

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第4587710号
(P4587710)

(45) 発行日 平成22年11月24日(2010.11.24)

(24) 登録日 平成22年9月17日(2010.9.17)

(51) Int.Cl.

F 1

A O 1 N 65/00 (2009.01)

A O 1 N 65/00 A

A 2 3 L 3/3472 (2006.01)

A 2 3 L 3/3472

A O 1 P 3/00 (2006.01)

A O 1 P 3/00

請求項の数 3 (全 8 頁)

(21) 出願番号 特願2004-165566 (P2004-165566)
 (22) 出願日 平成16年6月3日(2004.6.3)
 (65) 公開番号 特開2005-343823 (P2005-343823A)
 (43) 公開日 平成17年12月15日(2005.12.15)
 審査請求日 平成19年5月29日(2007.5.29)

(73) 特許権者 591011410
 小川香料株式会社
 東京都中央区日本橋本町4丁目1番11号
 (72) 発明者 戸川 真
 岡山県津山市小田中1857-2
 (72) 発明者 増田 秀樹
 東京都中央区日本橋箱崎町19番35-7
 〇2号

審査官 太田 千香子

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 抗菌剤組成物

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

リュウガン(学名:Euphoria longana)の種子の50~95%エタノール水溶液抽出物を含有することを特徴とする枯草菌(Bacillus subtilis)及び/又はセレウス菌(Bacillus cereus)の増殖を抑制する抗菌剤組成物。

【請求項2】

請求項1記載の抗菌剤組成物が1~1000ppm添加されてなる飲食品。

【請求項3】

請求項1記載の抗菌剤組成物を飲食品に1~1000ppm添加することを特徴とする細菌の増殖抑制方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は特定の植物の種子抽出物を含有する抗菌剤組成物に関する。

【背景技術】

【0002】

飲食品、医薬品、口腔衛生剤、化粧品など、生体が直接摂取又は使用する製品の分野では、食中毒、感染症および製品の変敗等の原因となる微生物を制御することは極めて重要である。特に飲食品などの生体が経口摂取する製品の製造においては、微生物制御は最大

の課題であり、その手段として最も一般的に用いられる方法は加熱による殺菌である。しかし、この方法は飲食品等そのものへの影響も大きく、加熱による褐変化や風味及び栄養成分の損失により、飲食品等の価値低下を招くことが多い。特に耐熱性を有する芽胞形成細菌においては、栄養細胞状態での殺菌は可能であるが、胞子の状態では耐熱性が高いため、通常の加熱殺菌よりも高温での殺菌が必要となり、飲食品への加熱の影響はさらに大きくなる。

【0003】

また、飲食品等の保存、品質保持を目的として、例えばソルビン酸、安息香酸及びその塩類、パラオキシ安息香酸エステル（パラベン）類等の合成保存料や、わさびのような香辛料抽出物、柑橘種子抽出物、茶抽出物、孟宗竹抽出物、ポリリジン、キトサン、ヒノキチオール等の抗菌、殺菌作用を有する天然物など、抗菌作用を有するさまざまな物質が保存料や日持ち向上剤等として使用されている。近年は特に消費者の安全志向の高まりから、合成保存料の使用は敬遠され、天然物の使用が好まれる傾向にある。

10

【0004】

芽胞形成細菌に対する殺菌、増殖抑制に関しても、コーヒー生豆を発酵させて得た発酵液を有効成分とすることを特徴とする耐熱性芽胞形成細菌増殖抑制剤（特許文献1）、インドネシア産の植物の溶媒抽出物を有効成分とする抗菌剤（特許文献2）、超高压殺菌処理とユリ科植物エキスによる孢子殺菌処理とを併用することにより生菌と胞子の双方を殺菌する芽胞形成菌の殺菌方法（特許文献3）といった、天然由来の物質を用いた殺菌、抗菌剤等が提案されている。また、本発明者らもバンレイシ属等に属する植物の果皮の溶媒抽出物を含有する抗菌剤組成物（特許文献4）を提案している。

