

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2017年10月5日(05.10.2017)



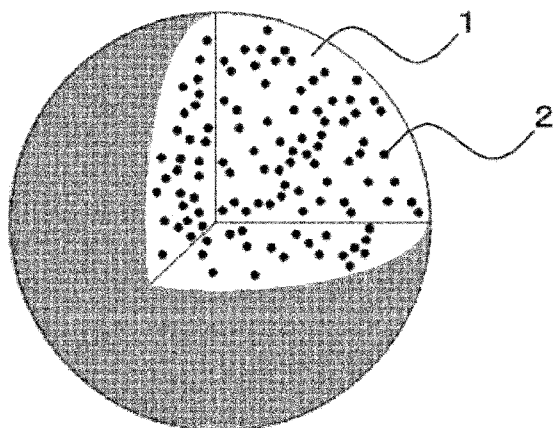
(10) 国際公開番号
WO 2017/170528 A1

- (51) 国際特許分類:
A23L 5/40 (2016.01) A61K 31/047 (2006.01)
A23L 33/10 (2016.01) A61K 31/122 (2006.01)
A23L 33/155 (2016.01) A61K 47/42 (2017.01)
A61K 9/16 (2006.01) A61K 47/61 (2017.01)
A61K 31/015 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2017/012601
- (22) 国際出願日: 2017年3月28日(28.03.2017)
- (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 2016-068339 2016年3月30日(30.03.2016) JP
- (71) 出願人: 理研ビタミン株式会社(RIKEN VITAMIN CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1018370 東京都千代田区三崎町2丁目9番18号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 近藤 和良(KONDO, Kazuyoshi); 〒1740065 東京都板橋区若木1丁目15番10号 理研ビタミン株式会社東京工場内 Tokyo (JP). 松瀬 勲(MATSUSE, Isao); 〒1740065 東京都板橋区若木1丁目15番10号 理研ビタミン株式会社東京工場内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 岩谷 龍(IWATANI, Ryo); 〒5300003 大阪府大阪市北区堂島2丁目1番31号 京阪堂島ビル6階 Osaka (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, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, 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, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

[続葉有]

(54) Title: CAROTENOID-CONTAINING PARTICLES

(54) 発明の名称: カロテノイド含有粒子



(57) Abstract: Provided are particles containing carotenoids, wherein in order to provide carotenoid-containing particles in which the exudation of carotenoids from the particles during tableting or storage is suppressed, the carotenoid-containing particles are characterized by having a structure in which the carotenoids are dispersed in an agar gel containing cyclodextrin and/or vegetable protein.

(57) 要約: カロテノイドを含有する粒子であって、打錠時や保存中における該粒子からのカロテノイドの滲出が抑制されたカロテノイド含有粒子を提供するために、サイクロデキストリン及び/又は植物性タンパク質を含有する寒天ゲル中にカロテノイドが分散した構造であることを特徴とするカロテノイド含有粒子を提供する。

WO 2017/170528 A1

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称：カロテノイド含有粒子

技術分野

[0001] 本発明は、カロテノイドを含有する粒子に関する。

背景技術

[0002] カロテノイドは、長鎖の共役二重結合を有し、黄～赤色等を呈する油性の色素成分であり、従来から食品等の着色料として使用されている。また、生体内でビタミンAに変換され得るプロビタミンA活性や抗酸化作用、抗癌・抗腫瘍作用等といった種々の生理的活性が認められ、医薬品や健康食品等の有効成分としても注目されてきている。

[0003] カロテノイドを医薬品や健康食品等に配合して使用する場合、これを粒子化して他の有効成分や賦形剤等と粉体混合し、タブレット状に打錠成型することが一般的に行われている。カロテノイドを粒子化する方法としては、例えば、熱可逆的ゾルゲル転移性を有する親水性高分子ゲル化剤を主成分とする水溶液中にカロテノイドを分散し、これを造粒した後に乾燥する方法が挙げられる。この方法により得られる粒子は、連続相の親水性高分子ゲルが分散相のカロテノイドを保護する被膜を形成し、適当な強度が付与されるため打錠成型を行いやすい。とりわけ、親水性高分子ゲル化剤としてゼラチンを用いた粒子は、強度が高く、バリア性（外部の熱や光、空気を遮断する性能及び内包したカロテノイドを滲出させずに保持する性能）にも優れることから好ましく用いられる。

[0004] 一方で、動物性タンパク質であるゼラチンはアレルギーを誘発するおそれがあるため、近年、医薬品や健康食品等の分野においてもゼラチンをアレルギー誘発リスクの低い他の原材料で代替することのニーズが高まっている。しかしながら、前記カロテノイドの粒子化方法においてゼラチン以外の親水性高分子ゲル化剤（寒天、カラギーナン、アルギン酸等）を用いた場合、打錠時の圧力や保存中の外的要因（熱、衝撃等）によりカロテノイドが粒子か

ら滲み出る（滲出する）ことがあった。

[0005] 一般的に、カロテノイド含有粒子における打錠時及び／又は保存中のカロテノイドの滲出を抑制するには、該粒子中のカロテノイドの含有量を少なく調整すればよいことが知られている。しかし、粒子中のカロテノイドの含有量が少ないと、カロテノイドの効能を得るために多量の粒子を摂取しなければならなくなるため好ましくない。カロテノイドの含有量の調整によらずにカロテノイドの滲出を抑制する方法としては、例えば、カロテノイドを予め中鎖脂肪酸トリグリセライドに溶解ないしは分散させ、これを分散相とする方法（特許文献1）が提案されている。しかし、ゼラチン以外の親水性高分子ゲル化剤を用いたカロテノイド含有粒子においてこの方法を実施したとしても、該粒子からのカロテノイドの滲出を十分に抑制することは難しい。

[0006] こうした事情から、カロテノイド含有粒子において、親水性高分子ゲル化剤としてゼラチンを用いない場合であっても打錠時や保存中のカロテノイドの滲出を十分に抑制できる方法が求められていた。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：特開2002-129057号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] 本発明は、カロテノイドを含有する粒子であって、打錠時や保存中における該粒子からのカロテノイドの滲出が抑制されたカロテノイド含有粒子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

[0009] 本発明者らは、上記課題に対して鋭意検討を行った結果、カロテノイド含有粒子において、連続相を構成する親水性高分子ゲル化剤として寒天を使用し、且つ、ここにサイクロデキストリン及び／又は植物性タンパク質を添加することにより、該粒子からカロテノイドが滲出しにくくなることを見出し

、この知見に基づいて本発明をなすに至った。

[0010] すなわち、本発明は、下記の（１）及び（２）を包含する。

（１）サイクロデキストリン及び／又は植物性タンパク質を含有する寒天ゲル中にカロテノイドが分散した構造であることを特徴とするカロテノイド含有粒子。

（２）寒天とサイクロデキストリン及び／又は植物性タンパク質とを含有する水相中にカロテノイドを含有する油相を分散して水中油型乳化組成物を調製する工程の後に、該水中油型乳化組成物を液滴にして冷却固化する工程を含むことを特徴とするカロテノイド含有粒子の製造方法。

発明の効果

[0011] 本発明のカロテノイド含有粒子は、打錠時や保存中におけるカロテノイドの滲出が抑制されている。

本発明のカロテノイド含有粒子は、該粒子中のカロテノイドの含有量を高めてもカロテノイドの滲出が生じにくい。

本発明のカロテノイド含有粒子は、ゼラチン等の動物性原材料を必須成分としないため、動物性原材料に起因するアレルギーの誘発リスクが低減された製品として製造することができる。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]図1は、本発明のカロテノイド含有粒子の構造を示す模式図である。

[図2]図2は、打錠によるカロテノイドの滲出の評価において製造したタブレット1について、打錠後、5℃で10日間保存したものと、40℃で10日間保存したものを並べて撮影した写真である。

[図3]図3は、打錠によるカロテノイドの滲出の評価において製造したタブレット2について、打錠後、5℃で10日間保存したものと、40℃で10日間保存したものを並べて撮影した写真である。

[図4]図4は、打錠によるカロテノイドの滲出の評価において製造したタブレット3について、打錠後、5℃で10日間保存したものと、40℃で10日間保存したものを並べて撮影した写真である。

[図5]図5は、打錠によるカロテノイドの滲出の評価において製造したタブレット4について、打錠後、5℃で10日間保存したものと、40℃で10日間保存したものを並べて撮影した写真である。

[図6]図6は、打錠によるカロテノイドの滲出の評価において製造したタブレット5について、打錠後、5℃で10日間保存したものと、40℃で10日間保存したものを並べて撮影した写真である。

[図7]図7は、打錠によるカロテノイドの滲出の評価において製造したタブレット6について、打錠後、5℃で10日間保存したものと、40℃で10日間保存したものを並べて撮影した写真である。

[図8]図8は、打錠によるカロテノイドの滲出の評価において製造したタブレット7について、打錠後、5℃で10日間保存したものと、40℃で10日間保存したものを並べて撮影した写真である。

[図9]図9は、打錠によるカロテノイドの滲出の評価において製造したタブレット8について、打錠後、5℃で10日間保存したものと、40℃で10日間保存したものを並べて撮影した写真である。

[図10]図10は、打錠によるカロテノイドの滲出の評価において製造したタブレット9について、打錠後、5℃で10日間保存したものと、40℃で10日間保存したものを並べて撮影した写真である。

[図11]図11は、打錠によるカロテノイドの滲出の評価において製造したタブレット10について、打錠後、5℃で10日間保存したものと、40℃で10日間保存したものを並べて撮影した写真である。

発明を実施するための形態

[0013] 本発明のカロテノイド含有粒子は、サイクロデキストリン及び／又は植物性タンパク質を含有する寒天ゲル中にカロテノイドが分散した構造であることを特徴とする。本発明のカロテノイド含有粒子においては、例えばサイクロデキストリン及び／又は植物性タンパク質を含有する寒天ゲルが水性の連続相を構成し、カロテノイドが油性の分散相を構成してもよい（図1参照）。

