

令和 3 年 6 月 15 日現在

機関番号：34428

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K05517

研究課題名(和文)酸化安定性を付与した機能性脂質粉末の作製のための脂質安定性評価モデルの構築

研究課題名(英文) Evaluation model of lipid oxidation stability for spray-dried powder of functional lipid powder imparted oxidation stability with antioxidant.

研究代表者

吉井 英文 (Yoshii, Hidefumi)

摂南大学・農学部・教授

研究者番号：60174885

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：イサダオイルは、高度不飽和脂肪酸であるドコサヘキサエン酸(DHA)とエイコサペンタエン酸(EPA)を高含有する。このオイルを、乳化剤としてキラヤニン、賦形剤としてマルトデキストリン(DE=19)を用いて乳化溶液を作製し、その溶液を噴霧乾燥することにより乳化イサダオイル噴霧乾燥粉末を得た。この粉末中のEPA、DHAの貯蔵安定性に及ぼす油滴径の影響について検討した。貯蔵温度が高い場合、油滴径が小さい粉末中の高度不飽和脂肪酸が、油滴径が大きい粉末中の高度不飽和脂肪酸の安定性と同一か安定性が高い結果であった。しかし、25℃で貯蔵した場合油滴径の大きな粉末中のEPA、DHAのほうが安定であった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

健康な生活を維持していく上で機能性食品の役割は非常に重要となってきた。血液の粘度や血圧の維持に重要であると考えられているエイコサペンタエン酸(EPA)、ドコサヘキサエン酸(DHA)等の ω -3系高度不飽和脂肪酸(PUFA)を高含有する魚油やクリル油は、その生理機能から非常に注目されている。この魚油を安定な状態で食品に使用するため、魚油を乳化剤によりエマルションを作製し、その溶液を噴霧乾燥することにより乳化魚油噴霧乾燥粉末を得る。この粉末中魚油中の機能性成分であるEPA、DHAの安定性に及ぼす油滴径、粉末径の影響を検討し、安定な機能性脂質粉末作製のための工学的指針を確立させた。

研究成果の概要(英文)：Krill oil (KO) is rich in polyunsaturated fatty acids, especially eicosapentaenoic acid (EPA) and docosahexaenoic acid (DHA), which have many health benefits. However, the oil is unstable owing to its high degree of unsaturation. The oil was microencapsulated using maltodextrin with a dextrose equivalent of 19 as a wall material to improve its stability. A saponin (Quillayanin) and sodium caseinate were also used as emulsifiers, and rosemary oil (RO) extract or sodium ascorbate was used as an antioxidant. The microencapsulated KO samples were stored at 25, 50, or 70 °C to examine the stability of EPA and DHA in the KO. For the microcapsules prepared from emulsions with smaller oil droplets, the surface oil ratios of EPA and DHA were higher, but the fatty acids were less stable at 50 and 70 °C. On the other hand, both EPA and DHA in the microcapsules prepared from emulsions with small oil droplets were stable at 25 °C.

研究分野：食品工学

キーワード：イサダオイル 高度不飽和脂肪酸 エイコサペンタエン酸 ドコサヘキサエン酸 噴霧乾燥 粉末 乳化 貯蔵安定性

様式 C - 19, F - 19 - 1, Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

高度不飽和脂肪酸を高含有する魚油は、血中 LDL コレステロール低減効果など、優れた生理活性がみられることから、機能性食品素材として大きな注目を集めている。しかし、魚油中の EPA や DHA などの高度不飽和脂肪酸の酸化速度は極めて速く、酸化によって異臭を発生するのが問題となっている。そのため、魚油を乳化後噴霧乾燥粉末化して魚油の酸化速度を抑えるためのマイクロカプセル化の研究が数多く実施されている。

