明　細　書

発明の名称 ： コロソリン酸含有飲料及びその製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、コロソリン酸含有飲料及びその製造方法に関する。

背景技術

[0002] バナバ（Ｌａｇｅｒｓｔｒｏｅｍｉａ　ｓｐｅｃｉｏｓａ）はミソハギ科サルスベリ属の植物で、古くからその葉を煮出し、「バナバ茶」という呼称により、健康茶として飲用されている。

[0003] バナバに含有される成分として、トリテルペンの１種であるコロソリン酸（ｃｏｒｏｓｏｌｉｃ　ａｃｉｄ、ＩＵＰＡＣ名：（１Ｓ，２Ｒ，４ａＳ，６ａＲ，６ａＳ，６ｂＲ，８ａＲ，１０Ｒ，１１Ｒ，１２ａＲ，１４ｂＳ）－１０，１１－ｄｉｈｙｄｒｏｘｙ－１，２，６ａ，６ｂ，９，９，１２ａ－ｈｅｐｔａｍｅｔｈｙｌ－２，３，４，５，６，６ａ，７，８，８ａ，１０，１１，１２，１３，１４ｂ－ｔｅｔｒａｄｅｃａｈｙｄｒｏ－１Ｈ－ｐｉｃｅｎｅ－４ａ－ｃａｒｂｏｘｙｌｉｃ　ａｃｉｄ）が知られている（非特許文献１）。

[0004] コロソリン酸は、抗ガン、抗高血糖、抗肥満、抗炎症、抗脂質異常症、抗ウイルス作用など、種々の健康効能を持つことが知られている。その作用機序としてはＡＭＰ－ａｃｔｉｖａｔｅｄ　ｐｒｏｔｅｉｎ　ｋｉｎａｓｅ（ＡＭＰＫ）活性化、ｎｕｃｌｅａｒ　ｆａｃｔｏｒ－κＢ（ＮＦκＢ）の活性化抑制、Ｉｎｔｅｒｌｅｕｋｉｎ－１　ｒｅｃｅｐｔｏｒ－ａｓｓｏｃｉａｔｅｄ　ｋｉｎａｓｅ　１（ＩＲＡＫ－１）の抑制、ｒｅａｃｔｉｖｅ　ｏｘｙｇｅｎ　ｓｐｅｃｉｅｓ（ＲＯＳ）産生の低下などが報告されている（非特許文献２）。近年、コロソリン酸の血管内皮機能の正常化作用についても注目されており、Ｔｉｅ２活性化作用も報告されている（特許文献１）。非特許文献３では、１～２週間のコロソリン酸含有エキスの摂取による、ヒトでの血糖値上昇抑制作用が報告されている。

[0005] 上記のようにコロソリン酸は種々の効能を有することから、コロソリン酸を含有した機能性飲料、機能性食品を提供することで健康維持増進に貢献することが可能であると考えられる。

[0006] 一方、コロソリン酸は水への溶解性が低いため、バナバ茶のようにバナバ葉を熱水で抽出した場合であっても、コロソリン酸はごく微量しか含まれない。そのため、コロソリン酸を含む機能性素材を調製する場合、植物等からエタノール等を含む有機溶媒により抽出する方法が考えられる。特許文献２では、エタノール水溶液で抽出したのち、活性炭で処理することによるコロソリン酸高含有エキスの製造方法が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：特開２０１４－９７９７７号公報

特許文献2：特開２００５－２６３６５０号公報

特許文献3：特開２０１３－１３３９２号公報

非特許文献

[0008] 非特許文献1：Ｄｉａｂｅｔｅｓ Ｒｅｓ Ｃｌｉｎ Ｐｒａｃｔ． ２００６ Ａｕｇ；７３（２）：１７４－７．

非特許文献2：Ｏｎｃｏｌ Ｌｅｔｔ． ２０２１ Ｆｅｂ；２１（２）：８４．

非特許文献3：日本食生活学会誌 ２００６ ｖｏｌ．１７ Ｎｏ．３、ｐ．２５５－２５９

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0009] コロソリン酸は水への溶解性が低いため、コロソリン酸を溶解させた飲料の製造は困難であった。例えば、非特許文献３では、カプセル形態での摂取を行っているが、飲料形態での提供が難しいからであると推察される。一方で、機能性食品、機能性飲料を提供するうえで、継続的に摂取しやすい形態で

提供されることは重要である。そのような形態として、飲料での提供が考えられる。しかしながら、有効成分の水への溶解性が低いと、飲料に配合した有効成分が析出し、飲料を飲み干しても有効成分の飲み残しが多くなる場合がある。従って水への溶解性が低い有効成分については、所望の効果が得られるような量（有効量ともいう）を飲料に配合しても、有効量を確実に摂取することが難しくなる場合がある。また、有効成分の水への溶解性を高めることにより、当該成分の消化管からの吸収性を高め、求める機能がより充分に発揮されることを期待することもできる。これらから、コロソリン酸の水への溶解性を高めることができる技術が求められる。

