

明 細 書

発明の名称： 青海苔香を有する固形組成物

技術分野

[0001] 本発明は固形組成物に関し、より具体的には、青海苔香をもたらす固形組成物に関する。

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。水や湯を利用して飲用する粉末状の茶としては、大きく分けて二種類の形態があり、一つは茶葉の抽出液を乾燥して得られるインスタント茶であり、もう一つは茶葉をそのまま粉碎して得られる粉末茶である。

[0003] インスタント茶としては、これまでに茶の風味改善を図った技術が開示されており、例えば、茶葉抽出液の製造において同一の茶葉原料から複数回にわたって抽出操作を行って得られたインスタント茶（特許文献1）や、エタノールと水とを特定割合で含む混合溶液を用いて緑茶抽出物を精製することによってカフェイン量を低減させたインスタント茶（特許文献2）等が開示されている。また、時間経過に伴う風味劣化の抑制を目的として、グルコースやマルトース等の単糖類又は二糖類を利用したインスタント茶（特許文献3）も開示されている。粉末茶に関しては、水に対する分散性や溶解性の向上を目的として、例えば、茶葉の粉碎物を植物抽出液に分散させてから当該分散液を噴霧乾燥して得られる粉末茶（特許文献4）や、水溶液中で粉碎及び微粒化して得られる粉碎茶葉を主体とした粉末茶（特許文献5）等が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開2013-226111号公報

特許文献2：特開2009-72188号公報

特許文献3：特開2013-153739号公報

特許文献4：特開2010-233559号公報

特許文献5：特開2007-289115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香気として、青海苔香と呼ばれるものがある。これまで様々な種類の茶固形組成物が開発及び販売されているが、青海苔香に特化した優れた香気をもたらす茶固形組成物は知られていない。そこで、本発明は、水などの媒体に添加したときに、青海苔香をもたらし、且つその香りが持続して感じられる固形組成物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0.003～3である、固形組成物。

(2) 粉末組成物である、(1)に記載の組成物。

(3) 2種類以上のデキストリンを含有する、(1)または(2)に記載の組成物。

(4) 直鎖状デキストリン及び環状デキストリンを含有する、(3)に記載の組成物。

(5) 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、ヘキサナ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)～(4)のいずれかに記載の組成物。

(6) 茶葉抽出物を含有する、(1)～(5)のいずれかに記載の組成物。

(7) 茶葉抽出物が、煎茶の茶葉抽出物である、(1)～(6)のいずれかに記載の組成物。

(8) (1)～(7)のいずれかに記載の組成物を含有する、飲食品。

(9) 飲料である、(8)に記載の飲食品。

(10) 茶飲料である、(9)に記載の飲食品。

発明の効果

[0008] 本発明によれば、水などの媒体に添加したときに、青海苔香をもたらし、且つその香りが持続して感じられる固形組成物を提供することができる。本発明の固形組成物は、水又は湯を用いて茶飲料とすることができ、茶飲料の飲用時に高級茶らしい青海苔香をもたらすことができる。本発明の固形組成物は、茶飲料に対して非常に軽量であることから、輸送時の利便性に極めて優れている。

[0009] また、本発明の固形組成物は、食品の原料としても利用することができる。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。本発明の固形組成物を利用して、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、チョコレート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] 本発明の固形組成物について、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/重量(w/w)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0.003〜3である、固形組成物である。かかる構成を採用することにより、固形組成物から青海苔香が呈され、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、及び磯のような匂いが混じりあった香りを意味する。

[0012] (茶葉抽出物)

本発明の固形組成物は、茶葉抽出物を含有することができる。ここで、本明細書において「茶葉抽出物」とは、茶葉より抽出された成分を意味する。本発明において、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。本発明で使用される茶葉は、加工方法により、不発酵茶、半発酵茶、発酵茶に分類することができる。不発酵茶としては、例えば、荒茶、煎茶、玉露、かぶせ茶、碾茶、番茶、ほうじ茶、釜入り茶、茎茶、棒茶、芽茶等の緑茶が挙げられる。半発酵茶としては、例えば、鉄観音、色種、黄金桂、武夷岩茶等の烏龍茶が挙げられる。発酵茶としては、例えば、ダージリン、アッサム、スリランカ等の紅茶が挙げられる。本発明において茶葉は、1種のみを単独で使用してもよいし、複数種類の茶葉をブレンドして使用してもよい。また、茶葉としては、芳香成分が抽出可能な部位であれば特に制限されず、葉、茎など適宜使用することができ、その形態も大葉、粉状など制限されない。本発明では、特に限定されないが、好ましくは緑茶の茶葉抽出物が用いられ、より好ましくは煎茶の茶葉抽出物が用いられる。

