

# 蒸熱および焙煎処理の温度および時間が アカメガシワ葉茶に及ぼす影響

鶴永陽子・山下稚香子・三島晶太・松本敏一

(島根大学)

(平成25年10月14日受付, 平成26年2月4日受理)

## The effects of steaming and roasting temperature and time on mallotus bark (*Mallotus japonicus*) tea leaves

Yoko Tsurunaga, Chikako Yamashita, Shota Mishima, Tosikazu Matsumoto

Shimane University, 1060, Nishikawatsu-cho, Matsue-shi, Shimane, 690-8504

〒690-8504 島根県松江市西川津町1060

The effects of steaming and roasting temperature and time on mallotus bark (*Mallotus japonicus*) tea leaves were investigated. The characteristics we analyzed were color tone, soluble polyphenol content, and 2,2-diphenyl-1-picrylhydrazyl (DPPH) radical capture activity. We observed that roasting had greater effects on tea leaves than did steaming. We concluded that the suitable roasting temperature was below 200°C for ensuring ideal soluble polyphenol content and DPPH radical capture activity. For optimal color fading, the suitable roasting temperature was below 150°C.

### 1. 緒 言

近年の研究によって、茶には多くの生理的機能があることが明らかになってきた。例えば、緑茶の抗酸化性<sup>1)</sup>、血圧上昇抑制作用<sup>1)</sup>、血糖上昇抑制作用<sup>1)</sup>、抗ウイルス作用<sup>1)</sup>などの機能性が明らかにされている。また、ツバキ科の茶葉以外の材料から作られた健康茶も、消費者の安全、健康維持の志向を背景に機能性が評価されてきている。

一方、原料供給の面から健康茶をみた場合、いわゆる地域資源と分類される在来種には、優れた機能性を有した未利用植物が数多くあることから<sup>2-4)</sup>、それらは健康茶素材として有望視されている。また、全国各地で地域資源を地域振興や新産業の創出に活用する動きが活発化している。島根県では、平成12年度から県内研究機関共同による「薬草の栽培技術の確立と利用技術の開発」が実施され、県内の薬草・山野草において抗腫瘍活性、抗アレルギー活性、抗酸化性及び血圧上昇抑制作用を指標とした機能性評価を行い、優れた機能性を有する植物を見出した<sup>5)</sup>。その中で、トウダイグサ科 (*Euphorbiaceae*) の落葉高木アカメガシワ (*Mallotus japonicus*) は、日本では北海道以外の本州から沖縄の地でよく見られ、島根

県にも多く自生している植物であるが<sup>6)</sup> (図1)、多岐にわたる機能性を有することが島根県の *in vitro* の研究により明らかにされた<sup>5)</sup>。アカメガシワの葉について、鶴永らは抗酸化性評価の一種である DPPH ラジカル捕捉活性が非常に強いことを報告し<sup>5)</sup>、Katsube らは LDL 抗酸化活性が極めて高いことを明らかにしている<sup>6)</sup>。また、田畑は、アカメガシワについて詳細な研究を実施し、アカメガシワの抗酸化活性は、葉に含まれる抗酸化成分のマロツシン酸、ゲラニニンと高い相関を示すことを明らかにしている<sup>7)</sup>。島根県では、これらの一連の研究成果を活用し、現在アカメガシワの栽培試験や加工品開発に取り組んでいる。このように、アカメガシワは含有する成分、原料の調達容易さ等、健康茶素材としての長所を多く有するが、製茶方法が色調、抗酸化性に及ぼす影響についての研究は実施されていない。

