）～5℃/分～260℃

キャリアガス流量：He 1.5ml/分

注入法：スプリットレス

イオン源温度：260℃

測定用サンプルに関する条件は、後述の実施例で示した通りに設定することができる。

[0023] 本発明の茶芳香付与液状組成物は、特に限定されないが、いずれもBrix値が0.50以下である。ここで、本明細書において「Brix値」とは、糖度計や屈折計などを用いて20℃で測定された屈折率を、ICUMSA（国際砂糖分析法統一委員会）の換算表に基づいてショ糖溶液の質量／質量パーセントに換算した値を意味し、その単位は、「°Bx」、「%」又は「度」と表記される場合もある。本発明では、Brix値が高いほど茶芳香付与液状組成物中の可溶性固形分の含有量が高いことを表し、Brix値を茶芳香付与液状組成物の濃縮化の指標として用いることができる。本発明においてBrix値は、市販のBrix計を用いて測定することができる。本発明の茶芳香付与液状組成物のBrix値は、好ましくは0.03～0.40、より好ましくは0.05～0.30、さらに好ましくは0.10～0.20である。

[0024] 本発明の茶芳香付与液状組成物のpHは、25℃において4.5～10.5が好ましい。pHが前記範囲内であることにより、優れた青海苔香が発揮されるようになり、飲食品などへの芳香の付与においてより取り扱いやすいものとなる。本発明の茶芳香付与液状組成物のpHは、より好ましくは5.0～10.0であり、さらに好ましくは5.5～9.5である。pHの調整は、クエン酸、クエン酸ナトリウム（クエン酸三ナトリウムなど）、リン酸などのpH調整剤を用いて適宜行うことができる。すなわち、本発明の茶芳香付与液状組成物は、前述のようなpH調整剤を含むことができる。

[0025] 本発明の茶芳香付与液状組成物は、茶葉の水蒸気蒸留を行って製造できることから、茶葉の留出液を含むことができる。本発明の茶芳香付与液状組成物は、茶葉留出液それ自体であってもよいし、これを水や、エタノール、ブ

ロピレングリコール、グリセリン等のアルコールなどの溶媒を用いて希釈又は分散したものであってもよい。すなわち、本発明の茶芳香付与液状組成物は、水や有機溶媒等の希釈剤又は分散剤を含むことができる。本発明の茶芳香付与液状組成物に含まれる茶葉留出液の量は、特に限定されないが、例えば0.01重量%以上、0.1重量%以上、又は1重量%以上であり、好ましくは5重量%以上、10重量%以上、又は30重量%以上であり、より好ましくは50重量%以上である。本発明の茶芳香付与液状組成物における希釈剤又は分散剤の含有量の茶葉留出液含有量に対する重量比（〔希釈剤又は分散剤〕／〔茶葉留出液〕）は、特に限定されないが、例えば0.001～150、好ましくは0.005～15、より好ましくは0.01～10である。

[0026] 本発明の茶芳香付与液状組成物は、上記に示した各種成分に加えて、通常の飲食品に用いられる添加物、例えば、酸化防止剤、保存料、甘味剤、栄養強化剤、増粘安定剤、乳化剤、食物繊維、品質安定剤などを、本発明の効果を損なわない範囲で添加することができる。

[0027] 本発明の茶芳香付与液状組成物は、そのまま、或いは水等で希釈して飲食品に添加することができる。本発明の茶芳香付与液状組成物は、通常、飲食品等の対象において希釈又は分散された状態で摂取される。また、本発明の茶芳香付与液状組成物において、添加対象となり得る飲食品（例えば、茶飲料）それ自体は包含されないことが好ましい。なお、本明細書において茶飲料とは、茶葉の抽出物を主成分として含み、希釈又は分散をせずにそのまま飲用される飲料を意味する。

[0028] 本発明の茶芳香付与液状組成物が添加される飲料としては、例えば、茶飲料、スポーツ飲料、炭酸飲料、果汁飲料、乳飲料、酒類などが挙げられ、茶飲料が特に好ましい。茶飲料は、不発酵茶（緑茶など）、半発酵茶（ウーロン茶など）、発酵茶（紅茶など）を含むが、具体的には、煎茶、番茶、ほうじ茶、玉露、かぶせ茶、甜茶等の蒸し製の不発酵茶（緑茶）；嬉野茶、青柳茶、各種中国茶等の釜炒茶等の不発酵茶；包種茶、鉄観音茶、ウーロン茶等

