

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 6 月 28 日現在

機関番号：32669

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26282019

研究課題名(和文)咀嚼・嚥下動作時の香気フレーバーリリース予測システムの構築と開発

研究課題名(英文) Aroma release during mastication and swallowing

研究代表者

小竹 佐知子 (ODAKE, Sachiko)

日本獣医生命科学大学・応用生命科学部・准教授

研究者番号：60233540

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,100,000円

研究成果の概要(和文)：食べ物の“おいしさ”を決める要因の一つ香りについて、香りの原因物質である香気化合物がどのように挙動するか、香気成分の放散量、食塊の特性、共存物の影響について検討した。香気化合物は脂溶性の化合物が多いことから、その指標LogP(水と油の分配比率を表す値)に関して、5056化合物を整理した。またモデル系ショ糖水溶液、ショ糖食塩混合液を用い、香気放散量と呈味性が共存する調味料成分によって影響を受けることを確認した。人の咀嚼パターンに関しては、ガム試料を用いて咀嚼中の食塊が物性値によりどのように影響を受けるかを調べ、食塊特性と咀嚼特性の関連性を確認し、ガム咀嚼時のフレーバー知覚の経時変化を求めた。

研究成果の概要(英文)：Food aroma is one of the most important factors which decide food palatability. Behaviors of volatile compounds, which make sensations for olfaction, were investigated with focus on released amount from model food, bolus conditions, and influences of seasoning substances. Most volatile compounds are oil-soluble, and LogP, the index for liposolubility, of 5056 compounds were collected from published reports date and from calculation with software, classified, and some data from old publishing were found not to be reliable. The amount of volatile compounds was influenced by co-exist substances, like seasonings (sugar and salt) and interactions between volatile compounds and co-exist substances were verified. Mastication properties were also influenced by bolus physical properties, and changes of perceived flavor attributes during mastication were observed.

研究分野：食品科学

キーワード：香気 フレーバーリリース 咀嚼・嚥下 フレーバーリリース予測

### 1. 研究開始当初の背景

香気フレーバーリリースとは、食品から放散された香気成分が人の嗅覚組織に届く過程を指し、広義にはその時に人が感じるにおいの強弱や質も含めて研究する分野の言葉である。交付者は、1984年に開始した卒業論文研究から、調味化合物や香気化合物の物質移動現象に約30年間携わり (Odakeら、*Agric. Biol. Chem.*、**54**(1990)など)、1996年以降は、食品が咀嚼・嚥下される時の香気化合物の移動現象に特化着目して研究を進めてきた (化学と生物、**47**(2009)、日本調理科学会誌、**46**(2013)、日本官能評価学会誌、**17**(2013))。

香気化合物の移動経路には2つあり、図1Aに示すような、食品をモグモグと食べている時に感じる“鼻に抜ける香り”と、Bに示す、クンクンと鼻の穴から嗅ぐ香りです。一般に香りというと、Bのことを思い浮かべる人が多いが、両者の刺激は区別されていて (Smallら、*Neuron*、**47**(2005))、実は、人が食品や飲料を摂取して“おいしい”と判断する際の最終的かつ決定的要因となっているのはAの咀嚼中の香り (咀嚼香) である。香りの研究は、化粧品分野、洗剤などの衣料等洗浄分野でも行なわれているが、食品産業界がこれらの分野と決定的に異なるのが、この「咀嚼香」を研究ターゲットにしなければならないという点である。飲食しても鼻が詰まっていると、そのおいしさを感じ取れない身近な体験からも、咀嚼香の重要性がわかる。

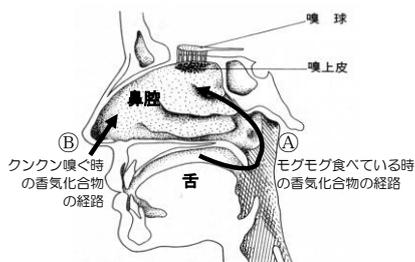


図1 香を感じる2つの経路

### 2. 研究の目的

食べ物の“おいしさ”を決める要因の一つ香りについて、香りの原因物質である香気化合物がどのように挙動するかを検討するために、その基本的データを出すことを目的とした。そのため、モデル系試料および実際の食品について、食品からの放散香気、および、咀嚼中の食塊の特性について検討した。

