

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2007年11月1日 (01.11.2007)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2007/122817 A1

- (51) 国際特許分類:
A23F 3/16 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2007/000413
- (22) 国際出願日: 2007年4月16日 (16.04.2007)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願2006-113436 2006年4月17日 (17.04.2006) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 花王株式会社 (KAO CORPORATION) [JP/JP]; 〒1038210 東京都中央区日本橋茅場町1丁目14番10号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 阿部 哲也 (ABE, Tetsuya) [JP/JP]; 〒3140103 茨城県神栖市東深芝20 花王株式会社研究所内 Ibaraki (JP). 植岡 秀晃 (UEOKA, Hideaki) [JP/JP]; 〒3140103 茨城県神栖市東深芝20 花王株式会社研究所内 Ibaraki (JP). 柴田 啓二 (SHIBATA, Keiji) [JP/JP]; 〒3140103 茨城県神栖市東深芝20 花王株式会社研究所内 Ibaraki (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人アルガ特許事務所 (THE PATENT CORPORATE BODY ARUGA PATENT OFFICE); 〒1030013 東京都中央区日本橋人形町1丁目3番6号共同ビル Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MT, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告書
- 2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: PROCESS FOR PRODUCING PURIFIED GREEN TEA EXTRACT

(54) 発明の名称: 精製緑茶抽出物の製造法

(57) Abstract: A process for producing a purified green tea extract which comprises mixing a green tea extract, which has been treated with an enzyme having a tannase activity, with a liquid mixture comprising an organic solvent and water at a ratio by mass of higher than 90/10 but not higher than 97/3, and then separating the precipitate thus formed. Namely, a process for producing a purified green tea extract easy to take, which contains unpolymerized catechins at a high concentration, has an improved taste obtained by reducing bitterness/astringency and reducing the miscellaneous taste caused by dietary fibers originating in the green tea and has a decreased protein content, from a green tea extract.

(57) 要約: タンナーゼ活性を有する酵素で処理した緑茶抽出物を有機溶媒と水の質量比が90/10を超え97/3以下の混合溶液に混合し、生成した沈殿を分離する精製緑茶抽出物の製造方法。 緑茶抽出物から非重合体カテキン類を高濃度に含有し、苦渋味を低減し、緑茶由来の食物繊維を原因とする雑味を低減することにより呈味が改善、更にタンパク質を低減し、飲用しやすい精製緑茶抽出物を製造する方法である。

WO 2007/122817 A1

明 細 書

精製緑茶抽出物の製造法

技術分野

[0001] 本発明は、緑茶抽出物から、非重合体カテキン類を高濃度に含有し、苦渋味と、緑茶由来の食物繊維を原因とする雑味を低減することにより呈味が改善され、更にタンパク質を低減し、飲用しやすい精製緑茶抽出物を製造する方法に関する。

背景技術

[0002] カテキン類はコレステロール上昇抑制作用や α -アミラーゼ活性阻害作用等を有することが知られている（特許文献1～2）。カテキン類のこのような生理効果を発現させるには、成人一日あたり4～5杯のお茶を飲むことが必要である。このため、より簡便に大量のカテキン類を摂取できるよう、飲料にカテキン類を高濃度に配合する技術が望まれている。

[0003] この方法の一つとして、緑茶抽出物の濃縮物（特許文献3）等を利用して、カテキン類を飲料に溶解状態で添加する方法がある。しかしながら、カテキンを高濃度に配合する対象となる飲料によっては、例えばスポーツドリンクや紅茶飲料にカテキンを配合する場合など、緑茶由来のカフェインや夾雑物による雑味及び苦渋味の残存が飲料の商品価値を大きく損ねることがわかっている。

[0004] 一般的には、茶系飲料、特に紅茶系の飲料を低温保存した場合、懸濁現象、即ちティークリームを形成する現象が生じるが、このティークリームを抑制する手段として茶抽出液のタンナーゼ活性を有する酵素による処理が知られている（特許文献4）。更にカテキン含有緑茶抽出物にタンナーゼ活性を有する酵素による処理を行い、カテキン類中のガレート体を低減することで、苦渋味を低減することが出来ることが知られている（特許文献5、6）。また、緑茶抽出物からカフェインや夾雑物を取り除く方法としては、吸着法（特許文献7、8）、抽出法（特許文献9）等が知られている。

特許文献1：特開昭60-156614号公報

特許文献2：特開平3-133928号公報

特許文献3：特開昭59-219384号公報

特許文献4：特開昭51-115999号公報

特許文献5：特開2004-321105号公報

特許文献6：特開2005-130809号公報

特許文献7：特開平6-142405号公報

特許文献8：特開2004-222719号公報

特許文献9：特開2005-270094号公報

発明の開示

[0005] 本発明は、タンナーゼ活性を有する酵素で処理した緑茶抽出物を有機溶媒と水の質量比が90/10を超え97/3以下の混合溶液に混合し、生成した沈殿を分離する精製緑茶抽出物の製造方法を提供するものである。

[0006] また、本発明は（a）固形分当たりで非重合体カテキン類を20～90質量%含有し、（b）非重合体カテキン類中のガレート体率が0～50質量%、（c）カフェイン/非重合体カテキン類質量比が0～0.25、（d）（タンパク質+食物繊維）/非重合体カテキン類質量比率が0.12以下である精製緑茶抽出物、及びそれを配合した容器詰飲料を提供するものである。

発明の詳細な説明

[0007] 従来の緑茶抽出物のタンナーゼ活性を有する酵素での処理においては、苦渋味は低減できるが、その他食物繊維等の夾雑物が低減されていない為、緑茶由来の雑味が残存し、呈味向上が成されないという課題があった。更にタンナーゼ活性を有する酵素での処理においては、タンナーゼが溶液中に入り、それが熱処理等で失活され、失活された酵素由来のタンパク質が処理後の緑茶抽出物中に残存する。タンパク質は近年問題となってきたアレルギー性物質である為、酵素由来のタンパク質や緑茶由来のタンパク質を低減する方法が望まれていた。また、カフェインや夾雑物を取り除く方法においても、カフェインや夾雑物による雑味低減は出来るが、苦渋味低減が成されな

いという課題があった。

従って本発明は、緑茶抽出物から、非重合体カテキン類を高濃度に含有し、苦渋味と緑茶由来の食物繊維を原因とする雑味を低減することにより呈味が改善され、更にタンパク質を低減し、飲用しやすい精製緑茶抽出物を効率的に製造する方法を提供することにある。

[0008] 本発明者は、非重合体カテキン類の抽出効率の向上とタンパク質、苦渋味、雑味の低減という相反する課題を同時に解決すべく、まず緑茶抽出物をタンナーゼ活性を有する酵素で処理し、次いで一定の比率の有機溶媒と水の混合溶液に混合させて、生成した沈殿を分離することで、効率良く非重合体カテキン類が抽出でき、かつ得られた抽出物は、苦渋味、緑茶由来の食物繊維を原因とする雑味が著しく低減され、更にタンパク質が低減されていることを見出した。

[0009] 本発明の精製緑茶抽出物は簡易な製造工程で製造され、得られた精製緑茶抽出物は、雑味・苦渋味が著しく低減され、タンパク質が低減されているにも関わらず、高い非重合カテキン類濃度を維持しており、かつ色相が良い。これを含む容器詰飲料は、緑茶由来の雑味・苦渋味が無く飲用し易く、澄明で安定した外観を呈する。

[0010] 本発明で用いる原料緑茶抽出物は、非重合体カテキン類を1種以上含有するものである。非重合体カテキン類とは、カテキン、ガロカテキン、カテキンガレート、ガロカテキンガレート等の非エピ体カテキン類及びエピカテキン、エピガロカテキン、エピカテキンガレート、エピガロカテキンガレート等のエピ体カテキン類をあわせての総称である。

[0011] 本発明における非重合体カテキンガレート体とは、カテキンガレート、ガロカテキンガレート、エピカテキンガレート、エピガロカテキンガレート4種を合わせたの総称である。ガレート体率とは、カテキン、ガロカテキン、カテキンガレート、ガロカテキンガレート等、エピカテキン、エピガロカテキン、エピカテキンガレート、エピガロカテキンガレート等の質量和に対する非重合カテキンガレート体4種の質量和の100分率の値である。

