明　細　書

発明の名称 ：

還元型コエンザイムＱ１０を含む経口用組成物、その製造方法、変色抑制方法及び変色抑制剤

技術分野

[0001] 本発明は還元型コエンザイムＱ１０を含み、変色が抑制された経口用組成物及びその製造方法に関する。本発明はまた、還元型コエンザイムＱ１０を含む組成物の変色抑制方法及び変色抑制剤等に関する。

背景技術

[0002] コエンザイムＱ１０（以下、「ＣｏＱ１０」ともいう）は、広く自然界に分布しているベンゾキノン誘導体である。ＣｏＱ１０は、動物細胞のミトコンドリアがエネルギーを産生する際の補酵素として必須の物質であり、また酸素利用効率を改善する作用を有するビタミン様作用物質として知られている。ＣｏＱ１０の主な薬理作用としては、抗酸化作用、エネルギー産生促進作用、心肺機能を高める作用、免疫賦活作用、老化予防作用などがあり、健康食品等の成分等としても利用されている。

[0003] ＣｏＱ１０には、酸化型及び還元型が存在する。酸化型ＣｏＱ１０（分子式：$C_{59}H_{90}O_4$、分子量８６３．３６５）は、別名、ユビキノン１０とも呼ばれる。一方、還元型ＣｏＱ１０（分子式：$C_{59}H_{92}O_4$、分子量８６５．３８１）は、別名、ユビキノール１０とも呼ばれ、酸化型ＣｏＱ１０の２電子還元体である。酸化型ＣｏＱ１０が黄色～橙色の結晶性の粉末であるのに対し、還元型ＣｏＱ１０は白色～淡黄色の結晶性の粉末である。

[0004] ＣｏＱ１０は、肉類や卵にも数μｇ／ｇ程度含まれ、生体内でも合成される栄養素であるが、加齢により生体内での合成量も減少し、欠乏しがちになる。しかしながら、ＣｏＱ１０含量の高い天然食品素材はごく少ないことから、通常の食事だけでは、不足を補う量のＣｏＱ１０を摂取することは難しい。また高齢者に多い心疾患、例えば、虚血性心疾患等の予防又は症状の軽減

などのためにも、ＣｏＱ１０を栄養補助食品、栄養強化食品等から補給することが望ましい。

[0005] このような栄養補助薬品や栄養強化食品等には、従来、酸化型ＣｏＱ１０が用いられてきたが、酸化型ＣｏＱ１０には経口摂取における吸収性が低いという課題があった。これに対して、還元型ＣｏＱ１０は、酸化型ＣｏＱ１０よりも優れた経口吸収性を示し、一般的な飲食品、健康食品、飼料、動物薬、経口医薬品等の経口用組成物において有用な化合物である。

[0006] 一方、還元型ＣｏＱ１０は、酸素や光により色調が変化することが知られている。特に飲食品等の経口用組成物への還元型ＣｏＱ１０の配合には課題があった。還元型ＣｏＱ１０を安定化する作用を有する化合物として、特許文献１には、炭化水素類、脂肪酸エステル類、エーテル類及びニトリル類から選ばれる溶媒が記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：国際公開第０３／００６４０８号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] 飲食品等の経口用組成物が変色すると、たとえ効能や風味には影響を及ぼさない変化であったとしても、品質に対して懸念を招くおそれがある。従って、還元型ＣｏＱ１０を含有する製品、特に飲食品等の経口用組成物において、還元型ＣｏＱ１０に起因する経時的な変色を抑制できる技術は重要である。しかしながら、特許文献１に記載の溶媒は、経口用組成物に配合した場合に、それ自体又はその副産物の生体への安全性の点から懸念があった。このため、より安全に還元型ＣｏＱ１０を含む組成物の変色を抑制でき、飲食品等に適用可能な技術が求められている。

[0009] 本発明は、経時的に生じる変色が抑制され、かつ、安全性が高く、飲食品にも適用可能な、還元型ＣｏＱ１０を含む経口用組成物及びその製造方法を提

供することを課題とする。また本発明は、還元型ＣｏＱ１０を含む組成物の変色を抑制する方法等を提供することを課題とする。

課題を解決するための手段

[0010] 本発明者らは、還元型ＣｏＱ１０にセサミン類を配合すると、還元型ＣｏＱ１０を含む組成物の経時的な変色を抑制できることを見出した。また、本発明者らは、テアニンも還元型ＣｏＱ１０を含む組成物の経時的な変色の抑制に有用であることを見出した。

[0011] すなわち、これに限定されるものではないが、本発明は以下の経口用組成物等を包含する。

〔１〕還元型コエンザイムＱ１０及び１種以上のセサミン類を含み、上記還元型コエンザイムＱ１０に対する上記セサミン類の配合重量比（セサミン類／還元型コエンザイムＱ１０）が、０．０１～１０である経口用組成物。

〔２〕さらにテアニンを含む上記〔１〕に記載の経口用組成物。

〔３〕上記還元型コエンザイムＱ１０（Ｘ）、上記セサミン類（Ｙ）及びテアニン（Ｚ）の配合重量比が、三相図において以下の座標で囲まれる範囲内である、上記〔１〕又は〔２〕に記載の経口用組成物。

（Ｘ，Ｙ，Ｚ）＝（２５，７５，０）、（２５，１，７４）、（９９，１，０）

〔４〕上記還元型コエンザイムＱ１０（Ｘ）、上記セサミン類（Ｙ）及びテアニン（Ｚ）の配合重量比が、三相図において以下の座標で囲まれる範囲内である、上記〔１〕～（３）のいずれかに記載の経口用組成物。

（Ｘ，Ｙ，Ｚ）＝（２５，７５，０）、（２５，１，７４）、（７５，１，２４）、（６７，３３，０）

〔５〕上記セサミン類が、セサミン及び／又はエピセサミンである上記〔１〕～〔４〕のいずれかに記載の経口用組成物。

〔６〕還元型コエンザイムＱ１０に対するセサミン類の配合重量比（セサミン類／還元型コエンザイムＱ１０）が０．０１～１０となるように、還元型コエンザイムＱ１０に１種以上のセサミン類を配合する、還元型コエンザイ