。

- [0014] 本発明のカロテノイド含有粒子の連続相を構成する寒天ゲルは、熱可逆的ゾルーゲル転移性を有する親水性高分子ゲル化剤である寒天をゲル化したものであることが好ましい。該寒天は、特に制限はないが、天草、オゴノリ、オバクサ、イタニクサ等の紅藻類から抽出されたものであることが好ましい。寒天の形状は、粉末寒天、フレーク寒天、棒寒天、糸寒天等のいずれであってもよいが、溶解性が高く扱い易い点から、粉末寒天が好ましく用いられる。
- [0015] 寒天の分子量に特に制限はないが、通常、重量平均分子量50000～60000のものを用いることができる。なお、前記重量平均分子量は、液体クロマトグラフィによるゲル濾過法にて測定される。
- [0016] 寒天のゼリー強度に特に制限はないが、例えば、 $250 \sim 350 \text{ g/cm}^2$ のものが好ましく用いられる。なお、前記ゼリー強度は、日寒水式測定法により測定される値である。即ち、濃度1.5質量%の寒天水溶液を調製し、 20°C で15時間放置して凝固させたゲルについて、その表面 1 cm^2 あたり20秒間、破壊に耐えうる最大荷重(g)をいう。
- [0017] 寒天としては、例えば、伊那寒天UP-37（商品名；粉末寒天；伊那食品工業社製）等が商業的に製造及び販売されており、本発明ではこれを用いることができる。
- [0018] 本発明のカロテノイド含有粒子の連続相は、例えば前記寒天ゲルにサイクロデキストリン及び／又は植物性タンパク質を添加することにより得られる。特に、これら双方を組み合わせて用いた場合は、本発明の効果がより優れたものとなり、長期間に亘ってカロテノイドの滲出を抑制できるため好ましい。
- [0019] 本発明で用いられるサイクロデキストリンは、数分子のD-グルコースが α (1→4) グルコシド結合によって結合し、環状構造をとった環状オリゴ糖の一種であり、 α -サイクロデキストリン（6分子のグルコースが結合）、 β -サイクロデキストリン（7分子のグルコースが結合）及び γ -サイクロデキストリン（8分子のグルコースが結合）等が挙げられる。これらの中

でも β -サイクロデキストリン及び γ -サイクロデキストリンが好ましく、 γ -サイクロデキストリンが特に好ましい。これらサイクロデキストリンは、一種類のみを単独で用いてもよく、二種類以上を任意に組み合わせて用いてもよい。

[0020] サイクロデキストリンとしては、例えば、デキシパール α -100（商品名； α -サイクロデキストリン；塩水港精糖社製）、デキシパール β -100（商品名； β -サイクロデキストリン；塩水港精糖社製）、デキシパール γ -100（商品名； γ -サイクロデキストリン；塩水港精糖社製）等が商業的に製造及び販売されており、本発明ではこれらを用いることができる。

[0021] 本発明で用いられる植物性タンパク質は、食用可能な植物由来のタンパク質であれば特に制限はなく、例えば、大豆タンパク、小麦タンパク、コメタンパク、エンドウ豆タンパク、とうもろこしタンパク等が挙げられる。これら植物性タンパク質は、一種類のみを単独で用いてもよく、二種類以上を任意に組み合わせて用いてもよい。

[0022] 植物性タンパク質としては、例えば、フジプロFX（商品名；大豆タンパク質；不二製油社製）、プロテインGP（商品名；エンドウ豆タンパク質；第一化成社製）、オリザプロテイン-P70（商品名；コメタンパク質；オリザ油化社製）等が商業的に製造及び販売されており、本発明ではこれらを用いることができる。

[0023] また、本発明のカロテノイド含有粒子の連続相には、前記サイクロデキストリン及び／又は植物性タンパク質に加えて、さらにケイ酸塩を添加することが好ましい。連続相にケイ酸塩を添加することにより、本発明の効果がより優れたものとなり、粒子中のカロテノイドの含有量が多い場合であってもカロテノイドの滲出が生じにくくなる。

[0024] ケイ酸塩としては、例えばケイ酸カルシウム、ケイ酸マグネシウム（三ケイ酸マグネシウム等を含む。）、ケイ酸アルミニウム、ケイ酸カルシウムアルミニウム、ケイ酸カルシウムマグネシウム（オルトケイ酸カルシウムマグネシウム等を含む）、ケイ酸アルミニウムマグネシウム等のケイ酸アルカリ

土類金属塩が挙げられるが、より好ましくはケイ酸カルシウム又はケイ酸マグネシウムであり、さらにより好ましくはケイ酸カルシウムである。ケイ酸カルシウムとしては、例えば、フローライトR（商品名；富田製薬社製）等が商業的に製造及び販売されており、本発明ではこれを用いることができる。

[0025] 本発明のカロテノイド含有粒子の分散相を構成するカロテノイドは、長鎖の共役二重結合を有し、黄～赤色等を呈する油溶性の色素成分であり、具体的には、例えば、 β -カロテン、 α -カロテン、 γ -カロテン、 β -アポ-8'-カロテナール、 β -アポ-10'-カロテナール、 β -アポ-8'-カロテン酸、シトラナキサントニン、リコピン、ゼアキサントニン、クリプトキサントニン、エキネノン、3-ヒドロキシ- β -カロテン、フコキサントニン、ルテイン、アスタキサントニン、カンタキサントニン、カプサントニン、カプソルピン、ビキシン、クロセチン並びにこれらの群の水酸基又はカルボキシル基含有化合物のエステル類等が挙げられる。本発明においては、これらの中でも医薬品や健康食品等に配合されることの多いアスタキサントニン、ルテイン及び β -カロテンを用いることが好ましい。本発明は、とりわけ、油滲みに関する問題の生じやすいアスタキサントニンを用いても本発明の効果を十分に発揮できる点で優れている。これらカロテノイドは、動植物から抽出、精製して得られたものであっても、発酵法あるいは合成法で得られたものであってもよいが、動物性原材料に起因するアレルギーの誘発リスクを低減する観点から、動物由来のカロテノイドは使用しないことが好ましい。なお、カロテノイドを含有する天然色素としては、例えば、アナトー色素、イモカロテン、エビ色素、オキアミ色素、オレンジ色素、カニ色素、デュナリエラカロテン、トウガラシ色素（パプリカ色素）、トウモロコシ色素、トマト色素、ニンジンカロテン、パーム油カロテン、ファフィア色素、ベニノキ末色素、ヘマトコッカス藻色素、マリーゴールド色素等が挙げられる。

なお、本発明において、黄～赤色等の色は、例えばマンセル色相環を指標にすることができる。

[0026] なお、カロテノイドは、一般的に酸化防止や粘度調整等のため、これを油脂中に溶解又は分散したカロテノイド含有油脂の形態で流通している。本発明に用いるカロテノイドは、このようなカロテノイド含有油脂の形態であってもよい。この場合、カロテノイドの分散媒となる油脂は、食用可能なものであれば特に制限はないが、動物性原材料に起因するアレルギーの誘発リスクを低減する観点から、動物由来の油脂を使用しないことが好ましい。

[0027] カロテノイドとしては、例えば、アスタリールオイル50F（商品名；アスタキサンチンを5質量%含有する油脂；富士化学工業社製）、FloraGLオルテイン20%懸濁液SAF（商品名；ルテインを20質量%含有する油脂；DSM社製）、ルカロチン30M（商品名； β -カロテンを30質量%含有する油脂；BASF社製）等が商業的に製造及び販売されており、本発明ではこれらを用いることができる。

[0028] 本発明のカロテノイド含有粒子の製造方法は、特に制限されないが、例えば前記連続相中にカロテノイドが分散した構造となるような方法であることが好ましく、具体的には、寒天とサイクロデキストリン及び／又は植物性タンパク質とを含有する水相中にカロテノイドを含有する油相を分散して水中油型乳化組成物を調製し、該水中油型乳化組成物を液滴にして冷却固化する方法が挙げられる。より具体的には、例えば以下の工程（1）～（4）を実施することにより製造することができる。

[0029] 工程（1）：寒天、サイクロデキストリン及び／又は植物性タンパク質並びに所望によりケイ酸塩を水に加え、これを加温及び混合して溶解又は分散し、水相とする。

工程（2）：（1）で調製した水相を、寒天がゲル化しない温度（70～90℃）に保ったまま、ここに油相としてカロテノイドを加えて攪拌し、水相中に油相を均一に分散させて水中油型乳化組成物を得る。

工程（3）：（2）で調製した水中油型乳化組成物を滴下法、噴霧法、分散法等自体公知の方法で液滴にして冷却し、凍結状態の微細粒子を得る。

工程（4）：（3）で作製した微細粒子を捕集し、これを棚段式通風乾燥機

、流動層乾燥機、真空凍結乾燥機、振動真空乾燥機等を用いて目的とする水分量まで乾燥して寒天ゲル中にカロテノイドが分散した構造のカロテノイド含有粒子を得る。

[0030] 前記工程（１）で調製する水相の配合は、求める滲出抑制効果の程度等により異なるが、例えば、寒天の含有量が２０～４０質量部、サイクロデキストリン及び／又は植物性タンパク質の含有量が、これらの合計量として５～３０質量部、水の含有量が２００～５００質量部である。また、所望によりケイ酸塩を添加する場合、その添加量は例えば１～１０質量部である。

[0031] 前記工程（２）で調製する水中油型乳化組成物における水相と油相との比率は、油相を構成するカロテノイドの純度等により異なるが、例えば、油相としてカロテノイドを２５質量％含有する油脂を使用する場合、水相／油相で９０／１０～９７／３、好ましくは９２／８～９５／５である。このような比率で水中油型乳化組成物を調製した場合、工程（４）で乾燥した後のカロテノイド含有粒子における連続相と分散相の比率は、連続相／分散相で６０／４０～９０／１０程度となる。

[0032] 前記工程（２）の攪拌には、ＴＫホモミクサー（プライミクス社製）、クレアミックス（エム・テクニク社製）等の高速回転式分散・乳化機が用いられる。攪拌条件としては、回転数を３０００～１００００rpm、攪拌時間を５～６０分間とするのが好ましい。

[0033] 前記工程（３）の微細粒子化は、生産性の点から、噴霧法により、液体窒素の充填された塔内に液滴を噴霧して行うことが好ましい。噴霧には、例えば、加圧式噴霧ノズル、回転式噴霧ノズル、回転円盤等が用いられ、好ましくは回転式噴霧ノズルである。回転式噴霧ノズルを用いる場合、好ましい回転数としては、２００～２０００rpmを例示できる。冷却の温度としては、－１９６～－１５℃が好ましく、－１２０～－２０℃がより好ましい。

[0034] 前記工程（４）の乾燥は、短時間で乾燥できる点から流動層乾燥機を用いて行うことが好ましく、この場合、乾燥後の粒子同士の付着を抑制するため、乾燥前に予め微細粒子に対してステアリン酸カルシウム、グリセリン脂肪