[0012] 本発明で用いる緑茶抽出物としては、緑茶、紅茶、烏龍茶等の茶葉から得られた抽出液が挙げられる。また、超臨界状態の二酸化炭素接触処理を施した茶葉を用いて抽出した抽出物を用いてもよい。その他のカフェイン含有植物、例えばコーヒー由来等のカフェインと茶抽出液の混合物等も用いることができる。又はそれを濃縮若しくは乾燥したもの等が挙げられる。使用する茶葉としては、より具体的には、*Camellia*属、例えば*C. sinensis*、*C. assamica*及びやぶきた種又はそれらの雑種等から得られる生茶葉又は生茶葉から製茶された茶葉が挙げられる。製茶された茶葉には、煎茶、番茶、玉露、てん茶、釜炒り茶等の緑茶類がある。

[0013] 茶葉から緑茶抽出物を得る為の抽出方法は、抽出溶媒として水又は水溶性有機溶媒又はそれらの混合物を使用し、攪拌抽出等の方法により行うことができる。抽出の際、抽出溶媒にあらかじめアスコルビン酸ナトリウム等の有機酸又は有機酸塩類を添加してもよい。また、煮沸脱気や窒素ガス等の不活性ガスを通気して溶存酸素を除去しつつ、いわゆる非酸化的雰囲気下で抽出する方法を併用してもよい。この得られた抽出液をそのまま用いるか、又はこれを濃縮又は乾燥して用いる。緑茶抽出物の形態としては、液体、スラリー、半固体、固体の状態が挙げられる。茶葉からの抽出溶媒に有機溶媒が含有している場合は、酵素失活抑制の点から酵素処理前に除去した方が好ましい。

[0014] 本発明に使用する緑茶抽出物には茶葉から抽出した抽出液を使用する代わりに、緑茶抽出物の濃縮物又は乾燥物を水に希釈又は溶解して用いても、茶葉からの抽出液と緑茶抽出物の濃縮物又は乾燥物の希釈又は溶解液とを併用してもよい。

ここで、緑茶抽出物の濃縮物又は乾燥物とは、茶葉から熱水又は水溶性有機溶媒により抽出された抽出物を濃縮したものであり、例えば、特開昭59-219384号公報、特開平4-20589号公報、特開平5-260907号公報、特開平5-306279号公報等に記載されている方法により調製したものをいう。具体的には、緑茶抽出物として、市販の東京フードテ

クノ社製「ポリフェノン」、伊藤園社製「テアフラン」、太陽化学社製「サンフェノン」等の粗カテキン製剤を用いることもできる。

[0015] 本発明においては、まず緑茶抽出物をタンナーゼ活性を有する酵素で処理する。ここでタンナーゼ活性を有するとは、タンニン分解する活性を有するものであり、本活性を有するものが使用できる。その起源は、特に限定されるものではないが、アスペルギルス属、ペニシリウム属、リゾプス属、ムコール属などに属するタンナーゼ生産菌を、常法にしたがって培養し得られるタンナーゼが挙げられ、未精製であっても精製品であっても用いることができる。具体的には、タンナーゼ活性を有する酵素として市販品では、タンナーゼ「キッコーマン」（キッコーマン社製）、タンナーゼ「三共」（三共ライフテック社製）、スミチームTAN（新日本化学社製）などを用いてもよい。当該タンナーゼ活性を有する酵素での処理により、非重合体カテキン類中のガレート体のエステル結合が加水分解され非重合体カテキンガレート体率が低下する。

[0016] 緑茶抽出物をタンナーゼ活性を有する酵素で処理をする時の非重合体カテキン濃度は、好ましくは0.1～2.2質量%、更に好ましくは0.25～1.8質量%、特に好ましくは0.5～16.5質量%である。0.1質量%未満ではこの後の濃縮工程への負荷が大きくなり生産性の面から好ましくない。また、2.2質量%を超えると、加水分解処理に長時間を要し、生産性及び緑茶抽出物の風味の点から好ましくない。タンナーゼ活性を有する酵素による処理の具体的な手法としては、非重合体カテキンガレート体の低減効果、及び最適の非重合体カテキンガレート体率で酵素反応を停止する点から、緑茶抽出物中の非重合体カテキン類に対してタンナーゼ活性を有する粉末又は溶液状の酵素を、好ましくは1～300 Unit/g-非重合体カテキン、更に好ましくは3～200 Unit/g-非重合体カテキン、特に好ましくは5～150 Unit/g-非重合体カテキンになるように添加する。ここで1 Unitは30℃の水中においてタンニン酸に含まれるエステル結合を1マイクロモル加水分解する酵素量を示す。また、酵素処理時の保持温度は

、5～60℃が好ましく、更に好ましくは10～50℃、特に好ましくは10～45℃に保持し処理を行う。

[0017] 本発明のタンナーゼ活性を有する酵素での処理においては、非重合体カテキンガレート体率の低減は、苦渋味低減の面から5質量%以上であるのが好ましい。5質量%未満だと、非重合体カテキンガレート体の減少が少なく、苦渋味低減効果が期待できない。また、緑茶抽出物中の非重合体カテキンガレート体率は苦渋味抑制の面から0～50質量%が好ましく、更に好ましくは5～48質量%の範囲に制御される。このタンナーゼ活性を有する酵素処理によるガレート体率の制御は処理時の緑茶抽出液のpHによって反応の終点を決定することが好ましい。反応の終点のpHは3.0～6.0、特に3.3～5.3が好ましい。

[0018] 酵素による加水分解反応を終了させる為に、酵素活性を失活させ反応を停止する。酵素失活の温度は、60～100℃が好ましく、更に好ましくは75～95℃である。60℃未満では酵素を短時間で十分に失活することが困難であるため反応が進行し、目的的非重合体カテキンガレート体率の範囲内で酵素反応を停止することができない。又、失活温度に到達してからの保持時間は10～1800秒、更に30～1200秒、特に30～600秒が酵素失活及び風味の点から好ましい。酵素反応の失活方法は、バッチ式加熱もしくはプレート型熱交換機、ホールディングチューブ等を使用した連続保持式加熱等で行う方法が挙げられる。

[0019] 酵素処理後あるいは酵素処理前に緑茶抽出液中に残留する微粉を除去する為に、抽出液を遠心分離するのが好ましい。遠心分離機の形式は、微粉を除去するのに十分な遠心力を持つものが好ましく、工業的には大量処理に適した連続式遠心分離機が用いられる。

[0020] 次いで、タンナーゼ活性を有する酵素で処理された緑茶抽出物は、例えば減圧濃縮、逆浸透膜処理等で濃縮するのが好ましい。また、必要により、例えば噴霧乾燥、凍結乾燥で乾燥できる。ここでの酵素処理緑茶抽出物の形態としては液体、スラリー、半固体、固体の状態が挙げられる。エタノール等

の有機溶媒中での分散性の観点から、スラリー、半固体、固体の状態が好ましい。また、本発明のタンナーゼ活性を有する酵素で処理した緑茶抽出物には、タンナーゼ活性を有する酵素で処理された緑茶抽出物と未処理の緑茶抽出物を混合し、混合後の非重合体カテキングレート体率が0～50質量%の範囲であるものを用いても良い。

[0021] 本発明の精製緑茶抽出物は前記のタンナーゼ活性を有する酵素で処理した緑茶抽出物を有機溶媒と水の質量比が90/10を超え97/3以下の混合溶液に混合し、次いで生成した沈殿を分離して製造される。

[0022] 本発明の精製緑茶抽出物の製造に用いる有機溶媒としては、エタノール、メタノール、アセトン、酢酸エチル等が挙げられる。これらのうち、メタノール、エタノール、アセトンの親水性有機溶媒が好ましく、特に食品への使用を考慮するとエタノールが好ましい。水としては、イオン交換水、水道水、天然水等が挙げられる。この有機溶媒と水は、混合して又はそれぞれ別々に緑茶抽出物と混合してもよいが、混合溶液としてから緑茶抽出物と混合するのが好ましい。