抗酸化剤を添加していない魚油を粉末化する場合は、マルトデキストリンのような糖質に囲まれていない(包括されない)魚油、いわゆる表面油を少なくすることが、キポイントであった。よって、本研究では、乳化機能性脂質噴霧乾燥粉末内の機能性脂質の安定性と油滴サイズ、貯蔵温度の関係を調べ、噴霧乾燥粉末内の機能性脂質の安定性評価反安定性評価のための反応工学的モデルの構築を目指す。

2. 研究の目的

機能性脂質を、乳化剤を用いて乳化後賦形剤溶液と一緒に噴霧乾燥することにより、酸化安定性を付与した乳化機能性脂質粉末を作製するための乳化剤、賦形剤の選択、乳化条件、噴霧乾燥条件を変化させることにより油滴サイズ、粉末構造を制御し、酸化安定性の高い乳化機能性脂質粉末を作製する手法開発が目的である。本研究では、表面油分をできるだけ少なくし、賦形剤中の酸素の移動速度、機能性脂質の酸化分解速度、油滴サイズを変化させて、包括脂質の安定性に及ぼす油滴径の影響を中心に検討し、脂質の酸化速度定数に及ぼす油滴径の影響を反応工学的に解析することを目的とした。

3. 研究の方法

3.1. 乳化 KO の噴霧乾燥粉末の作製

図 1 に表面構造の走査型電子顕微鏡写真を示す。すべての粉末の写真の分析は、噴霧乾燥粉末がしわがあり、真の球状粉末ではなかった。供給溶液の粘度が約 $80\text{mPa}\cdot\text{s}$ とかなり高かったため、固形分が 60% の粉末には、少量の長い糸状の粉末が含まれていました。噴霧乾燥粉末が中央に 1 つの小さな空孔有していた。空孔サイズが小さいのは、入口空気温度が 140°C と低いためと考えられる。

表面油率は、噴霧乾燥粉末中の機能性脂質化合物の安定性の重要な指標である。再構成油滴径の比 (d_e/d_p) に対して表面油率をプロットした図を、図 2 に示す。実線は、式 $s = 1 - (1 - 2 d_e / d_p)^3$ の計算線である。高圧乳化した粉末の表面油率は 0.05 未満であった。これは、油滴径が小さいためと考えられる。表面油率は、計算線に非常に近い値であった。

噴霧乾燥後の EPA 残留率は、機械的乳化の噴霧乾燥粉末の場合で 88% と 99%、高圧乳化の噴霧乾燥粉末で 99% と 100% であった。一方、DHA 残留率は機械的乳化で 68% と 75%、高圧乳化で 74% と 92% であった。

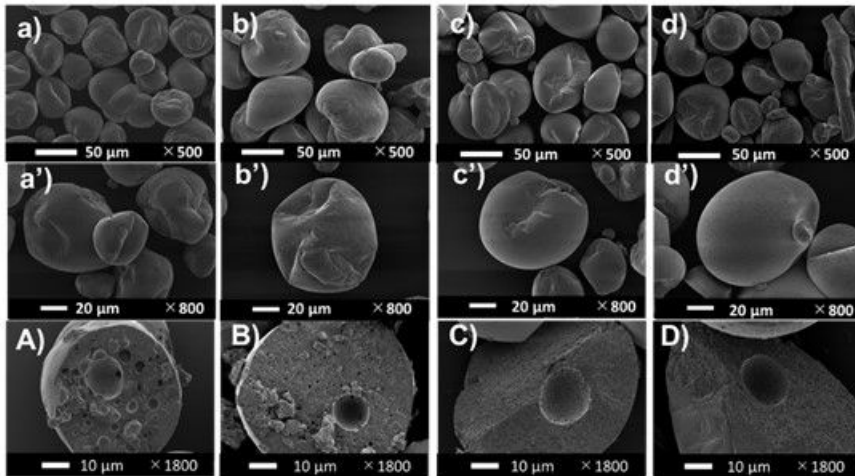


図1 乳化 KO 噴霧乾燥粉末の電子顕微鏡写真

表面構造：a)から d) (500倍), a'-d') (800倍), 切断面構造：A-D (1800倍)