の半発酵茶；紅茶、阿波番茶、プアール茶などの発酵茶等の茶類を挙げることができる。本発明の茶芳香付与液状組成物が利用される茶飲料は、好ましくは緑茶である。本発明の茶芳香付与液状組成物が添加された飲料は、ペットボトルや缶等に充填された容器詰め飲料として提供することができる。

[0029] 本発明の茶芳香付与液状組成物はまた、食品にも添加することができる。そのような食品としては、例えば、和菓子及び洋菓子を問わず、菓子類としてケーキ、カステラ、キャンディー、クッキー、ゼリー、プリン、チョコレートなど、冷菓類としてアイスクリーム、アイスキャンディー、シャーベットなど、またはスナック類などが挙げられ、パンや乳製品などにも使用することができる。

[0030] 本発明の茶芳香付与液状組成物が飲食品に添加される場合、その添加量は飲食品の種類等に応じて適宜設定することができる。本発明の茶芳香付与液状組成物は、例えば、飲食品中のその含有量が0.01～25重量% (w/w)、好ましくは0.03～20重量% (w/w)、より好ましくは0.05～10重量% (w/w)、さらに好ましくは0.5～5重量% (w/w) となるように飲食品に添加することができる。

[0031] また、本発明の茶芳香付与液状組成物を飲食品に添加する量は、ジメチルスルフィド及び／又はβ-イオノンの含有量を指標にして設定することもできる。例えば、飲食品中のジメチルスルフィドの含有量が1～2500ppb (w/w)、好ましくは5～2000ppb (w/w)、より好ましくは10～1000ppb (w/w)、さらに好ましくは100～500ppb (w/w) となるように、本発明の茶芳香付与液状組成物を飲食品に添加することができる。例えば、飲食品中のβ-イオノンの含有量が0.05～100ppb (w/w)、好ましくは0.2～80ppb (w/w)、より好ましくは0.4～60ppb (w/w)、さらに好ましくは4～40ppb (w/w) となるように、本発明の茶芳香付与液状組成物を飲食品に添加することができる。

[0032] (製造方法)

本発明の茶芳香付与液状組成物の製造方法について、以下に説明する。なお、本発明は、別の態様として、以下に示した工程を含む茶芳香付与液状組成物の製造方法とすることができる。

[0033] 本発明の茶芳香付与液状組成物は、茶葉を蒸留する工程を経て製造することができる。原料となる茶葉は上記に説明した通りであり、本発明では、好ましくはかぶせ茶、玉露、碾茶などの摘採前に日光を遮光し被覆栽培した茶葉を原料として用いることができる。

[0034] 原料となる茶葉の形態は、特に限定されるものではなく、生の茶葉を使用してもよく、焙煎した茶葉、又は発酵させた茶葉を使用してもよい。また、茶葉は、蒸留処理を行う前に加熱処理などを行ったり、必要に応じて粉碎や湿潤などの工程を加えたりしてもよい。茶葉を湿潤する方法としては、例えば、茶葉を水に浸漬させたり、霧吹き等で茶葉に水を噴霧させたりする方法が挙げられる。茶葉を水に浸漬させる場合は、浸漬した状態で茶葉を攪拌してもよい。茶葉の湿潤においては、特に限定されないが、茶葉の重量1に対して、例えば0.1～5倍、好ましくは0.3～3倍、より好ましくは0.5～2倍の重量の水が用いられる。

[0035] 茶葉を蒸留する方法としては、典型的には水蒸気蒸留法が利用される。水蒸気蒸留法は、原料（茶葉）に水蒸気を通し、水蒸気に伴って留出してくる芳香成分を冷却凝縮させる方法であり、常圧水蒸気蒸留、減圧水蒸気蒸留、気液多段式向流接触蒸留（スピニングコーンカラム）などの方式を採用することができる。本発明では、常圧水蒸気蒸留方式を利用することが好ましい。水蒸気蒸留では蒸留の初期に芳香が多く留出し、その後徐々に芳香の留出が少なくなる。蒸留を終了する時点は、目的とする芳香成分の量や経済性等に応じて適宜設定することができる。茶葉の水蒸気蒸留は、当業者に公知の水蒸気蒸留装置を用いて行うことができる。