[0010] 水への溶解性が低い成分の溶解性を上げる技術として、特許文献３には、難水溶性ポリフェノール類をカテキン類、クロロゲン酸類及び難水溶性ポリフェノール類のメチル化物から選ばれる１種又は２種以上と共存させ、１１０～１８０℃で加熱処理することで難水溶性ポリフェノール類の溶解性を向上させる技術が開示されている。しかし、コロソリン酸は、トリテルペン類に分類される化合物であり、ポリフェノール類とは性質の異なる化合物である。このように水への溶解性が低い成分の溶解性を上げる技術は存在しているものの、コロソリン酸の溶解性を向上させる具体的な方法については一切検討されていない。

[0011] 本発明は、コロソリン酸の水への溶解性を高めたコロソリン酸含有飲料及びその製造方法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

[0012] 本発明者らは、上記課題を解決するために検討した結果、エピカテキン、エピカテキンガレート、エピガロカテキン及びエピガロカテキンガレートからなる群より選択される少なくとも１種のエピカテキン類化合物を含む溶液中において、コロソリン酸の水への溶解性が向上することを見出した。コロソリン酸の化学構造式の特徴に基づいて、エピカテキン類化合物が共存することにより、コロソリン酸の水への溶解性が向上することを、類推することは困難であった。

[0013] すなわち、これに限定されるものではないが、本発明は以下のコロソリン酸含有飲料及びその製造方法に関する。

〔１〕コロソリン酸を含有する飲料であって、エピカテキン、エピガロカテキン、エピカテキンガレート及びエピガロカテキンガレートからなる群より選択される少なくとも１種のエピカテキン類化合物を含有し、コロソリン酸の含有量が１ｐｐｍ以上であり、コロソリン酸の少なくとも一部が飲料に溶解している、コロソリン酸含有飲料。

〔２〕エピカテキン、エピガロカテキン、エピカテキンガレート及びエピガロカテキンガレートの合計濃度が１．７～１７００ｐｐｍである上記〔１〕に記載のコロソリン酸含有飲料。

〔３〕容器詰飲料である上記〔１〕又は〔２〕に記載のコロソリン酸含有飲料。

〔４〕容器が、ペットボトル、缶、瓶又はレトルトパウチである上記〔３〕に記載のコロソリン酸含有飲料。

〔５〕容器がペットボトルである上記〔３〕又は〔４〕に記載のコロソリン酸含有飲料。

〔６〕コロソリン酸を含有する飲料の製造方法であって、エピカテキン、エピガロカテキン、エピカテキンガレート及びエピガロカテキンガレートからなる群より選択される少なくとも１種のエピカテキン類化合物の存在下で、水及びコロソリン酸を混合することにより、エピカテキン類化合物、コロソリン酸及び水を含有し、コロソリン酸の少なくとも一部が溶解している飲料を得る飲料調製工程を含み、上記飲料調製工程において、飲料中のコロソリン酸の含有量が１ｐｐｍ以上となるようにコロソリン酸を水と混合する、コロソリン酸含有飲料の製造方法。

〔７〕上記飲料調製工程において、飲料中のエピカテキン、エピガロカテキン、エピカテキンガレート及びエピガロカテキンガレートの合計濃度が、１．７～１７００ｐｐｍの範囲となるエピカテキン類化合物を存在させる、上記〔６〕に記載の製造方法。

発明の効果

[0014] 本発明によれば、コロソリン酸の水への溶解性を高めたコロソリン酸含有飲料及びその製造方法を提供することができる。

発明を実施するための形態

[0015] ＜コロソリン酸含有飲料＞

本発明の飲料は、コロソリン酸を含有する飲料である。本発明の飲料は、エピカテキン、エピガロカテキン、エピカテキンガレート及びエピガロカテキンガレートからなる群より選択される少なくとも１種のエピカテキン類化合物を含有し、コロソリン酸の含有量が１ｐｐｍ以上であり、コロソリン酸の少なくとも一部が飲料に溶解している、コロソリン酸含有飲料である。

本明細書中、ｐｐｍは、重量／容量（ｗ／ｖ）のｐｐｍを意味し、１ｐｐｍは１ｍｇ／Ｌと換算することができる。

[0016] コロソリン酸は、トリテルペンの一種でウルサン型トリテルペンに分類される化合物である。本発明において、コロソリン酸の由来及び製造方法は、特に制限されない。コロソリン酸は、合成品であってもよく、コロソリン酸を含有する植物から抽出したものであってもよい。コロソリン酸を含有する植物として、ミソハギ科サルスベリ属のバナバ（Ｌａｇｅｒｓｔｒｏｅｍｉａ　ｓｐｅｃｉｏｓａ）が挙げられる。一態様において、コロソリン酸は、バナバの葉から抽出したものであってよい。コロソリン酸は、市販品を使用することもできる。