### 3. 研究の方法

#### (1) 香気化合物の放散現象に関わる基礎的物性特性値データ収集

香気フレーバーリリースに関して、これまでに文献に報告された香気化合物について、基礎的物性特性値のデータ収集を行なった。その内容は融点および沸点 (香気化合物の状態)、溶解度 (水相での分配比率)、蒸気圧およびヘンリー定数 (気相での分配比率)、 $\log P$  (水相-油相での分配比率) とした。各値は、化学便覧および Chemical Abstract 検索により調査し、既報値の少なかった  $\log P$  はソフトウェア (ACD/LABSTMのACD/LogP, ver. 8.0, Canada, [www.acdlabs.com](http://www.acdlabs.com)、富士通株式会社) により算出した。

#### (2) 種々食品からの香気放散データの収集

香気放散に及ぼすショ糖、食塩の相互影響について、モデル水溶液を調製して放散香気量を測定して検討した。

ショ糖 (三井製糖株式会社) を 0、20、40 および 60% (w/w) となるよう蒸留水に溶かし、酢酸イソアミル (曾田香料株式会社) を 10 ppm となるよう添加してモデル水溶液を作成した。モデル水溶液 10 mL を 20 mL バイアル瓶に注入して平衡にし、ヘッドスペースオートサンプラー (TurboMatrix HS-16、パーキンエルマー) を連結した GC-FID (GC-14A、島津製作所) により、カラム DB-WAX (0.25 mm×30 m、膜厚 0.25  $\mu$ m、アジレントテクノロジー) を用いて香気放散量の分析を行った。ヘッドスペース採取条件はバイアル瓶保温 40°C にて、100°C ニードルにより 0.1 分間で 0.2 mL 採集した。オートサンプラーから GC-FID へのトランスファーラインの温度は 110°C とし、GC の昇温プログラムは 40°C で 4 分間保持し、8 °C/min で 200°C まで昇温した。実験は複数回行い、ピークエリアの平均値をその試料の香気放散量とした。また、官能評価には 30 名のパネリストに常温の蒸留水で口内を洗浄させた後、5 mL の 0% ショ糖試料を一度口に含んで 6 秒間口内に留めてから吐き出させた。口内に留めている時に知覚した香気強度を 0 とした時の、各試料知覚強度を、0.5 目盛の -2 ~ +2 の 9 段階スケールで評価を行った。なお、試料毎には蒸留水で口内をよく洗浄させた。結果は有意差水準 5% にてチューキー法により統計処理した。

また、ショ糖と食塩の影響を見るため、上白糖 (三井製糖株式会社) および食塩 (塩事業センター) を用いて、表 1 に示すように ショ糖+食塩混合水溶液を調製し、4 種類の標準試料とした。

標準試料液	シヨ糖	1%	5%	10%	60%
	食塩	0.10%	0.50%	0.20%	1.00%
シヨ糖系列試料液	①	0.90	4.20	9.10	54.42
	②	1.00	5.00	10.00	57.14
	③	1.10	6.00	11.00	60.00
	④	1.21	7.20	12.10	63.00
	⑤	1.33	8.60	13.30	66.15
	⑥	1.46	10.40	14.60	—
	⑦	1.61	12.50	16.10	—

これら各標準試料にたいして、7段階濃度の系列試料水溶液を調製した。ただし、60%シヨ糖標準試料の場合は、溶解度から考えて5段階とし、系列試料間の濃度差は、等比級数となるようにして、その大きさは予備実験により決定し1.05~1.2とした。17名のパネリストに系列試料の濃度順をランダムにして、標準試料との対試料をそれぞれ5.0mLずつクリアーカップに注入して供試し、二点比較識別法により甘味を強く感じる試料を選び出させた。供試に際しては、標準試料を先に摂取する場合と、系列試料を先に摂取する場合を行い、口ゆすぎ後、試料全量を口中に投入した後、6秒間保持してから評価させた。