[0013] 本発明の固形組成物における茶葉抽出物の含有量は、特に限定されないが、例えば30〜90重量%、好ましくは35〜80重量%、より好ましくは40〜70重量%である。茶葉抽出物の含有量が前記範囲内であることによって、茶葉由来の香味を十分に感じることができる。

[0014] (ジメチルスルフィド及び β -イオノン)

本発明の固形組成物は、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] 本発明の固形組成物において、 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（ β -イオノン含有量／ジメチルスルフィド含有量）は0.003～3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] 本発明の固形組成物における 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0.005以上、0.01以上、0.015以上、0.02以上、0.025以上、0.03以上、0.035以上、0.04以上、0.045以上、又は0.050以上である。また、本発明の固形組成物における 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2.5以下、2.0以下、1.5以下、1.0以下、0.8以下、0.6以下、0.5以下、0.45以下、又は0.4以下である。典型的には、本発明の固形組成物における 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0.005～2、より好ましくは0.015～1、さらに好ましくは0.02～0.5である。

[0017] 本発明の固形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0.001 ppm以上であり、好ましくは0.002 ppm以上、0.005 ppm以上、0.01 ppm以上、0.012 ppm以上、0.015 ppm以上、又は0.02 ppm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。固形組成物におけるジメチルスルフィドの含有量の上限値は、特に制限されない。当該含有量は、例えば20,000 ppm以下であり、好ましくは10,000 ppm以下、5,000 ppm以下、1,000 ppm以下、500 ppm以下、200 ppm以下、又は150 ppm以下である。本発明の固形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、0.001 ppm~10000 ppm、好ましくは0.005 ppm~500 ppm、より好ましくは0.012 ppm~200 ppm、さらに好ましくは0.02 ppm~150 ppmである。

[0018] また、本発明の固形組成物における β -イオノンの含有量は、特に限定されないが、例えば0.001 ppm以上であり、好ましくは0.002 ppm以上、0.003 ppm以上、0.004 ppm以上、0.005 ppm以上、又は0.006 ppm以上である。 β -イオ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、本発明の固形組成物は、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。固形組成物における β -イオノンの含有量の上限値は、特に制限されない。当該含有量は、例えば10000 ppm以下であり、好ましくは5000 ppm以下、1000 ppm以下、500 ppm以下、200 ppm以下、又は100 ppm以下である。本発明の固形組成物における β -イオノンの含有量は、典型的には、0.001 ppm~10000 ppm、好ましくは0.002 ppm~500 ppm、より好ましくは0.005 ppm~200 ppm、さらに好ましくは0.006 ppm~100 ppmである。

[0019] 本発明において、固形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、本発明の固形組成物を水に溶解した溶解液を調製して、当該溶解液を用いて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℃

オーブン温度：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。溶解液中の芳香成分の含有量を測定した後で、水に溶解した固形組成物の量から逆算して固形組成物中の芳香成分の含有量を求めることができる。

[0020] （デキストリン）

本発明の固形組成物は、デキストリンを含有することができる。デキストリンは、デンプン又はグリコーゲンの加水分解により得られる炭水化物の総称である。本発明においてデキストリンは、固形組成物を形成するための賦形剤として使用することができる。本発明の固形組成物に使用されるデキストリンの種類は、特に限定されないが、1種類以上、2種類以上、3種類以上、又は4種類以上とすることができ、好ましくは2種類以上、より好ましくは3種類以上である。