ムＱ１０を含む変色が抑制された経口用組成物の製造方法。

〔７〕さらにテアニンを配合する、上記〔６〕に記載の経口用組成物の製造方法。

〔８〕経口用組成物における上記還元型コエンザイムＱ１０（Ｘ）、上記セサミン類（Ｙ）及びテアニン（Ｚ）の配合重量比が、三相図において以下の座標で囲まれる範囲内となるように還元型コエンザイムＱ１０に１種以上のセサミン類、又は、１種以上のセサミン類及びテアニンを配合する、上記〔６〕又は〔７〕に記載の経口用組成物の製造方法。

（Ｘ，Ｙ，Ｚ）＝（２５，７５，０）、（２５，１，７４）、（９９，１，０）

〔９〕還元型コエンザイムＱ１０に１種以上のセサミン類を配合する、還元型コエンザイムＱ１０を含む組成物の変色抑制方法。

〔１０〕さらにテアニンを配合する上記〔９〕に記載の還元型コエンザイムＱ１０を含む組成物の変色抑制方法。

〔１１〕１種以上のセサミン類を有効成分として含む、還元型コエンザイムＱ１０を含む組成物の変色抑制剤。

〔１２〕さらに、テアニンを有効成分として含む、上記〔１１〕に記載の変色抑制剤。

〔１３〕還元型コエンザイムＱ１０を含む組成物の変色を抑制するための、１種以上のセサミン類の使用。

〔１４〕さらにテアニンを使用する、上記〔１３〕に記載の使用。

発明の効果

[0012] 本発明により、経時的に生じる変色が抑制され、かつ、安全性が高く、飲食品にも適用可能な、還元型ＣｏＱ１０を含む経口用組成物及びその製造方法等が提供される。本発明によれば、還元型ＣｏＱ１０を含む組成物の変色を抑制することができる。

図面の簡単な説明

[0013] [図1]図１は、還元型コエンザイムＱ１０（Ｘ）、セサミン類（Ｙ）及びテア

ニン（Ｚ）の合計配合量を１００重量％とした場合の、各成分の配合割合（重量％）を示す三相図である。

発明を実施するための形態

[0014] 本発明の経口用組成物は、還元型コエンザイムＱ１０（還元型ＣｏＱ１０）及び１種以上のセサミン類を含み、上記還元型コエンザイムＱ１０に対する上記セサミン類の配合重量比（セサミン類／還元型コエンザイムＱ１０）が、０．０１～１０である。

還元型ＣｏＱ１０は白色～淡黄色であるが、酸素や光により黄色～橙色に変色する。本発明は、還元型ＣｏＱ１０に１種以上のセサミン類を配合することにより、還元型ＣｏＱ１０を含む組成物の経時的な変色（色調の変化）を抑制するものである。

還元型コエンザイムＱ１０を含む組成物の変色は、組成物の経時的な色調の変化を、色差計を用いてΔＥ値（色差）を求めることによって確認することができる。例えば、組成物を一定期間保管し、色差計を用いて、保管前の組成物と保管後の組成物のΔＥ値（色差）を求めることによって変色を確認することができる。ΔＥ値が小さいほど、変色の程度が少なく、変色が抑制されたと判断される。ΔＥ値は、保管前の組成物と保管後の組成物のＬ値、ａ値及びｂ値を色差計で測定して、下記式によって求めることができる。

$$\Delta E = \{(\Delta L)^2 + (\Delta a)^2 + (\Delta b)^2\}^{1/2}$$

（ΔＬ＝保管前のＬ値－保管後のＬ値、Δａ＝保管前のａ値－保管後のａ値、Δｂ＝保管前のｂ値－保管後のｂ値）

後記の実施例に示されるように、還元型ＣｏＱ１０を含むサンプルは、経時的にΔＥ値（色差）が増加した。還元型ＣｏＱ１０にセサミン類を配合すると、経時的なΔＥ値の増加が抑制され、変色が抑制された。セサミン類は古くから飲食品として摂取されてきた安全性が高い物質である。

[0015] セサミン類とは、セサミン及びその類縁体を含む化合物の総称である。セサミンは、ゴマに含まれる主要なリグナン化合物の一種である。本発明に用いることができるセサミン類としては、セサミン、エピセサミン、セサミノー

ル、エピセサミン、エピセサミノール、セサモリン、２－（３，４－メチレンジオキシフェニル）－６－（３－メトキシ－４－ヒドロキシフェニル）－３，７－ジオキサビシクロ［３，３，０］オクタン、２，６－ビス－（３－メトキシ－４－ヒドロキシフェニル）－３，７－ジオキサビシクロ［３，３，０］オクタン、２－（３，４－メチレンジオキシフェニル）－６－（３－メトキシ－４－ヒドロキシフェノキシ）－３，７－ジオキサビシクロ［３，３，０］オクタン等が挙げられる。これらを単独で、又は、２種以上を組み合わせて使用することができる。本発明の効果をより充分に得る観点から、セサミン類として、セサミン及び／又はエピセサミンを用いることが好ましく、セサミン及びエピセサミンを用いることがより好ましい。セサミン及びエピセサミンを用いる場合、これらの比率は特に限定されないが、例えば、セサミン：エピセサミン（重量比）が１：０．５～１：１．５が好ましく、１：０．７～１：１．３がより好ましい。

[0016] 本発明で用いられるセサミン類は、その形態や製造方法等によって、何ら制限されるものではない。例えば、ごま油から公知の方法（例えば、ごま油に熱メタノールを加えて抽出し、メタノールを除去後、残渣にアセトンを加えて抽出する方法（特開平４－９３３１号公報に記載））によって抽出したもの（セサミン類高含有の抽出物又は精製物という）を用いることもできる。また、合成によりセサミン類を得ることもできる。その方法としては、例えば、セサミン、エピセサミンについては、Ｂｅｒｏｚａらの方法（Ｊ．Ａｍ．Ｃｈｅｍ．Ｓｏｃ．，７８，１２４２（１９５６））で合成することができる。