酸エステル等の滑沢剤を加えて混合することが好ましい。滑沢剤の添加量は、微細粒子100質量%に対し、通常1～6質量%である。乾燥は、水分量が通常10質量%以下、好ましくは5質量%以下となるまで行われる。乾燥後、得られたカロテノイド含有粒子に対し、静電気等による粒子同士の付着や固結を防止するため、微粒二酸化ケイ素等の流動化剤を加えて混合してもよい。流動化剤の添加量は、カロテノイド含有粒子100質量%に対し、通常0.1～4質量%である。

[0035] 前記各工程を経て得られるカロテノイド含有粒子の平均粒子径は、150～1000 μm であることが好ましく、150～400 μm であることがより好ましい。平均粒子径を測定する方法としては、例えばレーザー回折法、湿式画像解析法、遠心沈降法、電氣的検知帯法、ふるい分け法等が挙げられる。平均粒子径の測定機器としては、例えばレーザー回折式粒子径分布測定装置、レーザー回折式粒度分布測定装置、スプレー粒子径分布測定装置、画像解析式粒子径分布測定装置、音波振動式ふるい分け測定器、遠心沈降式粒度分布測定装置、高精度粒度分布測定装置、精密粒度分布測定装置等が挙げられる。

[0036] 本発明のカロテノイド含有粒子は、本発明の効果を阻害しない範囲で、他の任意の成分を含有してもよい。そのような成分としては、例えば、酸化防止剤、pH調整剤、乳化剤、甘味料、香料等が挙げられる。これらの成分は、その性質に応じて前記水相又は油相のいずれに添加してもよい。

[0037] 前記酸化防止剤としては、ビタミンE類、アスコルビン酸類、カテキン、ローズマリー抽出物、ヒマワリ抽出物、酵素処理ルチン、フェルラ酸、クエルセチン等が挙げられる。pH調整剤としては、水酸化ナトリウム、炭酸水素ナトリウム等が挙げられる。乳化剤としては、例えば、グリセリン脂肪酸エステル、ソルビタン脂肪酸エステル、ショ糖脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル、アスコルビルパルミテート、レシチン等が挙げられる。甘味料としては、例えば、アセスルファムカリウム、アスパルテム、ネオテム等が挙げられる。香料としては、例えば、オレンジ

、レモン、ライム、グレープフルーツ等の柑橘類精油、花精油、ペパーミント油、スペアミント油、スパイス油等の植物精油、コーラナッツエキストラクト、コーヒーエキストラクト、ワニラエキストラクト、ココアエキストラクト、紅茶エキストラクト、スパイス類エキストラクト等の油性エキストラクト及びこれらのオレオレジン類、合成香料化合物（例えば、レーメントール等）、油性調合香料組成物及びこれらの任意の混合物である油性の着香料並びに賦形剤と共に乾燥した粉末状の香料等が挙げられる。

[0038] 本発明のカロテノイド含有粒子は、カロテノイドの色調（黄～赤色等）を呈する食品素材として、又はプロビタミンA活性、抗酸化作用、抗癌・抗腫瘍作用等の生理的活性を有する成分として、食品、健康食品又は医薬品等に配合して好ましく使用することができる。また、本発明のカロテノイド含有粒子をそのまま食品、健康食品又は医薬品等として使用してもよい。

[0039] 本発明のカロテノイド含有粒子を食品や健康食品に配合して使用する場合、該食品又は健康食品の形態に特に制限はなく、例えば、焼き菓子、チョコレート、チューインガム、キャンディー、グミ等の菓子類、ヨーグルト、アイスクリーム、プリン等のデザート類、賦形剤等の粉末と共に打錠して製造される錠菓（サプリメントを含む）等に配合して使用することができる。

[0040] 本発明のカロテノイド含有粒子を医薬品に配合して使用する場合、該医薬品の形態に特に制限はなく、本発明のカロテノイド含有粒子と共に医薬品添加物、食品添加物及び食品素材等を適宜配合し、常法に従い、例えば、散剤、顆粒剤、錠剤、マイクロカプセル、ソフトカプセル、ハードカプセル等の形態の製剤として製造することができる。

[0041] 特に、本発明のカロテノイド含有粒子は従来の連続相にゼラチンを用いないカロテノイド含有粒子に比べて打錠時の圧力によってもカロテノイドの滲出が生じにくいことから、前記食品、健康食品及び医薬品の中でも、錠菓又は錠剤の形態のものに配合して使用することが好ましい。

[0042] 本発明のカロテノイド含有粒子を錠菓又は錠剤に配合して使用する場合、該錠菓又は錠剤の製造方法に特に制限はなく、例えば、賦形剤、結合剤、崩

壊剤、滑沢剤、流動化剤、着色料、着香料、甘味料等と混合し、自体公知の方法で打錠して製造することができる。

[0043] 前記賦形剤としては、例えば、結晶セルロース等のセルロース類、乳糖、精製白糖等の糖類、D-ソルビトール、D-マンニトール、エリスリトール、トレハロース等の糖アルコール類、コーンスターチ、ポテトスターチ、部分 α 化澱粉等の澱粉類、リン酸カルシウム、無水リン酸水素カルシウム、ケイ酸アルミニウム、メタケイ酸アルミン酸マグネシウム等の無機物質類等が挙げられる。結合剤としては、例えば、ヒドロキシプロピルセルロース、ヒドロキシプロピルメチルセルロース、カルメロースナトリウム、メチルセルロース等のセルロース誘導体類、ポリビニルピロリドン等の合成高分子類等が挙げられる。崩壊剤としては、例えば、カルメロースカルシウム、低置換度ヒドロキシプロピルセルロース、クロスカルメロースナトリウム等のセルロース誘導体類、トウモロコシデンプン、カルボキシメチルスターチナトリウム、ヒドロキシプロピルスターチ、部分 α 化澱粉等の澱粉及び澱粉誘導体類等が挙げられる。滑沢剤としては、例えば、ステアリン酸マグネシウム、ステアリン酸カルシウム、含水無晶形酸化ケイ素、ケイ酸マグネシウム、ケイ酸カルシウム、炭酸マグネシウム、シヨ糖脂肪酸エステル、ポリグリセリン脂肪酸エステル等が挙げられる。また流動化剤としては、例えば、軽質無水ケイ酸、二酸化ケイ素、酸化チタン、タルク等が挙げられる。

[0044] 本発明のカロテノイド含有粒子は、打錠時や保存中におけるカロテノイドの滲出が抑制されており、該粒子中のカロテノイドの含有量を高めてもカロテノイドの滲出が生じにくい。従って、本発明のカロテノイド含有粒子によれば、粒子中に従来よりも多くのカロテノイドを含有させることにより、カロテノイドを効率よく摂取することが可能となる。

[0045] また、本発明のカロテノイド含有粒子は、必ずしもゼラチン等の動物性原材料を含む処方排除するものではないが、動物性原材料を含まない処方での製造も可能である。従って、本発明のカロテノイド含有粒子は、必要に応じて動物性原材料に起因するアレルギーの誘発リスクが低減された製品とし

て製造することができる。

[0046] 以下、実施例をもって本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

実施例

[0047] [実験例1]

[各種カロテノイド含有粒子の製造]

(1) 原材料

1) α -サイクロデキストリン (商品名: デキシパール α -100; 塩水港精糖社製)

2) β -サイクロデキストリン (商品名: デキシパール β -100; 塩水港精糖社製)

3) γ -サイクロデキストリン (商品名: デキシパール γ -100; 塩水港精糖社製)

4) 大豆タンパク質 (商品名: フジプロFX; 不二製油社製)

5) エンドウ豆タンパク質 (商品名: プロテインGP; 第一化成社製)

6) コメタンパク質 (商品名: オリザプロテイン-P70; オリザ油化社製)

7) 寒天 (商品名: 伊那寒天UP-37; 伊那食品工業社製)

8) グラニュー糖 (商品名: グラニュー糖GN; 三井製糖社製)

9) 酸化防止剤 (L-アスコルビン酸パルミチン酸エステル; 商品名: グリンドックスアスコルビンパルミテート; ダニスコ社製)

10) pH調整剤 (水酸化ナトリウム; 商品名: トーソーパール; 東ソー社製)

11) アスタキサンチン (商品名: アスタリールオイル50F; アスタキサンチンを5質量%含有する油脂; 富士化学工業社製)

12) ルテイン (商品名: FloraGLルテイン20%懸濁液SAF; ルテインを20質量%含有する油脂; DSM社製)

13) β -カロテン (商品名: ルカロチン30M; β -カロテンを30質

量%含有する油脂；BASF社製)

[0048] (2) カロテノイド含有粒子の配合

前記原材料を用いて製造した各種カロテノイド含有粒子の配合組成を表1に示した。このうち、カロテノイド含有粒子1~7は本発明の実施例であり、カロテノイド含有粒子8~10はそれらに対する比較例である。

[0049] [表1]

原材料	配合量(g)										
	カロテノイド含有粒子										
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	
α-サイクロキストリン	10	—	—	—	—	—	—	—	—	—	
β-サイクロキストリン	—	10	—	—	5	5	—	—	—	—	
γ-サイクロキストリン	—	—	10	—	—	—	15	—	—	—	
大豆タンパク質	—	—	—	15	—	5	—	—	—	—	
エンドウ豆タンパク質	—	—	—	—	15	—	—	—	—	—	
コムタンパク質	—	—	—	—	—	—	10	—	—	—	
寒天	20	20	30	20	20	20	25	20	40	30	
グラニュー糖	37.60	49.20	42.60	43.65	28.65	49.20	7.60	67.60	47.60	50.42	
酸化防止剤	3.0	1.5	3.0	2.0	2.0	1.5	3.0	3.0	3.0	5.0	
pH調整剤	0.2	0.1	0.2	0.2	0.2	0.1	0.2	0.2	0.2	0.38	
カロテノイド	アスタキサンチン	25	—	—	—	25	—	—	5	5	—
	ルテイン	—	15	—	—	—	15	35	—	—	—
	β-カロテン	—	—	10	15	—	—	—	—	—	10

[0050] (3) カロテノイド含有粒子の製造方法

1 L容量のアルミ製ジョッキに水道水400 gを入れ、85℃に加温した。ここに、表1に示した配合量に従ってカロテノイド（アスタキサンチン、ルテイン又はβ-カロテン）以外の原材料を全て加え、TKホモミクサー（商品名；型式：MARK 2.5；プライミクス社製）で4000 rpmにて10分間攪拌して混合し、均一に溶解又は分散してこれを水相とした。

該水相を85℃に保ったまま、ここに油相としてカロテノイドを加え、TKホモミクサーで10000 rpmにて10分間攪拌し、水相中に油相を均一に分散して水中油型乳化組成物を得た。