[0023] 本発明においては、緑茶抽出物を有機溶媒と水の混合溶液に分散させる時の有機溶媒と水の質量比は、非重合体カテキン類の抽出効率及び風味の点から90/10を超え97/3以下、好ましくは92/8～97/3、更に好ましくは92/8～95/5の範囲に調整する。次いで、生成した沈殿物はろ過等の公知の方法で除去する。

[0024] 本発明においては、有機溶媒と水の混合溶液100質量部に対して、乾燥質量換算の緑茶抽出物を10～40質量部、特に10～30質量部添加して処理するのが、緑茶抽出物を効率よく処理できるので好ましい。

[0025] 本発明においては、有機溶媒と水の混合溶液に緑茶抽出物を混合する方法は、特に制限されず、非重合体カテキン類組成物を最終的に処理する際の有機溶媒と水の質量比が90/10を超え97/3以下になっていれば良い。例えば、緑茶抽出物を水に溶解した後に有機溶媒を添加していくことによって有機溶媒と水の質量比を90/10を超え97/3以下の範囲にしても良

く、緑茶抽出物を有機溶媒に懸濁させた後、徐々に水を添加して同様の比率としても良い。抽出効率の点から、水に溶解後に有機溶媒を添加していく方法が好ましい。水と有機溶媒の混合溶液又はそれぞれの添加時間は、10～60分程度の時間でゆっくり滴下するのが好ましい。また、カテキン類の抽出効率を上げるために攪拌状態で滴下するのが好ましい。滴下終了後は10～600分程度の熟成時間を設けると更に好ましい。これらの処理は、10～60℃で行うことができ、特に10～50℃、更に10～40℃で行うのが好ましい。また緑茶抽出物は1回で全量添加しても良いが、2回以上、例えば2～4回に分割して添加しても良い。次いで、生成した沈殿物はろ過等の方法で除去する。

[0026] 更に、沈殿物の除去された混合溶液中の有機溶媒と水の質量比が40/60～70/30、好ましくは45/55～60/40となるように、混合溶液に加水及び/又は混合溶液から脱有機溶媒するのが好ましい。混合溶液から有機溶媒の含有量を減ずるには、減圧蒸留等の方法で有機溶媒を留去することにより行われる。また、沈殿除去処理後の混合溶液に加水する場合は、イオン交換水、水道水、天然水等の水を加えることにより行われる。

[0027] 加水及び/又は脱有機溶媒をした後、濁り成分を析出させる熟成時間は、特に限定されない。例えば、2分～50時間、更に2分～24時間、特に5分～6時間であるのが好ましい。また、濁り成分の析出温度は、-15～78℃、更に-5～40℃、特に5～25℃であるのが好ましい。濁り成分を析出させた後、混合溶液から濁り成分を分離するときの温度は、-15～78℃、更に-5～40℃、特に5～25℃であるのが好ましい。この温度の範囲外であると、分離性が劣り、また溶液の性状に変化が見られるような場合がある。濁り成分を分離する時の方法は特に制限されず、例えば遠心分離法、ろ過法等が挙げられる。

[0028] 本発明においては、必要に応じてカフェインを除去する為に、緑茶抽出物を有機溶媒と水の混合溶液に混合する際に活性炭及び/又は酸性白土若しくは活性白土と接触させるのが好ましい。

- [0029] 用いる活性炭としては、一般に工業レベルで使用されているものであれば特に制限されず、例えば、ZN-50（北越炭素社製）、クラレコールGLC、クラレコールPK-D、クラレコールPW-D（クラレケミカル社製）、白鷺AW50、白鷺A、白鷺M、白鷺C（武田薬品工業社製）等の市販品を用いることができる。活性炭の細孔容積は0.01~0.8 mL/g、特に0.1~0.7 mL/gが好ましい。また、比表面積は800~2000 m²/g、特に900~1600 m²/gの範囲のものが好ましい。なお、これらの物性値は窒素吸着法に基づく値である。
- [0030] 活性炭は、有機溶媒と水の混合溶液100質量部に対して0.5~15質量部、更に0.5~10質量部、特に1.0~8質量部添加するのが好ましい。活性炭の添加量が少なすぎると、カフェイン除去効率が悪くなり、また多すぎるとろ過工程におけるケーキ抵抗が大きくなり好ましくない。
- [0031] 用いる酸性白土又は活性白土は、ともに一般的な化学成分として、SiO₂、Al₂O₃、Fe₂O₃、CaO、MgO等を含有するものであるが、SiO₂/Al₂O₃比が3~12、特に4~9であるのが好ましい。またFe₂O₃を2~5質量%、CaOを0~1.5質量%、MgOを1~7質量%含有する組成のものが好ましい。活性白土は天然に産出する酸性白土（モンモリロナイト系粘土）を硫酸等の鉱酸で処理したものであり、大きい比表面積と吸着能を有する多孔質構造をもった化合物である。酸性白土を更に、酸処理することにより比表面積が変化し、脱色能の改良及び物性が変化することが知られている。
- [0032] 酸性白土又は活性白土の比表面積は、酸処理の程度等により異なるが、50~350 m²/gであるのが好ましく、pH（5質量%サスペンション）は2.5~8、特に3.6~7のものが好ましい。例えば、酸性白土としては、ミズカエース#600（水澤化学社製）等の市販品を用いることができる。
- [0033] 酸性白土又は活性白土は、有機溶媒と水の混合溶液100質量部に対して0.5~30質量部、更に1.5~20質量部、特に2.5~15質量部添

加するのが好ましい。酸性白土又は活性白土の添加量が少なすぎると、カフェイン除去効率が悪くなり、また多すぎるとろ過工程におけるケーキ抵抗が大きくなり好ましくない。

[0034] また、活性炭と酸性白土又は活性白土を併用する場合の割合は、質量比で活性炭 1 に対して 1～10 がよく、特に活性炭：酸性白土又は活性白土＝1：1～1：6 であるのが好ましい。

[0035] 本発明において、必要に応じてカフェインを選択的に除去する為に、緑茶抽出物を有機溶媒と水の混合溶液に混合する際に活性炭及び／又は酸性白土若しくは活性白土と接触させるのが好ましいが、その場合の緑茶抽出物、有機溶媒と水の混合溶液並びに活性炭及び／又は酸性白土若しくは活性白土との接触順序は特に限定されない。例えば（1）有機溶媒と水の混合溶液に緑茶抽出物を添加し、活性炭接触、次いで酸性白土又は活性白土接触する方法、（2）有機溶媒と水の混合溶液に緑茶抽出物を添加し、酸性白土又は活性白土接触、次いで活性炭接触する方法、（3）有機溶媒と水との混合溶液に活性炭を添加し、これに緑茶抽出物を添加し、次いで酸性白土又は活性白土を添加する方法等が挙げられるが、（4）有機溶媒と水の混合溶液に酸性白土又は活性白土を添加し、これに緑茶抽出物を添加し、次いで活性炭を添加する方法が好ましい。

これらの各成分添加と次の成分添加との間にはろ過を行うのが好ましい。また緑茶抽出物を 2 回以上に分割して添加した場合、その間にろ過を行ってもよい。

[0036] 更に、緑茶抽出物を酸性白土又は活性白土と、有機溶媒と水の混合溶液との分散液と接触混合する場合、接触するときの pH を 3～6 の範囲に調整して行うことが、非重合体カテキン類を効率よく抽出し、精製緑茶抽出物を得るために好ましい。接触の際、クエン酸、乳酸、酒石酸、コハク酸、リンゴ酸等の有機酸を、有機酸と非重合体カテキン類の質量比率（有機酸／非重合体カテキン類）が 0.02～0.20 の範囲で添加するのが好ましい。

[0037] また、緑茶抽出物を酸性白土又は活性白土と、有機溶媒と水の混合溶液と

の分散液と接触混合する場合、接触するときの液の温度は始めに10～30℃とし、その後20～60℃に昇温すると、緑茶抽出物の溶解が促進されるという点及び分散液へのカテキン抽出効率が促進されるという点で好ましい。