a, a', A：機械的乳化, 固形分濃度 50%, b, b', B：機械的乳化, 固形分濃度 60%

c, c', C：高压乳化, 固形分濃度 50%, d, d', D：高压乳化, 固形分濃度 60%

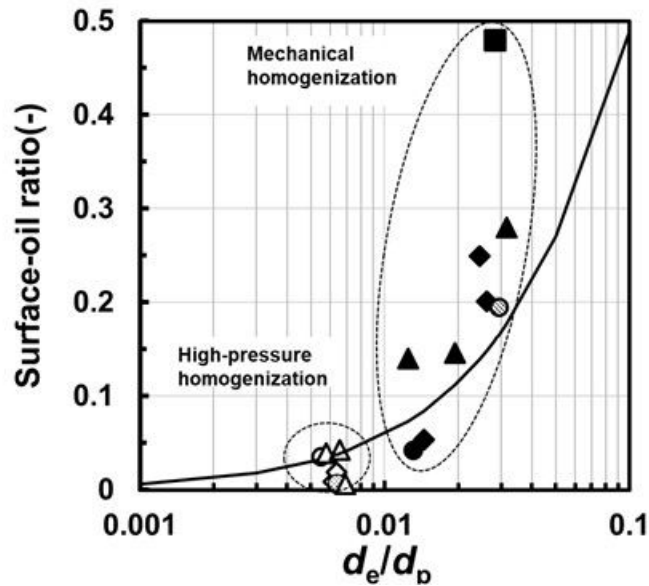


図2 噴霧乾燥粉末の表面油率と再構成油滴径 (d_e) と粉末径 (d_p) の比との相関

○のシンボルは、図1と同じである。オープンシンボルは高压乳化、黒塗りのシンボルは機械的乳化の場合である。△のシンボルは、固形分60%、ひし形のシンボルは固形分50%である。□のシンボルは、オイル含有率30%のものを表す。

3.2. 噴霧乾燥粉末中の EPA および DHA の安定性

噴霧乾燥粉末中の EPA および DHA の安定性を、25, 50, および 70°C で検討した。図3は、一定温度での噴霧乾燥粉末中の EPA の安定性を、噴霧乾燥後の初期粉末中の EPA に対する貯蔵

粉末中の EPA の比率として示す。25°C では, EPA 残留率は, 約 1 週間の保管で EPA 残留率が減少した後, ほぼ一定であった。ただし, 50 および 70°C で 6 か月間保管した後の EPA 残留率はほぼゼロであった。これらの残留率挙動は, EPA の酸化が非常に温度に敏感であることを示している。