### (3) 種々食品・食塊特性値のデータ収集

咀嚼中の変動が小さいガムを試料として用い、咀嚼時の食塊特性を把握した。

ガム試料では3種の試料(A~C)を用い、パネリスト16人(男性=10人、女性=6人、平均年齢23歳)に通常どおり自由噛みさせた。咀嚼後にミント感、甘味、清涼感、食感について好き・やや好き・やや嫌い・嫌いの4段階評価させ、評価した際の感想を自由記述させた。また、Temporal Dominant Sensations (アルファ・モス・ジャパン株式会社) (以下TDS法)にて、糖衣の存在感がある・前よりも柔らかい・前よりも硬い・硬さが一定になったの4つのアトリビュートを使用し、パネリスト16人(男性=10人、女性=6人、平均年齢23歳)にガムを普段通りに噛ませた。終点はガムの硬さが一定になったと感じた時とし、ガムのテクスチャーの評価をさせた。ガムの物性測定については咀嚼頻度の中央値に最も近いパネリストに各種ガムを20・50・100回咀嚼して吐き出させ、10mm×10mm×5mmに成型し、レオメーター(山電RE-3305S)によって圧縮荷重および歪率を測定した(プランジャー径8mm、測定速度1mm/sec)。

## 4. 研究成果

### (1) 香気化合物の放散現象に関わる基礎的物性特性値データ LogPの収集

香気化合物の放散現象を把握するのに、その化合物の油(脂)相-水相間の分配状況を把握することが重要であり、octanol-水間の分配係数の対数値(LogP)が香気化合物の脂溶

性の指標として用いられている(LogPが大きいほど脂溶性が高い)。そこでLogPについて、1971年以降の文献値および、インターネット開示値、計算ソフトによって得られた値を比較検討した。

調査対象データ値を以下の4資料から収集し、比較した。①U.S. National Library of Medicine データベース (ChemIDplus Advanced (<http://chem.sis.nlm.nih.gov/chemidplus/>) 2013年4月~2015年1月参照)、以下ChemID)、②便覧(CRC Handbook of Chemistry and Physics 84th Edition (2003)、以下CRC)、③総説論文(A. Leo, *et al*, Partition coefficients and their user, *Chem. Rev.*, 1971, 71(6) 525-616、以下Leo論文)、④市販計算ソフト計算値(以下ソフトACD)。

収集したデータ数は①ChemIDから929化合物、②CRCから77化合物、③Leo論文から3,088化合物となり、④計算ソフトACDにより962化合物の値を算出した。③総説論文の掲載化合物は多かったものの、元データは1950年代の引用が多かった。①②④について、それぞれの2資料間(図1~3)および3資料間(図4)で共通であった化合物について、LogP値の相関性をみた。