次に、該水中油型乳化組成物を塔下部が液体窒素で冷却された噴霧冷却装置（試験機）に送液し、回転式噴霧ノズルを回転数1200rpmで回転させて球状に噴霧した。噴霧された組成物は冷却されて塔下部に落下し、凍結状態の粒子として捕集した。

捕集した粒子各400gに、粒子同士の付着を防止するためステアリン酸カルシウム（サンエース社製）4gを加えて混合した後、流動層乾燥機（型式：LAB-1；パウレック社製）を用いて20℃で30分間、30℃で1時間、60℃で30分間の順に乾燥した。得られた乾燥物に、静電気等による粒子同士の付着や固結を防止するため微粒二酸化ケイ素（商品名：カーブレックスFPS-500；エボニック社製）0.2gを加えて混合した後、これを26号篩（目開き600μm）で篩い、通過物として、カロテノイド含有粒子1～10各70gを得た。該カロテノイド含有粒子は、原材料として用いたカロテノイドの色（アスタキサンチン及びβ-カロテン：赤色、ルテイン：褐色）に応じて、赤色又は褐色を呈していた。

なお、カロテノイド含有粒子1について水分量及び平均粒子径を測定したところ、水分量は約3.0質量%、平均粒子径は約300μmであった。

[0051] [製造直後及び保存後のカロテノイドの滲出の評価試験]

ろ紙（直径70mm；アドバンテック社製）を敷いたガラスシャーレ（直径80mm、深さ15mm；アズワン社製）に前記カロテノイド含有粒子1～10を10gずつ量りとり、40℃に設定した恒温器中で保存した。保存前（製造直後）、1ヶ月間保存後、2ヶ月間保存後の各時点においてろ紙の状態を目視にて観察し、カロテノイド含有粒子と接触した部分にカロテノイドからの色移り（即ち、赤色又は褐色の着色）が見られた場合をカロテノイドの滲出「有り」、見られない場合をカロテノイドの滲出「無し」とした。結果を表2に示す。

[0052]

[表2]

	カロテノイド含有粒子	カロテノイドの滲出		
		保存前	保存後 (40°C、1ヶ月間)	保存後 (40°C、2ヶ月間)
実施例	1	無し	無し	無し
	2	無し	無し	無し
	3	無し	無し	無し
	4	無し	無し	無し
	5	無し	無し	無し
	6	無し	無し	無し
	7	無し	無し	無し
比較例	8	有り	有り	有り
	9	無し	有り	有り
	10	無し	有り	有り

[0053] 表2の結果から明らかなように、本発明の実施例であるカロテノイド含有粒子1～7は、2ヶ月間保存後においてもろ紙への色移りが見られず、保存中における粒子からのカロテノイドの滲出が抑制されていた。一方、比較例のカロテノイド含有粒子8～10は、いずれも保存中に粒子からカロテノイドが滲出していた。特に、カロテノイド含有粒子8は、保存前（製造直後）の時点で既にカロテノイドの滲出が生じており、明らかに滲出抑制効果が不十分であった。

[0054] [打錠によるカロテノイドの滲出の評価試験]

(1) タブレットの製造方法

前記カロテノイド含有粒子1～10各0.5g、D-ソルビトール顆粒（商品名：ソルビトールTBS；物産フードサイエンス社製）9.4g及びシヨ糖脂肪酸エステル（商品名：DKエステルF-20W；第一工業製薬社製）0.1gを混合し、原料粉末を得た。該原料粉末を直径18mmの臼に充填し、単打式打錠機（型式：ハイプレッシャージャッキJ-1；アズワン社製）を用いて1錠あたり2トンのプレス加重で打錠して、1錠あたり1gのタブレット1～10を各10錠得た。該タブレットは、白色の基剤中に赤色

又は褐色のカロテノイド含有粒子が点在することにより、白地に赤色又は褐色の斑点を有する外観を呈していた。

製造したタブレット1～10は、5錠ずつポリエチレン製の袋に入れ、これらをさらにアルミラミネート袋（PET/AL/PE）に入れて遮光性と気密性を高めた後、40℃に設定した恒温器中で静置保存した。なお、残りの5錠は同様にして遮光性と気密性を高めた後、継時的なカロテノイドの滲出が生じないように5℃の冷蔵庫で保存し、打錠直後とほぼ同等の外観を示す比較対象とした（図2～11参照）。

[0055] (2) 目視によるカロテノイドの滲出の評価

打錠直後、40℃で10日間保存後、40℃で20日間保存後の各時点において前記タブレット1～10を無作為に1錠ずつ取り出してその表面を目視にて観察し、表面に見えるカロテノイド含有粒子の色に起因する斑点の大きさにより、カロテノイドの滲出の状態を評価した。評価は、下記の基準に従って記号化した。結果を表3に示す。

<基準>

- ◎：極めて良好 斑点が極めて微細である
- ：良好 わずかに大きな斑点もあるが、全体的に微細である
- ×：悪い 明らかに大きな斑点が見られる

[0056] (3) 斑点の標準直径の測定

打錠直後、40℃で10日間保存後、40℃で20日間保存後の各時点における前記タブレット1～10のカロテノイドの滲出の状態を定量的に評価するため、下記の方法により各タブレットの斑点の標準直径を測定した。結果を表3に示す。

なお、打錠時の圧力によりカロテノイド含有粒子が圧縮されることや、粒子の一部のみがタブレット表面に現れることにより、標準直径は製造直後のカロテノイド含有粒子の平均粒子径（約300μm）よりも小さくなり得る。

<斑点の標準直径の測定方法>

マイクروسコープ（型式：VHX-500F；キーエンス社製）を用いてタブレットを100倍に拡大して観察し、その表面に見えるカロテノイド含有粒子の色に起因する斑点のうち比較的大きな5つの斑点の直径を測定する。それらの平均値（小数点以下は四捨五入）を求め、これを斑点の標準直径とする。

[0057]

[表3]

タブレット	カロテノイド含有粒子	打錠直後		保存後 (40°C、10日間)		保存後 (40°C、20日間)	
		目視評価	斑点の標準直径	目視評価	斑点の標準直径	目視評価	斑点の標準直径
実施例	1	◎	150 μm	◎	165 μm	○	195 μm
	2	◎	165 μm	◎	170 μm	○	195 μm
	3	◎	155 μm	◎	170 μm	○	190 μm
	4	◎	170 μm	◎	185 μm	○	200 μm
	5	◎	165 μm	◎	170 μm	◎	170 μm
	6	◎	160 μm	◎	165 μm	◎	165 μm
	7	◎	170 μm	◎	170 μm	◎	170 μm
比較例	8	x	320 μm	x	480 μm	x	535 μm
	9	○	215 μm	x	320 μm	x	395 μm
	10	x	340 μm	x	470 μm	x	520 μm

[0058] 表3の結果から明らかなように、本発明の実施例であるカロテノイド含有粒子1～7を配合したタブレット1～7は、打錠直後、10日間保存後、20日間保存後の全ての時点において目視によるカロテノイドの滲出状態の評価が◎又は○であり、斑点の標準直径も製造直後のカロテノイド含有粒子の

平均粒子径と同等以下であった。特に、サイクロデキストリン及び植物性タンパク質を併用したカロテノイド含有粒子5～7を配合したタブレット5～7は、20日間保存後においても斑点の標準直径が打錠直後とほとんど変わっておらず、極めて優れたカロテノイドの滲出抑制効果を示した。

一方、比較例のカロテノイド含有粒子8～10を配合したタブレット8～10は、少なくとも10日間保存後の時点ではいずれもカロテノイドの滲出が生じていた。特に、タブレット8及び10は、打錠直後の時点で既に目視でも明らかな程度にカロテノイドの滲出が生じており、打錠圧力に耐え得る強度を有していなかった（図9及び11参照）。

[0059] [実験例2]

[カロテノイド含有粒子（アスタキサンチン高含量品）の製造]

(1) 原材料

1) β -サイクロデキストリン（商品名：デキシパール β -100；塩水港精糖社製）

2) エンドウ豆タンパク質（商品名：プロテインGP；第一化成社製）

3) ケイ酸カルシウム（商品名：フローライトR；富田製薬社製）

4) 寒天（商品名：伊那寒天UP-37；伊那食品工業社製）

5) グラニュー糖（商品名：グラニュー糖GN；三井製糖社製）

6) 酸化防止剤（L-アスコルビン酸パルミチン酸エステル；商品名：グリンドックスアスコルビンパルミテート；ダニスコ社製）

7) pH調整剤（水酸化ナトリウム；商品名：トソーパール；東ソー社製）

8) アスタキサンチン（商品名：アスタリールオイル50F；アスタキサンチンを5質量%含有する油脂；富士化学工業社製）

[0060] (2) カロテノイド含有粒子の配合

前記原材料を用いて製造したカロテノイド含有粒子11～13の配合組成を表4に示した。なお、これらカロテノイド含有粒子11～13は、前記実験例1のカロテノイド含有粒子1及び5よりもアスタキサンチンの含有量を

高めた本発明の実施例である。

[0061] [表4]

原材料	配合量(g)		
	カロテノイド含有粒子		
	11	12	13
β-サイクロデキストリン	10	10	10
エンドウ豆タンパク質	15	15	15
ケイ酸カルシウム	—	2	6
寒天	20	20	20
グラニュー糖	7.60	5.60	1.60
酸化防止剤	3.0	3.0	3.0
pH調整剤	0.2	0.2	0.2
アスタキサンチン	40	40	40

[0062] (3) カロテノイド含有粒子の製造方法

1 L 容量のアルミ製ジョッキに水道水 400 g を入れ、85℃に加熱した。ここに、表4に示した配合量に従ってカロテノイド（アスタキサンチン）以外の原材料を全て加え、TKホモミクサー（商品名；型式：MARK 2.5；プライミクス社製）で4000 rpmにて10分間攪拌して混合し、均一に溶解又は分散してこれを水相とした。

該水相を85℃に保ったまま、ここに油相としてアスタキサンチンを加え、TKホモミクサーで10000 rpmにて10分間攪拌し、水相中に油相を均一に分散して水中油型乳化組成物を得た。

次に、該水中油型乳化組成物を塔下部が液体窒素で冷却された噴霧冷却装置（試験機）に送液し、回転式噴霧ノズルを回転数1200 rpmで回転させて球状に噴霧した。噴霧された組成物は冷却されて塔下部に落下し、凍結状態の粒子として捕集した。

捕集した粒子各400 gに、粒子同士の付着を防止するためステアリン酸カルシウム（サンエース社製）4 gを加えて混合した後、流動層乾燥機（型式：LAB-1；パウレック社製）を用いて20℃で30分間、30℃で1