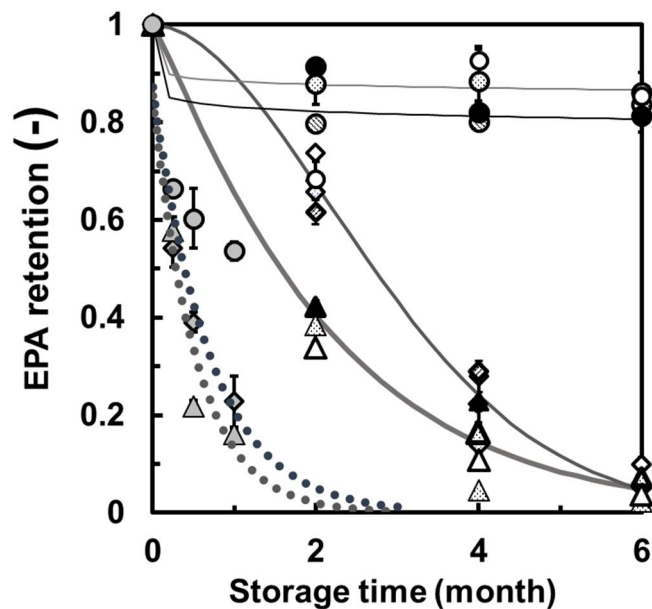


図3 保存温度 (25、50、および 70°C) の EPA 残留率に及ぼす影響

○、●、および △、▲、◇、◆、および ●、▲、◇、◆、野シンボルは、25、50、および 70 °C で保存された粉末を表す。機械的乳化、固形分 50%の粉末にシンボルに対角線を引いた。 高圧乳化、固形分 50%の粉末に対応する記号にドットのシンボルを描いた。 黒塗りシンボルは、機械的乳化、固形分 60%の粉末の場合である。 白塗りシンボルは、高圧乳化、固形分 60%の粉末の場合である。 灰色塗りのシンボルはイサダ油の場合である。 実線は、Avrami の式を使用した相関線を表す。

3.2. 乳化スクワレン噴霧乾燥粉末を用いたスクワレン安定性に及ぼす油滴径の影響

スクワレン (SQ) をコア物質として用いた。包括した SQ は、40wt%固形分および 60wt%蒸留水で調製した。乳化剤は、カゼインナトリウム (NC) を用いた。 総固形分は、40wt% SQ、3~8wt%アスコルビン酸ナトリウム、56.6~51.6 wt%MD (DE=19) および 0.4 wt%レシチンで構成した。 噴霧乾燥の前に、すべての材料を加えて溶解した。溶液は、Polytron ホモジナイザー (PT-6100; Kinematica, Littau, Switzerland) を使用して、8000 rpm で 3 分間、毎分 30 秒間隔で予混合した。 エマルジョンは、高圧乳化機 (LAB 2000; SMT、東京、日本) を 20 および 50 MPa で使用するか、スターバーストミニ (HJP-25001K;(株)スギノマシン、魚津) を 100MPa で 2 サイクルの乳化操作を行った。この乳化溶液を、上記イサダオイルと同様の条件で噴霧乾燥粉末を作製した。作製粉末の物理化学的特質を、表 1 に示す。

表 1 作製粉末の物理化学的特質

NC	Homogenization pressure	Powder size [μm]	Reconstituted oil-droplet size [μm]	Moisture content [%]	Retention during spray drying [%]	Surface oil ratio [%]
3%	100 MPa	27.7±9.0	0.27±0.0	2.95±0.0	90.1±1.1	3.4±0.6
	50 MPa	24.6±11.1	0.61±0.0	2.91±0.1	91.5±0.3	7.1±0.4
	20 MPa	29.0±15.9	0.69±0.0	2.82±0.3	95.5±0.3	7.0±0.1
5%	100 MPa	36.7±13.8	0.22±0.0	2.92±0.2	96.8±0.3	4.1±0.2
	50 MPa	26.8±6.0	0.47±0.0	2.78±0.1	96.3±0.1	4.7±0.0
	20 MPa	32.0±11.5	0.77±0.0	2.41±0.2	88.0±0.5	6.0±0.4
8%	100 MPa	37.2±12.1	0.19±0.0	3.08±0.3	91.3±0.7	2.8±0.2
	50 MPa	28.9±6.7	0.50±0.0	3.18±0.2	99.8±0.6	3.5±0.1
	20 MPa	34.9±5.9	0.77±0.0	2.77±0.1	99.0±0.3	7.3±0.5