[0036] 茶葉の水蒸気蒸留においては、典型的には吹き込み式の水蒸気蒸留が行われる。吹き込み式の水蒸気蒸留とは、籠などの容器に入れた原料（茶葉）に対して直接的に水蒸気を接触させて、原料を介して得られた水蒸気を回収し

て冷却し、留出液を得る方法である。吹き込み式の水蒸気蒸留において、蒸気流量は、例えば $1\sim40\text{ kg/hr}$ 、好ましくは $5\sim30\text{ kg/hr}$ 、より好ましくは $7\sim20\text{ kg/hr}$ とすることができる。また、吹き込み式の水蒸気蒸留を行う場合の蒸気圧力は、常圧水蒸気蒸留方式において、例えば $0.05\sim0.5\text{ MPa}$ 、好ましくは $0.1\sim0.4\text{ MPa}$ 、より好ましくは $0.15\sim0.3\text{ MPa}$ である。また、吹き込み式の水蒸気蒸留を行う場合の蒸留温度は、常圧水蒸気蒸留方式において、特に限定されないが、好ましくは 100°C である。

[0037] 水蒸気蒸留法では留分回収のために凝縮処理が行われるが、その凝縮は、例えば 30°C 以下、好ましくは 25°C 以下、より好ましくは 20°C 以下の温度で行うことができる。凝縮処理は、特に限定されないが、例えば冷却用の冷媒を用いて行うことができ、冷媒としては不凍液等を利用することができる。冷媒の温度は、例えば 20°C 以下、好ましくは 15°C 以下、より好ましくは 10°C 以下とすることができ、凝縮を行うときの冷媒流量は、例えば $10\sim70\text{ L/分}$ 、好ましくは $15\sim50\text{ L/分}$ 、より好ましくは $20\sim40\text{ L/分}$ とすることができる。留出液を回収する時間は、目的に応じて適宜設定することができるが、留出液の回収開始から、例えば5分～2時間、好ましくは10分～1時間、より好ましくは15～45分である。本発明では、水蒸気蒸留法を用いて、例えば、原料重量に対する回収留液重量の割合が $20\sim70\%$ 程度で、Brix値1%未満の茶芳香付与液状組成物を得ることができる。

[0038] 本発明においては、上記の通り得られた茶芳香付与液状組成物は、さらに濃縮する工程を経て、各種芳香成分の高濃度化を行うことができる。本発明の茶芳香付与液状組成物を濃縮化することによって、より力価の高い茶芳香付与液状組成物とすることが可能となり、飲食品などに添加する茶芳香付与液状組成物の量を抑えたり、飲食品などに対してより高濃度に香氣成分を付与させたりすることができる。

[0039] 茶芳香付与液状組成物の濃縮方法としては、典型的には蒸留濃縮が行われ

る。蒸留濃縮では、例えば、茶芳香付与液状組成物を蒸留釜に投入し、下部より加熱することで沸騰させ、蒸気とともに芳香成分を回収する方式を採用することができる。蒸留濃縮の方法においては、常圧蒸留濃縮及び減圧蒸留濃縮のいずれも採用することができる。本発明では、好ましくは減圧蒸留濃縮の方式が採用される。茶葉留出液の蒸留濃縮は、当業者に公知の蒸留装置を用いて行うことができる。

[0040] 茶芳香付与液状組成物の蒸留濃縮において減圧蒸留濃縮を行う場合、蒸気流量は、例えば0.1～80 kg/h r、好ましくは1～60 kg/h r、より好ましくは3～40 kg/h rとすることができる。また、減圧蒸留濃縮を行う場合、加熱に用いる水蒸気の蒸気圧力は、例えば0.1～0.5 MP a、好ましくは0.15～0.4 MP a、より好ましくは0.2～0.3 MP aである。また、減圧蒸留濃縮を行う場合の蒸留温度は、例えば10～100℃、好ましくは20～70℃、より好ましくは35～55℃である。減圧蒸留濃縮を行う場合の減圧度としては、ゲージ圧表記で、例えば0～0.101 MP a、好ましくは-0.050～-0.099 MP a、より好ましくは-0.075～-0.095 MP aとすることができる。