時間、60℃で30分間の順に乾燥した。得られた乾燥物に、静電気等による粒子同士の付着や固結を防止するため微粒二酸化ケイ素（商品名：カープレックスFPS-500；エボニック社製）0.2gを加えて混合した後、これを26号篩（目開き600μm）で篩い、通過物として、カロテノイド含有粒子11～13各70gを得た。該カロテノイド含有粒子は、原材料として用いたアスタキサンチンの色である赤色を呈していた。

なお、カロテノイド含有粒子11について水分量及び平均粒子径を測定したところ、水分量は約3.0質量%、平均粒子径は約300μmであった。

[0063] [打錠によるカロテノイドの滲出の評価試験]

(1) タブレットの製造方法

前記カロテノイド含有粒子11～13各0.5g、D-ソルビトール顆粒（商品名：ソルビトールTBS；物産フードサイエンス社製）9.4g及びショ糖脂肪酸エステル（商品名：DKエステルF-20W；第一工業製薬社製）0.1gを混合し、原料粉末を得た。該原料粉末を直径18mmの臼に充填し、単打式打錠機（型式：ハイプレッシャージャッキJ-1；アズワン社製）を用いて1錠あたり2トンのプレス加重で打錠して、1錠あたり1gのタブレット11～13を各10錠得た。該タブレットは、白色の基剤中に赤色のカロテノイド含有粒子が点在することにより、白地に赤色の斑点を有する外観を呈していた。

製造したタブレット11～13はそれぞれポリエチレン製の袋に入れ、これらをさらにアルミラミネート袋（PET/AL/PE）に入れて遮光性と気密性を高めた後、40℃に設定した恒温器中で静置保存した。

[0064] (2) 目視によるカロテノイドの滲出の評価

打錠直後、40℃で5日間保存後の各時点において前記タブレット11～13を無作為に1錠ずつ取り出してその表面を目視にて観察し、表面に見えるカロテノイド含有粒子の色に起因する斑点の大きさにより、カロテノイドの滲出の状態を評価した。評価は、下記の基準に従って記号化した。結果を表5に示す。

<基準>

- ◎：極めて良好 斑点が極めて微細である
 ○：良好 わずかに大きな斑点もあるが、全体的に微細である
 ×：悪い 明らかに大きな斑点が見られる

[0065] (3) 斑点の標準直径の測定

打錠直後、40℃で5日間保存後の各時点における前記タブレット11～13のカロテノイドの滲出の状態を定量的に評価するため、下記の方法により各タブレットの斑点の標準直径を測定した。結果を表5に示す。

なお、打錠時の圧力によりカロテノイド含有粒子が圧縮されることや、粒子の一部のみがタブレット表面に現れることにより、標準直径は製造直後のカロテノイド含有粒子の平均粒子径（約300μm）よりも小さくなり得る。

<斑点の標準直径の測定方法>

マイクロスコープ（型式：VHX-500F；キーエンス社製）を用いてタブレットを100倍に拡大して観察し、その表面に見えるカロテノイド含有粒子の色に起因する斑点のうち比較的大きな5つの斑点の直径を測定する。それらの平均値（小数点以下は四捨五入）を求め、これを斑点の標準直径とする。

[0066] [表5]

	タブレット	カロテノイド含有粒子	打錠直後		保存後 (40℃、5日間)	
			目視評価	斑点の標準直径	目視評価	斑点の標準直径
実施例	11	11	◎	160μm	○	195μm
	12	12	◎	155μm	◎	165μm
	13	13	◎	155μm	◎	155μm

[0067] 表5の結果から明らかなように、本発明の実施例であるカロテノイド含有粒子11～13を配合したタブレット11～13は、該カロテノイド含有粒子中にアスタキサンチンを比較的多く含有する場合であっても、目視評価が◎又は○であり、斑点の標準直径も製造直後のカロテノイド含有粒子の平均

粒子径と同等以下であった。特に、ケイ酸カルシウムを含有するカロテノイド含有粒子 1 2 及び 1 3 を配合したタブレット 1 2 及び 1 3 は、5 日間保存後においても斑点の標準直径が打錠直後とほとんど変わっておらず、極めて優れたカロテノイドの滲出抑制効果を示した。

符号の説明

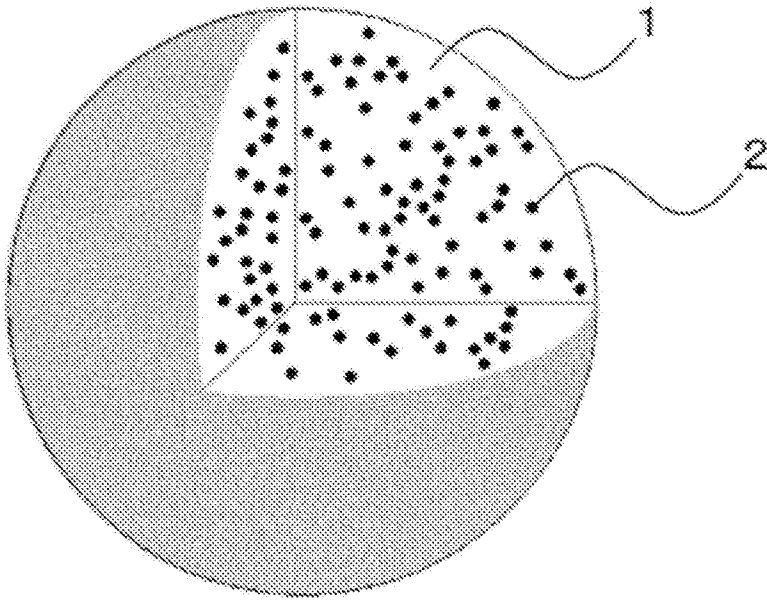
- [0068] 1 連続相（サイクロデキストリン及び／又は植物性タンパク質を含有する寒天ゲル）
- 2 分散相（カロテノイド）

請求の範囲

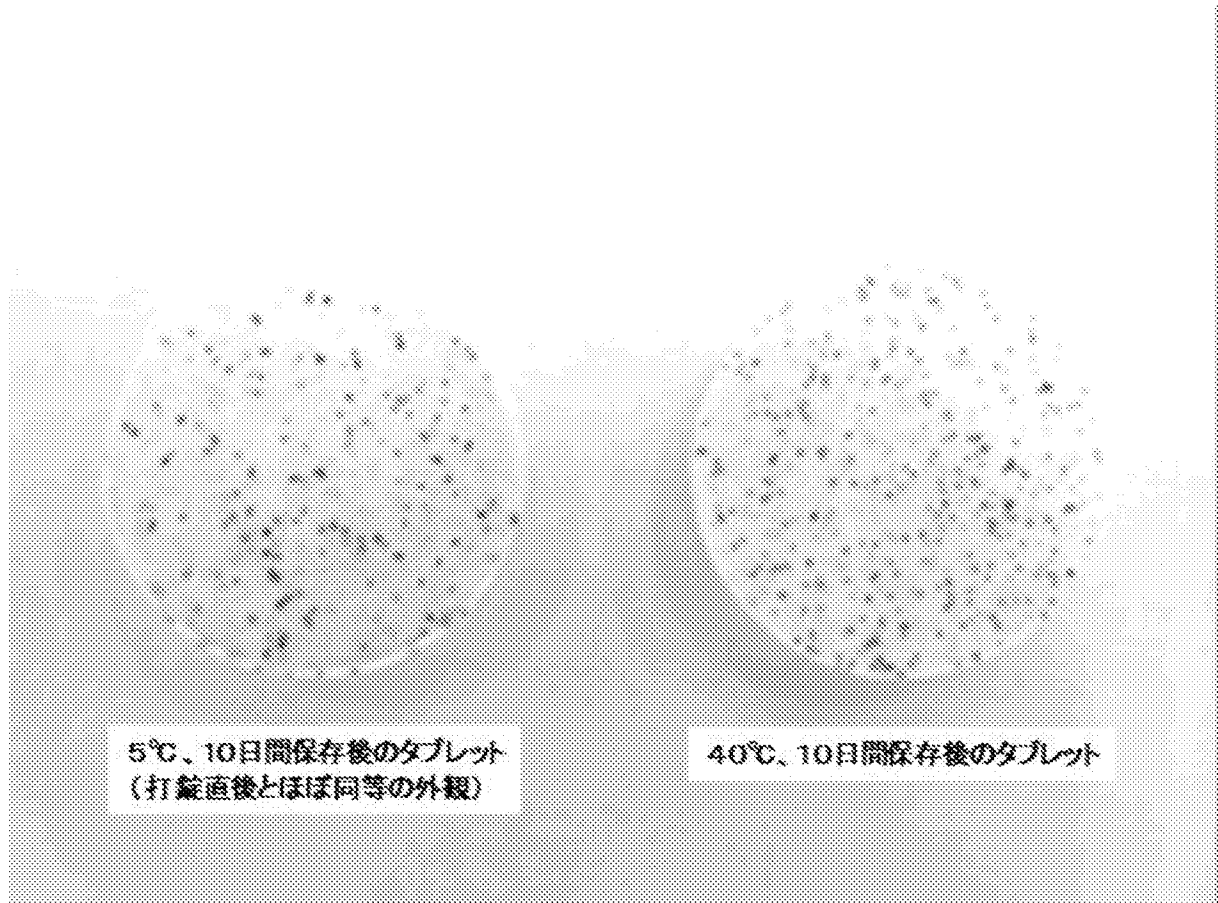
[請求項1] サイクロデキストリン及び／又は植物性タンパク質を含有する寒天ゲル中にカロテノイドが分散した構造であることを特徴とするカロテノイド含有粒子。

[請求項2] 寒天とサイクロデキストリン及び／又は植物性タンパク質とを含有する水相中にカロテノイドを含有する油相を分散して水中油型乳化組成物を調製する工程の後に、該水中油型乳化組成物を液滴にして冷却固化する工程を含むことを特徴とするカロテノイド含有粒子の製造方法。