20

【0005】

しかし、天然物はそれ自身が特有のにおいや味、色を有している場合があり、使用できる飲食品等が限定されることも多い。また、保存料として使用できる天然物はまだ種類も少なく、特に芽胞形成細菌に対して有効なものは上記従来技術など、ごく少数が知られているに過ぎない。このため、細菌、特に芽胞形成細菌に対して有効であり、かつ、飲食品の風味や色など、使用する製品の品質に影響を与えないことのない天然由来の抗菌剤、殺菌剤の更なる開発が望まれるところである。

【0006】

【特許文献1】特開2001-178431号公報

30

【特許文献2】特開2000-229804号公報

【特許文献3】特開平6-70730号公報

【特許文献4】特開2004-59525号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

本発明が解決しようとする課題は、微生物、特に芽胞形成細菌に対して十分な抗菌力を示すとともに、添加する飲食品等の味やにおいなどの品質に影響を与えない、新たな抗菌剤を提供することである。

【課題を解決するための手段】

40

【0008】

本発明者らは、植物を中心とする多種多様の天然由来の成分について抗菌活性を鋭意検討した結果、フトモモ属植物のマレーフトモモの種子、ムクロジ科リュウガンの種子の溶媒抽出物が細菌、特に耐熱性芽胞形成細菌に対して高い抗菌効果を有することを見出し、本発明を完成した。

すなわち、本発明は、マレーフトモモ（学名：Syzygium malaccensis）の種子及び／又はリュウガン（学名：Euphoria longana）の種子の溶媒抽出物を含有することを特徴とする抗菌剤組成物であり、溶媒抽出物が、水、極性有機溶媒又はこれらの混合物で抽出して得られるものである抗菌剤組成物であり、芽胞形成細菌の増殖を抑制することを特徴とする抗菌剤組成物であり、前記抗菌剤組成物が1～1000ppm添加されてなる飲食品、

50

口腔衛生剤又は医薬品であり、前記抗菌剤組成物を飲食品、口腔衛生剤又は医薬品に 1 ~ 1 0 0 0 p p m 添加することを特徴とする細菌の増殖抑制方法である。

【発明の効果】

【0009】

本発明の抗菌剤組成物を飲食品等に添加することにより、細菌、特に芽胞形成細菌の増殖を抑制することができる。また、優れた抗菌性により低濃度にて効果を発揮する。また本発明の抗菌剤組成物は熱にも安定で、安全であることからさまざまな飲食品等への応用が可能である。本発明の抗菌剤組成物自体の味・においが飲食品等の本来の香味に影響を及ぼすことがないので幅広く適用することができる。

【発明を実施するための最良の形態】

10

【0010】

以下、本発明をさらに詳細に説明する。

【0011】

(1) 原材料

本発明で使用するマレーフトモモ(学名: Syzygium malaccensis)はインドから東ポリネシアの各地に広く分布しているフトモモ科フトモモ属の常緑高木であり、果実は生食の他、ジャムなどに加工されている。リュウガン(学名: Euphoria longana)は南アジア原産のムクロジ科の常緑高木で、中国南部及び台湾を中心として果肉を生食、又は加工して缶詰、乾果として食されている。本発明ではマレーフトモモ又はリュウガンの種子を使用する。マレーフトモモ及びリュウガンの種子はいずれも熱病に対する民間薬としての利用が知られているが、これらの溶媒抽出物が抗菌作用を有し、特に耐熱性の芽胞形成細菌の増殖抑制に高い効果を示すことは全く知られていない。本発明ではマレーフトモモ又はリュウガンの果実から種子のみを取り出して後述の抽出処理に付するのが好ましいが、種子の入った果実をそのまま抽出処理に付した場合でも本発明の効果を発揮できる。

20

【0012】

(2) 抽出処理

1) 抽出溶媒

抽出処理に使用する溶媒は、水又は有機溶媒であり、有機溶媒は含水物であってもよい。有機溶媒としては特に制限はなく、メタノール、エタノール、プロパノール、プロピレングリコール等のアルコール類、アセトン等のケトン類、酢酸エチル等のエステル類、ジエチルエーテル等のエーテル類、ヘキサン、ヘプタン等の炭化水素類を適宜単独で、又は混合して使用することができる。アルコール類のような極性有機溶媒が好ましく、特に50 ~ 95 %エタノールが好ましい。