[0021] 本発明の固形組成物におけるデキストリンの含有量は、特に限定されないが、デキストリンの合計含有量として、例えば10～70重量%、好ましく

は20～65重量%、より好ましくは30～60重量%である。本発明においてデキストリンは、市販の製造品を使用することができる。固形組成物におけるデキストリンの含有量は、当業者に公知の方法を用いて糖分析を行うことにより測定することができる。

[0022] 本発明において使用されるデキストリンとしては、特に制限されないが、直鎖状デキストリン、環状デキストリン、及びらせん状デキストリンなどが挙げられる。ここで、本明細書において「直鎖状デキストリン」とは、グルコースが直鎖状に、又は分岐鎖を有しながら鎖状に結合し、環構造及びらせん構造を形成していないデキストリンを意味する。また、本明細書において「環状デキストリン」とは、グルコースが結合して環構造を形成し、らせん構造を形成していないデキストリンを意味する。また、本明細書において「らせん状デキストリン」とは、グルコースが結合してらせん構造を形成しているデキストリンを意味する。本発明の固形組成物は、好ましくは直鎖状デキストリン及び環状デキストリンを含有する。

[0023] 鎖状デキストリンとしては、特に限定されないが、例えばDE (dextrose equivalent) 1～25の直鎖状デキストリンや、重量平均分子量500～160,000の直鎖状デキストリンなどを用いることができる。また、本発明では、直鎖状デキストリンは1種のみならず2種以上を組み合わせで使用することもできる。本発明において好ましい態様は、2種類の直鎖状デキストリンの使用である。直鎖状デキストリンを2種類使用する場合は、例えば、DE 2～5の直鎖状デキストリンとDE 16～20の直鎖状デキストリンとの組み合わせ、又は、重量平均分子量90,000～140,000の直鎖状デキストリンと重量平均分子量600～1,200の直鎖状デキストリンとの組み合わせを利用することができる。

[0024] 直鎖状デキストリンを用いる場合、本発明の固形組成物における直鎖状デキストリンの含有量は、例えば0～65重量%、好ましくは10～60重量%、より好ましくは15～55重量%である。2種類の直鎖状デキストリンとしてDE 2～5の直鎖状デキストリンとDE 16～20の直鎖状デキスト

リンとを用いる場合、本発明の固形組成物におけるDE 2～5の直鎖状デキストリンの含有量は、例えば0～60重量%、好ましくは5～50重量%、より好ましくは10～45重量%であり、DE 16～20の直鎖状デキストリンの含有量は、例えば0～60重量%、好ましくは5～50重量%、より好ましくは10～45重量%である。また、DE 2～5の直鎖状デキストリンとDE 16～20の直鎖状デキストリンとの含有比（重量比）は、例えば4：0.5～0.5：5、好ましくは3：1～1：5、より好ましくは2：1～1：4である。

[0025] また、2種類の直鎖状デキストリンとして重量平均分子量90,000～140,000の直鎖状デキストリンと重量平均分子量600～1,200の直鎖状デキストリンとを用いる場合、本発明の固形組成物における重量平均分子量90,000～140,000の直鎖状デキストリンの含有量は、例えば0～65重量%、好ましくは10～60重量%、より好ましくは15～55重量%であり、重量平均分子量600～1,200の直鎖状デキストリンの含有量は、例えば5～60重量%、好ましくは5～50重量%、より好ましくは10～45重量%である。また、重量平均分子量90,000～140,000の直鎖状デキストリンと重量平均分子量600～1,200の直鎖状デキストリンとの含有比（重量比）は、例えば5：1～1：3、好ましくは3：1～1：2、より好ましくは2：1～1：1である。

[0026] 環状デキストリンとしては、例えばシクロデキストリンを使用することができる。本発明では、 α -シクロデキストリン、 β -シクロデキストリン、及び γ -シクロデキストリンのいずれも使用可能であるが、好ましくは α -シクロデキストリンが用いられる。本発明において用いられる環状デキストリンの重量平均分子量は、特に限定されないが、例えば700～1,300、好ましくは800～1,200、より好ましくは900～1,100である。環状デキストリンを用いる場合、本発明の固形組成物における環状デキストリンの含有量は、例えば0.5～15重量%、好ましくは1～12重量%、より好ましくは3～10重量%である。