[0038] 本発明において、緑茶抽出物を有機溶媒と水の質量比が90/10を超え97/3以下の混合溶液に混合し、次いで生成した沈殿を除去した後に、更に必要に応じて混合溶液中の有機溶媒と水の質量比が40/60～70/30、好ましくは45/55～60/40となるように、混合溶液に加水及び/又は混合溶液から脱有機溶媒、次いで析出した濁り成分を分離する。

具体的には、活性炭及び/又は酸性白土又は活性白土接触混合する場合は、まず緑茶抽出物を有機溶媒と水の質量比が90/10を超え97/3以下の混合溶液に混合させ、活性炭及び/又は酸性白土若しくは活性白土と接触処理し、次いで生成している沈殿とともに活性炭及び/又は酸性白土又は活性白土を除去し、ろ液部分に加水及び/又は脱有機溶媒を行い、析出した濁り成分を分離するのが好ましい。また、活性炭との接触は、次の工程の加水及び/又は脱有機溶媒を行う前に行っても良いし、加水及び/又は脱有機溶媒を行い、析出した濁り成分を分離した後に活性炭と接触させても良い。

[0039] 緑茶抽出物溶液と活性炭及び酸性白土又は活性白土、活性炭とを接触する場合の処理は、バッチ式、カラムによる連続処理等のいずれの方法で行ってもよい。一般には、粉末状の活性炭等を添加、攪拌し、カフェインを選択的に吸着後、ろ過操作によりカフェインを除去したろ液を得る方法又は顆粒状の活性炭等を充填したカラムを用いて連続処理によりカフェインを選択的に吸着する方法等が挙げられる。また、緑茶抽出物と活性炭との接触方法は、活性炭カラムによる連続処理等の方法で行うのが好ましい。

[0040] 本発明においては、タンナーゼ活性を有する酵素で処理した緑茶抽出物を有機溶媒と水の質量比が90/10を超え97/3以下の混合溶液に混合し、次いで生成した沈殿を分離する。必要に応じて沈殿分離後の混合溶液に加水及び/又は混合溶液から脱有機溶媒して混合溶液中の有機溶媒と水の質量

比が40/60~70/30の範囲とし、次いで析出した濁り成分を分離する。次に、活性炭及び酸性白土又は活性白土と接触処理を行うことができる。緑茶抽出物の溶液は、系中から有機溶媒を取り除くべく減圧蒸留などの方法を用いて留去できる。また、処理後の緑茶抽出物は液状でも固体状でもいづれでも良いが、固体状態を調製する場合には凍結乾燥やスプレードライなどの方法によって粉末化しても良い。

[0041] 精製緑茶抽出物は、その固形分中に、非重合体カテキン類を20~90質量%、更に30~90質量%、特に35~90質量%含有するのが好ましい。また、精製緑茶抽出物中の非重合体カテキングレート体率は0~50質量%、特に5~48質量%が好ましい。更に、精製緑茶抽出物中のカフェイン濃度は非重合体カテキン類に対して、カフェイン/非重合体カテキン類質量比が0~0.25、更に0~0.18、特に0~0.12であるのが好ましい。また、精製緑茶抽出物中の(タンパク質+食物繊維)の濃度は非重合体カテキン類に対して、(タンパク質+食物繊維)/非重合体カテキン類質量比が0.12以下、特に0.1以下であるのが好ましい。

[0042] 精製緑茶抽出物は、苦渋味、緑茶由来の食物繊維を原因とする雑味が著しく低減され、タンパク質が低減されているにも関わらず、高い非重合カテキン類濃度を維持しており、かつ色相が良い。従って、精製緑茶抽出物は容器詰飲料として有用であり、特に緑茶、烏龍茶、ブレンド茶、紅茶、麦茶等の茶系飲料、スポーツ飲料、アイソトニック飲料、ニアウォーター等の非茶系飲料として有用である。

[0043] 本発明の容器詰飲料中には、水に溶解状態にある非重合体カテキン類を、0.03~1.0質量%含有するが、好ましくは0.04~0.5質量%、より好ましくは0.06~0.4質量%、更に好ましくは0.07~0.4質量%、特に好ましくは0.08~0.3質量%、殊更好ましくは0.09~0.3質量%、もっとも好ましくは0.1~0.3質量%含有する。非重合体カテキン類含量がこの範囲にあると、多量の非重合カテキン類を容易に摂取しやすく、飲料調製直後の色調の点からも好ましい。当該非重合体カテ

キン類の濃度は、タンナーゼ活性を有する酵素で処理された緑茶抽出物の精製物の配合量によって調整することができる。

[0044] 本発明のタンナーゼ活性を有する酵素で処理された緑茶抽出物の精製物の配合された容器詰飲料における非重合体カテキングレート体率は0～63質量%、更に5～56質量%、特に5～48質量%が好ましい。カフェインの濃度はカフェイン／非重合体カテキン類質量比が0～0.25、更に0～0.18、特に0～0.12であるのが好ましい。これらガレート体率やカフェイン濃度は、別の緑茶抽出物若しくは緑茶抽出液を添加して調整することもできる。

[0045] 本発明の容器詰飲料には、ナトリウムイオン及び／又はカリウムイオンを含有させてもよい。これらのイオンを含有させた本発明飲料は、スポーツドリンク、アイソトニック飲料等の飲料形態として有用である。スポーツドリンクとは、身体運動後に汗として失われる水分、ミネラルを速やかに補給できる飲料であると一般的に規定される。

[0046] 主な生理電解質の中にはナトリウム及びカリウムがある。これらのイオン成分はそれらに対応する水溶性成分ないし、無機塩を添加することで含有させることができる。それらは果汁及び茶抽出物中にも存在する。本発明飲料中における電解質又はイオン成分の量は最終の飲用しうる容器詰飲料中の含有量である。電解質濃度はイオン濃度で示される。カリウムイオン成分は、塩化カリウム、炭酸カリウム、硫酸カリウム、酢酸カリウム、炭酸水素カリウム、クエン酸カリウム、リン酸カリウム、リン酸水素カリウム、酒石酸カリウム、ソルビン酸カリウム等又はそれらの混合物のような塩として、あるいは加えられた果汁又は茶の成分として本発明飲料に配合できる。カリウムイオンは、0.001～0.2質量%、更に0.002～0.15質量%、更に0.003～0.12質量%本発明の容器詰飲料中に含有することが好ましい。同様に、ナトリウムイオン成分は、塩化ナトリウム、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、クエン酸ナトリウム、リン酸ナトリウム、リン酸水素ナトリウム、酒石酸ナトリウム、安息香酸ナトリウム等及びそれらの混

合物のような容易に入手しうるナトリウム塩として、あるいは加えられた果汁又は茶の成分として配合できる。ナトリウム濃度は浸透圧による水の吸収を容易にさせる上で低い方が、体から腸に水を浸透圧吸引しないので好ましい。これを行うために必要なナトリウムの濃度は、血漿ナトリウムの場合よりも低いことが好ましい。ナトリウムイオンは、0.001~0.5質量%、更に0.002~0.4質量%、更に0.003~0.2質量%本発明の容器詰飲料中に含有するのが好ましい。カリウム及びナトリウムイオンに加えて、本発明容器詰飲料には0.001~0.5質量%、好ましくは0.002~0.4質量%、最も好ましくは0.003~0.3質量%の塩化物イオンを更に含有させることができる。塩化物イオン成分は塩化ナトリウム又は塩化カリウムのような塩の形態で配合できる。カルシウム及びマグネシウム、亜鉛、鉄のような他の微量イオンも配合してよい。これらのイオンも塩として配合してよい。飲料中に存在するイオンの合計量には、添加されたイオン量と共に、飲料中に天然で存在するイオン量を含む。例えば、塩化ナトリウムが添加された場合、その量のナトリウムイオン及びその量の塩化物イオンも、それに応じて各イオンの合計量に含まれる。

ここで、ナトリウムイオンやカリウムイオン濃度が低すぎると、飲む場面によっては味が物足りなく感じ、効果的なミネラル補給ができなくて好ましくない。一方、多すぎると、塩類自体の味が強くなり長期間の飲用に好ましくない。