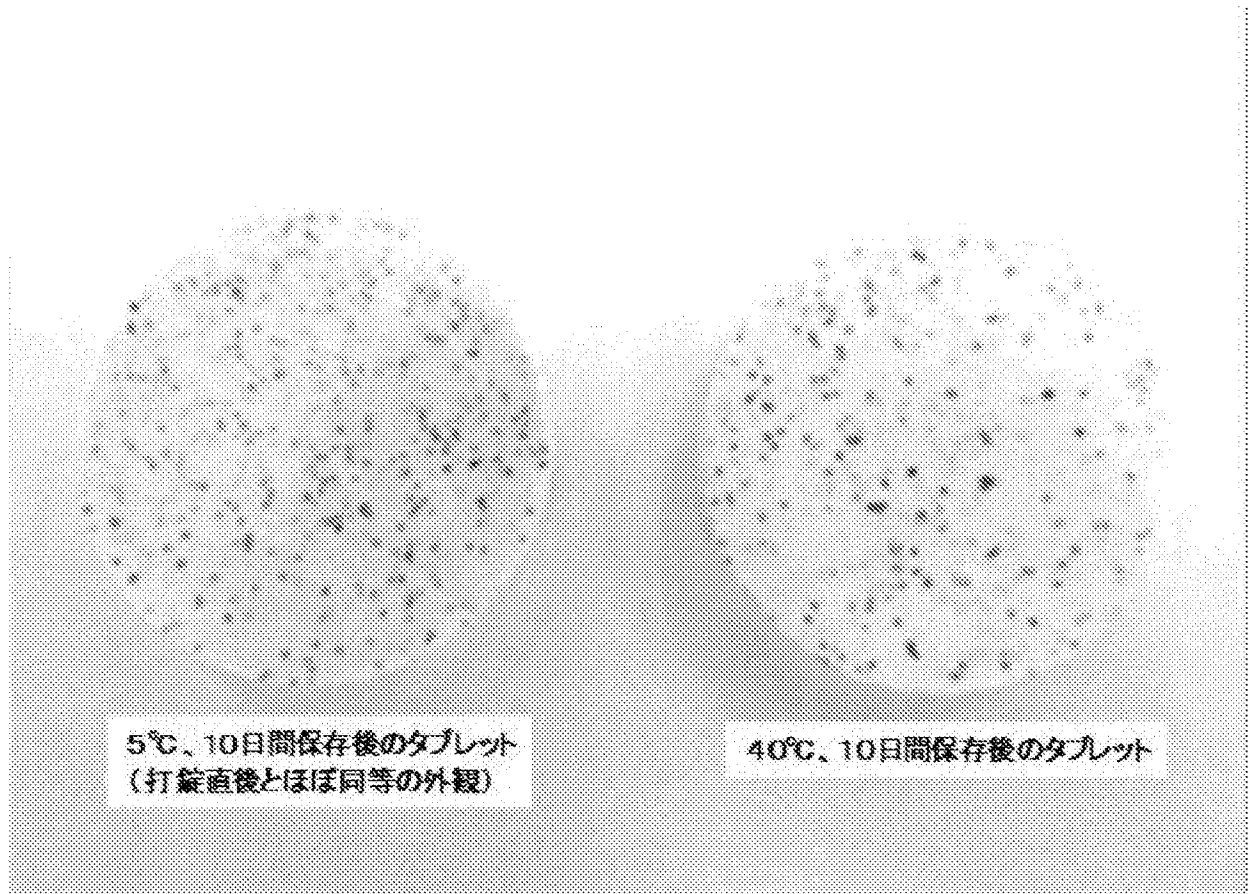
[図1]



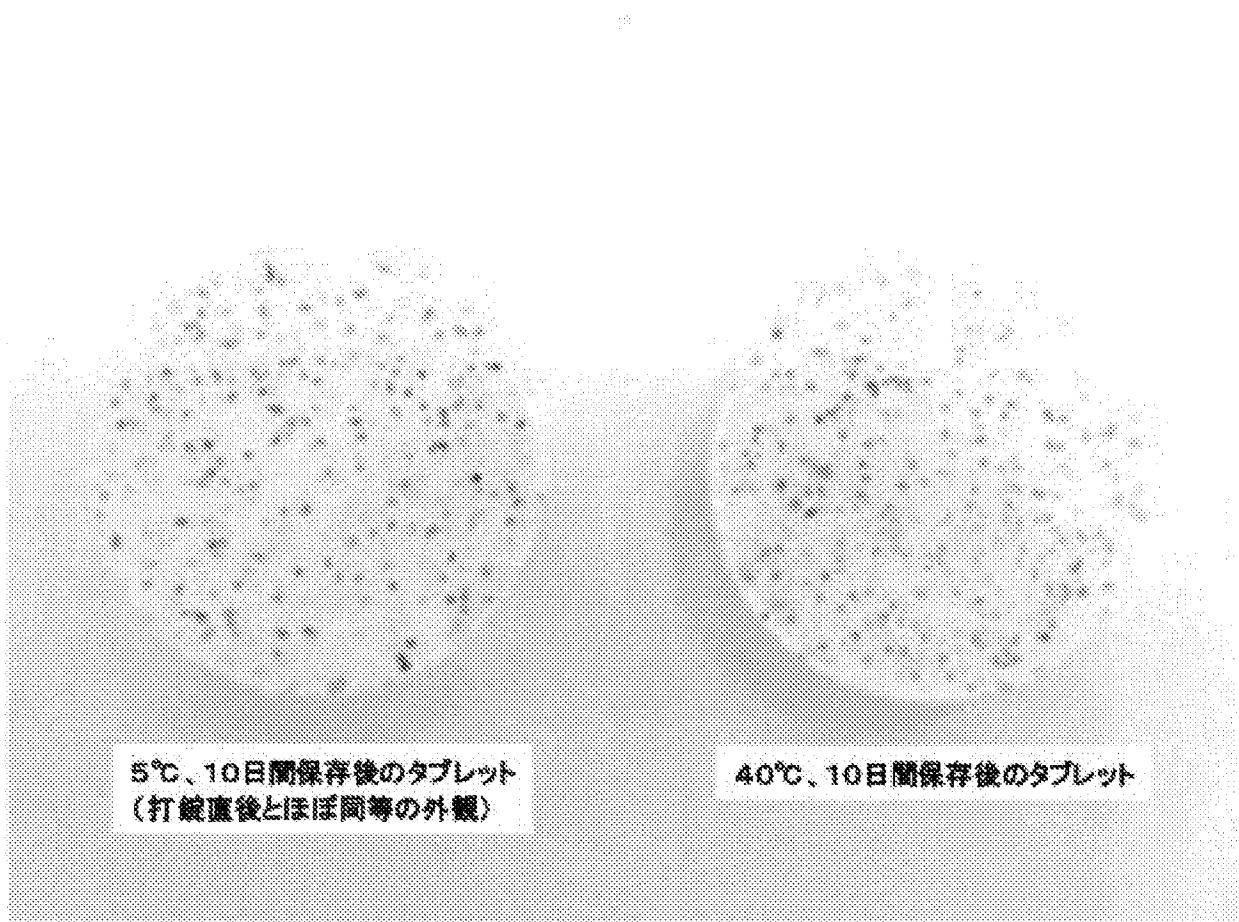
[図2]



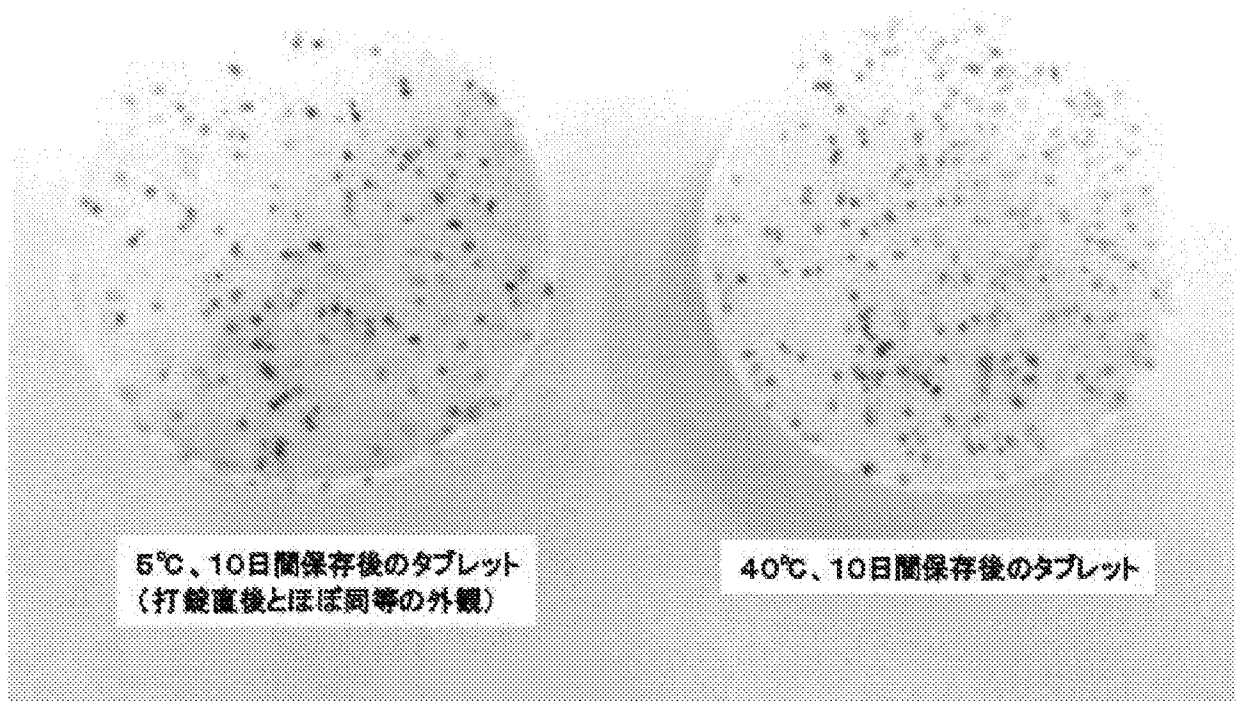
[図3]