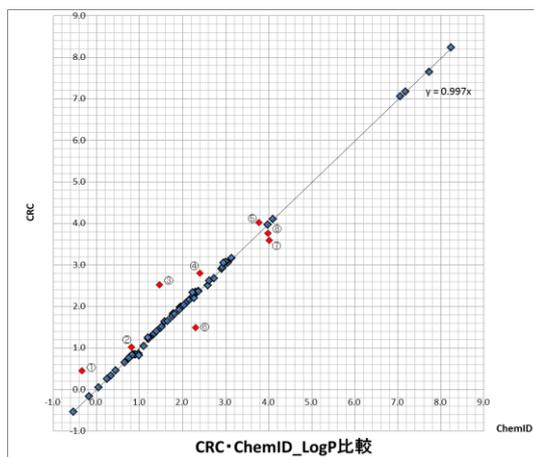


図1 ①ChemID vs ②CRC

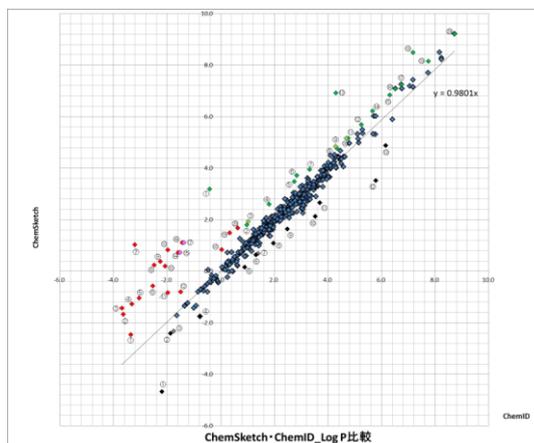


図2 ①ChemID vs ④ソフトACD

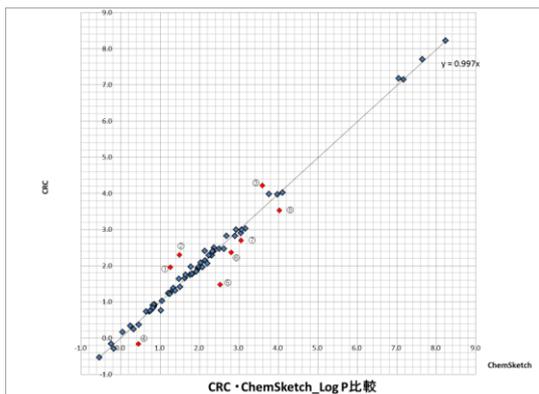


図3 ④ソフトACD vs ②CRC

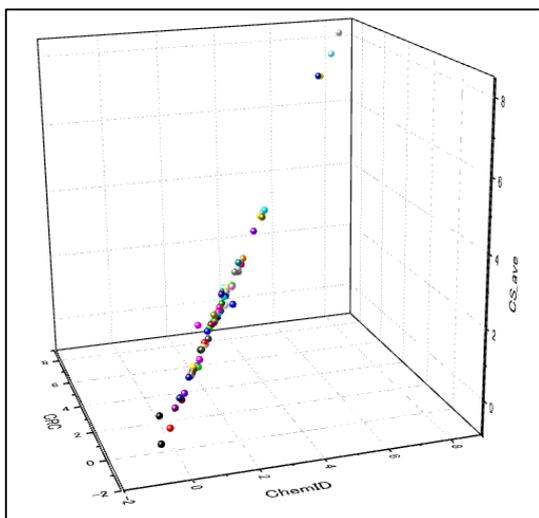


図4 ①ChemID vs ②CRC vs ④ソフトACD

収集した延ベデータ 5056 化合物のうちの 26 化合物は、すべての資料において共通であり、LogP 値が全資料で一致しているもの (例 Benzyl benzoate) も認められたが、資料によって値の異なっているものも認められた。バラつきが大きかった化合物の変動係数 (標準偏差/平均値) × 100 [%] は、acetaldehyde が 426.5% と最も高く、これは資料によって正負の異なる結果が原因であった。この他、1-heptanol が 38.1%、acetic acid が 32.1%、propionic acid が 15.9%、cyclohexanone が 13.6% と高い値であった。変動が大きかった化合物では、第三者機関による実験値や独自で導き出した方法による計算値などの違いが存在した。また、1951 年発刊の引用文献が元データになっていたものがあり、これらの文献値では、測定条件 (紫外分光法) による変動が大きかったことが確認された。

測定方法、算出方法、元データによって LogP 値にはバラツキのあることが明らかになった。今後の香気放散の研究においては、上記でバラツキの少なかった値を用いることとした。

## (2) 酢酸イソアミル放散に及ぼすシヨ糖濃度の影響

酢酸イソアミルの GC-FID を用いたヘッドスペース法による放散率の測定結果および官能評価による香気知覚強度の結果を図 5 に示した。0%シヨ糖試料の香気放散量の値を 1 とした時の、各試料放散量の比を放散率とした。

放散率はシヨ糖濃度 0%-20%間では有意な差は認められなかったが、0%-40%間、0%-60%間、20%-60%間では、シヨ糖濃度が高い方が有意に増加した。これは、シヨ糖が高濃度になるに従って、水分子とシヨ糖分子が相互作用を引き起こし、溶液中の自由水の体積が減少したことで酢酸イソアミルの溶解量が減少し、水相からガス相への分配が高まったためと考えられた。