そこで、本研究ではアカメガシワ葉茶の製造方法が茶葉の色調、DPPH ラジカル捕捉活性、可溶性総ポリフェノールに及ぼす影響について検討した。

### 2. 研究方法

#### (1) 原 料

アカメガシワは、平成23年9月5日に島根県中山間地



図1 島根大学近辺に自生しているアカメガシワ

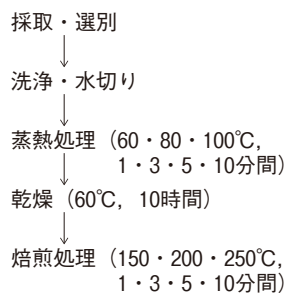


図2 アカメガシワ葉茶の製造工程

対照 (Cont) 区は、蒸熱処理を施さず、乾燥を60℃、10時間実施して製造。

域研究センター（島根県飯石郡）より入手した。葉を十分に洗浄し、水切りを行った。その後、一晚冷蔵で保存したものを製茶試験に供した。

## (2) アカメガシワ葉茶の製造方法

蒸熱、乾燥、粉碎、焙煎処理の順に処理を施した。製茶工程および処理方法を図2に示す。

### 1) 蒸熱処理

蒸熱処理の目的は、ポリフェノールオキシダーゼなどの酸化酵素群を失活させ、製造中のポリフェノールおよびアスコルビン酸の酸化を防ぐことである<sup>8)</sup>。本研究では、抗酸化活性および抗酸化成分を保持させるための最適な蒸熱処理温度および蒸熱処理時間を検討した。具体的には、蒸熱処理温度として60, 80, 100℃処理区を、蒸熱処理時間として0, 1, 3, 5, 10分間処理区を設定した。蒸熱処理を行わなかった対照区（以下、Cont区）は、乾燥（60℃）のみを行った。蒸熱60℃および80℃処理区は、スチームコンベクションオープン（SANYO社製、SOB-VS10）を用いた。蒸熱100℃処理区は、電気式蒸し機（T-fal社製、スチームクッカーウルトラコンパクトVC100571）を用いた。いずれの処理区においても、葉が重ならないよう注意深くならべた後、蒸熱処理を施した。

### 2) 乾燥処理

蒸熱処理の後、乾燥機（yamato社製、WFO600-D）

で乾燥を、60℃、10時間実施した。

### 3) 乾燥葉の粉碎処理

まず、手で粗く揉んで砕いた後、オスターブレンダー（SUN BEAM OSTER社製、Osterrizer 16-speed）で細かく粉碎し、ふるい（1mmメッシュ）にかけた。その後、ラミジップに封入し、分析時まで保存した。

### 4) 焙煎処理

焙煎処理には、焙煎香を付与し、苦味を軽減し、飲みやすくする効果がある。しかし、焙煎処理は高温加熱処理であるため、有効な抗酸化成分が分解される可能性もある。そこで、抗酸化性の面から、最適な焙煎温度および時間を検討した。焙煎処理温度として150, 200, 250℃処理区を設定し、それぞれの温度処理区について焙煎処理を0, 1, 3, 5, 10分間施した。なお、焙煎処理の検討には、蒸熱無処理のアカメガシワの乾燥葉を用い、焙煎処理にはホットプレート（AS ONE社製、HI-1000）を使用した。

## (3) 分析方法

### 1) 色調

色差（L\*値、a\*値、b\*値）および彩度は島津製作所製分光光度計UV-3100で測定し、カラー解析ソフト（P/N206-65207）により算出した。その際、スリット幅2.0nm、サンプリングピッチ0.5nmの条件とし、硫酸バリウムを標準白色物質としてベースライン補正を行った。

### 2) 抽出方法

ポリフェノールの分析は、抽出効率を良くするため含水アルコールで行うのが一般的である<sup>9)</sup>。しかし、本研究では茶としての評価を目的とするため、抽出溶媒に熱水を用いた。試料200mgに純水20mLを添加し、沸騰水中で10分間加熱抽出し、50mLに定容後濾過した。

### 3) 可溶性総ポリフェノール含量

可溶性総ポリフェノールは、フォーリンチオカルト試薬を用いたフォーリン法<sup>10)</sup>によって測定し、(+)-カ

テキン相当量として表した。

4) DPPH ラジカル捕捉活性

ラジカル捕捉活性の測定は、安定的な DPPH (1,1-diphenyl-2-picrylhydrazyl) ラジカルを用いる須田<sup>11)</sup>の方法に準じて、ビタミン E の合成類似物質である Trolox (6-hydroxy-2,5,7,8-tetramethylchroman-2-carboxylic acid) 相当量で表した。