SQ の安定性を 1 次反応速度式で相関して得られた SQ 分解速度定数の活性化エネルギーと油滴径の関係を、図 4 に示す。

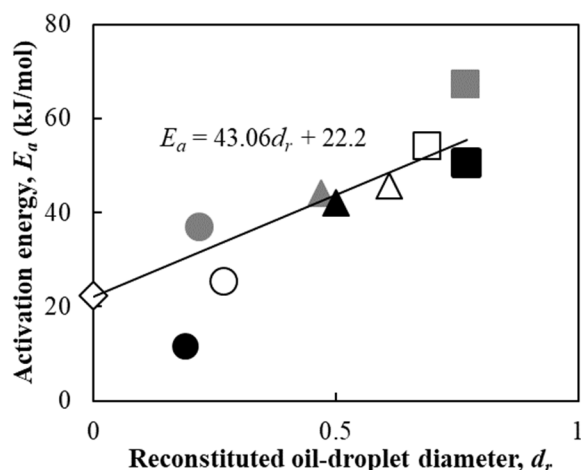


図 4 乳化 SQ 噴霧乾燥粉末中の SQ 分解速度定数の活性化エネルギーと平均油滴径の関係
 高压乳化の圧力：○, ●, ●: 100 MPa, △, ▲, ▲: 50 MPa and □, ■, ■: 20 MPa.

NC 濃度：3wt% (オープンシンボル), 5 wt% NC (灰色シンボル), and 8 wt% NC (黒抜きシンボル), : SQ. 実線は、 $E_a=43.1d_r + 22.2$ の相関線。

室温では油滴径が大きな乳化 SQ 噴霧乾燥粉末中の SQ のほうが安定であることがわかる。

4. 研究成果

乳化機能性脂質噴霧乾燥粉末中の機能性脂質の安定性は、保存温度に依存し、機能性脂質自身の安定性と添加抗酸化剤によって影響するが、室温付近では油滴径をナノサイズまで小さくする必要がないことが明らかとなった。しかし、これは噴霧乾燥粉末の表面油量にも依存すると考えられる。今後、乳化剤の種類、その量、抗酸化剤、乳化手法を考えた機能性脂質の最適な粉末化手法を検討する必要がある。即ち、図 4 の結果をモデル化する必要がある。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 5件/うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 Takashige, S., Ariyanto, H.D., Adachi, S., Yoshii, H.	4. 巻 4
2. 論文標題 Flavor Release from Spray-Dried Powders with Various Wall Materials.	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ChemEngineering	6. 最初と最後の頁 1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/chemengineering4010001	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Sultana, A., Maki, Y., , Fermin, A., Adachi, S., Yoshii, H.	4. 巻 1
2. 論文標題 Stability of eicosapentaenoic acid and docosahexaenoic acid in spray-dried powder of emulsified krill oil.	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Future Foods	6. 最初と最後の頁 1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.fufo.2020.100009	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Ayuni D., Karyadi, J.N.W., Saputro, A.D., Yoshii, H	4. 巻 41
2. 論文標題 Effect of antioxidant and pro-oxidant on the stability of microencapsulated squalene by spray drying.	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Agritech.	6. 最初と最後の頁 49-57
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.22146/agritech.52741	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 吉井英文、高重至成、四日洋和、安達修二.	4. 巻 82
2. 論文標題 機能性物質を閉じ込める ~機能性食品粉末の製造と特性~	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 化学工学	6. 最初と最後の頁 362-365
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計19件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 7件）