[0027] 直鎖状デキストリンと環状デキストリンとが用いられる場合、直鎖状デキストリンと環状デキストリンとの含有比（重量比）は、例えば20：1～2：1、好ましくは15：1～3：1、より好ましくは12：1～5：1である。

[0028] 本発明の固形組成物は、らせん状デキストリンを含有してもよい。本発明において用いられるらせん状デキストリンのDEは、特に限定されないが、例えば7未満、好ましくは6未満、より好ましくは5未満である。らせん状デキストリンとしては、例えばクラスターデキストリン（江崎グリコ）を使用することができる。らせん状デキストリンを用いる場合、本発明の固形組成物におけるらせん状デキストリンの含有量は、例えば0～45重量%、好ましくは5～30重量%、より好ましくは10～20重量%である。また、らせん状デキストリンが用いられる場合、直鎖状デキストリンとらせん状デキストリンとの含有比（重量比）は、例えば1：3～3：1、好ましくは1：2～2：1、より好ましくは1：1.5～1.5：1である。

[0029] （その他の芳香成分）

本発明の固形組成物は、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、ヘキサナ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固形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。

[0030] 本発明の固形組成物におけるα-イオノンの含有量は、例えば10,000ppb以下、好ましくは5,000ppb以下、より好ましくは2,000ppb以下である。本発明の固形組成物におけるβ-シクロシトラールの含有量は、例えば10,000ppb以下、好ましくは5,000ppb以下、より好ましくは2,000ppb以下である。本発明の固形組成物における(z)-3-ヘキセノールの含有量は、例えば1～20,000ppb、好ましくは2～15,000ppb、より好ましくは3～10,000ppb

である。本発明の固形組成物における1-ペンテン-3-オールの含有量は、例えば10～10,000ppb、好ましくは15～8,000ppb、より好ましくは20～7,000ppbである。本発明の固形組成物におけるヘキサナールの含有量は、例えば1～10,000ppb、好ましくは2～5,000ppb、より好ましくは5～2,000ppbである。本発明の固形組成物におけるネロリドールの含有量は、例えば1～10,000ppb、好ましくは2～5,000ppb、より好ましくは5～2,000ppbである。

[0031] 本発明において、固形組成物における 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、ヘキサナ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。

[0032] (ジメチルスルフィド及び β -イオノンを含む抽出物)

本発明の固形組成物において、ジメチルスルフィド及び β -イオノンはそれぞれ精製物又は粗精製物を使用してもよいし、或いは、ジメチルスルフィド及び β -イオノンを含む抽出物を使用してもよい。ジメチルスルフィド及

び β -イオノンを含む抽出物としては、天然由来の抽出物を用いることができ、植物抽出物及び動物抽出物のいずれも利用することができる。本発明では、植物抽出物を使用することが好ましく、植物の中でも茶葉抽出物を使用することがより好ましい。ここで、特に制限されるわけではないが、ジメチルスルフィド及び β -イオノンを含む茶葉抽出物は、上記に述べた茶葉抽出物とは異なる種類の茶葉抽出物であることが好ましい。すなわち、上記に述べた茶葉抽出物を第一の茶葉抽出物とした場合、ジメチルスルフィド及び β -イオノンを含む茶葉抽出物は、それとは異なる第二の茶葉抽出物とすることができる。なお、本発明において、ジメチルスルフィド及び β -イオノンは第一の茶葉抽出物に由来するものであってもよい。本発明において、ジメチルスルフィド及び β -イオノンの含有量は、いずれも由来を問わず、本発明の固形組成物に含まれる量であることを意味する。

[0033] ジメチルスルフィド及び β -イオノンを含む茶葉抽出物において原料となる茶葉としては、好ましくは不発酵茶が用いられ、具体的には、荒茶、煎茶、玉露、かぶせ茶、碾茶、番茶、ほうじ茶などの緑茶が例示される。ジメチルスルフィド及び β -イオノンを含む茶葉抽出物は、1種のみ茶葉から抽出されたものであってもよいし、複数種類の茶葉をブレンドして抽出されたものであってもよい。本発明において、ジメチルスルフィド及び β -イオノンを含む茶葉抽出物は、好ましくは緑茶の茶葉抽出物であり、より好ましくは、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の抽出物である。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の抽出物を使用することにより、当該茶葉に由来するジメチルスルフィド及び β -イオノン以外の芳香成分を含有させることができ、高級茶らしいより優れた香味を固形組成物に付与することができる。