(4) 統計処理

統計処理は SPSS19.0J を用いた。一元分散分析後、TukeyHSD 法で検定し、有意水準を 5% とした。

3. 結果および考察

(1) 色調

L\*値 a\*値 b\*値表色系 (JIS Z 8729) を用いて測定した。

1) 蒸熱処理

蒸熱処理による色調変化を図 3 に示す。

L\*値は、蒸熱処理の温度および時間の影響は少なく、47~50 の範囲であった。

a\*値は、Cont 区が -1.5 で、蒸熱 1 分間処理区では全蒸熱温度処理区で -2.0 ~ -2.1 の値を示し、Cont 区との間に 5% 水準で有意差が認められた。蒸熱 3 分以上の処理区では、同一蒸熱処理時間の場合は蒸熱温度が高

いほど負の値が小さくなった。特に、100℃ 処理区では蒸熱時間が長いほど数値が正に移行し、10 分間処理区では +0.4 となり、緑色が顕著に退色した。

b\*値および彩度は、Cont 区との間に 5% 水準で有意差が認められた処理区が一部あったものの、全体的に蒸熱処理温度と時間の違いによる値の変動が小さかった。

以上のことをまとめると、蒸熱処理によって影響を最も受けるのは a\*値で、蒸熱温度が高く、時間が長いほど葉の緑色が退色することが明らかとなった。a\*値以外の明度、彩度、色については、蒸熱処理温度および時間との関連は一定の傾向が認められず、判然としなかった (図 3)。クロロフィルは酸に対して非常に不安定で、酸性条件下ではフェオフィチンに変化し、緑色が著しく退色することが知られている<sup>12)</sup>。本研究で、蒸熱温度が高く、時間が長いほど葉の緑色が退色した理由として、アカメガシワの葉にはマロツシン酸などの酸性物質が多く含まれることが明らかにされていることから<sup>7)</sup>、3 分以上の蒸熱処理により葉の細胞が破壊され、クロロフィルと酸性物質と接触したことが考えられた。