[0017] 本発明の経口用組成物においては、還元型ＣｏＱ１０に対するセサミン類の配合重量比（セサミン類／還元型ＣｏＱ１０）が、０．０１～１０である。還元型ＣｏＱ１０に対するセサミン類の配合重量比が上記範囲であると、還元型ＣｏＱ１０を含む組成物の変色を抑制することができる。組成物の変色抑制の観点から、還元型ＣｏＱ１０に対するセサミン類の配合重量比（セサミン類／還元型ＣｏＱ１０）は、０．０５以上が好ましく、０．１以上がよ

り好ましく、０．３以上がさらに好ましい。還元型ＣｏＱ１０に対するセサミン類の配合重量比（セサミン類／還元型ＣｏＱ１０）の上限は、経済性の観点等から、例えば、５以下が好ましく、３以下がより好ましい。一態様において、組成物の変色抑制等の観点から、還元型ＣｏＱ１０に対するセサミン類の配合重量比（セサミン類／還元型ＣｏＱ１０）は、例えば、０．０５～５が好ましく、０．１～３がより好ましく、０．３～３がさらに好ましい。また別の一態様において、還元型ＣｏＱ１０に対するセサミン類の配合重量比（セサミン類／還元型ＣｏＱ１０）は、０．０１～０．１であってよく、０．０１以上０．１未満であってよい。還元型ＣｏＱ１０に対するセサミン類の配合重量比（セサミン類／還元型ＣｏＱ１０）は、還元型ＣｏＱ１０の配合量（重量）に対する、セサミン類の配合量（重量）の比である。セサミン類の配合量は、セサミン類の総配合量である。つまりセサミン類の配合量は、セサミン類として２種以上の化合物を用いる場合は、それらの合計である。

[0018] 組成物の変色抑制の観点から、本発明の経口用組成物は、テアニンを含んでもいてもよい。テアニンはアミノ酸の一種であり、緑茶等に含まれていることが知られている。本発明で使用されるテアニンは、その由来及び製造方法等に何ら限定されない。本発明の一態様においては、１種以上のセサミン類及びテアニンを含むことにより、還元型ＣｏＱ１０を含む経口用組成物の変色をより抑制することが可能である。組成物の変色抑制の観点から、経口用組成物がテアニンを含む場合、還元型ＣｏＱ１０に対するテアニンの配合重量比（テアニン／還元型ＣｏＱ１０）は、０．２以上が好ましく、０．３以上がより好ましく、０．５以上がさらに好ましく、また、３．５以下が好ましく、３以下がより好ましい。組成物の変色抑制の観点から、還元型ＣｏＱ１０に対するテアニンの配合重量比（テアニン／還元型ＣｏＱ１０）は、例えば、０．２～３．５が好ましく、０．３～３がより好ましく、０．５～３がさらに好ましい。還元型ＣｏＱ１０に対するテアニンの配合重量比（テアニン／還元型ＣｏＱ１０）は、還元型ＣｏＱ１０の配合量（重量）に対する

、テアニンの配合量（重量）の比である。

テアニンは、自律神経を調節する作用も知られており、還元型ＣｏＱ１０及びセサミン類を含む経口用組成物に、更に有益な機能を付加することも期待される。

[0019] 経口用組成物が還元型ＣｏＱ１０、セサミン類及びテアニンを含む場合、組成物の変色抑制等の観点から、還元型ＣｏＱ１０に対するセサミン類及びテアニンの合計配合重量比（セサミン類及びテアニンの合計／還元型ＣｏＱ１０）は、例えば、０．３～１０が好ましく、０．４～５がより好ましく、０．５～５がさらに好ましい。一態様において、セサミン類に対するテアニンの配合重量比（テアニン／セサミン類）は、例えば、０．５～８０又は０．５～７５であってよい。

[0020] 一態様において、組成物の変色抑制の観点から、経口用組成物における還元型ＣｏＱ１０（Ｘ）、セサミン類（Ｙ）及びテアニン（Ｚ）の配合重量比は、三相図において以下の座標で囲まれる範囲内であることが好ましい。なお、以下の座標で囲まれる範囲内には、以下の座標及び座標を結ぶ線分上の座標が含まれる。他の座標で囲まれる範囲についても同様である。

（Ｘ，Ｙ，Ｚ）＝（２５，７５，０）、（２５，１，７４）、（９９，１，０）

本発明において、三相図は、還元型ＣｏＱ１０（Ｘ）、セサミン類（Ｙ）及びテアニン（Ｚ）の合計配合量（重量）を１００（１００重量％）とした場合の、各成分の配合重量比（配合割合（重量％））を示す三相図である。上述したようにセサミン類（Ｙ）の配合量は、セサミン類の総配合量である。セサミン類（Ｙ）の配合重量比は、セサミン類の総配合量から求められる。図１に、還元型ＣｏＱ１０（Ｘ）、セサミン類（Ｙ）及びテアニン（Ｚ）の合計配合量を１００（重量％）とした場合の、各成分の配合重量比（配合割合（重量％））を示す三相図を示す。図１中のＡ～Ｒの配合は、本発明の経口用組成物における各成分の配合の一例である。図１中のＡ～Ｒの座標（Ｘ，Ｙ，Ｚ）を以下に示す。

Ａ（２５，７５，０）、Ｂ（２５，５０，２５）、Ｃ（２５，２５，５０）、Ｄ（２５，１０，６５）、Ｅ（２５，２，７３）、Ｆ（２５，１，７４）、Ｇ（３２，３，６５）、Ｈ（４０，１０，５０）、Ｉ（４０，２，５８）、Ｊ（４０，１，５９）、Ｋ（５０，５０，０）、Ｌ（５０，２５，２５）、Ｍ（５０，１，４９）、Ｎ（６７，３３，０）、Ｏ（７５，２５，０）、Ｐ（７５，１，２４）、Ｑ（９１，９，０）、Ｒ（９９，１，０）