[0034] ジメチルスルフィド及び β -イオノンを含む茶葉抽出物を使用する場合、その含有量は特に限定されず、本発明の固形組成物におけるジメチルスルフィド又は β -イオノンの含有量が上記に示した範囲となるように調整することができる。

[0035] (その他の添加剤)

本発明の固形組成物は、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、pH調整剤、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。

[0036] (固形組成物)

本発明の固形組成物は、特に限定されないが、粉末状であること、すなわち粉末組成物であることが好ましい。本発明において、粉末組成物は粉末状の形態をしていればよく、顆粒もこれに含まれる。本発明において、粉末組成物の粒子径は、特に限定されないが、例えば0.1～500 μ m、好ましくは1～300 μ m、より好ましくは10～200 μ mである。

[0037] 本発明の固形組成物は、飲食品（飲料及び食品）に含有させることができる。すなわち、本発明においては、上述した固形組成物を含有する飲食品を提供することができる。本発明の固形組成物は、これを液体に含有させて飲料とすることが好ましく、水又は湯などで溶解して茶飲料として飲用することが最も好ましい。この点から、本発明の固形組成物は、インスタント茶として提供することができる。ここで、本明細書において「インスタント茶」とは、茶葉の抽出液を原料に用いた溶液を乾燥させて、粉末状に加工した粉末飲料を意味する。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。本発明の固形組成物が利用される茶飲料は、好ましくは緑茶である。すなわち、本発明の固形組成物は、インスタント緑茶として提供することができる。

[0038] 本発明の固形組成物を水又は湯などの液体に含有させる場合、溶液中のその含有量は、特に限定されないが、例えば0.01～20重量%、好ましく

は0.05～10重量%、より好ましくは0.1～5.0重量%である。また、溶液中の固形組成物の含有量は、溶液中のジメチルスルフィドの含有量が、例えば1～2500ppb、好ましくは5～2000ppb、より好ましくは10～1000ppb、さらに好ましくは100～500ppb、または、溶液中のβ-イオノンの含有量が、例えば0.05～100ppb、好ましくは0.2～80ppb、より好ましくは0.4～60ppb、さらに好ましくは4～40ppbとなるように調整してもよい。

[0039] 本発明の固形組成物はまた、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。本発明の固形組成物を食品に添加する場合、その添加量は食品の種類等に応じて適宜設定することができる。

[0040] 本発明の固形組成物が食品に添加される場合、その添加量は食品の種類等に応じて適宜設定することができる。本発明の固形組成物は、例えば、食品中のその含有量が0.01～20重量%、好ましくは0.05～10重量%、より好ましくは0.1～5.0重量%、さらに好ましくは0.5～5.0重量%となるように食品に添加することができる。

[0041] また、本発明の固形組成物を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、食品中のジメチルスルフィドの含有量が1～2500ppb、好ましくは5～2000ppb、より好ましくは10～1000ppb、さらに好ましくは100～500ppbとなるように、本発明の固形組成物を食品に添加することができる。例えば、食品中のβ-イオノンの含有量が0.05～100ppb、好ましくは0.2～80ppb、より好ましくは0.4～60ppb、さらに好ましくは4～40ppbとなるように、本発明の固形組成物を食品に添加することができる。

[0042] (製造方法)

本発明の固形組成物は、(A)茶葉抽出物、ジメチルスルフィド及び β -イオノン含有し、 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0.003～3である溶液を調製する工程、並びに(B)得られた溶液を乾燥する工程、を経て製造することができる。当該溶液には、茶葉抽出物、ジメチルスルフィド及び β -イオノンのほかに、デキストリンなどの上述した各種成分が含まれていてもよい。いずれの成分の配合量も、本発明の効果を損なわない限りにおいて適宜設定することができ、各種成分を配合する順序も特に限定されない。また、当該溶液の溶媒としては水を用いてもよいし、あるいは茶葉の抽出液をそのまま用いてもよい。