2) 焙煎処理

次に、焙煎処理による色調変化を図 4 に、写真を図 5 に示す。

L\*値 (明度) については、焙煎処理 150℃ 区は焙煎時

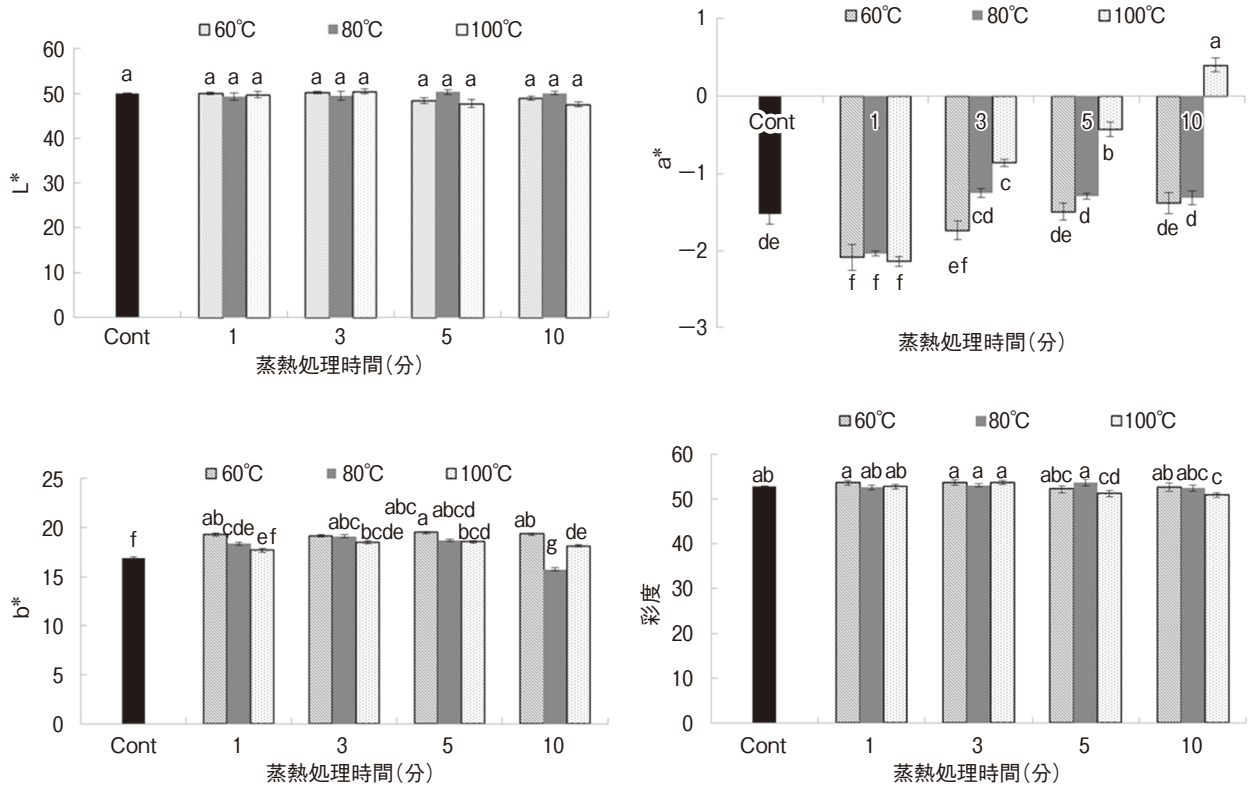


図 3 蒸熱処理温度および時間が色調に及ぼす影響

対照 (Cont) 区は、蒸熱処理を施さず、乾燥を 60℃、10 時間実施して製造。

棒は標準誤差 (n = 3)。

異なるアルファベットは、Tukey HSD 検定 (5%) で有意差があることを示す (n = 3)。

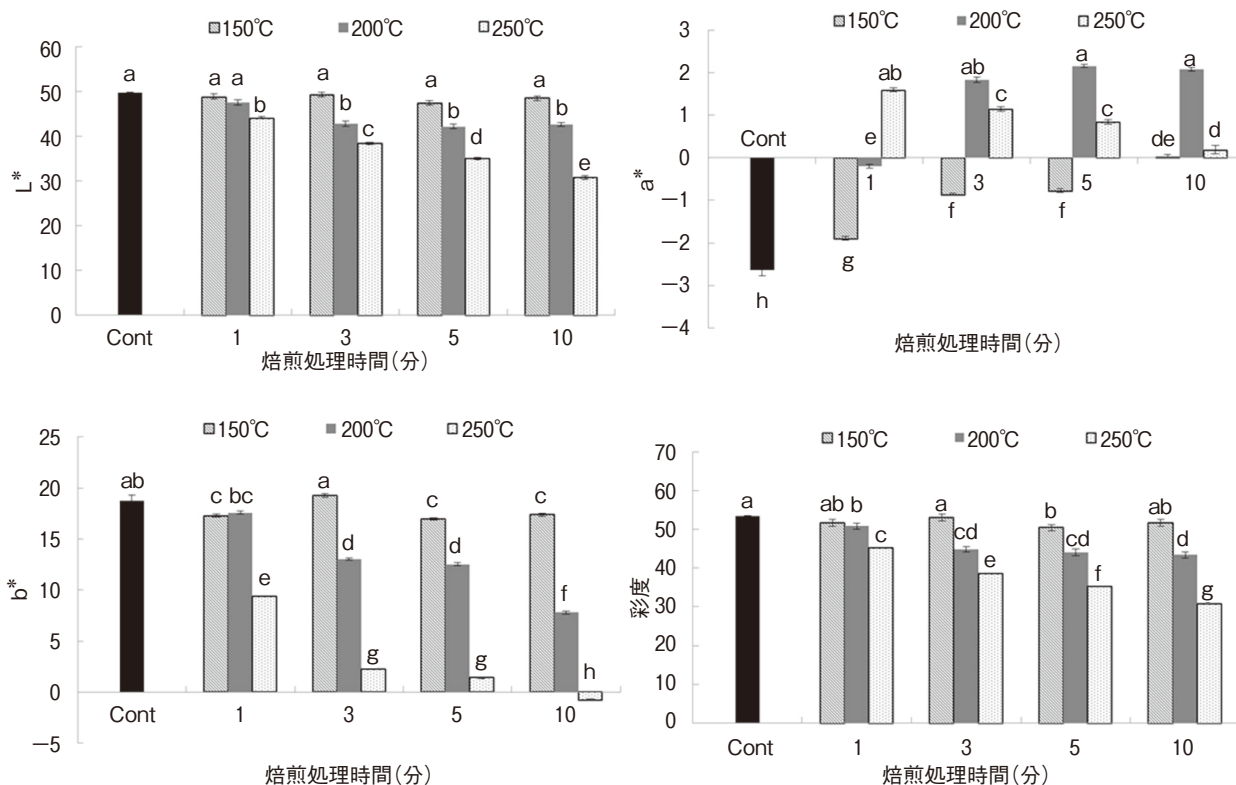


図4 焙煎処理温度および時間が色調に及ぼす影響

対照 (Cont) 区は、蒸熱処理を施さず、乾燥を60℃、10時間実施して製造。

棒は標準誤差 (n = 3)。

異なるアルファベットは、Tukey HSD 検定 (5%) で有意差があることを示す (n = 3)。

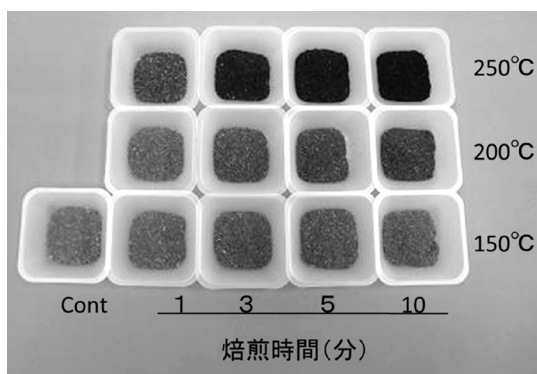


図5 アカメガシワの焙煎処理温度および時間が茶葉の色に及ぼす影響

対照 (Cont) 区は、蒸熱処理を施さず、乾燥を60℃、10時間実施して製造。

間の長短にかかわらず、ほぼ一定の値を示し、Cont区とはほぼ同程度の値を示した。200℃および250℃区では、焙煎時間が長くなるにつれて値が低下した。特に250℃区でその傾向が顕著であった。

a\*値は、焙煎処理を行わなかった Cont 区が最も負の値が大きく、焙煎処理を行うことで a\*値の値が高まる傾向が認められた。その程度は、焙煎処理温度および時間に大きく左右されていた。150℃区では10分間処理区で、200℃区では3分間処理区で、250℃区では1分間処理区