還元型ＣｏＱ１０及びセサミン類並びに任意で配合されるテアニンの配合重量比が、三相図において上記Ａ、Ｆ及びＱで囲まれる範囲内であると、上記のＡ～Ｑのいずれの座標で囲まれる範囲でも、還元型ＣｏＱ１０を含む組成物の変色抑制効果を得ることができる。還元型ＣｏＱ１０及びセサミン類、又は、還元型ＣｏＱ１０、セサミン類及びテアニンを上記範囲内の割合で配合した経口用組成物は、本発明の好ましい実施態様の一例である。組成物の変色抑制の観点から、上述したように経口用組成物はテアニンを含むことが好ましい。組成物がテアニンを含む場合は、三相図において、テアニン（Ｚ）の配合重量比が０（重量％）より多い。一態様においては、経口用組成物における還元型ＣｏＱ１０（Ｘ）、セサミン類（Ｙ）及びテアニン（Ｚ）の配合重量比が、三相図において上記Ａ、Ｆ及びＱで囲まれる範囲内であり、かつ、テアニン（Ｚ）の配合重量比が０（重量％）より多い範囲であることが好ましい。還元型ＣｏＱ１０、セサミン類及びテアニンは、高速液体クロマトグラフィー（ＨＰＬＣ）により公知の方法で定量することができる。

[0021] 組成物の変色抑制の観点から、還元型ＣｏＱ１０（Ｘ）、セサミン類（Ｙ）及びテアニン（Ｚ）の配合重量比は、三相図において以下の座標で囲まれる範囲内であることがより好ましい。

（Ｘ，Ｙ，Ｚ）＝（２５，７５，０）、（２５，１，７４）、（７５，１，２４）、（６７，３３，０）

上記の座標で囲まれる範囲は、図１に示す三相図において上記のＡ、Ｆ、Ｐ及びＮで囲まれる範囲である。還元型ＣｏＱ１０（Ｘ）、セサミン類（Ｙ）及びテアニン（Ｚ）の配合重量比は、三相図において以下の座標で囲まれる

範囲内であることがさらに好ましい。

（Ｘ，Ｙ，Ｚ）＝（２５，７５，０）、（２５，１，７４）、（７５，１，２４）、（５０，５０，０）

上記の座標で囲まれる範囲は、三相図において上記のＡ、Ｆ、Ｐ及びＫで囲まれる範囲である。好ましい態様においては、経口用組成物はテアニンを含む。一態様においては、還元型ＣｏＱ１０（Ｘ）、セサミン類（Ｙ）及びテアニン（Ｚ）の配合重量比は、三相図において上記のＡ、Ｆ、Ｐ及びＫで囲まれる範囲であり、かつ、テアニン（Ｚ）の配合重量比が０（重量％）より多い範囲であることが好ましい。

一態様において、還元型ＣｏＱ１０（Ｘ）、セサミン類（Ｙ）及びテアニン（Ｚ）の配合重量比は、三相図において以下の座標で囲まれるいずれかの範囲内であることが特に好ましい。

（Ｘ，Ｙ，Ｚ）＝（２５，５０，２５）、（２５，１，７４）、（５０，１，４９）、（５０，２５，２５）；

（Ｘ，Ｙ，Ｚ）＝（２５，５０，２５）、（２５，１，７４）、（４０，１，５９）、（５０，２５，２５）；

（Ｘ，Ｙ，Ｚ）＝（２５，５０，２５）、（２５，１，７４）、（４０，１，５９）、（４０，１０，５０）；

（Ｘ，Ｙ，Ｚ）＝（２５，５０，２５）、（２５，１，７４）、（４０，１，５９）；

（Ｘ，Ｙ，Ｚ）＝（２５，５０，２５）、（２５，１，７４）、（３２，３，６５）；又は、

（Ｘ，Ｙ，Ｚ）＝（２５，２５，５０）、（２５，１，７４）、（３２，３，６５）。

[0022] 一態様において、還元型ＣｏＱ１０（Ｘ）、セサミン類（Ｙ）及びテアニン（Ｚ）の配合重量比は、三相図において以下の座標で囲まれる範囲内であってよい。

（Ｘ，Ｙ，Ｚ）＝（２５，１，７４）、（９９，１，０）、（９１，９，０

）

上記の座標で囲まれる範囲は、三相図において上記のＦ、Ｒ及びＱで囲まれる範囲である。

還元型ＣｏＱ１０（Ｘ）、セサミン類（Ｙ）及びテアニン（Ｚ）の配合重量比は、三相図の上記Ｆ、Ｒ及びＱで囲まれる範囲において、（Ｘ，Ｙ，Ｚ）＝（９１，９，０）（Ｑ）を除く範囲内であってもよい。

[0023] 本発明においては、その効果を損なわない限り、還元型ＣｏＱ１０及びセサミン類、並びに、所望により配合されるテアニンの他に、任意の成分、添加剤を配合することができる。任意の成分及び添加剤としては、一般的に飲食品、経口用医薬、飼料等の経口用組成物に使用可能なものが使用できる。一例としては、ビタミンＥ、ビタミンＣ等のビタミン類、ミネラル類、栄養成分等の生理活性成分の他、製剤化において配合される賦形剤、結合剤、乳化剤、緊張化剤（等張化剤）、緩衝剤、溶解補助剤、防腐剤、安定化剤、抗酸化剤、着色剤、凝固剤、コーティング剤、香料等が挙げられる。これらは１種用いてもよく、２種以上を組み合わせて用いてもよい。上記以外にも、その用途に応じて、飲食品、経口用医薬、飼料等の経口用組成物に使用される素材等の成分を適宜配合することができる。

本発明の経口用組成物における、還元型ＣｏＱ１０の配合割合は特に限定されない。例えば、還元型ＣｏＱ１０及びセサミン類の合計が、経口用組成物中に、例えば１０～１００重量％となるように配合することができる。一態様においては、還元型ＣｏＱ１０、セサミン類及びテアニンの合計が、経口用組成物中に、例えば１０～１００重量％となるように配合することができる。

[0024] 経口用組成物は、飲食品、経口用医薬、飼料等であってよい。医薬は、ヒト用の医薬であってもよく、非ヒト動物用の医薬であってもよい。飲食品には、一般的な飲食品、健康食品、機能性表示食品、特定保健用食品、病者用食品、食品添加剤、これらの原料等が含まれる。経口用組成物の剤形又は形態も特に限定されず、粉末剤、顆粒剤、錠剤、カプセル剤（ソフトカプセル剤