[0041] 蒸留濃縮も、上記の水蒸気蒸留と同様に蒸留の初期に芳香が多く留出し、その後徐々に芳香の留出が少なくなる。蒸留を終了する時点は、目的とする芳香成分の量や経済性等に応じて適宜設定することができ、蒸留を終了させた時点で濃縮倍率が決定される。蒸留濃縮における留分回収のための凝縮処理は、例えば30℃以下、好ましくは25℃以下、より好ましくは20℃以下の温度で行うことができる。蒸留濃縮での凝縮処理も、上記の水蒸気蒸留での凝縮処理と同様に特に限定されず、例えば冷却用の冷媒を用いて行うことができ、冷媒としては不凍液等を利用することができる。冷媒の温度は、例えば20℃以下、好ましくは15℃以下、より好ましくは10℃以下とすることができ、凝縮を行うときの冷媒流量は、例えば10～70 L/分、好ましくは15～50 L/分、より好ましくは20～40 L/分とすることができる。蒸留濃縮における留出液の回収時間は、目的に応じて適宜設定する

ことができるが、留出液の回収開始から、例えば2分～1時間、好ましくは5～45分、より好ましくは10～30分である。本発明では、蒸留濃縮を行って、茶芳香付与液状組成物重量に対する回収留液重量の割合が3～20%、すなわち5～30倍程度の濃縮倍率の濃縮茶芳香付与液状組成物を得ることができる。

[0042] また、蒸留濃縮（好ましくは減圧蒸留濃縮）を行う際には、塩析と呼ばれる操作を行ってもよい。塩析処理を行うことによって、蒸留釜に投入した留出液中で塩の極性が水分子を引き込み、有機化合物の揮発を促進することができる。塩析処理は、濃縮対象とする留出液に塩を含有させることにより行うことができる。例えば、蒸留濃縮の処理を行う前、又はその処理中に、蒸留釜の中に塩を投入することにより塩析処理を行うことができ、或いは、濃縮対象とする留出液の中にあらかじめ塩を添加しておいて、塩を含んだ留出液を蒸留濃縮することにより塩析処理を行うことができる。

[0043] 塩析処理における塩としては、典型的に塩化ナトリウムが用いられる。塩析処理を行う際に使用する塩の量は、濃縮前の留出液重量に対して、例えば0.01～10重量%（w/w）、好ましくは0.05～6重量%（w/w）、より好ましくは0.5～3重量%（w/w）である。

[0044] 本発明の茶芳香付与液状組成物は、さらに活性炭処理を行う工程を経て製造されてもよい。活性炭処理を行うことによって、不要な芳香成分の量を低減することができる。ここで、本明細書において「活性炭」とは、木などの炭素物質から高温での活性化反応を経て製造される、多孔質の、炭素を主な成分とする物質を意味する。

[0045] 使用される活性炭の形態は限定されないが、本発明においては粉末活性炭であることが好ましい。粉末活性炭の平均細孔径は、特に限定されないが、例えば0.3～30nmであり、好ましくは0.5～20nmであり、より好ましくは1～15nmであり、さらに好ましくは1～5nmである。粉末活性炭の平均細孔径は、当業者に公知の比表面積／細孔分布測定装置を用いて測定することができる。

[0046] 活性炭の由来は特に限定されず、例えば、木由来活性炭、やし殻由来活性炭、竹由来活性炭、もみ殻由来活性炭などから選択することができ、これらのうち一種類の活性炭だけを用いてもよいし、二種類以上を組み合わせ用いてもよい。本発明においては、木由来活性炭、及びやし殻由来活性炭が好ましく、木由来活性炭が特に好ましい。

[0047] 活性炭処理を行う方法は、特に限定されないが、例えば、活性炭粉末を用いた場合であれば、本発明の茶芳香付与液状組成物に活性炭粉末を添加して、適宜時間をおいてからフィルター等を用いて当該活性炭粉末を除去する方法が採用される。活性炭粉末の添加量は、茶芳香付与液状組成物の重量に対する濃度として、例えば10～1000ppm(w/w)、好ましくは50～300ppm(w/w)、より好ましくは75～125ppm(w/w)とすることができ、本発明の茶芳香付与液状組成物に活性炭粉末を接触させる時間は、例えば1～60分間、好ましくは3～30分間、より好ましくは5～20分間とすることができる。なお、本発明の茶芳香付与液状組成物に活性炭粉末を接触させている間は、攪拌操作などを行ってもよい。活性炭処理における処理温度は、例えば1～25℃、好ましくは2～20℃、より好ましくは3～10℃とすることができる。