[0043] 溶液の乾燥は、当業者に従来公知の方法を用いて行うことができる。例えば、噴霧乾燥、凍結乾燥、熱風乾燥、真空乾燥などの方法が挙げられるが、本発明では噴霧乾燥を用いることが好ましい。なお、噴霧乾燥における温度や時間などの条件も特に限定されず、適宜調整することができる。

[0044] 本発明の固形組成物の製造においては、上記の工程に加えて、工程(A)で得られた溶液を濃縮する工程や、工程(A)で得られた溶液を殺菌処理する工程などを含めることができる。いずれの工程も、当業者に従来公知の方法を用いて行うことができる。

[0045] また、工程(A)におけるジメチルスルフィド及び β -イオノンについては、上述したようにこれら両成分を含有する茶葉抽出物(第二の茶葉抽出物)を使用してもよい。第一の茶葉抽出物と第二の茶葉抽出物とを混合することによって上記工程(A)における溶液を調製することができる。特に制限されるわけではないが、ジメチルスルフィド及び β -イオノン含有する茶葉抽出物(第二の茶葉抽出物)は、茶葉を蒸留する工程を経て製造することができる。第二の茶葉抽出物において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。

[0046] ジメチルスルフィド及び β -イオノン含有する茶葉抽出物(第二の茶葉

抽出物)を得るための茶葉の蒸留方法としては、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る。水蒸気蒸留法には、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、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。また、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。

[0047] ジメチルスルフィド及び β -イオノンを含む茶葉抽出物(第二の茶葉抽出物)に関しては、水蒸気蒸留法により得られた抽出物を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。かかる濃縮方法としては、典型的には蒸留濃縮が行われる。蒸留濃縮では、例えば、茶葉抽出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、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。また、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化ナトリウムなどの塩を含むさせることにより行うことができる。

[0048] さらに、ジメチルスルフィド及び β -イオノンを含む茶葉抽出物(第二の茶葉抽出物)は、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。

[0049] (飲食品における青海苔香を高める方法)

以上の通り得られた本発明の固形組成物は、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固形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

[0050] 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。

[0051] 1. 固形組成物（粉末組成物）の作製

（1－1）茶葉抽出液

茶抽出用タンクの中に、市販のかぶせ茶 12 kg、デキストリン 2.5 kg（CAVAMAX W6（ α -CD）：0.375 kg、サンデックス#30：1.063 kg、クラスターデキストリン：1.063 kg）、L-アスコルビン酸 0.36 kg、及び重曹 0.22 kg を投入し、さらに 120 L の湯を添加し、50℃で10分間保持して、茶葉の抽出液を作製した。得られた茶葉抽出液 85 L に対してデキストリン（TK-16）2.04 kg を加えて混合し、次いで遠心分離により不溶性成分（茶葉）を取り除き、90℃及び30秒間の条件で殺菌処理を行った。その後、膜濃縮を行って（NTR-759HG-S4F（日東電工）、液温：20℃、圧力：3 MPa）、溶液中の固形分濃度として Brix 値が 20～35 となるように茶葉抽出液を濃縮化した。

[0052] （1－2）茶葉留出液

上記のプロセスとは別に、茶葉からの留出液を作製した。具体的には、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分間とした。この操作を10回行って合計120kgの留出液を得た。

[0053] 得られた留出液のうち78kgに対して、平均細孔径3nmの木由来粉末活性炭（大阪ガスケミカル、白鷺WP-Z）を1.52g添加し、10分間スターラーで攪拌して、活性炭処理を行った。留出液中の活性炭はろ紙（ADVANTEC、No. 2）を用いて除去した。なお、活性炭処理における処理温度は5.7℃とした。

[0054] さらに、活性炭処理を行った留出液のうち50kgを蒸留釜に投入し、真空ポンプを用いて-0.09MPaまで蒸留釜の系内を減圧した。これを蒸気流量15kg/h、蒸気圧力0.25MPaの条件で加熱をして留出液の液温を60℃まで上昇させた。冷却冷媒温度を往4℃及び復6℃とし、31L/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5kgであった（10倍濃縮）。このようにして得られた留出液を、茶葉留出液とした。