、ハードカプセル剤を含む）、チュアブル剤等の固体状の剤；液剤、懸濁剤、乳剤等の液剤；ペースト剤等の半固体状の剤等の任意の形態とすることができる。本発明の経口用組成物を、カプセル剤の内部組成物として使用することもできる。

[0025] 還元型ＣｏＱ１０及びセサミン類は、脂溶性である。一態様において、本発明の還元型ＣｏＱ１０及び１種以上のセサミン類を含む経口用組成物は、効率よく還元型ＣｏＱ１０及びセサミン類を摂取できる観点から、油脂に溶解、乳化、分散して摂取することが好ましい。このような観点から、本発明の経口用組成物は、油脂を含むことも好ましい。使用できる油脂としては、セサミン類及び還元型ＣｏＱ１０を溶解できるものであれば、特に制限されない。例えば、常温で液状の油である、大豆油、菜種油、サフラワー油、オリーブ油、綿実油、トウモロコシ油、パーム油、米糠油、小麦胚芽油、ヒマワリ油、ベニバナ油、落花生油、鯨油、イワシ油、イカ油などの天然動植物油；中鎖長脂肪酸トリグリセリド、炭素数４～２２の脂肪酸のモノ、ジ又はトリグリセリド、これらの混合物等の油を例示できる。また、常温で半固体状又は固体状である、ラード、牛脂、水素添加魚油、マーガリン、ショートニング等と、上記の常温で液状の油とを混合したものを使用することもできる。

[0026] 一態様として、還元型ＣｏＱ１０及び１種以上のセサミン類を有効成分として含有する健康食品等の経口用組成物の場合、還元型ＣｏＱ１０及びセサミン類を上記油脂に溶解、乳化、分散させて、マイクロカプセル、ソフトカプセル又はハードカプセルに封入してカプセル化することもできる。このようにカプセル化すると、栄養補給、又は、補助的に栄養成分の補給を目的とした製剤とすることができ、効率よく還元型ＣｏＱ１０を摂取することができる。また、還元型ＣｏＱ１０は光劣化を起こし易いため、例えば、着色色素としてカラメル色素や二酸化チタンを混入させたカプセル材料を使用して作製したカプセルに、還元型ＣｏＱ１０を含む組成物を封入し、内部組成物が光に晒されないようにして、還元型ＣｏＱ１０を含む組成物の変色を防ぐこ

とも好ましい。

[0027] 本発明の経口用組成物の製造方法は特に限定されず、還元型コエンザイムＱ１０に対するセサミン類の配合重量比（セサミン類／還元型コエンザイムＱ１０）が０．０１～１０となるように、還元型ＣｏＱ１０にセサミン類を配合することにより製造することができる。

本発明は、還元型コエンザイムＱ１０に対するセサミン類の配合重量比（セサミン類／還元型コエンザイムＱ１０）が０．０１～１０となるように、還元型ＣｏＱ１０に１種以上のセサミン類を配合する、経口用組成物の製造方法も包含する。本発明の製造方法によれば、還元型ＣｏＱ１０を含む変色が抑制された経口用組成物を製造することができる。セサミン類及びその好ましい態様は、上記と同じである。本発明においては、さらにテアニンを配合することが好ましい。還元型コエンザイムＱ１０に１種以上のセサミン類及びテアニンを配合すると、得られる組成物の変色をより抑制することができる。

[0028] 経口用組成物における還元型ＣｏＱ１０及びセサミン類、並びに、所望により配合されるテアニンの配合重量比の好ましい範囲は、上述した経口用組成物の場合と同じである。

本発明の製造方法においては、還元型ＣｏＱ１０に対する上記セサミン類の配合重量比（セサミン類／還元型ＣｏＱ１０）が、上述した範囲となるように、これらを配合することが好ましい。具体的には、一態様において、例えば、還元型ＣｏＱ１０に対するセサミン類の配合重量比（セサミン類／還元型ＣｏＱ１０）が、好ましくは０．０５～５、より好ましくは０．１～３、さらに好ましくは０．３～３となるように、これらの成分を配合することが好ましい。また別の一態様においては、還元型ＣｏＱ１０に対するセサミン類の配合重量比（セサミン類／還元型ＣｏＱ１０）が、０．０１～０．１又は０．０１以上０．１未満となるようにこれらの成分を配合してもよい。一態様において、テアニンを配合する場合は、還元型ＣｏＱ１０に対するテアニンの配合重量比（テアニン／還元型ＣｏＱ１０）が、好ましくは０．２～

３．５、より好ましくは０．３～３、さらに好ましくは０．５～３となるように、テアニンを配合することが好ましい。

[0029] また、例えば、得られる組成物の変色抑制の観点から、経口用組成物における還元型ＣｏＱ１０（Ｘ）、セサミン類（Ｙ）及びテアニン（Ｚ）の配合重量比が、三相図において以下の座標で囲まれる範囲内となるように還元型ＣｏＱ１０に１種以上のセサミン類、又は、１種以上のセサミン類及びテアニンを配合することが好ましい。より好ましくは、１種以上のセサミン類及びテアニンを配合する。

（Ｘ，Ｙ，Ｚ）＝（２５，７５，０）、（２５，１，７４）、（９９，１，０）

得られる組成物の変色抑制の観点から、還元型ＣｏＱ１０及びセサミン類並びに任意で配合されるテアニンの好ましい配合重量比も、上記経口用組成物と同じである。還元型ＣｏＱ１０（Ｘ）、セサミン類（Ｙ）及びテアニン（Ｚ）の好ましい配合重量比は、三相図において以下の座標で囲まれる範囲内であることが好ましく、以下の座標に囲まれる範囲内であり、かつテアニンの配合重量比が０（重量％）より多くなるように、還元型ＣｏＱ１０に１種以上のセサミン類及びテアニンを配合することがより好ましい。

（Ｘ，Ｙ，Ｚ）＝（２５，７５，０）、（２５，１，７４）、（７５，１，２４）、（６７，３３，０）

また、一態様において、還元型ＣｏＱ１０（Ｘ）、セサミン類（Ｙ）及びテアニン（Ｚ）の配合重量比は、三相図において（Ｘ，Ｙ，Ｚ）＝（２５，１，７４）、（９９，１，０）、（９１，９，０）の座標で囲まれる範囲内であってよく、この範囲において、（９９，１，０）を除く範囲内であってもよい。