[0048] 上記の通り得られた茶芳香付与液状組成物においては、特に制限されないが、ジメチルスルフィド及びβ-イオノン等の芳香成分をさらに添加してもよい。また、上述した通り、本発明の茶芳香付与液状組成物は飲食品に添加することができ、飲食品における青海苔香の香りを高めることができる。したがって、本発明は、別の態様として、上記の工程を通じて得られた茶芳香付与液状組成物を飲食品に添加する工程を含む、飲食品における青海苔香を高める方法とすることができる。

実施例

[0049] 以下に実施例に基づいて本発明の説明をするが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

[0050] 1. 茶芳香付与液状組成物の作製

(1) 水蒸気蒸留による茶芳香付与液状組成物の作製

市販のかぶせ茶の茶葉 12 kg と水 12 kg とを混合し、茶葉の水分量に偏りが生じないように手でかき混ぜて、茶葉の湿潤処理を行った。次いで、茶葉を、水蒸気蒸留釜内に設置した籠の中に投入し、蒸気圧力 0.25 MPa、蒸気流量 16 kg/h r、蒸気温度 100℃ (常圧) の条件で吹き込み式の水蒸気蒸留を行った。冷却冷媒温度を往 4℃ 及び復 6℃ とし、30 L/分の冷媒流量で凝縮を行い、留出液を回収した。留出液の回収時間は、留出が開始してから 30 分間とし、回収された留出液の液量は 7.38 kg であった。この操作を 2 回行って合計 15.18 kg の留出液 (茶芳香付与液状組成物) を得た。

[0051] (2) 活性炭処理

上記の茶芳香付与液状組成物について活性炭処理を行った。具体的には、留出液 15.18 kg に対して、平均細孔径 3 nm の木由来粉末活性炭 (大阪ガスケミカル、白鷺 WP-Z) を 1.52 g 添加し、10 分間スターラーで攪拌した。次いで、ろ紙 (ADVANTEC、No. 2) を用いて留出液中の活性炭を除去した。なお、活性炭処理における処理温度は 5.7℃ とした。

[0052] (3) 減圧蒸留濃縮処理

上記の通り活性炭処理を行った茶芳香付与液状組成物 10 kg を、蒸留釜に投入し、真空ポンプを用いて -0.09 MPa まで蒸留釜の系内を減圧した。これを蒸気流量 5~15 kg/h r、蒸気圧力 0.25 MPa の条件で加熱をして留出液の液温を 40~50℃ まで上昇させた。冷却冷媒温度を往 4℃ 及び復 6℃ とし、31 L/分の冷媒流量で凝縮を行い、留出液を回収した。留出液の回収時間は、留出が開始してから 15 分間とし、回収された留出液の液量は合計 0.993 kg であった (10 倍濃縮)。

[0053] 上記の各種処理により得られた茶芳香付与液状組成物においては、いずれも青海苔香として優れた香りが感じられた。これらの茶芳香付与液状組成物について芳香成分の分析を行ったところ、ジメチルスルフィド、β-イオノ

ン、 α -イオノン、 β -シクロシトラール、(z)-3-ヘキセノール、1-ペンテン-3-オール及びネロリドール等が検出された。各種芳香成分の中からジメチルスルフィド及び β -イオノンの存在に着目して、茶芳香付与液状組成物におけるこれらの成分の濃度を以下の通り測定した。

[0054] <検量線>

対象とする芳香成分が1000ppmの濃度となるよう標準原液（エタノール溶媒）を作製し、それぞれの標準原液について純水で0.004、0.02、0.05、0.1、0.2、0.5ppmに調製した。各種調製液10mLを、塩化ナトリウム3gが入った20mL容量のバイアル瓶に投入して検量線サンプルとした。

[0055] <分析サンプルの作製>

検量線の濃度範囲に入るように茶芳香付与液状組成物を純水で適宜希釈し、この希釈された茶芳香付与液状組成物10mLと塩化ナトリウム3gとを20mL容量のバイアル瓶に投入し、分析サンプルを作製した。