で、a\*値がプラスに転じた。

b\*値および彩度については、焙煎処理150℃区は、Cont区と比較して一部5%水準で有意差が認められた処理区があったものの、200℃および250℃区と比較すると Cont 区との差は小さかった。200℃および250℃では焙煎時間が長くなるにつれて値が低下する傾向が認められ、その傾向は250℃区で顕著であった。

これらのことから、150℃区では処理時間を長くすると a\*値が増加し緑色が少しずつ退色するが、L\*値、b\*値、彩度については200℃および250℃区と比較すると影響を受けにくいことがわかった。一方、焙煎温度200℃以上では、いずれの測定項目も大きく影響を受け、時間が長くなるほど褐変が進むことがわかった (図4)。焙煎処理により茶葉が褐変するのは、アミノカルボニル反応が関与していると考えられる。Anan は緑茶葉の焙煎について、モデル実験によりアミノ酸の一種であるテアニンとグルコースの反応によりアマドリ化合物が生成されること確認し報告している<sup>13)</sup>。また、松尾は、茶葉に含まれる EGCg と共存成分との混合状態における、加熱処理生成物の検討を行った結果、テアニンの共存下では EGCg の A 環 7 位とテアニン由来のアミノ基との間でアミノカルボニル反応が起こることを明らかにしている<sup>14)</sup>。さらに、アミノカルボニル反応は、一般的に加熱温度が 10℃ 上がると、反応速度が 3~5 倍速くなるといわれて

いるため<sup>15)</sup>、温度によって褐変の程度が異なったものと思われる。焙煎温度150℃区で褐変がわずかに進んだ程度であったが、200℃および250℃区では短時間の処理で茶葉が著しく褐変したものと推察された。