[0017] コロソリン酸含有飲料中のコロソリン酸の含有量は、１ｐｐｍ以上である。

本発明の飲料では、飲料に含まれるコロソリン酸のうち、少なくとも一部が飲料に溶解している。

本明細書中、飲料中のコロソリン酸の含有量は、飲料に溶解しているコロソリン酸の量と、飲料に溶解していない（析出している）コロソリン酸との合計の含有量（ｐｐｍ）である。

一態様において、飲料中のコロソリン酸の含有量は、２ｐｐｍ以上であることが好ましい。一態様において、飲料中のコロソリン酸の含有量の上限は特

に限定されないが、例えば、１０ｐｐｍ以下であってよい。一態様において、飲料中のコロソリン酸の含有量は、１～１０ｐｐｍであることが好ましく、２～１０ｐｐｍであることがより好ましい。

コロソリン酸の含有量は、例えば、液体クロマトグラフィータンデム質量分析装置（ＬＣ－ＭＳ／ＭＳ）を用いて、液体クロマトグラフ質量分析法により測定することができる。測定条件は、例えば、実施例に記載の条件を使用することができる。

[0018] コロソリン酸を１ｐｐｍ以上含有する飲料がエピカテキン類化合物を含有すると、エピカテキン類化合物が含まれない場合と比較して、コロソリン酸の溶解量が増加する。エピカテキン類化合物を用いることによって、コロソリン酸の水への溶解性を高めることができる。

[0019] 本発明において、飲料中のコロソリン酸は、少なくとも一部が飲料に溶解していればよく、全部が飲料に溶解していてもよい。溶解している化合物の量（濃度）を測定する方法としては、水と測定対象化合物を充分に混合して水溶液（飽和水溶液であってよい）を調製した後に、遠心分離を行って不溶物を除去し、上清中の濃度を測定する方法等が挙げられる。一態様においては、飲料中に存在するコロソリン酸に対して、コロソリン酸の３０重量％以上が飲料に溶解していることが好ましく、３５重量％以上が溶解していることがより好ましく、４０重量％以上が溶解していることがさらに好ましい。一態様において、飲料に溶解しているコロソリン酸は、飲料中に存在するコロソリン酸に対して、１００重量％以下であってよく、９５重量％以下であってよい。

一態様において、飲料に溶解しているコロソリン酸の濃度は、０．３ｐｐｍ以上であることが好ましく、０．４ｐｐｍ以上であることがより好ましく、０．４５ｐｐｍ以上であることがさらに好ましい。また、一態様において、飲料に溶解しているコロソリン酸濃度は、１０ｐｐｍ以下であってよい。

[0020] コロソリン酸含有飲料は、エピカテキン、エピガロカテキン、エピカテキンガレート及びエピガロカテキンガレートからなる群より選択される少なくと

も１種のエピカテキン類化合物を含有する。コロソリン酸含有飲料は、エピカテキン、エピガロカテキン、エピカテキンガレート及びエピガロカテキンガレートの４種のうちの少なくとも１種を含有すればよく、２種以上を含有してもよい。一態様において、コロソリン酸含有飲料は、エピカテキン、エピガロカテキン、エピカテキンガレート及びエピガロカテキンガレートを含むことが好ましい。

[0021] エピカテキン類化合物の由来及び製造方法は特に制限されない。エピカテキン類化合物は、合成品であってもよく、緑茶などの植物由来であってもよい。例えば緑茶抽出物には、通常上記の４種のエピカテキン類化合物が含まれている。植物由来の場合は、茶抽出物としてエピカテキン類化合物を添加しても良い。

[0022] 飲料中のエピカテキン、エピガロカテキン、エピカテキンガレート及びエピガロカテキンガレートの合計濃度（以下では、エピカテキン類化合物の合計濃度ともいう）は、１．７ｐｐｍ以上であることが好ましい。エピカテキン類化合物の合計濃度が１．７ｐｐｍ以上であると、コロソリン酸の水への溶解性を高めることができる。コロソリン酸含有飲料中のエピカテキン類化合物の合計濃度の上限は特に限定されない。一態様において、風味の観点から、コロソリン酸含有飲料中のエピカテキン類化合物の合計濃度は１７００ｐｐｍ以下が好ましい。