30

抽出に用いる溶媒の量は任意に選択できるが、一般には上記原材料1重量部に対して溶媒1 ~ 100重量部を使用する。

【0013】

2) 抽出処理方法

抽出処理方法としては、溶媒の種類、量等により種々の方法を採用することができる。例えば前記各種天然物を粉碎したものを溶媒中に入れ、浸漬法又は加熱還流法で抽出することができる。なお浸漬法による場合は加温条件下、室温又は冷却条件下のいずれであってもよい。

40

ついで、溶媒に不溶な固形物を除去して抽出液を得るが、固形物除去方法としては遠心分離、濾過、圧搾等の各種の固液分離手段を用いることができる。

得られた抽出液はそのままでも抗菌剤組成物として使用できるが、例えば水、エタノール、グリセリン、トリエチルシトレート、ジプロピレングリコール、プロピレングリコール等の液体希釈剤で適宜希釈して使用してもよい。またはデキストリン、シュークロース、ペクチン、キチン等を加えることもできる。これらをさらに濃縮してペースト状の抽出エキスとしても、また凍結乾燥又は加熱乾燥などの処理を行い粉末として使用してもよい。

【0014】

50

3) 精製

上記方法で得られた抽出物は、そのまま食品等に配合することができるが、さらに、脱色、脱臭等の精製処理をすることができる。精製処理には活性炭や多孔性のスチレン-ジビニルベンゼン共重合体からなる合成樹脂吸着剤などが使用できる。精製用の合成樹脂吸着剤としては例えば三菱化学株式会社製「ダイヤイオンHP-20（登録商標）」やオルガノ株式会社製「アンバーライトXAD-2（登録商標）」などが使用できる。

【0015】

(3) 抗菌剤組成物の調製

抗菌剤組成物は上記のとおり得られた抽出物を原材料として、例えば以下のように製剤化して使用することもできる。

一般的には有機酸、酸化防止剤、pH調整剤及び乳化剤等の各種成分を組み合わせ、水、アルコール、グリセリン、プロピレングリコール等の（混合）溶剤に適当な濃度で溶解させて（具体的には、水/エタノール、水/エタノール/グリセリン、水/グリセリン等の混合溶剤）液剤とする。また、各種成分の溶液に賦形剤（デキストリン等）を添加し噴霧乾燥によりパウダー状の製剤にすることも可能であり、用途に応じて種々の剤形を採用することができる。

【0016】

(4) 用法

本発明の抗菌剤組成物は飲食品等の加工段階で適宜添加することができる。添加量は抗菌剤組成物の濃度等により多少異なるが、一般的に飲食品に対して1～1000ppmの添加量（抽出物の固形成分として）が適当である。食品及び口腔衛生剤などの本来の香味に影響を及ぼさない閾値の範囲内で添加する観点からは1～200ppmが好ましく、特に1～100ppmが好ましい。

また、本発明の抗菌剤組成物と、一般に使用されているソルビン酸、安息香酸等の合成保存料や、わさび抽出物、茶抽出物などの天然系の保存料を併用してもよく、併用する保存料の種類及び混合割合は特に限定されるものではない。他の保存料と混合した場合の添加量については、使用する抗菌剤組成物の成分の純度、あるいは添加対象の製品の種類により異なるが、飲食品に対しては1～1000ppmが適当であり、特に1～100ppmの範囲が好ましい。

【0017】

本発明の抗菌剤組成物は微生物制御が必要とされる製品に対して特に制限なく使用できる。特に耐熱性芽胞形成細菌に対し高い増殖抑制効果を示し、それ自体が味やにおいをほとんど有していないことから、経口で摂取される飲食品や医薬品、口腔内で使用される口腔衛生剤への使用が好適である。

飲食品の例としては、飲料、菓子類、油脂及び油脂加工食品、乳、乳製品などが挙げられるが（「特許庁公報 周知慣用技術集（香料）第2部 食品用香料（2000）」p4～5参照）、より具体的には下記のことを挙げることができる。