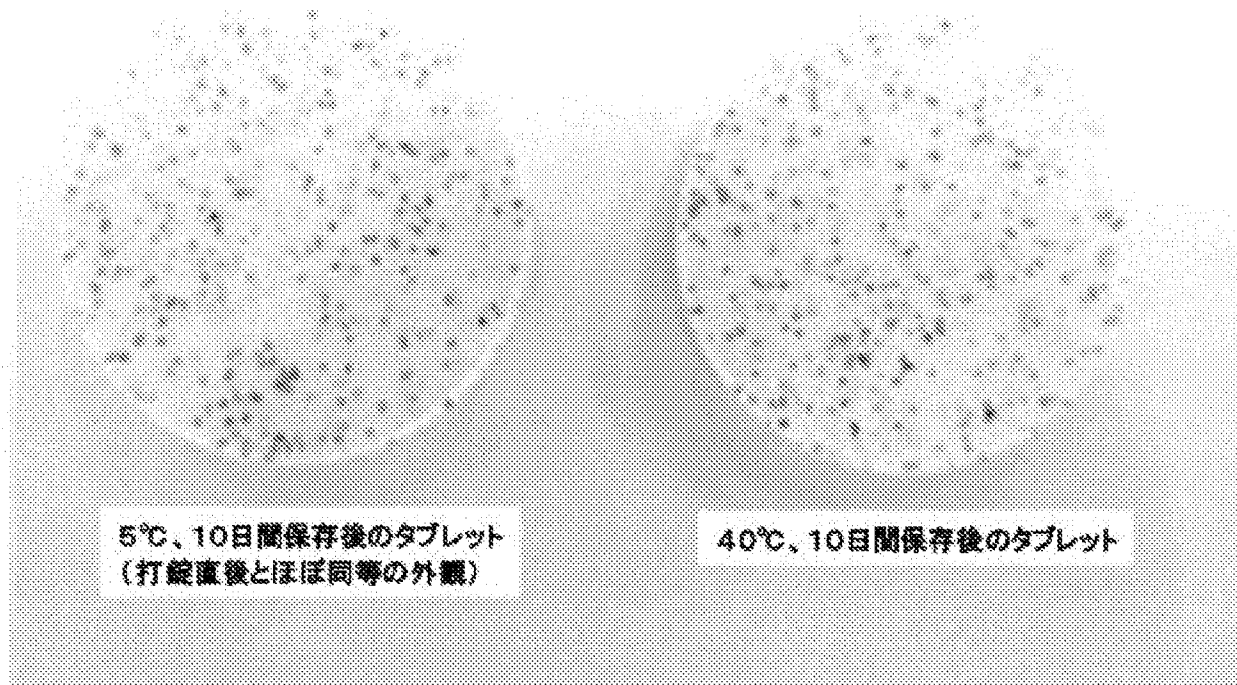
[図4]



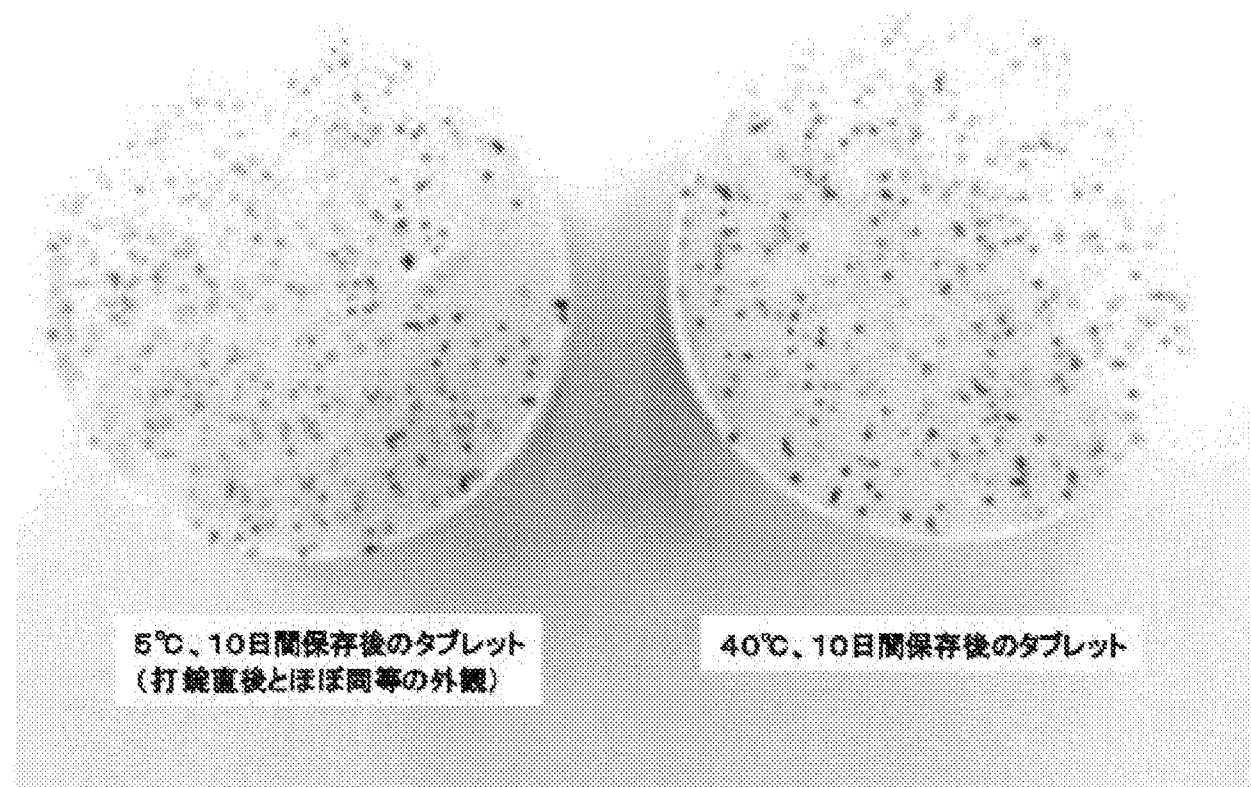
[図5]



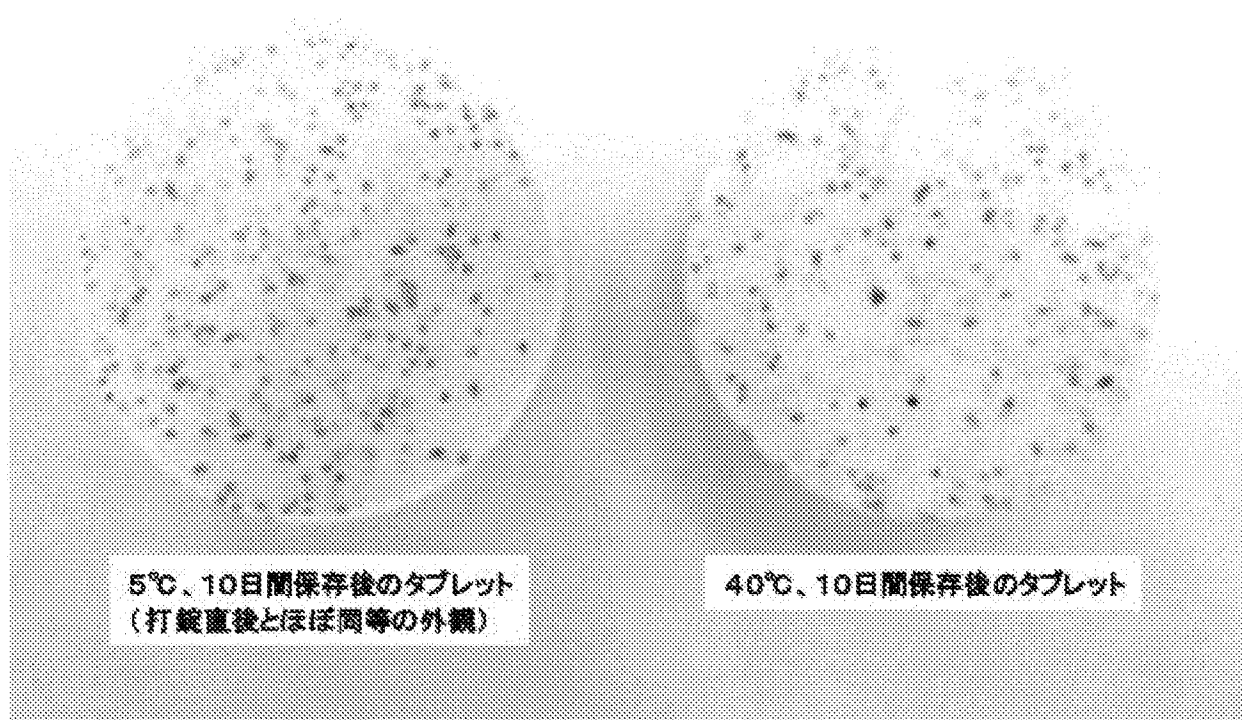
[図6]



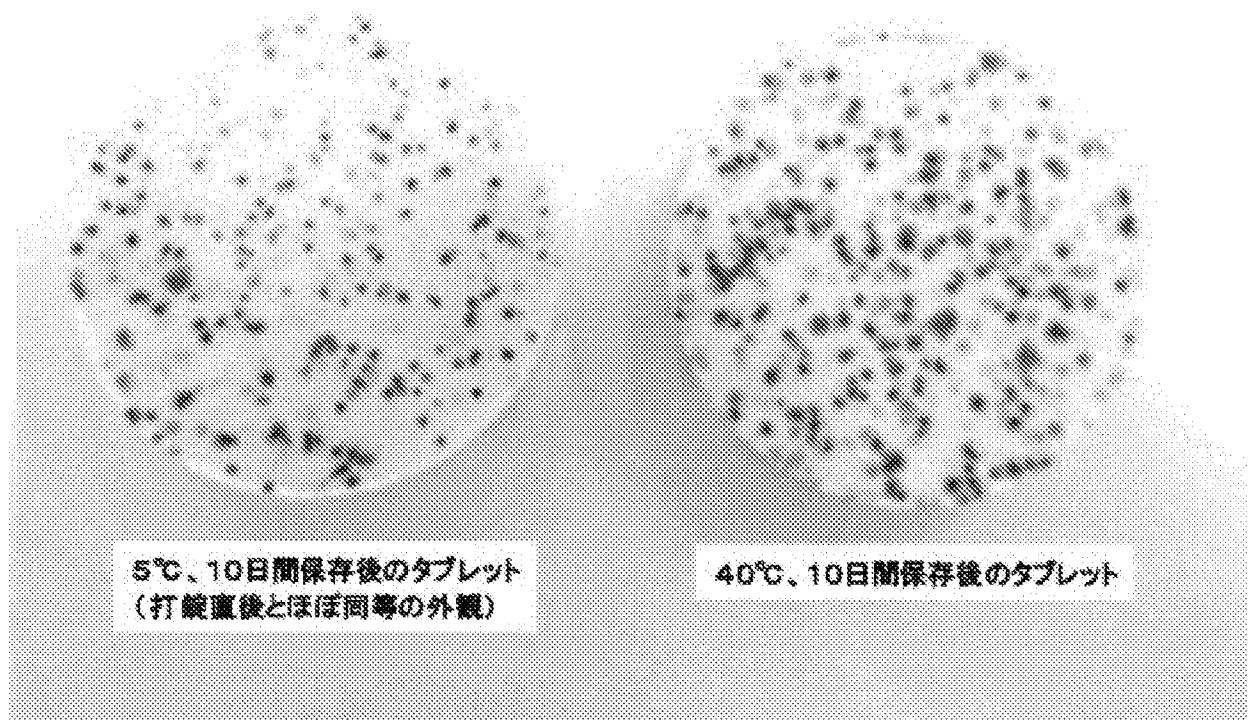
[図7]