### (2) 可溶性総ポリフェノール含量

Cont区と蒸熱処理区を比較したところ、5%水準では有意差が認められなかった。蒸熱処理を施すことで、ポリフェノールオキシダーゼなどポリフェノールの酸化に関与する酵素群が失活し、可溶性ポリフェノールの残存量が高まるのが予想されたが、本実験では蒸熱処理区とCont区の違いは確認できなかった(図6)。

焙煎処理150℃および200℃区では、焙煎処理を1分間施すことで、いずれの温度区においてもCont区と比較して可溶性総ポリフェノール含量が有意に高かったが、250℃処理区では9,590 mg カテキン相当量 /100 g DWでCont区と同レベルの値であった(図7)。150℃の全処理区および200℃の10分以外の処理区では、Cont区より値が高くなった。また、150℃処理区では、処理時間の長短にかかわらず約12,000 mg カテキン相当量 /100 g DWの値を示したが、高温加熱処理の200℃処理区では5分以上の焙煎処理で可溶性総ポリフェノール含量が減少した。250℃処理区では3分間の焙煎処理でCont区よりも有意に低い値となり、処理時間が長いほど含量が減少した。

我々は、柿葉茶の焙煎処理温度および時間と抗酸化成分含量について検討し、柿葉茶の主要なポリフェノールとされるアストラガリンおよびイソケルシトリンは、150℃の焙煎処理では時間を長くしても微減にとどまり、200℃および250℃以上では大きく値が減少し、特に250℃処理区では1分間で両成分とも完全に分解されることを報告している<sup>16)</sup>。本研究ではアカメガシワに含まれる個々のポリフェノール成分については分析を行っていないが、250℃以上で分解されるポリフェノール成分が多い、もしくは主要なポリフェノールが250℃以上では容易に分解されるのではないかと推察された。

以上のことから、可溶性ポリフェノール含量の高いアカメガシワ葉茶を製造する場合、蒸熱処理よりも焙煎処理が大きく影響し、焙煎処理温度は200℃以下にとどめたほうが良いことがわかった。

### (3) DPPH ラジカル捕捉活性

蒸熱60℃処理区では、Cont区と比較すると、蒸熱処理1分区では活性が有意に低くなるものの、3分以上の処理区ではCont区と同程度であった。蒸熱80℃および100℃処理区は、時間の長短にかかわらずほぼ一定であった(図8)。これらのことから、アカメガシワ葉茶のDPPH ラジカル捕捉活性に影響を及ぼす主成分は100℃の蒸熱処理でも分解されない比較的熱に強い成分であることが示唆された。

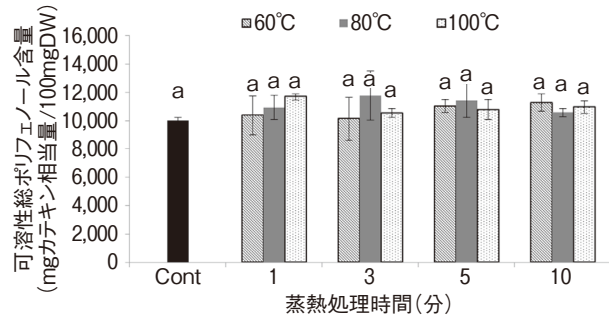


図6 蒸熱処理温度および時間が可溶性総ポリフェノール含量に及ぼす影響

対照(Cont)区は、蒸熱処理を施さず、乾燥を60℃、10時間実施して製造。棒は標準誤差(n=6)。異なるアルファベットは、Tukey HSD検定(5%)で有意差があることを示す(n=6)。

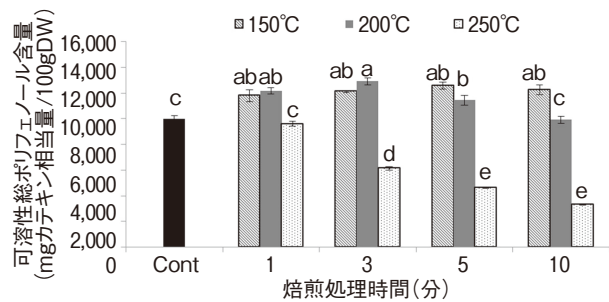


図7 焙煎処理温度および時間が可溶性総ポリフェノール含量に及ぼす影響

対照(Cont)区は、蒸熱処理を施さず、乾燥を60℃、10時間実施して製造。棒は標準誤差(n=6)。異なるアルファベットは、Tukey HSD検定(5%)で有意差があることを示す(n=6)。