経口用組成物に上述した任意の成分、添加剤を配合する場合、各成分を配合する順番等は特に限定されない。

[0030] 本発明は、還元型ＣｏＱ１０に１種以上のセサミン類を配合する、還元型ＣｏＱ１０を含む組成物の変色抑制方法も包含する。還元型コエンザイムＱ１

０を含む組成物に１種以上のセサミン類を配合すると、該組成物の変色を抑制することができる。

セサミン類及びその好ましい態様は、上記と同じである。本発明の変色抑制方法においては、セサミン類に加えてテアニンを配合することが好ましい。

還元型コエンザイムＱ１０を含む組成物に１種以上のセサミン類及びテアニンを配合すると、該組成物の変色をより抑制することができる。還元型ＣｏＱ１０に対するセサミン類及びテアニンの配合重量比並びにその好ましい範囲等は、上述した経口用組成物の場合と同じである。好ましい態様においては、還元型ＣｏＱ１０を含む組成物において、還元型ＣｏＱ１０及びセサミン類の配合重量比が上述した範囲となるように、還元型ＣｏＱ１０に１種以上のセサミン類を配合する。より好ましい態様においては、還元型ＣｏＱ１０を含む組成物において、還元型ＣｏＱ１０、セサミン類及びテアニンの配合重量比が上述した範囲となるように、還元型ＣｏＱ１０に１種以上のセサミン類、又は、１種以上のセサミン類及びテアニン（好ましくは１種以上のセサミン類及びテアニン）を配合する。

本発明によれば、還元型ＣｏＱ１０を含む組成物において、経時的に生じる変色を抑制することができる。還元型ＣｏＱ１０を含む組成物は、好ましくは経口用組成物である。本発明の変色抑制方法は、還元型ＣｏＱ１０を含む経口用組成物の変色抑制のために好適に使用される。

還元型ＣｏＱ１０を含む組成物は、上述した経口用組成物に配合可能な任意の成分、添加剤等を含んでもよい。

[0031] 本発明は、１種以上のセサミン類を有効成分として含む、還元型コエンザイムＱ１０を含む組成物の変色抑制剤も包含する。本発明は、還元型コエンザイムＱ１０を含む組成物の変色を抑制するための、１種以上のセサミン類の使用も包含する。上記変色抑制剤は、さらにテアニンを有効成分として含むことが好ましい。上記使用においては、さらにテアニンを使用することが好ましい。

還元型ＣｏＱ１０を含む組成物は、好ましくは経口用組成物である。セサミ

ン類及びその好ましい態様は、上記と同じである。本発明の変色抑制剤及び使用において、還元型ＣｏＱ１０に対するセサミン類の配合重量比（セサミン類／還元型ＣｏＱ１０）、還元型ＣｏＱ１０（Ｘ）、セサミン類（Ｙ）及びテアニン（Ｚ）の配合重量比及びこれらの好ましい範囲等は、上述した経口用組成物の場合と同じである。好ましい態様においては、還元型ＣｏＱ１０を含む組成物において、還元型ＣｏＱ１０及びセサミン類の配合重量比が上述した範囲となるように、還元型ＣｏＱ１０に１種以上のセサミン類を配合する。より好ましい態様においては、還元型ＣｏＱ１０を含む組成物において、還元型ＣｏＱ１０、セサミン類及びテアニンの配合重量比が上述した範囲となるように、還元型ＣｏＱ１０に１種以上のセサミン類、又は、１種以上のセサミン類及びテアニン（好ましくは１種以上のセサミン類及びテアニン）を配合する。変色抑制剤は、還元型コエンザイムＱ１０に配合して使用することができ、還元型コエンザイムＱ１０、セサミン類及びテアニンの配合重量比が上記の範囲となるように使用することが好ましい。

実施例

[0032] 以下、本発明を実施例によりさらに詳しく説明するが、これにより本発明の範囲を限定するものではない。

[0033] 実施例では、以下の還元型ＣｏＱ１０、セサミン類、テアニン及びデキストリンを使用した。

還元型ＣｏＱ１０：株式会社カネカ製、商品名カネカＱＨ

セサミン類：竹本油脂株式会社製、セサミン：エピセサミン（重量比）＝４７：５３の混合物

テアニン：太陽化学株式会社製、商品名サンテアニン

デキストリン：松谷化学工業株式会社製、商品名パインデックス＃１００

[0034] 実施例中、色差は以下の方法で測定した。

＜色差測定方法＞

色差計（製品名Ｓｐｅｃｔｒｏｐｈｏｔｏｍｅｔｅｒ　ＳＥ７７００、日本電色工業株式会社製）を用いて、サンプルのＬ値、ａ値及びｂ値を測定した

。

・特に断らない場合、１水準につき、ｎ数は３とした。３サンプルの平均値を各水準のＬ値、ａ値及びｂ値とした。

・１サンプルにつき、測定は５回行い、その平均値を結果として出力した。その際、測定ごとにサンプルを攪拌し、サンプル全体が測定できるようにした。

・測定には、シャーレからサンプル約１ｇを計量し、使用した。その際、シャーレ内のサンプルを混合し、均一化した後に取り出した。

[0035] ＜ΔＥ値（色差）＞

ΔＥ値は、下記式により求められる。

$\Delta E = \{(\Delta L)^2 + (\Delta a)^2 + (\Delta b)^2\}^{1/2}$

所定時間保管後の各水準について、ΔＥ値は、各水準の０ｔｉｍｅ値（保管０時間の値）を元に算出した。所定時間保管後のコントロールについても、コントロールの０ｔｉｍｅ値（保管０時間の値）を元にΔＥ値を算出した。例えば、水準Ａを１週間保管したサンプル（水準Ａの１ｗｅｅｋ）の場合、ΔＥ値は以下のように算出した。

ΔＥ＝｛（水準Ａの０ｔｉｍｅのＬ値－水準Ａの１ｗｅｅｋのＬ値）^{2}＋（水準Ａの０ｔｉｍｅのａ値－水準Ａの１ｗｅｅｋのａ値）^{2}＋（水準Ａの０ｔｉｍｅのｂ値－水準Ａの１ｗｅｅｋのｂ値）^{2}｝$^{1/2}$