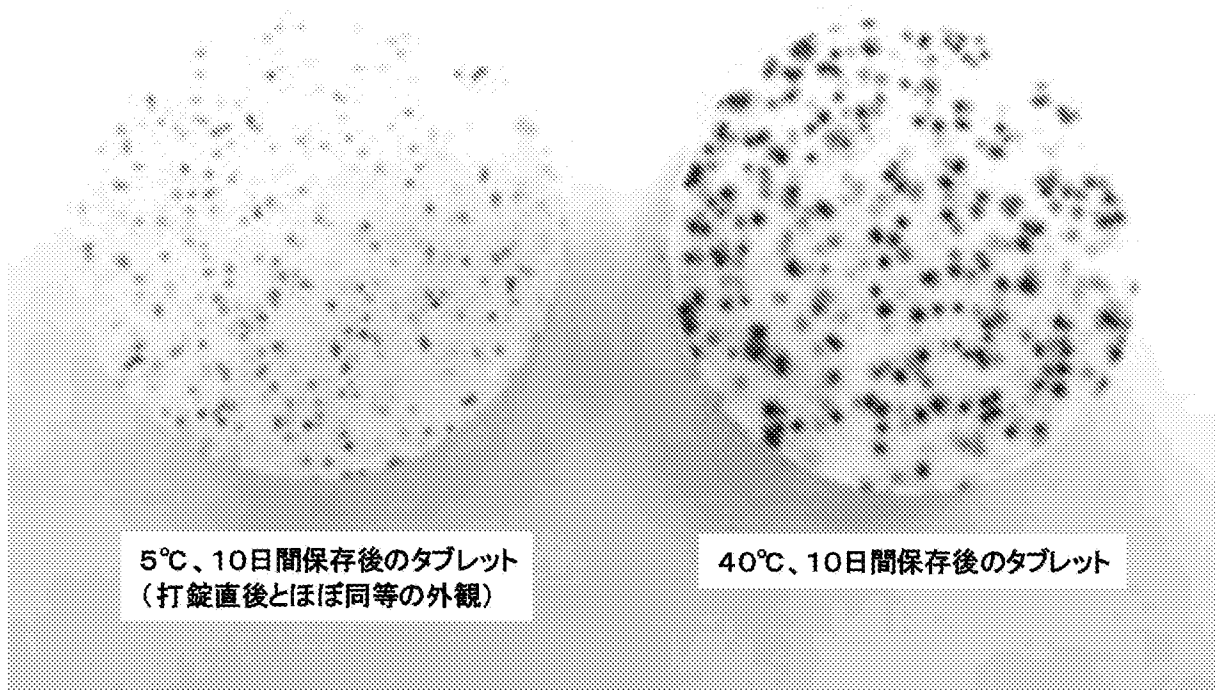
[図8]



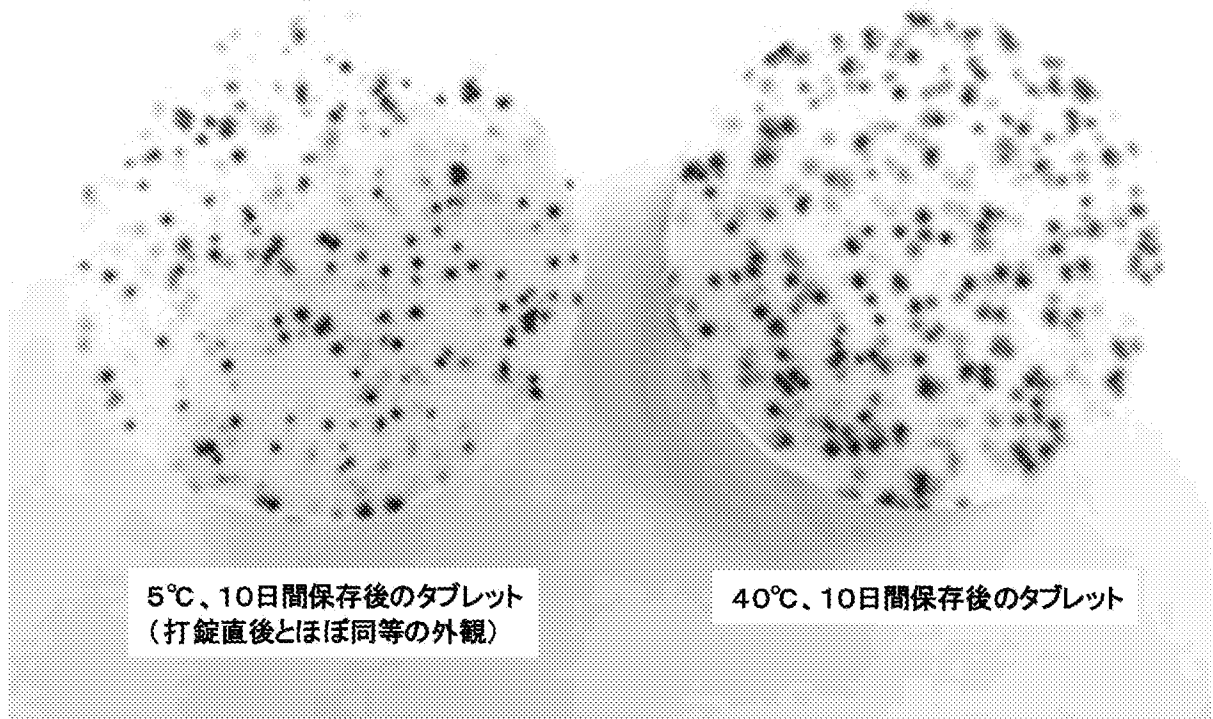
[図9]



[図10]



[図11]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/012601

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER A23L5/40(2016.01)i, A23L33/10(2016.01)i, A23L33/155(2016.01)i, A61K9/16(2006.01)i, A61K31/015(2006.01)i, A61K31/047(2006.01)i, A61K31/122(2006.01)i, A61K47/42(2017.01)i, A61K47/61(2017.01)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) A23L5/40, A23L33/10, A23L33/155, A61K9/16, A61K31/015, A61K31/047, A61K31/122, A61K47/42, A61K47/61 Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2017 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2017 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2017 Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) JSTPlus/JMEDPlus/JST7580(JDreamIII), CAPlus/MEDLINE/BIOSIS(STN)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2013-34446 A (Riken Vitamin Co., Ltd.), 21 February 2013 (21.02.2013), (Family: none)	1-2
A	JP 2006-109792 A (Riken Vitamin Co., Ltd.), 27 April 2006 (27.04.2006), & CN 1762232 A	1-2
A	JP 5-316995 A (Fuji Flavor Co., Ltd.), 03 December 1993 (03.12.1993), (Family: none)	1-2
A	JP 2001-96146 A (Shiseido Co., Ltd.), 10 April 2001 (10.04.2001), & US 6391288 B1 & EP 1072259 A2 & KR 10-2001-0049883 A & CN 1287877 A	1-2
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> 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 “E” earlier application or patent but published on or after the international filing date “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) “O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means “P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed		“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 “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 “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 “&” document member of the same patent family
Date of the actual completion of the international search 15 June 2017 (15.06.17)		Date of mailing of the international search report 27 June 2017 (27.06.17)
Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan		Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/012601

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2001-524123 A (Kobo Products, Inc.), 27 November 2001 (27.11.2001), & US 5961990 A & WO 1998/050000 A2 & EP 979066 A2	1-2
A	JP 2003-523316 A (Cognis Iberia S.L.), 05 August 2003 (05.08.2003), & US 6979467 B1 & WO 2001/001929 A2 & EP 1064910 A1	1-2
A	JP 7-289200 A (Yugen Kaisha MSC), 07 November 1995 (07.11.1995), (Family: none)	1-2
A	JP 60-251864 A (Insuchitsuto Erementooruganichiesukifu Soedeinenui Imeni A Enu Nesumeyanowa Akademi Nauku Esuesuesueru), 12 December 1985 (12.12.1985), (Family: none)	1-2

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. A23L5/40(2016.01)i, A23L33/10(2016.01)i, A23L33/155(2016.01)i, A61K9/16(2006.01)i, A61K31/015(2006.01)i, A61K31/047(2006.01)i, A61K31/122(2006.01)i, A61K47/42(2017.01)i, A61K47/61(2017.01)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. A23L5/40, A23L33/10, A23L33/155, A61K9/16, A61K31/015, A61K31/047, A61K31/122, A61K47/42, A61K47/61

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

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2017年
日本国実用新案登録公報	1996-2017年
日本国登録実用新案公報	1994-2017年

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/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII), CPlus/MEDLINE/BIOSIS (STN)

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 請求項の番号
A	JP 2013-34446 A (理研ビタミン株式会社) 2013.02.21, (ファミリーなし)	1-2
A	JP 2006-109792 A (理研ビタミン株式会社) 2006.04.27, & CN 1762232 A	1-2
A	JP 5-316995 A (富士フレーバー株式会社) 1993.12.03, (ファミリーなし)	1-2

☑ 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。

* 引用文献のカテゴリー

「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
 「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
 「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)
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「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
 「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
 「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
 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

15.06.2017

国際調査報告の発送日

27.06.2017

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)

上村 直子

電話番号 03-3581-1101 内線 3448

4B

4508

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 請求項の番号
A	JP 2001-96146 A (株式会社資生堂) 2001.04.10, & US 6391288 B1 & EP 1072259 A2 & KR 10-2001-0049883 A & CN 1287877 A	1-2
A	JP 2001-524123 A (コーポー プロダクツ、インコーポレーテッド) 2001.11.27, & US 5961990 A & WO 1998/050000 A2 & EP 979066 A2	1-2
A	JP 2003-523316 A (コグニス・イベリア・ソシエダッド・リミターダ) 2003.08.05, & US 6979467 B1 & WO 2001/001929 A2 & EP 1064910 A1	1-2
A	JP 7-289200 A (有限会社エム・エス・シー) 1995.11.07, (ファミリーなし)	1-2
A	JP 60-251864 A (インスチツート、エレメントオルガニチエスキフ、ソエデイネヌイ、イマーニ、アー、エヌ、ネスメヤノワ、アカデミー、ナウク、エスエスエスエル) 1985.12.12, (ファミリーなし)	1-2