

# 茶の香気成分を水中持続放散できるナノファイバーシートの開発

静岡県立大学 薬学部 創剤科学研究室

教 員：講師 照喜名 孝之

参加学生：岩田 奈々、藤井 可怜

## 1 要約

本研究では、藤枝市の特産品の一つである緑茶の香りの効果を最大限に活かすため、香気成分を水中で持続的に放散可能なナノファイバーシートの設計を薬学的に行うことを目的とする。茶の香りは揮発性が高い成分から成り立ち、時間が経つと香りが薄れてしまう。本研究では、香気成分を持続的に水中に放散することで長時間に亘り安定的に香りを保つことができること、かつ香気成分を一定の速度で持続的に放出することができる基盤技術の開発を目的とする。香気成分の揮発を抑制し、シート中で安定化させる技術として、環状オリゴ糖であるシクロデキストリン (CD) による包接化技術を利用する。その際に、多種類あるCDの中から、香気成分の安定化と水への持続的放出を実現できるCDの探索を行う。そして、探索したCDによる香気成分包接体の利用を具現化する手段として様々な利用方法が考えられるナノファイバーシート (NFS) の設計・評価を試みる。本研究を遂行することにより、地域特産品である藤枝茶を活用するだけでなく、付加価値を高め、地域産業振興に繋げる基盤技術が確立されることが期待される。

## 2 研究の目的

本研究では、香気成分を持続的に水中に放散することで長時間に亘り安定的に香りを保つことができること、かつ香気成分を一定の速度で持続的に放出することができる基盤技術の開発を目的とする。

## 3 研究の内容

香気成分のモデル物質としてゲラニオール (GER) を選択する。溶媒として水/エタノール/ジメチルホルムアミド混合液を、持続放出性高分子基剤として Eudragit®RS PO (ERSPO) を用いて、エレクトロスピンニング (ES) 法により、GER含有NFSを調製する。次に、GERと各種CDならびにCD誘導體 ( $\alpha$ 、 $\beta$ 、 $\gamma$ 、ヒドロキシプロピル- $\beta$ 、HP- $\gamma$ ) を混合し、GERを各種CDに包接させた包接複合体を調製し、包接複合体中でのGERの包接化の安定性を示す安定度定数を算出する。そのうち、安定度定数の最も大きい水に可溶ならびに不溶な包接複合体を形成するCDを選択し、GERとCDから成る包接複合体を含有したERSPOを基剤とするNFSを調製する。調製したNFSの評価として、走査型電子顕微鏡による繊維径測定、GER封入率、保存安定試験、溶出試験を行う。

## 4 研究の成果

### (1) 当初の計画

8月から実験を開始し、上記研究内容のうち、包接複合体の安定度定数の算出を2か月程度で行うことを予定とした。その後、水に可溶なGER含有包接複合体と水に不溶なGER含有包接複合体のNFS調製とその評価を研究期間終了までで行った。

### (2) 実際の内容 (Aは予定どおり、Bは一部修正、Cは中止など) とその理由

#### B 一部修正

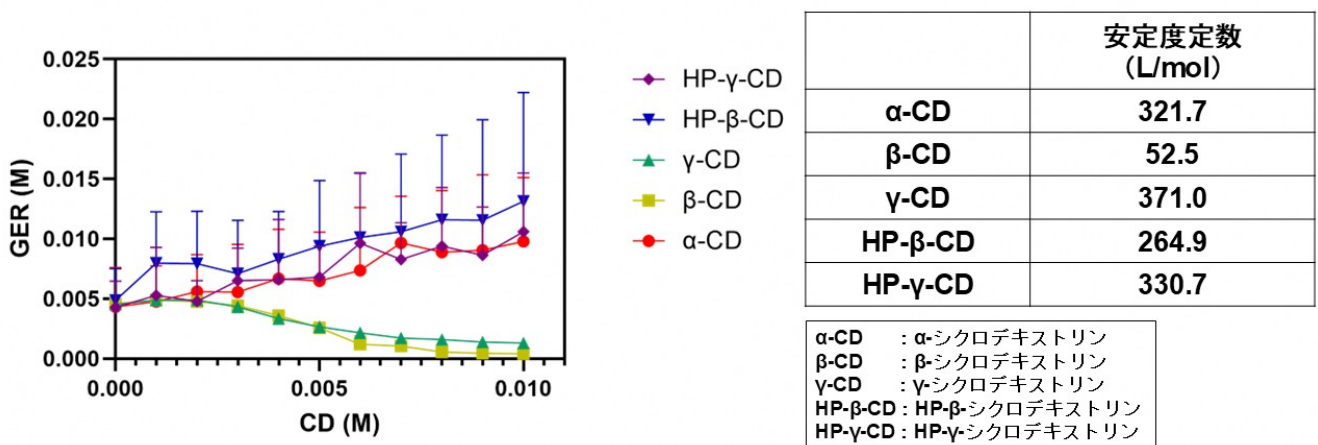
研究内容で示した全てのCDならびにCD誘導体とGERの包接複合体を調製し、安定度定数の算出を行った後、水に可溶ならびに不溶なGER含有包接複合体を含有するNFSの調製を行い、各評価を行うことを目的としていた。しかし、水に可溶なGER含有包接複合体を含有するNFSの調製条件について探索するのが困難であり、今回の研究期間では水に難溶なGER含有包接複合体を含有したNFSを調製することに成功したため、以下、(3)実績・成果にて結果を記述する。