一態様において、飲料中のエピカテキン類化合物の合計濃度は、より好ましくは１７ｐｐｍ以上であり、また、より好ましくは１３６０ｐｐｍ以下であり、更に好ましくは３４０ｐｐｍ以下である。一態様において、エピカテキン、エピガロカテキン、エピカテキンガレート及びエピガロカテキンガレートの合計濃度は１．７～１７００ｐｐｍであることが好ましく、１．７～１３６０ｐｐｍであることがより好ましく、１．７～３４０ｐｐｍであることがさらに好ましく、１７～３４０ｐｐｍであることが特に好ましい。

エピカテキン類化合物の濃度は、高速液体クロマトグラフ法（ＨＰＬＣ）により測定することができる。具体的には、高速液体クロマトグラフィー（Ｈ

ＰＬＣ）により、エピカテキン（ＥＣ）、エピガロカテキン（ＥＧＣ）、エピカテキンガレート（ＥＣＧ）、またはエピガロカテキンガレート（ＥＧＣＧ）を標準品として、エピカテキン、エピガロカテキン、エピカテキンガレート及びエピガロカテキンガレートの濃度を測定し、それらの４種の合計値としてエピカテキン類化合物の合計濃度を算出することができる。

[0023] 一態様において、飲料中のコロソリン酸の含有量と、エピカテキン類化合物の合計濃度の好ましい範囲として以下の範囲が挙げられる。

一態様において、飲料中のコロソリン酸の含有量が、１～５ｐｐｍである場合、エピカテキン類化合物の合計濃度が、１．７～１７００ｐｐｍであることが好ましく、１．７～１３６０ｐｐｍであることがより好ましく、１．７～６８０ｐｐｍがさらに好ましく、１．７～３４０ｐｐｍであることがさらにより好ましく、１７～３４０ｐｐｍが特に好ましい。

一態様において、飲料中のコロソリン酸の含有量が、５ｐｐｍを超えて１０ｐｐｍ以下である場合、エピカテキン類化合物の合計濃度が、１．７～３４０ｐｐｍであることが好ましく、１７～３４０ｐｐｍであることがより好ましい。

上記のような範囲であると、エピカテキン類化合物を含まない場合と比較して、コロソリン酸の水への溶解性がより向上する。

[0024] また別の一態様において、例えば、飲料中のコロソリン酸の含有量が１～２ｐｐｍである場合に、エピカテキン類化合物の合計濃度が、３４０～１７００ｐｐｍであってもよく、３４０ｐｐｍを超えて１７００ｐｐｍ以下であってもよく、５００～１７００ｐｐｍであってもよい。

[0025] コロソリン酸含有飲料のｐＨは特に限定されないが、好ましくは、ｐＨ７．４以下であり、より好ましくは、ｐＨ３．０～６．５である。本明細書中、ｐＨは、２５℃におけるｐＨである。ｐＨは市販のｐＨメーターで測定することができる。

[0026] 本発明におけるコロソリン酸含有飲料は、水を含む。本発明のコロソリン酸含有飲料は、通常、水をベースとする液状の組成物であり、好ましくは９０

重量％以上、より好ましくは９５重量％以上の水を含む。水の含有量は、例えば、９９．９重量％以下であってよい。コロソリン酸含有飲料は、エタノールを含んでもよいが、含んでいなくてもよい。一態様において、コロソリン酸含有飲料中のエタノールの濃度は、５ｖ／ｖ％未満が好ましく、１ｖ／ｖ％以下がより好ましく、１ｖ／ｖ％未満がさらに好ましい。本発明によれば、エタノール濃度が１ｖ／ｖ％未満の飲料において、コロソリン酸の溶解性を高めることができる。

コロソリン酸含有飲料は、カテキン、ガロカテキン、カテキンガレート及びガロカテキンガレートからなる群より選択される少なくとも１種のカテキン類化合物を含んでいてもよく、これらの４種を含んでいてもよい。

[0027] コロソリン酸含有飲料は、例えば、茶系飲料、コーヒー飲料、アルコール飲料、機能性飲料等であってよい。一態様においては、本発明の飲料は、茶系飲料であることが好ましい。茶系飲料として、緑茶、紅茶、烏龍茶、プーアール茶、ブレンド茶、ハーブティー等が挙げられる。中でも、コロソリン酸含有飲料は、緑茶飲料であることが好ましい。緑茶飲料は、緑茶茶葉から抽出して得られる緑茶抽出物を配合した飲料であり、緑茶抽出物を水以外の主成分として含有する飲料であることが好ましい。

[0028] コロソリン酸含有飲料は、本発明の効果を妨げない限り、香料、ビタミン、色素類、酸化防止剤、酸味料、乳化剤、保存料、調味料、エキス類、ｐＨ調整剤、品質安定剤等の添加剤を１種又は２種以上含んでいてもよい。