[0055] （1-3）粉末組成物

上記（1-1）で得られた茶葉抽出液30Lに、上記（1-2）で得られた留出液3030mLを添加して混合した。次いで、その混合液を、90℃及び45秒間の条件で殺菌処理した。殺菌処理後の溶液に対して噴霧乾燥機を用いて噴霧乾燥処理を行い、粉末組成物を作製した。なお、乾燥条件は、入口熱風温度を160℃とし、出口熱風温度を110℃とした。

[0056] （1-4）粉末組成物の評価

上記により得られた粉末組成物においては、これを水に溶解したところ、青海苔香として優れた香りが感じられた。この粉末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、ネロリドール、ヘキサナール、1-ペンテン-3-オール、(z)-3-ヘキセノ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、粉末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。

[0057] <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。

[0058] <分析サンプルの作製>

検量線の濃度範囲に入るように粉末組成物を純水で適宜溶解し、得られた溶液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。

[0059] <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：250μl/秒で5000μl

（装置パラメーター）

カラム1：MXT-5（微極性 10m、180μm ID、0.4μm）

カラム2：MXT-WAX（高極性 10m、180μm ID、0.4μm）

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℃

オーブン温度：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

[0060] 上記の測定結果として、ジメチルスルフィド及びβ-イオノンの濃度はそれぞれ83ppb及び8ppbであった。なお、茶葉抽出液の原料に市販の煎茶を用いて、上記と同様にして粉末組成物を作製し、評価を行ったところ、同様に青海苔香として優れた香りが感じられ、当該粉末組成物におけるジメチルスルフィド及びβ-イオノンの濃度はそれぞれ54ppb及び8ppbであった（粉末組成物B）。また、茶葉抽出液の原料に市販の煎茶を用いて、デキストリンとしてクラスターデキストリンとTK-16とを33：17の割合で使用した粉末組成物を上記と同様にして作製し、評価を行ったところ、同様に青海苔香として優れた香りが感じられ、当該粉末組成物におけるジメチルスルフィド及びβ-イオノンの濃度はそれぞれ30ppb及び11ppbであった（粉末組成物C）。

[0061] 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た。

[0062] <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MPSを用いたMVM (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=0.25μm

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℃

[0063] 上記の測定結果として、ネロリドールは8.8ppb、ヘキサナールは3

、7 p p b、1-ペンテン-3-オールは24.0 p p b、(z)-3-ヘキセノールは75.3 p p bであった。なお、上述した粉末組成物Bにおいて、ネロリドールは4.2 p p b、ヘキサナールは3.0 p p b、1-ペンテン-3-オールは61.8 p p b、 α -イオノン¹は9.4 p p b、(z)-3-ヘキセノールは9.2 p p b、 β -シクロシトラールは8.0 p p bであった。上述した粉末組成物Cにおいて、ネロリドールは11.2 p p b、ヘキサナールは3.9 p p b、1-ペンテン-3-オールは44.7 p p b、 α -イオノン¹は9.6 p p b、(z)-3-ヘキセノールは4.4 p p b、 β -シクロシトラールは7.4 p p bであった。

[0064] 2. 芳香成分比率の検討

上記の結果から、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。

[0065] まず、ベースとなる粉末茶を得た。具体的には、茶抽出用タンクの中に市販の煎茶(ゆたかみどり)12kgを投入し、120kgの湯を添加し、40℃で40分間持して、茶葉の抽出処理を行った。この抽出処理を2回繰り返し、計181Lの茶葉抽出液を作製した。得られた茶葉抽出液に対してデキストリン(パインオリゴ20)2.03kg、L-アスコルビン酸0.18kg、及び重曹0.13kgを投入し、混合した。次いで、Brix値が30となるように膜濃縮を行い(NTR-759HG-S4F(日東電工)、液温:15℃、圧力:3MPa)、濃縮後、クラスターデキストリンをその濃度が2.29重量%となるように添加した。最終的に90℃及び30秒間の条件で殺菌処理を行って、茶葉抽出液を作製した。得られた茶葉抽出液を噴霧乾燥処理して、ベースとなる粉末茶(パウダー)を得た。