[0047] 本発明の容器詰飲料には、味を改善する目的で、甘味料が用いられる。甘味料としては人工甘味料類、炭水化物類、グリセロール類（例えばグリセリン）が用いられる。これらの甘味料は、本発明容器詰飲料中に0.0001~20質量%、更に0.001~15質量%、最も好ましくは0.001~10質量%含有する。前記下限未満であると、甘みがほとんどなく、酸味、塩味とのバランスがとれない。一方上限を超えると、甘すぎて喉にひっかかる感覚が強く、喉越しが低下する。

本発明の容器詰飲料における甘味料としては、人工甘味料を使用すること

が好ましい。本発明で使用できる人工甘味料の例にはサッカリン及びサッカリンナトリウム、アスパルテーム、アセサルフェーム-K、スクラロース、ネオテームなどの高甘度甘味料、ソルビトール、エリスリトール、キシリトールなどの糖アルコールを使用できる。商品としては、アスパルテームからなるスリムアップシュガー、エリスリトールを含んだラカントS、エリスリトールとアスパルテームからなるパルスweetなどを使用できる。

[0048] 目的とする容器詰飲料がエネルギー補給を兼ね備える場合には、炭水化物類の甘味料を使用する方が好ましい。

本発明で使用できる炭水化物類甘味料としては可溶性炭水化物が用いられる。可溶性炭水化物には、甘味料とエネルギー源との役割がある。本発明飲料に使用する炭水化物を選択するにあたっては、胃排出及び腸吸収速度を考慮することが好ましい。

[0049] 炭水化物はグルコース及びフルクトースの混合物でも、あるいは消化管で加水分解するか又はグルコース及びフルクトースを形成する炭水化物であってもよい。本明細書で用いられる「炭水化物」という用語は、単糖、二糖、オリゴ糖、複合多糖及びそれらの混合物を含む。

[0050] ここで使用できる単糖にはテトロース、ペントース、ヘキソース及びケトヘキソースがある。ヘキソースの例は、ブドウ糖として知られるグルコースのようなアルドヘキソースである。本発明容器詰飲料中のグルコースの量は、0.0001~20質量%、更に0.001~15質量%、更に0.001~10質量%であるのが好ましい。果糖として知られるフルクトースはケトヘキソースである。本発明容器詰飲料中のフルクトースの量は0.0001~20質量%、更に0.001~15質量%、特に0.001~10質量%であるのが好ましい。

本発明飲料中においては、人工甘味料単独系、人工甘味料とグルコース系化合物、もしくは人工甘味料とフルクトース系化合物の組み合わせが好ましい。

[0051] 本発明で使用できる炭水化物類甘味料としては可溶性炭水化物が用いられ

るが、オリゴ糖としては、これら2種の単糖を体内で生成する炭水化物（即ち、スクロース、マルトデキストリン、コーンシロップ、高フルクトースコーンシロップ）が挙げられる。この糖の重要なタイプは二糖である。二糖の例は、ショ糖又はテンサイ糖として知られるスクロースである。本発明容器詰飲料中のスクロースの量は、0.001~20質量%、更に0.001~15質量%、特に0.001~10質量%であるのが好ましい。

[0052] 本発明の容器詰飲料のpHは2~7、好ましくは2~6.5、より好ましくは3~4.5がカテキンの安定性上良い。pHが低すぎると飲料の酸味、刺激臭が強くなる。また、pHが高すぎると風味の調和が取れなくなり、嗜好性が低下するので好ましくない。

[0053] 本発明の容器詰飲料は、苦渋味抑制剤を配合すると飲用しやすくなり好ましい。用いる苦渋味抑制剤は特に限定はないが、サイクロデキストリンが好ましい。サイクロデキストリンとしては、 α -、 β -、 γ -サイクロデキストリン及び分岐 α -、 β -、 γ -サイクロデキストリンが使用できる。サイクロデキストリンは飲料中に0.005~0.5質量%、更に0.01~0.3質量%含有するのが好ましい。本発明の容器詰飲料には、酸化防止剤、香料、各種エステル類、有機酸類、有機酸塩類、無機酸類、無機酸塩類、無機塩類、色素類、乳化剤、保存料、調味料、甘味料、酸味料、ガム、乳化剤、油、ビタミン、アミノ酸、果汁エキス類、野菜エキス類、花蜜エキス類、pH調整剤、品質安定剤等の添加剤を単独、あるいは併用して配合できる。

[0054] 香料や果汁は嗜好性を高めるために本発明の飲料に配合されるのが好ましい。一般に果汁のことをフルーツジュース、香料のことをフレーバーと呼んでいる。天然又は合成香料や果汁が本発明で使用できる。これらはフルーツジュース、フルーツフレーバー、植物フレーバー又はそれらの混合物から選択できる。特に、フルーツジュースと一緒に茶フレーバー、好ましくは緑茶又は黒茶フレーバーの組み合わせが魅力的な味を有している。好ましい果汁はリンゴ、ナシ、レモン、ライム、マンダリン、グレープフルーツ、クランベリー、オレンジ、ストロベリー、ブドウ、キウイ、パイナップル、パッシ

ョンフルーツ、マンゴ、グアバ、ラズベリー及びチェリーである。シトラスジュース、好ましくはグレープフルーツ、オレンジ、レモン、ライム、マンダリンと、マンゴ、パッションフルーツ及びグアバのジュース、又はそれらの混合物が最も好ましい。好ましい天然フレーバーはジャスミン、カミツレ、バラ、ペパーミント、サンザシ、キク、ヒシ、サトウキビ、レイシ、タケノコ等である。果汁は本発明飲料中に0.001~20質量%、更に0.002~10質量%含有するのが好ましい。フルーツフレーバー、植物フレーバー、茶フレーバー及びそれらの混合物も果汁として使用できる。特に好ましい香料はオレンジフレーバー、レモンフレーバー、ライムフレーバー及びグレープフルーツフレーバーを含めたシトラスフレーバーである。シトラスフレーバー以外にも、リンゴフレーバー、ブドウフレーバー、ラズベリーフレーバー、クランベリーフレーバー、チェリーフレーバー、パイナップルフレーバー等のような様々な他のフルーツフレーバーが使用できる。これらのフレーバーはフルーツジュース及び香油のような天然源から誘導しても、又は合成してもよい。

香料には、様々なフレーバーのブレンド、例えばレモン及びライムフレーバー、シトラスフレーバーと選択されたスパイス等を含めることができる。このような香料は本発明飲料に0.0001~5質量%、更に0.001~3質量%を配合されるのが好ましい。

[0055] 更に必要により、本発明飲料は酸味料を含有していてもよい。酸味料としては、リンゴ酸、クエン酸、酒石酸、フマル酸等のような食用酸が挙げられる。酸味料は本発明飲料のpHを調整するために用いてもよい。本発明飲料のpHは2~7であるのが好ましい。pH調整剤としては、有機及び無機の食用酸を用いることができる。酸はそれらの非解離形で、あるいはそれらの各塩、例えばリン酸水素カリウム又はナトリウム、リン酸二水素カリウム又はナトリウム塩のような形態で用いてもよい。好ましい酸は、クエン酸、リンゴ酸、フマル酸、アジピン酸、リン酸、グルコン酸、酒石酸、アスコルビン酸、酢酸、リン酸又はそれらの混合物を含めた食用有機酸である。最も好

ましい酸はクエン酸及びリンゴ酸である。酸味料は飲料成分を安定化させる酸化防止剤としても役立つ。また常用される酸化防止剤の例には、アスコルビン酸、EDTA（エチレンジアミン四酢酸）及びそれらの塩、植物抽出エキス等が配合できる。

[0056] 本発明飲料には、ビタミンを更に含有させることができる。好ましくは、ビタミンA、ビタミンEが加えられる。ビタミンD及びビタミンBのような他のビタミンを加えてもよい。ミネラルも本発明の飲料に用いることができる。好ましいミネラルはカルシウム、クロム、銅、鉄、マグネシウム、マンガ、リン、セレン、ケイ素、モリブデン及び亜鉛である。特に好ましいミネラルはマグネシウム、リン及び鉄である。

[0057] 本発明の容器詰飲料に使用される容器は、一般の飲料と同様にポリエチレンテレフタレートを主成分とする成形容器（いわゆるPETボトル）、金属缶、金属箔やプラスチックフィルムと複合された紙容器、瓶等の通常の形態で提供することができる。ここでいう容器詰飲料とは希釈せずに飲用できるものをいう。