[0029] 本発明の飲料は、運搬容易性や長期保存性の点から、容器に詰められた状態の容器詰飲料（容器詰コロソリン酸含有飲料）であることが好ましい。容器詰コロソリン酸含有飲料では、コロソリン酸含有飲料が容器に充填され、通常密封されている。容器詰飲料における容器の種類は特に限定されないが、ペットボトル、缶、瓶又はレトルトパウチであることが好ましく、ペットボトルであることがより好ましい。

一態様において、本発明のコロソリン酸含有飲料は、コロソリン酸含有飲料がペットボトルに充填された容器詰飲料であることが好ましい。

本発明の飲料の製造方法は特に限定されないが、例えば、下記の製造方法を採用することができる。

[0030] ＜コロソリン酸含有飲料の製造方法＞

本発明は、下記のコロソリン酸含有飲料の製造方法も包含する。

コロソリン酸を含有する飲料の製造方法であって、エピカテキン、エピガロカテキン、エピカテキンガレート及びエピガロカテキンガレートからなる群より選択される少なくとも１種のエピカテキン類化合物の存在下で、水及びコロソリン酸を混合することにより、エピカテキン類化合物、コロソリン酸及び水を含有し、コロソリン酸の少なくとも一部が溶解している飲料を得る飲料調製工程を含み、前記飲料調製工程において、飲料中のコロソリン酸の含有量が１ｐｐｍ以上となるようにコロソリン酸を水と混合する、コロソリン酸含有飲料の製造方法。

上記製造方法によって、コロソリン酸の含有量が１ｐｐｍ以上で、コロソリン酸の少なくとも一部が溶解しているコロソリン酸含有飲料を得ることができる。

[0031] 本発明の製造方法において、コロソリン酸含有飲料及びその好ましい態様は、上記の本発明のコロソリン酸含有飲料と同じである。

上記のエピカテキン類化合物の存在下で、水及びコロソリン酸を混合することで、コロソリン酸の溶解性を高めることができる。これによって、エピカテキン類化合物の少なくとも１種、コロソリン酸及び水を含有し、コロソリン酸の少なくとも一部が溶解している飲料（組成物）を調製することができる。

飲料調製工程においては、上記のエピカテキン類化合物、水及びコロソリン酸を混合すればよい。本発明の効果を損なわない限り、エピカテキン類化合物、水及びコロソリン酸以外に飲料に配合される成分を添加して混合してもよい。飲料調製工程において、各成分を混合する順番は特に限定されない。例えば、エピカテキン類化合物及び水を混合し、得られた混合物とコロソリン酸とを混合してもよく、コロソリン酸及び水を混合し、得られた混合物と

エピカテキン類化合物とを混合してもよく、エピカテキン類化合物及びコロソリン酸を、水と混合してもよい。また、例えば、エピカテキン類化合物を含む茶飲料（好ましくは緑茶飲料）にコロソリン酸等を添加してコロソリン酸含有飲料を調製してもよい。

[0032] 上記飲料調製工程においては、得られる飲料中のコロソリン酸の含有量が１ｐｐｍ以上となる量のコロソリン酸を水と混合する。一態様において、好ましくは、飲料中のコロソリン酸の含有量が１ｐｐｍ以上、より好ましくは２ｐｐｍ以上、また、好ましくは、１０ｐｐｍ以下となる量のコロソリン酸を水と混合する。

[0033] 飲料調製工程において、得られる飲料中のエピカテキン、エピガロカテキン、エピカテキンガレート及びエピガロカテキンガレートの合計濃度が、１．７～１７００ｐｐｍとなる量のエピカテキン類化合物を使用することが好ましい。飲料調製工程において、飲料中のエピカテキン、エピガロカテキン、エピカテキンガレート及びエピガロカテキンガレートの合計濃度が、１．７～１７００ｐｐｍの範囲となるエピカテキン類化合物を存在させると、コロソリン酸の溶解性を高めることができる。一態様においては、飲料調製工程において、飲料中のエピカテキン、エピガロカテキン、エピカテキンガレート及びエピガロカテキンガレートの合計濃度が、より好ましくは１．７～１３６０ｐｐｍ、更に好ましくは１．７～６８０ｐｐｍ、特に好ましくは１７～３４０ｐｐｍの範囲となる量のエピカテキン類化合物を使用することが好ましい。

[0034] 飲料調製工程で得られる飲料中のコロソリン酸及びエピカテキン類化合物の含有量又は濃度の好ましい範囲等は、上述したコロソリン酸含有飲料と同じである。

一態様においては、上記飲料調製工程において、飲料中のコロソリン酸の含有量が１～２ｐｐｍとなる量のコロソリン酸を水と混合する場合、飲料中のエピカテキン、エピガロカテキン、エピカテキンガレート及びエピガロカテキンガレートの合計濃度が、３４０～１７００ｐｐｍ、３４０ｐｐｍを超え