[0056] <成分分析>

ガスクロマトグラフィー分析装置（アルファ・モス・ジャパン、フラッシュGCノーズ HERACLES II）を用いて、各種芳香成分の濃度を測定した。

（サンプリングパラメーター）

インキュベーション：60℃、15分

シリンジ：温度：70℃、注入後洗浄：90秒

ヘッドスペース注入：250 μ L/秒で5000 μ L

（装置パラメーター）

カラム1：MXT-5（微極性 10m、180 μ m ID、0.4 μ m）

カラム2：MXT-WAX（高極性 10m、180 μ m ID、0.4 μ m）

キャリアガス流量：水素 1.6mL/min

水素炎イオン化検出器（FID）温度：260℃

インジェクター温度：200℃

オープン温度：40℃（5秒）～1.5℃/秒～250℃（90秒）

注入時間：125秒

トラップ温度：吸着50℃、脱離240℃

トラップ時間：吸着130秒、プレ加熱35秒

[0057] 各種芳香成分の濃度の測定結果は下記の通りであった。

[0058] [表1]

	茶芳香付与液状組成物		
	水蒸気蒸留	活性炭処理	減圧蒸留濃縮処理
ジメチルスルフィド	17046ppb	6973ppb	13166ppb
β-イオン	1610ppb	169ppb	3664ppb

[0059] なお、その他の芳香成分については下記の条件で濃度を測定し、下表に示した結果が得られた。

[0060] <成分分析>

上記と同様にして作製した分析サンプルを、ゲステル社製M P Sを用いたM V M（Multi Volatile Method）法によりガスクロマトグラフィー質量分析装置（アジレント社）に導入し、各種芳香成分の濃度を測定した。

装置：GC：Agilent Technologies GC7890B

MS：Agilent Technologies 5977A

HS：Gestel MPS

Tube：Tenax TA, Carbon bx1000

カラム：HP-INNOWAX 60m x 0.25mm i.d. df=0.25 μm

温度条件：40℃（4分）～5℃/分～260℃

キャリアガス流量：He 1.5ml/分

注入法：スプリットレス

イオン源温度：260℃

[0061]

[表2]

	茶芳香付与液状組成物		
	水蒸気蒸留	活性炭処理	減圧蒸留濃縮処理
α -イオノン	1.45ppm	0.09ppm	6.04ppm
β -シクロシトラール	0.97ppm	0.22ppm	5.97ppm
(z)-3-ヘキセノール	0.23ppm	0.24ppm	3.25ppm
1-ペンテン-3-オール	5.07ppm	6.65ppm	52.49ppm
ネロリドール	4.11ppm	0.24ppm	2.27ppm

[0062] 2. 茶芳香付与液状組成物における芳香成分比率の検討

上記の測定結果から、ジメチルスルフィドと β -イオノンとの含有比に着目し、特に β -イオノン含有量のジメチルスルフィド含有量に対する重量比（ β -イオノン／ジメチルスルフィド）を検討した。

[0063] まず、ベースとなる試料を作製するため、上記とは別途作製していた活性炭処理済みの茶芳香付与液状組成物に対してさらに活性炭処理を行った。活性炭処理は、上記に示した木由来粉末活性炭を濃度300ppmとなるように茶芳香付与液状組成物に添加して、20分間攪拌をして実施した。得られた試料は、ジメチルスルフィド濃度が6088ppbで、 β -イオノン濃度がほぼ0（検出限界以下）であった。

[0064] 次いで、上記のベース試料を精製水で希釈し、これに β -イオノンの標準品を添加して、最終濃度が下表の通りとなるように各種試料を調製した。なお、標準品に含まれる β -イオノンの濃度は未知であったことから、あらかじめガスクロマトグラフィーによる濃度測定を行った。具体的には、 β -イオノンの標準品を50～5000倍の間で純水を用いて希釈し、検量線範囲内の濃度になるように適宜調整して濃度測定用サンプルとした。ガスクロマトグラフィーでの分析は、上記と同様の方法を用いて行った。

[0065] 標準品を用いて調製した各種試料について、香味の評価に関して十分に訓練された3名のパネリストで官能評価を実施した。官能評価としては、試料において感じられる青海苔香の程度について下記の5段階で評価し、0.5点刻みで採点し、最終的に評価点の平均値を算出した。なお、官能評価にお

いては、上記のベース試料（試料１）の評価点を３点として、各種試料の評価を行った。

- １：青海苔香をほとんど感じない
- ２：青海苔香をあまり感じない
- ３：青海苔香を感じる
- ４：青海苔香が持続する（青海苔香が優れている）
- ５：青海苔香がより長く持続する（青海苔香が非常に優れている）

[0066] [表3]

	ジメチルスルフィド (ppb)	β -イオノン (ppb)	β -イオノン/ジメチルスルフィド	評価点
試料1	251	0	0.000	3.0
試料2	251	5	0.020	3.3
試料3	251	40	0.158	3.7
試料4	251	149	0.594	4.2
試料5	251	502	2.002	4.2
試料6	250	753	3.008	3.7
試料7	250	1001	4.004	2.8