ΔＥ値が小さいほど、変色（色調の変化）が抑制されたことを意味する。

[0036] ＜コントロールに対する変化率＞

所定時間保管後のコントロール及びサンプルについて、該コントロールのΔＥ値を１００％とした場合の、サンプルのΔＥ値の割合を、コントロールに対する変化率（％）とした。

例えば、水準Ａを１週間保管したサンプル（水準Ａの１ｗｅｅｋ）場合、コントロールに対する変化率は、以下のように算出した。

コントロールに対する変化率（％）＝（水準Ａの１ｗｅｅｋのΔＥ値／コントロールの１ｗｅｅｋのΔＥ値）×１００

コントロールに対する変化率が小さいほど、変色が抑制されたことを意味する。

[0037] ＜参考例１＞

還元型ＣｏＱ１０、セサミン類、テアニン又はデキストリンを、それぞれシャーレに約２ｇずつ入れ（ｎ＝１）、温度４０℃、湿度７５％ＲＨ（加速条件）にて静置した。保管開始時（保管０時間）及び保管７日（１６８時間）後のＬ値、ａ値及びｂ値を測定し、ΔＥ値を求めた。また、各サンプルについて、保管開始から７日後の外観の変化を目視で観察した。

結果を表１に示す。セサミン類、テアニン及びデキストリン（水準Ｓ－２～Ｓ－４）では、保管によるΔＥ値の変化はほとんどなかった。還元型ＣｏＱ１０（水準Ｓ－１）は、経時的にΔＥ値が増加した。目視により外観を観察したところ、保管開始時は、全ての水準が白色であった。水準Ｓ－１は、経時的に黄色が濃くなり、７日後には橙色となった。テアニン、セサミン類及びデキストリンは、７日後にも目視では白色～淡黄色であった。よって、テアニン、セサミン類及びデキストリンは、保管による色調の変化がほとんどないことが確認された。

[0038] [表1]

水準		S-1	S-2	S-3	S-4
化合物		還元型CoQ10	セサミン類	テアニン	デキストリン
ΔE	保管0時間	0.0	0.0	0.0	0.0
	7日後	66.4	0.9	0.1	0.6

[0039] ＜実施例１＞

計量した原料を袋に入れて混合し、表２に示す３水準の組成物を調製した。各組成物をそれぞれシャーレに約２ｇずつ入れ、温度約２０℃、湿度約５０％ＲＨに静置して保管した。調製直後（保管開始時：保管０時間）、並びに、保管８時間後、１日（２４時間）後、４日（９６時間）後及び７日（１６８時間）後のサンプルのＬ値、ａ値及びｂ値を測定し、ΔＥ値を求めた。

表３に、各水準のΔＥ値の経時変化を示した。また、保管７日後の水準１－

１（コントロール）のΔＥの値を１００％とした場合の、保管７日後の水準１－２～１－３のΔＥ値の割合（％）を、コントロールに対する変化率として求めた。この変化率を表３に示す。

[0040] [表2]

		水準1-1	水準1-2	水準1-3
配合（g）	還元型CoQ10	10	10	10
	セサミン類	0	10	10
	テアニン	0	0	10
	デキストリン	20	10	0
	合計	30	30	30

[0041] [表3]

		水準1-1	水準1-2	水準1-3
ΔE	調製直後	0.0	0.0	0.0
	8時間後	1.6	1.1	1.1
	1日後	4.4	3.5	2.5
	4日後	21.9	18.1	11.3
	7日後	37.3	31.1	23.2
変化率（%）		100.0	83.4	62.2

[0042] 還元型ＣｏＱ１０を含む水準１－１～１－３の組成物は、経時的にΔＥ値が増加したが、セサミン類、又は、セサミン類及びテアニンを配合すると、ΔＥ値の増加が抑制された。つまり、還元型ＣｏＱ１０にセサミン類、又は、セサミン類及びテアニンを配合すると、変色（色調の変化）を抑制できた。シャーレで保管７日後では、ΔＥ値を比較すると還元型ＣｏＱ１０にデキストリンのみを添加した水準１－１に比べて、還元型ＣｏＱ１０にセサミン類を配合した水準１－２ではΔＥ値で約６ポイント、還元型ＣｏＱ１０にセサミン類及びテアニンを配合した水準１－３ではΔＥ値で約１４ポイント低かった。

[0043] ＜実施例２＞

実施例１と同条件の実験において、還元型ＣｏＱ１０とセサミンの配合割合を表４に示すように変えてシャーレに入れ、調製直後（保管０時間）及び保管７日（１６８時間）後のサンプルのＬ値、ａ値及びｂ値を測定し、ΔＥ値を求めた。保管７日後のΔＥ値を表４に示す。また、保管７日後のΔＥ値に

ついて、水準２－１（コントロール）のΔＥ値に対する水準２－２～２－４のΔＥ値の割合（％）を、コントロールに対する変化率として求めた。この変化率（％）も表４に示す。水準２－２～２－４では、組成物の色調変化が抑制された。還元型ＣｏＱ１０に対するセサミン類の配合重量比（セサミン類／還元型ＣｏＱ１０）は、水準２－２では０．０１、水準２－３では０．１、水準２－４では０．５である。例えば水準２－４は、図１に示す三相図では、Ｎ（６７，３３，０）で示す組成に相当する。

[0044] [表4]

		水準2-1	水準2-2	水準2-3	水準2-4
配合（g）	還元型CoQ10	10.0	10.0	10.0	10.0
	セサミン類	0.0	0.1	1.0	5.0
	デキストリン	10.0	9.9	9.0	5.0
	合計	20.0	20.0	20.0	20.0
評価結果	ΔE(7日後)	39.1	38.0	37.3	34.6
	変化率(%)	100.0	97.2	95.4	88.5