て１７００ｐｐｍ以下、又は、５００～１７００ｐｐｍの範囲となる量のエピカテキン類化合物を存在させてもよい。

[0035] 上記の飲料調製工程を行う際の温度は特に限定されない。例えば、４～４０℃で行うことができ、１０～３０℃で行うことが好ましい。

[0036] 本発明の製造方法は、コロソリン酸含有飲料を容器に充填する工程を含んでもよい。コロソリン酸含有飲料を容器に充填する方法は特に限定されず、容器等に応じて選択することができ、例えば、ホットパック充填法、無菌充填法などを採用することができる。充填の条件は、容器の種類等に応じて適宜設定することができる。充填後に容器を密封することで、容器詰コロソリン酸含有飲料を得ることができる。飲料を充填後、ヘッドスペースに窒素ガス又は炭酸ガスを充填する工程を行ってもよい。コロソリン酸含有飲料を加熱殺菌した後に容器に充填してもよく、容器に充填した後に加熱殺菌を行ってもよい。加熱殺菌を行う場合、その方法は特に限定されず、通常の手法を用いて行うことができる。

本明細書において下限値と上限値によって表されている数値範囲、即ち「下限値～上限値」は、それら下限値及び上限値を含む。例えば、「１～２」により表される範囲は、１以上２以下を意味し、１及び２を含む。本明細書において、上限及び下限は、いずれの組み合わせによる範囲としてもよい。

実施例

[0037] 以下、本発明をより具体的に説明する実施例を示す。なお、本発明はこれらの実施例のみに限定されるものではない。

[0038] 一般的に溶液中に溶解していない物質を分離する方法として、遠心分離が用いられる。

実施例及び比較例では、水に一定量のコロソリン酸を添加、混合した後に溶液を遠心分離し、上清中のコロソリン酸濃度を測定することで、コロソリン酸の水への溶解性を評価した。

[0039] 上清中のコロソリン酸濃度は、液体クロマトグラフィータンデム質量分析装置（ＬＣ－ＭＳ／ＭＳ）を用いて分析した。ＬＣ－ＭＳ／ＭＳの条件は以下

の通りである。

[0040] ＜ＬＣ－ＭＳ／ＭＳ分析条件＞

［ＨＰＬＣ条件］

装置：Ｕｌｔｉｍａｔｅ　３０００（サーモサイエンティフィック社）

カラム：Ａｔｌａｎｔｉｓ　Ｔ３、２．１ｍｍ×１５０ｍｍ、粒径３μｍ（Ｗａｔｅｒｓ社）

移動相Ａ：０．１％ギ酸水溶液

移動相Ｂ：０．１％ギ酸アセトニトリル

注入量：４μＬ

流量：０．２５０ｍＬ／ｍｉｎ

カラム温度：４０℃

[0041] グラジエントプログラム

グラジエントプログラムを表１に示す。移動相の濃度（％）は、ｖ／ｖ％である。

[0042] [表1]

時間(分)	A相(%)	B相(%)
0	75	25
2	75	25
10	0	100
20	0	100
25	75	25
26	75	25

[0043] ［ＭＳ／ＭＳ条件］

装置：ＴＳＱ　ＱＵＡＮＴＩＶＩＡ（製品名、サーモサイエンティフィック社）

測定モード：ＭＲＭ　ｎｅｇａｔｉｖｅ

設定質量数（ｍ／ｚ）４７１．３→４２３．３

[0044] 以下の実施例及び比較例では、エピカテキン、エピカテキンガレート、エピガロカテキン及びエピガロカテキンガレート４種（以下、エピカテキン類という）の混合物として、カテキンミクスチャー（長良サイエンス（株）製）を用いた。コロソリン酸として、コロソリン酸（長良サイエンス（株）製）

を用いた。以下では、特に断らない場合は、室温（２０～２５℃）で操作を行った。

[0045] ＜実施例１～８＞

まず、エピカテキン類を合計（上記の４種の合計）１．７～３４０ｐｐｍの濃度となるように超純水（Ｍｉｌｌｉ－Ｑ、ｐＨ７．４）を用いて希釈した（以下、エピカテキン類溶液という）。

次に、コロソリン酸を、その含有量が１ｐｐｍ（実施例１～４）又は２ｐｐｍ（実施例５～８）となるようにエピカテキン類溶液へ添加し、コロソリン酸含有飲料を得た。

得られた飲料についてよく混合し、均一にしたのち１．５ｍＬエッペンチューブに移した。

遠心機（トミー社製）にて、１３，０００Ｇで５分間遠心した。遠心後に上清を採取、１００％エタノールで２倍希釈したのち、液体クロマトグラフィータンデム質量分析装置（ＬＣ－ＭＳ／ＭＳ）を用いて分析し、コロソリン酸のピーク面積から上清中の濃度を算出した。