飲料の例としては、コーヒー、茶、清涼飲料、乳酸菌飲料、無果汁飲料、果汁、果汁入り飲料、栄養ドリンクなどが挙げられる。

菓子類の例としては、ゼリー、プリン、パバロア、キャンディー、ビスケット、クッキー、チョコレート、ケーキ類、冷菓（アイスクリーム類、アイスキャンディー類等）、水飴、ガムなどが挙げられる。

油脂及び油脂加工食品の例としては、食用油脂（動物性油脂、植物性油脂）、マーガリン、ショートニング、マヨネーズ、ドレッシング、ハードバターなど、さらに、即席（フライ）麺類、とうふの油揚げ（油揚げ、生揚げ、がんもどき）、揚げまぼこ、てんぷら、フライ、スナック類（ポテトチップス、揚げあられ類、かりんとう、ドーナッツ）、調理冷凍食品（冷凍コロッケ、エビフライ等）などが挙げられる。

乳、乳製品等の例としては、乳として生乳、牛乳、加工乳等、乳製品としてクリーム、バター、バターオイル、濃縮ホエー、チーズ、ヨーグルト、練乳、粉乳、濃縮乳等などが挙げられる。

口腔衛生剤の例としては、歯磨、うがい薬、口中清涼剤、口臭防止剤などが挙げられる。

医薬品の例としてはドリンク剤などの経口内服薬などが挙げられる。

【実施例】

【0018】

以下、本発明を実施例に基づいてさらに詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

【0019】

〔抽出例1〕

インドネシア産マレーフトモモ (*Syzygium malaccensis*) 果実種子を粉碎した後、この粉碎粉末100gに50%(V/V)エタノール1Lを添加し、1時間加熱還流抽出を行った。引き続き冷却後、ろ過して不溶物を除去し、ロータリーエバポレーターで減圧濃縮および乾固して、マレーフトモモ種子抽出物を8.37gを得た。

【0020】

〔抽出例2〕

インドネシア産マレーフトモモ (*Syzygium malaccensis*) の種子を含む果実100gを95%(V/V)エタノール1Lに加え粉碎した後、これをそのまま1時間加熱還流抽出を行った。引き続き冷却後、ろ過して不溶物を除去し、ロータリーエバポレーターで減圧濃縮および乾固して、マレーフトモモ果実抽出物を6.4gを得た。

【0021】

〔抽出例3〕

インドネシア産リュウガン (*Euphoria longana*) 果実の種子を乾燥し、粉碎した後、この粉碎粉末100gに50%(V/V)エタノール1Lを添加し、1時間加熱還流抽出を行った。引き続き冷却後、ろ過して不溶物を除去し、ロータリーエバポレーターで減圧濃縮および乾固して、リュウガン種子抽出物を22.6gを得た。

【0022】

〔抽出例4〕

活性画分を得るため抽出例1の抽出物5gを水に分散させ合成吸着剤(ダイヤイオンHP-20)1000mLを充填したカラムに通導し、水、50%(V/V)エタノール、エタノール各1000mLにて順次溶出させ、各々の画分を濃縮後凍結乾燥することにより、それぞれ水画分2.3g、50%(V/V)エタノール画分2.4g、エタノール画分0.2gが得られた。

【0023】

〔試験例1〕

抽出例1から3で得られた抽出物を用い、種々の細菌に対する抗菌力を以下の実験により評価した。培地はミューラーヒントン培地(Difco社製)を用い、前記培地を高圧滅菌したものにあらかじめ前培養した被検菌を培地1mL当たり 1×10^4 となるように培地に接種した。抽出物は50%エタノールに10000ppmとなるように溶解させ、2倍段階希釈して10000ppmから9.8ppmまでの試験サンプルを調製した。ついでこの試験サンプルを培地に対して1/10添加し抽出物が最終濃度で1000ppmから0.98ppmまで含まれた培養液を調製した。使用した被検菌はグラム陽性菌3種、グラム陰性菌2種で、24時間、37℃で培養後、菌の生育が認められない濃度をその抽出物のMIC(最小発育阻止濃度)として抗菌力を求めた。その結果を表1に示す。