一方、知覚強度はシヨ糖濃度 0%に比べて 20%シヨ糖濃度の方が有意に高くなったが、より高濃度になると減少した。この要因には高濃度のシヨ糖の非常に強い甘味の刺激が香気知覚を阻害している可能性があり、マスキング効果が起きたと考えられた。

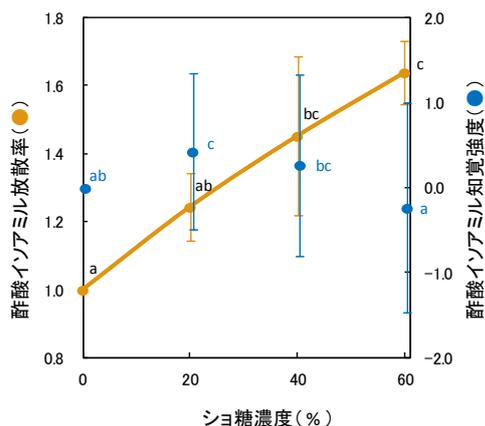


図5 シヨ糖が酢酸イソアミルの放散および知覚に及ぼす影響

● 香気知覚強度 ● 香気放散率

## (3) シヨ糖と食塩の相互影響

各標準溶液の知覚濃度は表 2 に示すようになった。

表2 知覚濃度および呈味効率

標準試料	シヨ糖	1%	5%	10%	60%
	食塩		0.10%	0.50%	0.20%
知覚濃度 (%)		1.271	6.155	11.36	64.151
呈味効率		1.27	1.23	1.14	1.07

いずれの試料においても、食塩を添加したことにより、知覚された甘味濃度は実際の濃度より増加しており、食塩の甘味増強効果が認められた。

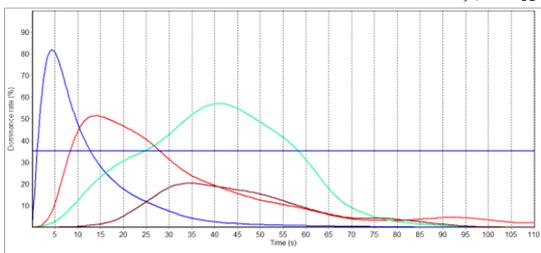
呈味効率 (-) = 知覚濃度 (%) / 実際の濃度 (%)

を求めた結果(表2)、ショ糖濃度が増加するにつれて、呈味効率の値が減少することが認められた。

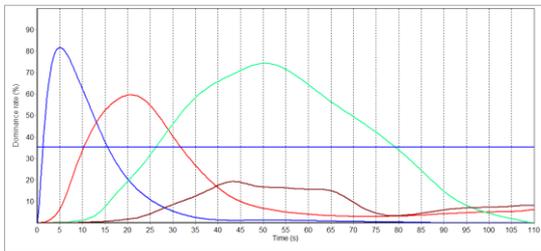
#### (4)ガムの咀嚼特性

ガムのフレーバー知覚について、4段階評価と自由記述をまとめると、ミント感、甘味には試料間での特徴は見られず、清涼感は試料Cが一番強く、Aが一番弱いという評価であった。食感の評価では試料Aは硬いから嫌い、試料Bは適度な硬さで好き、試料Cは噛みはじめが硬いから好きな人もいれば嫌いな人もいるという試料間での特徴が見られた。TDSの結果、試料AとBは糖衣がなくなった直後に硬さを感じ取っていたが(5%危険率)、試料Cではそれが認められなかった(図6)。

ガム A



ガム B



ガム C

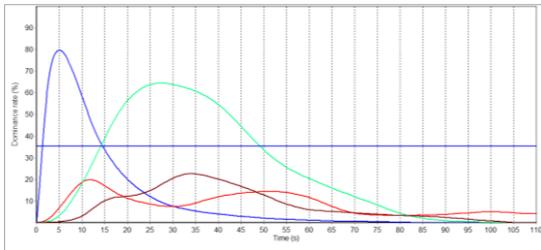
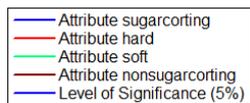