[0046] ＜比較例１～２＞

超純水（Ｍｉｌｌｉ－Ｑ）に、コロソリン酸を、その含有量が１ｐｐｍ又は２ｐｐｍとなるように添加し、コロソリン酸含有飲料を得た。得られた飲料をよく混合し、均一にしたのち１．５ｍＬエッペンチューブに移した。実施例１と同じ方法で、遠心後に上清を採取し、ＬＣ－ＭＳ／ＭＳを用いて分析し、上清中のコロソリン酸の濃度を算出した。

[0047] 実施例１～８で調製した飲料の上清中のコロソリン酸濃度について、コロソリン酸の添加量が同じで、エピカテキン類が０ｐｐｍの飲料（比較例１～２）の上清中に検出されるコロソリン酸濃度を１とした相対比を求めた。実施例１～８及び比較例１～２の結果を表２に示す。表２に示す実施例１～４の上清中濃度の相対比は、比較例１の飲料の上清中のコロソリン酸濃度に対する相対値である。実施例５～８の上清中濃度の相対比は、比較例２の飲料の上清中のコロソリン酸濃度に対する相対値である。

[0048] [表2]

	エピカテキン類添加量(ppm)	コロソリン酸添加量(ppm)	上清中濃度の相対比
比較例1	0	1	1.00
実施例1	1.7	1	2.15
実施例2	17	1	1.92
実施例3	170	1	2.54
実施例4	340	1	2.80
比較例2	0	2	1.00
実施例5	1.7	2	1.11
実施例6	17	2	1.34
実施例7	170	2	1.68
実施例8	340	2	1.77

[0049] ＜実施例９～１４＞

エピカテキン類を合計１．７～３４０ｐｐｍの濃度となるように超純水（Ｍｉｌｌｉ－Ｑ）を用いて希釈し、エピカテキン類溶液を得た。次に、コロソリン酸を、その含有量が５ｐｐｍ（実施例９～１２）又は１０ｐｐｍ（実施例１３～１４）となるようにエピカテキン類溶液へ添加し、コロソリン酸含有飲料を得た。得られた飲料をよく混合し、均一にしたのち１．５ｍＬエッペンチューブに移した。

実施例１と同じ方法で、遠心後に上清を採取し、ＬＣ－ＭＳ／ＭＳを用いて分析し、上清中のコロソリン酸濃度を算出した。

[0050] ＜比較例３～４＞

超純水（Ｍｉｌｌｉ－Ｑ）に、コロソリン酸を、その含有量が５ｐｐｍ又は１０ｐｐｍとなるように添加し、コロソリン酸含有飲料を得た。得られた飲料をよく混合し、均一にしたのち１．５ｍＬエッペンチューブに移した。実施例１と同じ方法で、遠心後に上清を採取し、ＬＣ－ＭＳ／ＭＳを用いて分析し、上清中のコロソリン酸の濃度を算出した。

[0051] 実施例９～１４で調製した飲料の上清中のコロソリン酸濃度について、コロソリン酸の添加量が同じで、エピカテキン類が０ｐｐｍの飲料（比較例３～４）の上清中に検出されるコロソリン酸濃度を１とした相対比を求めた。実施例９～１４及び比較例３～４の結果を表３に示す。表３に示す実施例９～１２の上清中濃度の相対比は、比較例３の飲料の上清中のコロソリン酸濃度

に対する相対値である。実施例１３～１４の上清中濃度の相対比は、比較例４の飲料の上清中のコロソリン酸濃度に対する相対値である。

[0052] [表3]

	エピカテキン類添加量(ppm)	コロソリン酸添加量(ppm)	上清中濃度の相対比
比較例3	0	5	1.00
実施例9	1.7	5	1.03
実施例10	17	5	1.15
実施例11	170	5	1.13
実施例12	340	5	1.22
比較例4	0	10	1.00
実施例13	1.7	10	1.07
実施例14	17	10	1.04

[0053] ＜実施例１５～２０＞

エピカテキン類を合計６８０～１７００ｐｐｍの濃度となるように超純水（Ｍｉｌｌｉ－Ｑ）を用いて希釈し、エピカテキン類溶液を得た。次に、コロソリン酸を、その含有量が１ｐｐｍ（実施例１５～１７）又は２ｐｐｍ（実施例１８～２０）となるようにエピカテキン類溶液へ添加し、コロソリン酸含有飲料を得た。得られた飲料をよく混合し、均一にしたのち１．５ｍＬエッペンチューブに移した。実施例１と同じ方法で、遠心後に上清を採取し、ＬＣ－ＭＳ／ＭＳを用いて分析し、上清中のコロソリン酸濃度を算出した。