[0058] 本発明の容器詰飲料は、例えば、金属缶のように容器に充填後、加熱殺菌できる場合にあっては食品衛生法に定められた殺菌条件で製造されるが、PETボトル、紙容器のようにレトルト殺菌できないものについては、あらかじめ上記と同等の殺菌条件、例えばプレート式熱交換器等で高温短時間殺菌後、一定の温度迄冷却して容器に充填する等の方法が採用される。また無菌下で、充填された容器に別の成分を配合して充填してもよい。更に、酸性下で加熱殺菌後、無菌下でpHを中性に戻すことや、中性下で加熱殺菌後、無菌下でpHを酸性に戻す等の操作も可能である。

実施例

[0059] 非重合体カテキン類の測定

非重合体カテキン類組成物を蒸留水で希釈し、フィルター（0.8 μm ）でろ過後、島津製作所社製、高速液体クロマトグラフ（型式SCL-10AVP）を用い、オクタデシル基導入液体クロマトグラフ用パックドカラム

L-カラムTM ODS (4.6mmφ×250mm:財団法人 化学物質評価研究機構製)を装着し、カラム温度35℃で、A液及びB液を用いたグラジエント法を用いて行った。移動相A液は酢酸を0.1mol/L含有の蒸留水溶液、B液は酢酸を0.1mol/L含有のアセトニトリル溶液とし、試料注入量は20μL、UV検出器波長は280nmの条件で行った。

[0060] カフェインの測定

(分析機器)

HPLC (日立製作所社製) 装置を使用。

プロッター: D-2500, ディテクター: L-4200

ポンプ: L-7100, オートサンプラー: L-7200

カラム: Inertsil ODS-2、内径2.1mm×長さ250mm

(分析条件)

サンプル注入量: 10μL、流量: 1.0mL/min

紫外線吸光光度計検出波長: 280nm

溶離液A: 0.1mol/L酢酸水溶液, 溶離液B: 0.1mol/L酢酸

アセトニトリル溶液

濃度勾配条件 (体積%)

時間	溶離液A	溶離液B
0分	97%	3%
5分	97%	3%
37分	80%	20%
43分	80%	20%
43.5分	0%	100%
48.5分	0%	100%
49分	97%	3%
62分	97%	3%

(カフェインのリテンションタイム)

カフェイン: 27.2分

ここで求めたエリア%から標準物質により質量%を求めた。

[0061] 色相評価

精製緑茶抽出物を非重合体カテキン濃度 180mg / 100mL になるようにイオン交換水で希釈し、そのサンプルを用い外観の評価を目視で行った。

[0062] 安定性の目視評価

精製緑茶抽出物を非重合体カテキン濃度 100mg / 100mL になるようにイオン交換水で希釈し、50mL バイアル瓶に入っている評価サンプルをイルミネーター上で内容物の状態を観察し、目視判定した。

[0063] 精製品の評価

(風味評価)

精製緑茶抽出物を非重合体カテキン濃度 180mg / 100mL になるようにイオン交換水で希釈し、評価パネラー 5 名によって雑味・苦渋味について評価を行った。

[0064] タンパク質及び遊離アミノ酸の測定

(タンパク質+遊離アミノ酸量) の計算式 :

(精製緑茶抽出物中の全窒素-カフェイン態窒素) × 換算係数

・全窒素の定量法 :

栄養表示基準 (平成 8 年 5 月厚生省告示第 146 号) における栄養成分等の分析方法等 (栄養表示基準別表第 1 の第 3 欄に掲げる方法) に準ずる窒素定量換算法 (マクロ改良ケルダール法) により求める。

・カフェイン態窒素 :

段落 (0061) 記載の測定法により求めたカフェイン量を、カフェイン分子量 ($M_w = 194$) 中の窒素分子量 ($M_w = 54$) に換算することにより求める。

・換算係数 :

栄養表示基準 (平成 8 年 5 月厚生省告示第 146 号) における栄養成分等の分析方法等 (栄養表示基準別表第 1 の第 3 欄に掲げる方法) に準ずる換算

係数（6.25）を用いる。

[0065] 遊離アミノ酸の測定

・遊離トリプトファン

（分析機器）

機種：LC-10AD（島津製作所社製）

検出器：蛍光分光光度計 RF-10Ax1

カラム：Inertsil ODS-2、内径4.6mm×長さ250mm

・遊離トリプトファンを除く遊離アミノ酸

（分析機器）

機種：L-8800形高速アミノ酸分析計（日立製作所社製）

カラム：日立カスタムイオン交換樹脂、内径4.6mm×長さ60mm

移動相：L-8500 PF緩衝液

反応液：ニンヒドリン試液

タンパク質量は（タンパク質＋遊離アミノ酸）分析値から遊離アミノ酸分析値を減じて算出。

[0066] 食物繊維の測定

栄養表示基準（平成8年5月厚生省告示第146号）における栄養成分等の分析方法等（栄養表示基準別表第1の第3欄に掲げる方法）に準ずる酵素-重量法（プロスキー法）により求める。

[0067] 実施例1 精製緑茶抽出物A

（1）緑茶抽出物（ポリフェノンHG、東京フードテクノ製）500gを水6500gに溶解し、「緑茶抽出液」7000g（pH5.6）を得た。（緑茶抽出液中の非重合体カテキン類濃度＝2.32質量%、緑茶抽出液のガレート体率＝52.9質量%、カフェイン0.41質量%）

この緑茶抽出液を温度25℃に保持し、タンナーゼ（キッコーマン社製タンナーゼKTFH、500U/g）を緑茶抽出液に対して700ppmとなる濃度で添加し、30分間保持し、ガレート体率44.2質量%になったところで、90℃に溶液を加熱して、2分間保持し酵素を失活させ、反応を止

めた (pH 5.1)。次いで減圧濃縮にて55°C、2.7 kPaでBrix濃度25%まで濃縮処理を行い、更に凍結乾燥して粉末状の「タンナーゼ活性を有する酵素で処理した緑茶抽出物」485 gを得た。得られた緑茶抽出物は非重合体カテキン類含有量31.8質量%、非重合体カテキンガレート体率44.1質量%、カフェイン含有量5.8質量%であった。

(2) 250 r/min攪拌条件下の92質量%エタノール水溶液800 g中に、(1)で得られたタンナーゼ活性を有する酵素で処理した緑茶抽出物200 gを投入し、室温のまま約6時間の攪拌を続けた (pH 5.0)。その後、生成している沈殿を2号ろ紙でろ別した。得られたろ液にイオン交換水を417 g添加し、15°C、100 r/min攪拌条件下で約5分間攪拌を行った。その混合溶液を小型冷却遠心分離機を用い (日立工機社製)、操作温度25°Cで析出した濁り成分を遠心分離で分離した (6000 rpm、5分)。分離した溶液にイオン交換水200 gを添加して、40°C、2.7 kPaでエタノールを留去し、その後、水分量を調整して「精製緑茶抽出物」を得た。

精製緑茶抽出物中の非重合体カテキン類含有量は15質量%

精製緑茶抽出物中の固形分中の非重合体カテキン類含有量は54.3質量%

精製緑茶抽出物中のカフェイン/非重合体カテキン類質量比=0.177

精製緑茶抽出物中のガレート体率=45.1質量%

精製緑茶抽出物中の (タンパク質+食物繊維) /非重合体カテキン類質量比=0.03

[0068] 実施例2 精製緑茶抽出物B

(1) 緑茶葉 (ケニア産、大葉種) 6 kgに89°Cの熱水90 kgを添加し、30分間攪拌バッチ抽出したのち、100メッシュ金網で粗ろ過後、抽出液中の微粉を除去する為に遠心分離操作を行い、「緑茶抽出液」74.7 kg (pH 5.3)を得た。(緑茶抽出液中の非重合体カテキン類濃度=0.91質量%、緑茶抽出液のガレート体率=51.2質量%、カフェイン0.