[0066] 次に、上記(1-2)に準じて茶葉の留出液を作製し、得られた留出液に対して追加で活性炭処理を2回行った、活性炭処理は、上記に示した木由来粉末活性炭を濃度100ppmとなるように留出液に添加して10分間攪拌することにより行い、活性炭を取り除いた後、同じ操作を繰り返した。追加

で活性炭処理を行った留出液は、ジメチルスルフィド濃度が11504 ppbであり、 β -イオノン濃度はほぼ0 ppb（検出限界以下）であった。

[0067] 上記の通り得られた粉末茶1.2 gに対して水200 mLを加えて、Brix 0.6（茶固形Brix 0.3）の粉末茶溶解液を作製した。この粉末茶溶解液に、活性炭処理を追加で行った留出液と、 β -イオノンの標準品とを添加して、ジメチルスルフィドと β -イオノンの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。

[0068] 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。粉末茶の溶解液に対して留出液及び β -イオノン標準品を添加しなかったものをコントロールとして、飲み終わりに感じられる青海苔香の余韻を評価ポイントとして香気の質を評価した。各種試料の調製内容はパネリストには明かさないうブラインド状態で評価を実施した。官能評価においては、青海苔香の余韻を1点（悪い）～5点（良い）の間で、0.1点刻みで採点し、最終的に評価点の平均値を算出した。パウダーを溶解しただけの試料（コントロール）を3.0点として、各種試料に対して評価点を付けた。

[0069]

[表1]

	パウダー 添加量 (g)	ジメチルスルフィド		βイオン		β-イオン/ ジメチルスルフィド	評価点
		留出液添加量 (μl)	濃度 (ppb)	標準品添加量 (μl)	濃度 (ppb)		
試料1-1	1.2	3500	200	70	1	0.005	3.9
試料1-2	1.2	3500	200	300	4	0.021	4.2
試料1-3	1.2	3500	200	30	42	0.209	4.2
試料1-4	1.2	3500	200	22	31	0.153	4.3
試料1-5	1.2	3500	200	26	36	0.181	4.5
試料1-6	1.2	3500	200	51	71	0.354	4.3
試料1-7	1.2	3500	200	73	102	0.507	3.8
試料1-8	1.2	3500	200	100	139	0.695	3.7
試料1-9	1.2	3500	200	288	400	2.001	3.4
試料1-10	1.2	3500	200	504	700	3.502	2.8

[0070] また、上記の粉末茶（ベース）1.2 gに、デキストリン混合物（サンデック#30:28.3重量部、CAVAMAX W6:5重量部、TK-16:16.7重量部）を0.8 g加えてデキストリンの含有率を高めた粉末組成物を調製して、これに水200 mLを加えて、Brix 1.0（茶固形Brix 0.3）の粉末茶溶解液を作製した。

[0071] 得られた粉末茶溶解液に、上記の活性炭処理を行った留出液（ジメチルスルフィド濃度:11504 ppb、β-イオン濃度:検出限界以下）と、β-イオンの標準品とを添加して、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。調製した各種試料について、上記と同様の方法で官能評価を実施した。なお、官能評価においては、上記と同様に、粉末茶溶解液に対して留出液及びβ-イオン標準品を添加しなかったもの（コントロール）を3.0点として、各種試料に対して評価点を付けた。

[0072]

[表2]

	パウダー 添加量 (g)	デキストリン 添加量 (g)	ジメチルスルフィド		βイオン		β-イオン/ ジメチルスルフィド	評価点
			抽出液添加量 (μl)	濃度 (ppb)	標準品添加量 (μl)	濃度 (ppb)		
試料2-1	1.2	0.8	3500	198	15	21	0.106	4.3
試料2-2	1.2	0.8	3500	198	26	36	0.183	4.6
試料2-3	1.2	0.8	3500	198	50	70	0.352	4.6
試料2-4	1.2	0.8	3500	198	100	139	0.704	4.2
試料2-5	1.2	0.8	3500	198	200	400	2.026	3.3
試料2-6	1.2	0.8	3500	197	504	700	3.546	2.8

[0073] 上記の通り、β-イオンが存在し、そしてβ-イオ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。