1. 発表者名 吉井英文
2. 発表標題 噴霧乾燥を用いた機能性食品粉末の作製
3. 学会等名 中国地区化学工学懇話会記念講演会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takashige, S., Ariyanto, H.D., Adachi, S., Yoshii, H.
2. 発表標題 Release from Spray-Dried Powders with Various Wall Materials.
3. 学会等名 Third Nordic Baltic Drying Conference（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Sultana, A., Fermin, A., 安達修二, 吉井英文
2. 発表標題 イサダオイルの酵母への包括による安定化
3. 学会等名 食品工学会第20回大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Fermin, A., 安達修二, 吉井英文
2. 発表標題 Oxidation stability of krill oil in emulsified spray-dried powder.
3. 学会等名 食品工学会第20回大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Ayuni, D., 吉井英文
2. 発表標題 Effect of storage temperature and oil-droplet diameter to the stability of squalene oil
3. 学会等名 食品工学会第20回大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takashige, S., Ariyanto, H,D., Adachi, S., Yoshii, H.
2. 発表標題 Release rates of emulsified d-limonene encapsulated in spray-dried powders.
3. 学会等名 Asian Pacific Confederation of Chemical Engineering (APCChE) Congress (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Sultana, A., Ferimin A., Adachi, S., Yoshii, H.
2. 発表標題 Stability of DHA and EPA in encapsulated krill oil in spray-dried encapsulated yeast powder.
3. 学会等名 Asian Pacific Confederation of Chemical Engineering (APCChE) Congress (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Fermin, A., Adachi, S., Yoshii, H
2. 発表標題 Oxidative stability of microencapsulated krill oil by spray drying.
3. 学会等名 Asian Pacific Confederation of Chemical Engineering (APCChE) Congress. (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takashige, S, Ariyanto H.D., Yoshii, H.
2. 発表標題 Flavor release analysis from corn starch-coated spray-dried powders with ramping method of humidity at a constant temperature.
3. 学会等名 The 10th Asia Pacific Drying Conference (ADC) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Nguyen, T.V.A., Yoshii, H.
2. 発表標題 Formation inclusion complex of cyclodextrin and allyl sulfide and their stability.
3. 学会等名 The 19th International Cyclodextrin Symposium (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Nguyen T.V.A., Yoshii, H.
2. 発表標題 Encapsulation and stability of allyl sulfide in cyclodextrin with and without the presence of medium chain triglycerides.
3. 学会等名 日本食品工学会第18回 (2018年度) 年次大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Afroza, S., Yoshii, H.
2. 発表標題 Dynamic flavor release from spray-dried encapsulated yeast cells.
3. 学会等名 日本食品工学会第18回 (2018年度) 年次大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 泉秀明, 御器谷友美, 津田信治, 吉井英文
2. 発表標題 トランスグルタミナーゼ処理によるコラーゲンペプチド・カゼイン含有エマルションの物理的特性
3. 学会等名 日本食品科学工学会第65回大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 山内惇生, 高重至成, 泉秀明, 御器谷友美, 津田信治, 吉井英文
2. 発表標題 乳化剤蛋白質のトランスグルタミナーゼ処理による乳化魚油粉末の酸化安定性.
3. 学会等名 日本食品科学工学会第65回大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Nguyen, T.V.A., Yoshii, H.
2. 発表標題 中鎖脂肪酸トリグリセリドを用いたフレーバー包括シクロデキストリン粉末の噴霧乾燥法による作製
3. 学会等名 第35回シクロデキストリンシンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Takashige, S., Hermawan, A.D., Sultana, A., Shiga, H., Adachi, S., Yoshii, H.
2. 発表標題 Encapsulation of krill oil by spray drying.
3. 学会等名 21st International Drying Symposium, (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Fermin, A. 高重至成, Hermawan, A.D., Sultana S., 安達修二, 吉井英文
2. 発表標題 イサダオイルの乳化特性と粉末化.
3. 学会等名 日本農芸化学会2019年度大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 牧由惟, 安達修二, 吉井英文.
2. 発表標題 乳化イサダオイルの噴霧乾燥粉末化と作製粉末の特質
3. 学会等名 日本食品工学会2020年度
4. 発表年 2020年～2021年

1. 発表者名 フェルミン アントニオ, 高重至成, アフロザ スルタナ, 安達修二, 吉井英文.
2. 発表標題 乳化イサダオイル噴霧乾燥粉末中のエイコサペンタエン酸, およびドコサヘキサエン酸の安定性,
3. 学会等名 日本農芸化学会2021年度大会
4. 発表年 2020年～2021年

〔図書〕 計2件

1. 著者名 Sultana, A., Ghani, A., Adachi, S., Yoshii, H.	4. 発行年 2020年
2. 出版社 Springer	5. 総ページ数 616
3. 書名 Nano-food Engineering	

〔出願〕 計0件

〔取得〕 計1件

産業財産権の名称 乳化イサダオイル	発明者 吉井英文、高森吉守	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、特開2020-022387	取得年 2020年	国内・外国の別 国内

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------