図6 ガム咀嚼中のTDS曲線



人パネリストの咀嚼回数の違いによる物性測定の結果、咀嚼回数が増加しても圧縮荷重には有意差は認められなかった。一方、歪率は咀嚼回数の違いにより差が見られ、咀嚼回数が増えるにつれて歪率が徐々に大きくなっている(=柔らかくなってきている)ことが考えられた(図7)。

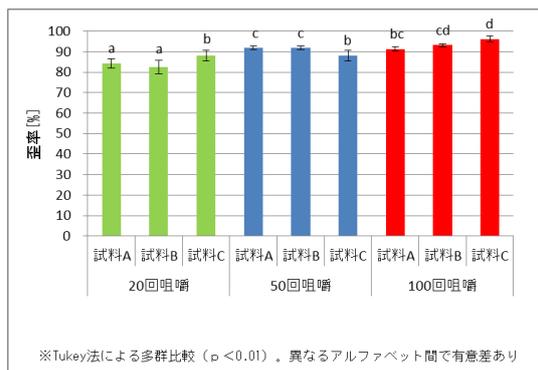


図7 咀嚼回数の違いによる歪率の比較

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 1 件)

小竹佐知子。レトロネーザルアロマ研究の手法と炭酸飲料における事例紹介。ソフト・ドリンク技術資料(2015) 339-349

〔学会発表〕(計 6 件)

① 小竹佐知子, 佐々木友理恵, 沢代朱里, 小林史幸。

酢酸イソアミル放散に及ぼすショ糖濃度の影響。

日本家政学会第66回大会(2014/5/24) 北九州国際会議場(福岡県小倉市)

② 小竹佐知子, 小林史幸。

ショ糖甘味におよぼす微量食塩の影響。

2014年度日本海学会第65回大会(2014/6/19) 沖縄県男女共同参画センター(沖縄県那覇市)

③ S. Odake, Y. Sasaki, A. Sawashiro, and F. Kobayashi。

Influence of sucrose concentration on the release of volatile flavour compounds.

14<sup>th</sup> Weurman Flavour Symposium (2014/9/15-19) Cambridge University (UK, Cambridge)

④ 小竹佐知子, 坪倉麻衣, 小林史幸。

香気化合物脂溶性指標 LogP の既報文献知およびソフト計算値の比較。

日本農芸化学会関東支部2015年大会(2015/9/26) お茶の水女子大学(東京都文京区)

⑤ 里田あかね, 小林史幸, 小竹佐知子。

ガムの咀嚼特性—ガムの硬さ/軟らかさの検討—。

日本官能評価学会第20回(2015年度)大会(2015/11/7) 日本獣医生命科学大学

(東京都武蔵野市)

- ⑥ 北山采奈, 小林史幸, 小竹佐知子。  
煎餅におけるオノマトペを用いたテク  
スチャー表現。  
日本官能評価学会第20回(2015年度)大  
会(2015/11/7)日本獣医生命科学大学  
(東京都武蔵野市)

[図書] (計 1件)

小竹佐知子(分担執筆)。第3章液状食  
品からのフレーバーリリース。西成勝  
好監修『食品ハイドロコロイドの開発と  
応用Ⅱ』シーエムシー出版  
(2015)172-178

[産業財産権]

○出願状況 (計 0件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

○取得状況 (計 0件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

[その他]

<http://www.nvlu.ac.jp/food/members/002.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

小竹 佐知子 (ODAKE, Sachiko)  
日本獣医生命科学大学・応用生命科学部・  
准教授  
研究者番号：60233540

### (2) 研究分担者

道脇 幸博 (MICHIWAKI, Yukihiro)  
昭和大学・歯学部・その他  
研究者番号：40157540

### (3) 連携研究者

小林 史幸 (KOBAYASHI, Fumiyuki)  
日本獣医生命科学大学・応用生命科学部・  
講師  
研究者番号：50460001