[0045] ＜実施例３＞

計量した原料を袋に入れて混合し、各水準の組成物を調製した。各水準の組成物の配合（重量％）を表５に示す。シャーレに各組成物を約２ｇずつ入れ、実施例１と同条件で静置して保管した。調製直後（保管０時間）、保管１週間（７日）後、２週間（１４日）後及び４週間（２８日）後のサンプルのＬ値、ａ値及びｂ値を測定し、ΔＥ値を求めた。表５に示す評価１～５では、同じ評価系では、同じコントロールを基準としてΔＥ値を求めた。図１の三相図中に、表５に示す水準Ａ～Ｍ及びＯ～Ｐを示した。

[0046]

[表5]

評価No.	水準	配合(重量%)				
		還元型CoQ10(X)	セサミン類(Y)	テアニン(Z)	デキストリン	合計
1	コントロール1	25	0	0	75	100
	A	25	75	0	0	100
	B	25	50	25	0	100
	C	25	25	50	0	100
	D	25	10	65	0	100
	E	25	2	73	0	100
	F	25	1	74	0	100
2	コントロール2	32	0	0	68	100
	G	32	3	65	0	100
3	コントロール3	40	0	0	60	100
	H	40	10	50	0	100
	I	40	2	58	0	100
	J	40	1	59	0	100
4	コントロール4	50	0	0	50	100
	K	50	50	0	0	100
	L	50	25	25	0	100
	M	50	1	49	0	100
5	コントロール5	75	0	0	25	100
	O	75	25	0	0	100
	P	75	1	24	0	100

[0047] 各サンプルのΔＥ値の経時変化を表６に示す。また、２週間後の各水準のΔＥ値について、コントロールのΔＥ値を１００％とした場合の、各水準のΔＥ値の割合を、コントロールに対する変化率として求めた。この変化率も表６に示した。コントロールに対し、水準Ａ～Ｍ及びＯ～Ｐでは、色調変化が抑制された。

[0048]

[表6]

評価No.	水準	ΔE				2週間後の変化率(%)
		調製直後	1週間後	2週間後	4週間後	
1	コントロール1	0.0	31.4	47.1	50.9	100.0
	A	0.0	27.7	37.0	37.7	78.6
	B	0.0	22.0	31.4	34.0	66.7
	C	0.0	17.5	27.7	33.6	58.8
	D	0.0	21.2	29.0	39.9	61.6
	E	0.0	17.0	28.4	37.1	60.3
	F	0.0	16.7	26.6	29.0	56.5
2	コントロール2	0.0	37.1	53.2	55.5	100.0
	G	0.0	18.6	31.6	40.5	59.4
3	コントロール3	0.0	35.4	53.6	58.5	100.0
	H	0.0	25.2	38.5	48.9	71.8
	I	0.0	25.6	42.2	46.2	78.7
	J	0.0	24.6	39.2	48.6	73.1
4	コントロール4	0.0	37.6	60.0	65.2	100.0
	K	0.0	36.0	50.9	53.4	84.8
	L	0.0	28.8	44.7	53.5	74.5
	M	0.0	27.3	46.0	51.1	76.7
5	コントロール5	0.0	39.8	63.1	69.9	100.0
	O	0.0	39.0	58.0	64.2	91.9
	P	0.0	35.9	56.6	65.5	89.7

産業上の利用可能性

[0049] 本発明は、飲食品、医薬品等の分野において有用である。

請求の範囲

[請求項1] 還元型コエンザイムＱ１０及び１種以上のセサミン類を含み、前記還元型コエンザイムＱ１０に対する前記セサミン類の配合重量比（セサミン類／還元型コエンザイムＱ１０）が、０．０１～１０である経口用組成物。

[請求項2] さらにテアニンを含む請求項１に記載の経口用組成物。

[請求項3] 前記還元型コエンザイムＱ１０（Ｘ）、前記セサミン類（Ｙ）及びテアニン（Ｚ）の配合重量比が、三相図において以下の座標で囲まれる範囲内である、請求項１又は２に記載の経口用組成物。

（Ｘ，Ｙ，Ｚ）＝（２５，７５，０）、（２５，１，７４）、（９９，１，０）

[請求項4] 前記還元型コエンザイムＱ１０（Ｘ）、前記セサミン類（Ｙ）及びテアニン（Ｚ）の配合重量比が、三相図において以下の座標で囲まれる範囲内である、請求項１～３のいずれか一項に記載の経口用組成物。

（Ｘ，Ｙ，Ｚ）＝（２５，７５，０）、（２５，１，７４）、（７５，１，２４）、（６７，３３，０）

[請求項5] 前記セサミン類が、セサミン及び／又はエピセサミンである請求項１～４のいずれか一項に記載の経口用組成物。

[請求項6] 還元型コエンザイムＱ１０に対するセサミン類の配合重量比（セサミン類／還元型コエンザイムＱ１０）が０．０１～１０となるように、還元型コエンザイムＱ１０に１種以上のセサミン類を配合する、還元型コエンザイムＱ１０を含む変色が抑制された経口用組成物の製造方法。

[請求項7] さらにテアニンを配合する、請求項６に記載の経口用組成物の製造方法。

[請求項8] 経口用組成物における前記還元型コエンザイムＱ１０（Ｘ）、前記セサミン類（Ｙ）及びテアニン（Ｚ）の配合重量比が、三相図において以下の座標で囲まれる範囲内となるように還元型コエンザイムＱ１０

に１種以上のセサミン類、又は、１種以上のセサミン類及びテアニンを配合する、請求項６又は７に記載の経口用組成物の製造方法。

（Ｘ，Ｙ，Ｚ）＝（２５，７５，０）、（２５，１，７４）、（９９，１，０）

[請求項9] 還元型コエンザイムＱ１０に１種以上のセサミン類を配合する、還元型コエンザイムＱ１０を含む組成物の変色抑制方法。

[請求項10] さらにテアニンを配合する請求項９に記載の還元型コエンザイムＱ１０を含む組成物の変色抑制方法。

[請求項11] １種以上のセサミン類を有効成分として含む、還元型コエンザイムＱ１０を含む組成物の変色抑制剤。

[請求項12] さらに、テアニンを有効成分として含む、請求項１１に記載の変色抑制剤。

[請求項13] 還元型コエンザイムＱ１０を含む組成物の変色を抑制するための、１種以上のセサミン類の使用。

[請求項14] さらにテアニンを使用する、請求項１３に記載の使用。