17質量%)

この緑茶抽出液を温度25°Cに保持し、タンナーゼ(キッコーマン社製タンナーゼKTFH、500U/g)を緑茶抽出液に対して260ppmとなる濃度で添加し、75分間保持し、ガレート体率39.6質量%になったところで、90°Cに溶液を加熱して、2分間保持し酵素を失活させ、反応を止めた(pH5.1)。次いで逆浸透(RO)膜を用いBrix濃度25%まで濃縮処理を行い、更に噴霧乾燥して粉末状の「タンナーゼ活性を有する酵素で処理した緑茶抽出物」1.9kgを得た。得られた緑茶抽出物は非重合体カテキン類含有量30.8質量%、非重合体カテキンガレート体率39.4質量%、カフェイン含有量6.5質量%であった。

(2) 酸性白土(ミズカエース#600、水澤化学社製)100gを常温、250r/min攪拌条件下の92質量%エタノール水溶液800g中に分散させ、約10分間攪拌を行った後、(1)で得られたタンナーゼ活性を有する酵素で処理した緑茶抽出物200gを投入し、室温のまま約3時間の攪拌を続けた(pH4.0)。その後、生成している沈殿及び酸性白土を2号ろ紙でろ過した。得られたろ液にイオン交換水を417g添加し、15°C、100r/min攪拌条件下で約5分間攪拌を行った。その混合溶液を小型冷却遠心分離機を用い(日立工機社製)、操作温度15°Cで析出した濁り成分を分離した(6000rpm、5分)。分離した溶液を活性炭(クラレコールGLC、クラレケミカル社製)30gと接触させ、続けて0.2μmメンブランフィルターによってろ過を行った。最後にイオン交換水200gを添加して、40°C、2.7kpaでエタノールを留去し、その後、水分量を調整して「精製緑茶抽出物」を得た。

精製緑茶抽出物中の非重合体カテキン類含有量は15質量%

精製緑茶抽出物中の固形分中の非重合体カテキン類含有量は63.4質量%

精製緑茶抽出物中のカフェイン/非重合体カテキン類質量比=0.033

精製緑茶抽出物中のガレート体率=38.5質量%

精製緑茶抽出物中の（タンパク質＋食物繊維）／非重合体カテキン類質量比＝0.02

[0069] 比較例1 タンナーゼ活性を有する酵素で処理した緑茶抽出物

実施例2－（1）で得られた「タンナーゼ活性を有する酵素で処理した緑茶抽出物」。

緑茶抽出物中の非重合体カテキン類含有量は30.8質量%

緑茶抽出物中のカフェイン／非重合体カテキン類質量比＝0.211

緑茶抽出物中のガレート体率＝39.4質量%

緑茶抽出物中の（タンパク質＋食物繊維）／非重合体カテキン類質量比＝0.28

[0070] 比較例2

酸性白土（ミズカエース#600、水澤化学社製）100gを常温、250r/min攪拌条件下の92質量%エタノール水溶液800g中に分散させ、約10分間攪拌を行った後、緑茶抽出物（ポリフェノンHG、東京フードテクノ製、非重合体カテキン類濃度＝33.4質量%、緑茶抽出液のガレート体率＝52.4質量%、カフェイン5.8質量%）200gを投入し、室温のまま約3時間の攪拌を続けた（pH4.0）。その後、生成している沈殿及び酸性白土を2号ろ紙でろ過した。得られたろ液にイオン交換水を417g添加し、15℃、100r/min攪拌条件下で約5分間攪拌を行った。その混合溶液を小型冷却遠心分離機を用い（日立工機社製）、操作温度15℃で析出した濁り成分を分離した（6000rpm、5分）。分離した溶液を活性炭（クラレコールGLC、クラレケミカル社製）30gと接触させ、続けて0.2μmメンブランフィルターによってろ過を行った。最後にイオン交換水200gを添加して、40℃、2.7kpaでエタノールを留去し、その後、水分量を調整して「精製緑茶抽出物」を得た。

精製緑茶抽出物中の非重合体カテキン類含有量は15質量%

精製緑茶抽出物中の固形分中の非重合体カテキン類含有量は65.1質量%

精製緑茶抽出物中のカフェイン／非重合体カテキン類質量比＝0. 023

精製緑茶抽出物中のガレート体率＝52. 9質量%

精製緑茶抽出物中の（タンパク質＋食物繊維）／非重合体カテキン類質量比＝0. 03

[0071] 実施例1～2で得られた緑茶抽出物の分析結果及び評価結果を表1に、比較例1～2で得られた緑茶抽出物の分析結果及び評価結果を表2に示す。全体評価においては外観、色相、雑味・苦渋味等について以下の基準で評点をつけ評価した。

- [0072]
- 5 非常に優れている
 - 4 優れている
 - 3 やや優れている
 - 2 やや劣る
 - 1 劣る
 - 0 非常に劣る

[0073]

[表1]

	実施例 1	実施例 2
処理後の非重合体カテキン類濃度 (質量%)	15	15
処理後の固形分中における非重合体カテキン類濃度 (質量%)	54.3	63.4
処理後の非重合体カテキン類中におけるガレート体率 (質量%)	45.1	38.5
処理後のカフェイン/非重合体カテキン類 (質量比)	0.177	0.033
処理後の (タンパク質+食物繊維) /非重合体カテキン類 (質量比)	0.03	0.02
処理後緑茶抽出物の評価	苦渋味、雑味が低減している。	著しく苦渋味、雑味が低減しており、カフェインも少なく、清澄で色相も良い。
全体評価	3	5

[0074]

[表2]

	比較例 1	比較例 2
処理後の非重合体カテキン類濃度 (質量%)	30.8	15
処理後の固形分中における非重合体カテキン類濃度 (質量%)	30.8	65.1
処理後の非重合体カテキン類中におけるゲレート体率 (質量%)	39.4	52.9
処理後のカフェイン/非重合体カテキン類 (質量比)	0.211	0.023
処理後の (タンパク質+食物繊維) /非重合体カテキン類 (質量比)	0.28	0.03
処理後緑茶抽出物の評価	苦渋味は低減しているが、緑茶由来の雑味が多く、飲用し難い。	雑味は低減、カフェインも少ないが、苦渋味が強く、後味に残り、飲用し難い。
全体評価	0	2

[0075] 表 1 及び表 2 に示されるように、本発明の製造方法は非重合体カテキン類を高濃度に含有し、苦渋味を低減し、緑茶由来の食物繊維を原因とする雑味を低減することにより呈味が改善されるのみならず、更にタンパク質をも低減し、飲用しやすい精製緑茶抽出物を製造できる。

[0076] 実施例 3 容器詰飲料

表 1 及び表 2 に示した緑茶抽出物を表 3 に記載の容器詰飲料成分と配合し、イオン交換水をバランス量加えて飲料を調製した。食品衛生法に基づく殺菌処理及びホットパック充填を行って容器詰飲料とした。

[0077] 5名の男性モニターが、製造した容器詰飲料を、それぞれ500mLを単回摂取し、雑味・苦渋味について以下の基準で評点をつけ評価した。飲用時

の品温はいずれも室温付近に合わせた。結果を表3に示す。

[0078] 雑味における評価：

- A 感じにくい
- B やや感じにくい
- C やや感じる
- D 感じる

[0079] 苦渋味における評価：

- A 感じにくい
- B やや感じにくい
- C やや感じる
- D 感じる

[0080]

[表3]

	本発明品	比較品
緑茶抽出物B 実施例2	0.85	—
緑茶抽出物 比較例2		0.85
甘味料	0.8	0.8
フレーバー、酸味料	0.5	0.5
食塩	0.1	0.1
果汁	0.1	0.1
環状オリゴ糖	0.1	0.1
イオン交換水	バランス	バランス
総量	100	100
飲料のpH	3.5	3.5
非重合体カテキン類(質量%)	0.127	0.127
雑味における評価	A	A
苦渋味における評価	A	D
評価結果	雑味、苦渋味が低減し、 キレが良く飲用し易い。	雑味は低減している が、苦渋味が強く、後 味に残り、飲用し難い。

[0081] 表3の結果から明らかなように、本発明によりタンナーゼ活性を有する酵素で処理を行った緑茶抽出物を処理した精製緑茶抽出物を使用した容器詰飲料は、雑味、苦渋味が低減し、キレが良く飲用し易い。