いずれの抽出物においても高い抗菌効果を示している事がわかった。

【0024】

被検菌

Bacillus subtilis IFO 3134

Bacillus cereus IFO 13494

Staphylococcus aureus IFO 12732

【0025】

【表 1】

	MIC (ppm)		
	抽出例1	抽出例2	抽出例3
<i>B. subtilis</i> IFO 3134	170	300	260
<i>B. cereus</i> IFO 13494	170	590	130
<i>S. aureus</i> IFO 12732	80	300	130

【 0 0 2 6 】

10

〔試験例 2〕

抽出例 4 で得られた各画分の抗菌力を試験例 1 と同様の方法により測定した。その結果を表 2 に示す。50% (V/V) エタノール溶出画分にもっとも強い活性が見られた。

【 0 0 2 7 】

【表 2】

	MIC (ppm)		
	水画分	50%エタノール画分	エタノール画分
<i>B. subtilis</i> IFO 3134	160	125	130
<i>B. cereus</i> IFO 13494	650	60	70
<i>S. aureus</i> IFO 12732	650	30	130

20

【 0 0 2 8 】

〔試験例 3〕

(コーヒー牛乳飲料中での芽胞増殖抑制効果試験)

下記処方 of 滅菌済みコーヒー牛乳 (pH 6.8) に *Bacillus cereus* IFO13494 を 1 mL あたり 1×10^3 となるように孢子懸濁液を添加し、さらに抽出例 1 の抽出物をコーヒー牛乳中に 100 ppm となるように添加し密閉容器に充填し、37℃、18 日間保存後、pH を測定し保存性を評価した。また対照区として無添加のものも同時に培養した。これらの結果を下記表 3 に示す。

30

コーヒー牛乳処方

コーヒーエキス	2.5
牛乳	10
砂糖	6
重曹	pH 6.8 に調製
水	
total	100

40

【 0 0 2 9 】

【表 3】

	コーヒー牛乳の pH	
	0 日後	18 日後
対照区	6.8	4.9
抗菌剤組成物添加区	6.8	6.6

50

【 0 0 3 0 】

対照区では18日後に菌増殖によりpHは低下し、pH低下に基づく乳の凝集による沈殿が認められた。一方、添加区では18日後のpHは0日後と同等レベルで菌増殖によるpHの低下は認められず、pH低下に基づく乳の凝集による沈殿の生成も見られなかった。以上から、抽出例1の抽出物100ppm添加における*Bacillus cereus* IF013494の発芽抑制効果が確認された。

【 0 0 3 1 】

〔実施例1〕100%オレンジ果汁飲料

1/5オレンジ濃縮果汁200gと蒸留水800gを添加し、100%オレンジ飲料を調製した。得られた飲料はpH3.8、糖度13.2であった。この飲料100gに抽出例3のリュウガン種子抽出物凍結乾燥粉末を10mg添加し、本発明の抗菌剤組成物を添加してなるオレンジ果汁飲料を作成した。このオレンジ果汁飲料は専門パネルによる評価の結果、抗菌剤組成物による異味異臭は感じられなかった。

10

【 0 0 3 2 】

〔実施例2〕生麺

強力粉500g、水60mLおよびかん粉5gを配合した基本組成に、抽出例2のマレーフトモモ種子抽出物凍結乾燥粉末を100mg添加し、充分混合した後、製麺機により麺線を作り、沸騰水中で茹で上げ、水冷して、本発明の抗菌剤組成物を添加した生麺を作成した。この生麺は専門パネルによる評価の結果、抗菌剤組成物による異味異臭は感じられなかった。

20

【産業上の利用可能性】

【 0 0 3 3 】

本発明の抗菌剤組成物は、種々の細菌、特に芽胞形成細菌の増殖を抑制するとともに、味やにおいをほとんど有していないことから、さまざまな飲食品、医薬品等への応用が可能である。

フロントページの続き

(56)参考文献 特開2002-212009(JP,A)
特開2001-247471(JP,A)
特開2002-145732(JP,A)
特開2004-059525(JP,A)
特開2005-089454(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

A01N 65/00
A01N 65/28
A01N 65/34
JSTPlus(JDreamII)
JST7580(JDreamII)