[0054] ＜比較例５～６＞

超純水（Ｍｉｌｌｉ－Ｑ）に、コロソリン酸の含有量が１ｐｐｍ又は２ｐｐｍとなるように添加し、コロソリン酸含有飲料を得た。得られた飲料をよく混合し、均一にしたのち１．５ｍＬエッペンチューブに移した。実施例１と同じ方法で、遠心後に上清を採取し、ＬＣ－ＭＳ／ＭＳを用いて分析し、上清中のコロソリン酸の濃度を算出した。

[0055] 実施例１５～２０で調製した飲料の上清中のコロソリン酸濃度について、コロソリン酸の添加量が同じで、エピカテキン類が０ｐｐｍの飲料（比較例５～６）の上清中に検出されるコロソリン酸濃度を１とした相対比を求めた。実施例１５～２０の結果を表４に示す。表４に示す実施例１５～１７の上清中濃度の相対比は、比較例５の飲料の上清中のコロソリン酸濃度に対する相

対値である。実施例１８～２０の上清中濃度の相対比は、比較例６の飲料の上清中のコロソリン酸濃度に対する相対値である。

[0056] [表4]

	エピカテキン類添加量(ppm)	コロソリン酸添加量(ppm)	上清中濃度の相対比
比較例5	0	1	1.00
実施例15	680	1	1.50
実施例16	1360	1	1.57
実施例17	1700	1	1.75
比較例6	0	2	1.00
実施例18	680	2	1.06
実施例19	1360	2	1.18
実施例20	1700	2	1.14

[0057] 各実施例におけるコロソリン酸濃度の相対比（上清中濃度の相対比）が１を上回った場合、エピカテキン類の共存により、コロソリン酸の水への溶解性が向上したと捉えることができる。上記の結果から、コロソリン酸をエピカテキン類化合物を含まない水に溶解させた場合と比較して、エピカテキン類化合物を含有する水溶液中に溶解させた場合、コロソリン酸の水への溶解性が向上することが示された。

[0058] 比較例１及び５で調製したコロソリン酸含有飲料の上清中のコロソリン酸の濃度は０．２６ｐｐｍであった。実施例１～２０及び比較例１～６の中で、比較例１及び５で調製したコロソリン酸含有飲料の上清中のコロソリン酸濃度（０．２６ｐｐｍ）が一番低かった。また、実施例１～２０及び比較例１～６の中で、添加したコロソリン酸（１００重量％）に対する上清に含まれるコロソリン酸の割合（水に溶解したコロソリン酸の割合（重量％））も、比較例１及び５のコロソリン酸含有飲料が一番低かった。実施例１～２０で調製したコロソリン酸含有飲料では、上清に含まれるコロソリン酸は、添加したコロソリン酸（１００重量％）に対して４０重量％以上であった。

産業上の利用可能性

[0059] 本発明は、飲食品分野等において有用である。

請求の範囲

[請求項1] コロソリン酸を含有する飲料であって、
エピカテキン、エピガロカテキン、エピカテキンガレート及びエピガロカテキンガレートからなる群より選択される少なくとも１種のエピカテキン類化合物を含有し、
コロソリン酸の含有量が１ｐｐｍ以上であり、コロソリン酸の少なくとも一部が飲料に溶解している、コロソリン酸含有飲料。

[請求項2] エピカテキン、エピガロカテキン、エピカテキンガレート及びエピガロカテキンガレートの合計濃度が１．７～１７００ｐｐｍである請求項１に記載のコロソリン酸含有飲料。

[請求項3] 容器詰飲料である請求項１又は２に記載のコロソリン酸含有飲料。

[請求項4] 容器が、ペットボトル、缶、瓶又はレトルトパウチである請求項３に記載のコロソリン酸含有飲料。

[請求項5] 容器がペットボトルである請求項３又は４に記載のコロソリン酸含有飲料。

[請求項6] コロソリン酸を含有する飲料の製造方法であって、
エピカテキン、エピガロカテキン、エピカテキンガレート及びエピガロカテキンガレートからなる群より選択される少なくとも１種のエピカテキン類化合物の存在下で、水及びコロソリン酸を混合することにより、エピカテキン類化合物、コロソリン酸及び水を含有し、コロソリン酸の少なくとも一部が溶解している飲料を得る飲料調製工程を含み、
前記飲料調製工程において、飲料中のコロソリン酸の含有量が１ｐｐｍ以上となるようにコロソリン酸を水と混合する、コロソリン酸含有飲料の製造方法。

[請求項7] 前記飲料調製工程において、飲料中のエピカテキン、エピガロカテキン、エピカテキンガレート及びエピガロカテキンガレートの合計濃度が、１．７～１７００ｐｐｍの範囲となるエピカテキン類化合物を存

在させる、請求項６に記載の製造方法。