請求の範囲

- [1] タンナーゼ活性を有する酵素で処理した緑茶抽出物を有機溶媒と水の質量比が90/10を超え97/3以下の混合溶液に混合し、生成した沈殿を分離する精製緑茶抽出物の製造方法。
- [2] 精製緑茶抽出物に、更に加水及び/又は脱有機溶媒して、該溶液中の有機溶媒と水との質量比を40/60~70/30の範囲とし、次いで析出した濁り成分を分離する請求項1記載の精製緑茶抽出物の製造方法。
- [3] 緑茶抽出物を有機溶媒と水の混合溶液に混合する際に活性炭及び/又は酸性白土若しくは活性白土と接触させる請求項1又は2記載の製造方法。
- [4] タンナーゼ活性を有する酵素で処理する際の非重合体カテキン類中のガレート体率の減少が5質量%以上である請求項1~3のいずれか1項記載の製造方法。
- [5] タンナーゼ活性を有する酵素で処理した後の非重合体カテキン類中のガレート体率を0~50質量%に調整する請求項1~4のいずれか1項記載の製造方法。
- [6] 緑茶抽出物を酸性白土又は活性白土と接触するときのpHが、3~6である請求項3又は4記載の製造方法。
- [7] 有機溶媒がエタノールである請求項1~6のいずれか1項記載の製造法。
- [8] (a) 固形分当たりで非重合体カテキン類を20~90質量%含有し、
(b) 非重合体カテキン類中のガレート体率が0~50質量%、
(c) カフェイン/非重合体カテキン類質量比が0~0.25、
(d) (タンパク質+食物繊維)/非重合体カテキン類質量比率が0.12以下、
である精製緑茶抽出物。
- [9] 請求項8記載の精製緑茶抽出物を配合した容器詰飲料。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2007/000413

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
A23F3/16(2006.01) i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
A23F3/16

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
JSTPlus (JDream2)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 2006-063004 A (Kao Corp.), 09 March, 2006 (09.03.06), Full text (Family: none)	8 1-7,9
X A	JP 2004-180535 A (Kao Corp.), 02 July, 2004 (02.07.04), Full text & EP 1557097 A1 & US 2006/0057261 A1 & WO 2004/037022 A1	8 1-7,9
Y	JP 2004-321105 A (Kao Corp.), 18 November, 2004 (18.11.04), Full text (Family: none)	1-9

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	"&" document member of the same patent family
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search 18 June, 2007 (18.06.07)	Date of mailing of the international search report 10 July, 2007 (10.07.07)
---	--

Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2007/000413

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2005-270094 A (Kao Corp.), 06 October, 2005 (06.10.05), Full text & EP 1690457 A1 & WO 2005/0531415 A1	1-9
Y	WO 2005/053415 A1 (Kao Corp.), 16 June, 2005 (16.06.05), Full text & JP 2005-160367 A & JP 2005-176760 A & JP 2006-122004 A & JP 2005-270094 A & EP 1690457 A1	1-9
Y	JP 2005-176760 A (Kao Corp.), 07 July, 2005 (07.07.05), Full text & EP 1690457 A1 & WO 2005/053415 A1	1-9
A	Edited by Keiichiro MURAMATSU, Series <Shokuhin no Kagaku> Cha no Kagaku, Kabushiki Kaisha Asakura Shoten, 1991, pages 183 to 191	1-9
<u>P,X</u> <u>P,A</u>	JP 2007-061083 A (Kao Corp.), 15 March, 2007 (15.03.07), Claims (Family: none)	<u>1,3,7-9</u> <u>2,4-6</u>

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2007/000413

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

The inventions according to claims 1 to 7 relate to a process for producing a purified green tea extract, while the inventions according to claims 8 and 9 relate to a purified green tea extract and a packed drink comprising the same.

Thus, the matter common to the inventions according to claims 1 to 7, 8 and 9 resides in a purified green tea extract.

However, it had been already known before the priority date of the present application to purify a green tea extract (see, for example, JP 2005-270094 A (Kao CORP.)).

Accordingly, the purified green tea extract, (continued to extra sheet)

1. As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest
the

- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, payment of a protest fee..
- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2007/000413

Continuation of Box No.III of continuation of first sheet (2)

i.e., the common matter as described above cannot be recognized as a special technical feature.

Since there is no other matter common to the inventions according to claims 1 to 7 and claims 8 and 9, either to each other or all of the same, seemingly being a special technical feature in the meaning within the second sentence of PCT Rule 13.2, no technical relationship can be found out in the meaning within PCT Rule 13 between these invention groups differing from each other.

Such being the case, it is clear that the inventions according to claims 1 to 9 do not comply with the requirement of unity of invention.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))
 Int.Cl. A23F3/16(2006.01)i

B. 調査を行った分野
 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))
 Int.Cl. A23F3/16

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)
 JSTPlus(JDream2)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 2006-063004 A, (花王株式会社), 2006.3.9, 全文	8
Y	ファミリーなし	1-7,9
X	JP 2004-180535 A, (花王株式会社), 2004.7.2, 全文	8
A	& EP 1557097 A1 & US 2006/0057261 A1 & WO 2004/037022 A1	1-7,9
Y	JP 2004-321105 A, (花王株式会社), 2004.11.18, 全文 ファミリーなし	1-9

C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

<p>* 引用文献のカテゴリー</p> <p>「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの</p> <p>「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの</p> <p>「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)</p> <p>「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</p> <p>「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願</p>	<p>の日の後に公表された文献</p> <p>「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの</p> <p>「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの</p> <p>「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの</p> <p>「&」同一パテントファミリー文献</p>
---	---

国際調査を完了した日 18.06.2007	国際調査報告の発送日 10.07.2007
--------------------------	--------------------------

国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 左海 匡子 電話番号 03-3581-1101 内線 3448	4B	3633
---	--	----	------

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP 2005-270094 A, (花王株式会社), 2005. 10. 6, 全文 & EP 1690457 A1 & WO 2005/0531415 A1	1-9
Y	WO 2005/053415 A1, (花王株式会社), 2005. 6. 16, 全文 & JP 2005-160367 A & JP 2005-176760 A & JP 2006-122004 A & JP 2005-270094 A & EP 1690457 A1	1-9
Y	JP 2005-176760 A, (花王株式会社), 2005. 7. 7, 全文 & EP 1690457 A1 & WO 2005/053415 A1	1-9
A	村松敬一郎 編集, シリーズ<食品の科学> 茶の科学, 株式会社 朝倉書店, 1991, p. 183-191	1-9
<u>P, X</u>	JP 2007-061083 A, (花王株式会社), 2007. 3. 15, 特許請求の範囲	<u>1, 3, 7-9</u>
P, A	ファミリーなし	2, 4-6

第II欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項 (PCT17条(2)(a))の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、

2. 請求の範囲 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、

3. 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第III欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるところの国際調査機関は認めた。

請求の範囲1-7は、精製緑茶抽出物の製造方法に係る発明であって、請求の範囲8、9は、精製緑茶抽出物及びそれを配合した容器詰飲料に係る発明である。

してみると、請求の範囲1-7、8、9に係る発明の共通の事項は、精製緑茶抽出物である。

ところで、緑茶抽出物を精製することは、本願優先日前においてすでに知られているものである(例えば、JP 2005-270094 A (花王株式会社))。

それゆえ、上記共通する事項である精製緑茶抽出物は特別な技術的特徴であるとは認められない。

したがって、請求の範囲1-7、請求の範囲8、9に係る発明の相互または全てにPCT規則13.2の第2文の意味において特別な技術的特徴と考えられる共通の事項は存在しないので、これら相違する発明群の間にPCT規則13の意味における技術的な関連を見出すことはできない。

よって、請求の範囲1-9に係る発明は発明の単一性の要件を満たしていないことが明らかである。

1. 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- 追加調査手数料及び、該当する場合には、異議申立手数料の納付と共に、出願人から異議申立てがあった。
- 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあったが、異議申立手数料が納付命令書に示した期間内に支払われなかった。
- 追加調査手数料の納付を伴う異議申立てがなかった。