### (3) 実績・成果と課題

各CDならびにCD誘導体とGERが形成した包接複合体は水に可溶性の複合体もしくは不溶性の複合体を形成することが確認された。グルコースが6個環状に結合している $\alpha$ -CDと7個もしくは環状に結合しているそれぞれ $\beta$ と $\gamma$ -CDの側鎖部分をヒドロキシプロピル基で置換したHP- $\beta$ -CD、HP- $\gamma$ -CDとGERから成る包接複合体は可溶性の包接体を形成し、水に溶解しやすいことを確認した。一方、 $\beta$ もしくは $\gamma$ -CDとGERにより形成した包接複合体は水に不溶であることを確認した。また、そのCD濃度に伴うGERの吸光度変化から求めた安定度定数は、最も $\gamma$ -CDが大きい値となり、これは水に不溶性であった。一方、水溶性の複合体でかつ安定度定数が最も大きい値を示したCDは $\alpha$ -CDであり、以後、水溶性ならびに水に不溶性のこれらの複合体を用いて、NFSの調製を行った。しかし、今回の研究期間で $\alpha$ -CDを用いてNFSを調製することができず、以後 $\gamma$ -CDを用いて調製したNFS (GER/ $\gamma$ -CD-NFS) の結果について詳述する。



## GERに対するCDの安定度定数の算出



- ・ GERと可溶性の包接体を形成するのは $\alpha$ -CD, HP- $\beta$ -CD, HP- $\gamma$ -CD. (A型の相図)
- ・ GERと不溶性の包接体を形成するのは $\beta$ -CD,  $\gamma$ -CD. (B型の相図)
- ・  $\gamma$ -CDは最も安定度定数が高い.

図1 各CDとの複合体を形成した際の安定度定数

GER-NFS中のGER封入率は保存により経時的に低下したものの、GER/ $\gamma$ -CD-NFS中のGER封入率は保存後もわずかな低下しか認められなかった。 $\gamma$ -CDとの包接体の形成によりGERの揮発が抑制され、GER/ $\gamma$ -CD-NFS中GERの保存安定性が向上したと考えられる。さらに、調製直後のGER-NFSとGER/ $\gamma$ -CD-NFSのGERの溶出試験結果より、いずれも2時間にわたりGERの緩やかな持続放出を示し、GERの見かけの溶出率はGER/ $\gamma$ -CD-NFSの方が高い結果となった。以上より、GERを $\gamma$ -CDで包接した包接複合体を用いてNFS化することで茶の香り成分であるGERを製剤中に安定的に保持させ、徐放化が達成できることが示唆された。



## 調製直後と保存後の封入率

封入率 (%)	GER/ERS-NFS 4 °C	GER/ERS-NFS 20 °C	GER/ $\gamma$ -CD/ERS- NFS 4 °C	GER/ $\gamma$ -CD/ERS- NFS 20 °C
調製直後	62.3 ± 2.4		74.3 ± 16.3	
2週間後	50.4 ± 2.5	43.1 ± 3.6	80.2 ± 2.9	86.5 ± 1.5
1か月後	45.0 ± 0.6	40.3 ± 0.8	73.0 ± 5.5	87.4 ± 4.0

(n=3)

1か月後のGER 保持率 (%)	GER/ERS-NFS 4 °C	GER/ERS-NFS 20 °C	GER/ $\gamma$ -CD/ERS- NFS 4 °C	GER/ $\gamma$ -CD/ERS- NFS 20 °C
	72.3 ± 0.9	64.6 ± 1.2	98.3 ± 7.3	117.7 ± 5.4

(n=3)

- ・  $\gamma$ -CDによる包接複合体を含有するNFSを調製することでGERの封入率の向上が認められた。
- ・  $\gamma$ -CDによる包接複合体を含有するNFSを調製することで保存安定性の向上が可能となることが示唆された。

図2 調製したNFS中での茶の香り成分の封入率と保存安定性試験結果

#### (4) 今後の改善点や対策

$\gamma$ -CDとGERとが形成する $\gamma$ -CDは水に不溶のため、高分子基剤であるERSPOを用いたNFSを調製するためには有機溶媒の利用を検討せざるを得なくなる。したがって、水に可溶性のGER/CDの包接複合体を用いたNFS開発技術の開発が必要となる。今回の研究期間では達成できなかったものの、NFS調製プロセスの電圧、流速といったプロセスパラメーターを決定するため、GER/ $\gamma$ -CDの包接複合体と水に可溶性持続放出性基剤を溶解した混合水溶液の導電率や粘度測定を行い、再現性の高いNFS調製を今後継続して研究を行っていきたいと考えている。

## 5 地域への提言

まず、本研究で開発した茶の香り成分を包接した複合体含有NFSを使用することで、茶の香りを水中で放出し続けることにより、より長く保持することができるため、茶の品質を向上させることができると考えている。その結果、消費者の満足度が向上し、茶の価値が高まるものと考えられる。また、新たに本研究で開発したNFSを利用した新しい製品の開発にも有益な情報提供ができるものと考えており、例えば、香りを持続させる茶包み紙や茶器などが考えられ、新たな市場を開拓することができると考えている。本研究を通して、茶の香りを持続的に放出することができるNFSの研究に関する技術協力をを行うことで、さらなる研究の進展を促進し、より効果的な技術の実用化を図ることが期待される。

## 6 地域からの評価

藤枝茶本来の特性をさらに生かした製品開発の基礎となる研究を行うことで、他の茶産地との差別化要素となり、市場競争力を強化すると評価されることとなることを期待している。特に、輸出市場での競争力向上が期待される。