[0067] 上記の通り、 β -イオノンが存在し、そして β -イオノン含有量のジメチルスルフィド含有量に対する重量比（ β -イオノン／ジメチルスルフィド）が所定の範囲となることによって、青海苔香として優れた香りが持続することが示された。

[0068] 官能評価を通じてパネリストから得られたフリーコメントは、以下の通りであった。試料１でもトップノートとして青海苔香を感じるが、試料２では、トップの青海苔香に加え、後半においてわずかに青海苔香の余韻が残る感じがした。試料３では、ミドルノートとして感じられる中盤から後半にかけて甘みのある青海苔香が感じられ、ふくよかな印象が増加した。試料４では、中盤から後半にかけて甘みのある青海苔香が強まり、青海苔香の余韻が長くなる感じを受けた。また、試料４では、香りとして青さと甘さとが両立する感じを受けた。試料５でも試料４と同様に、中盤から後半にかけて甘みのある青海苔香が強まり、青海苔香の余韻が長くなる感じを受けた。また、試

料5でも、香りとして青さと甘さとが両立する感じを受けた。試料6では、重厚な青海苔香が感じられたが、後半に香りとして重さを感じた。試料7では、香りとして重さを強く感じたため、トップノートにおける香りのふくらみが抑えられ、全体的に香りとして重い印象を受けた。

[0069] 3. 茶芳香付与液状組成物の効果

活性炭処理及び減圧蒸留濃縮処理を行った茶芳香付与液状組成物を作製し（ジメチルスルフィド：11879ppb、 β -イオノン：2157ppb）、市販の茶飲料（サントリー、伊右衛門）に添加して官能評価を行った。具体的には、下表に示した通りの量で茶芳香付与液状組成物を茶飲料200mLに添加し、香味の評価に関して十分に訓練された4名のパネリストで官能評価を実施した。官能評価としては、青海苔香が付与されることにより茶飲料の品質が向上する程度と、感じられる青海苔香の強さとを合わせた総合評価を行い、1点（低評価）～5点（高評価）の5段階で、0.5点刻みで採点し、最終的に評価点の平均値を算出した。なお、官能評価においては、茶芳香付与液状組成物を添加していない茶飲料（茶飲料1）の評価点を3点として、各種茶飲料の評価を行った。

[0070] [表4]

	茶芳香付与液状組成物		評価点
	添加量 (μ L)	添加濃度 (v/v)	
茶飲料1	0	0%	3.0
茶飲料2	850	0.42%	5.0
茶飲料3	1700	0.84%	5.0
茶飲料4	5180	2.52%	5.0
茶飲料5	10650	5.06%	5.0

[0071] 結果は上記の通りであり、茶芳香付与液状組成物を添加することによって、茶飲料に対して青海苔香を十分に付与することができ、茶飲料の品質を大きく向上させることが示された。

[0072] 4. B r i x 値の測定

水蒸気蒸留処理により得られた茶芳香付与液状組成物を３種類作製し、これらの B r i x 値を測定した。また、これらの茶芳香付与液状組成物を活性炭処理及び減圧蒸留濃縮処理したものも作製し、それぞれ B r i x 値を測定した。なお、B r i x 値は、デジタル屈折計（アタゴ）を用いて測定した。

[0073] [表5]

	茶芳香付与液状組成物	
	水蒸気蒸留	活性炭処理及び 減圧蒸留濃縮処理
#1	0.05	0.12
#2	0.03	0.12
#3	0.03	0.17

[0074] 結果は上記の通りであり、濃縮処理を行う前も後も B r i x 値は 0.50 以下であった。

請求の範囲

- [請求項1] ジメチルスルフィド及び β -イオノンを含育し、 β -イオノン含有量のジメチルスルフィド含有量に対する重量比が0.01～3.5である、茶芳香付与液状組成物。
- [請求項2] α -イオノン、 β -シクロシトラール、(z)-3-ヘキセノール、1-ペンテン-3-オール及びネロリドールからなる群より選択される一以上の芳香成分をさらに含有する、請求項1に記載の組成物。
- [請求項3] 請求項1又は2に記載の組成物を含む、飲食品。
- [請求項4] 飲料である、請求項3に記載の飲食品。