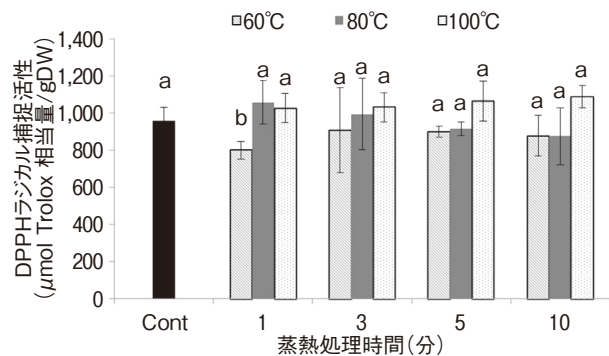


図8 蒸熱処理温度および時間がDPPHラジカル捕捉活性に及ぼす影響

対照(Cont)区は、蒸熱処理を施さず、乾燥を60℃、10時間実施して製造。棒は標準誤差(n=6)。異なるアルファベットは、Tukey HSD検定(5%)で有意差があることを示す(n=6)。

焙煎処理区については、150℃区では全ての処理時間でCont区と同程度の活性であった。200℃区では、1分間処理の値が最も高く、時間を長くするにつれて漸減する傾向がみられた。250℃区では、Cont区と比較して3分以上の処理時間で活性が有意に低下し、1、3、

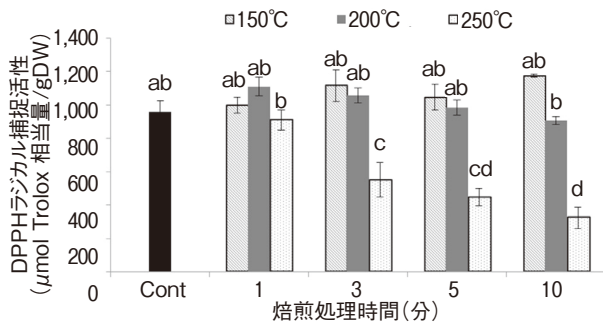


図9 焙煎処理温度および時間がDPPHラジカル捕捉活性に及ぼす影響

対照(Cont)区は、蒸熱処理を施さず、乾燥を60℃、10時間実施して製造。棒は標準誤差 ( $n = 6$ )。

異なるアルファベットは、Tukey HSD 検定 (5%) で有意差があることを示す ( $n = 6$ )。

5, 10分処理区で、それぞれ910, 550, 450, 320 ( $\mu\text{mol Trolox 相当量/g DW}$ ) と、処理時間を長くするにつれて値が著しく低下した(図9)。

焙煎処理区において Cont 区よりも活性の向上が確認された理由として、焙煎処理によって生じた褐変物質などの影響が考えられる。焙煎温度が高いほど茶葉の明度が下がっている(図4)が、これは焙煎が高温加熱処理であるため、茶葉中のアミノ基とカルボニル基を含む成分によるアミノカルボニル反応が進み、メラノイジンなどの褐変物質が生成したものと思われる。アミノカルボニル反応によって生成した褐変物質は、抗酸化性を有する報告がなされている<sup>17)</sup>。また、焙煎200℃および250℃処理によって活性が低下した理由としては、焙煎の高温加熱処理によって、アカメガシワの抗酸化性を示す主成分の減少が考えられた。焙煎処理中には、アミノカルボニル反応による抗酸化性を示す褐変物質の生成、高温加熱処理による抗酸化成分の分解が同時に生じており、それらが複合的に作用して DPPH ラジカル捕捉活性の値に影響したと考えている。よって、焙煎温度150℃および200℃では加熱による抗酸化成分の分解と褐変物質の生成が複合的に起こることにより Cont 区と同等の活性となり、焙煎温度250℃では抗酸化成分の分解の影響が褐変物質生成の影響よりも大きかったため Cont 区よりも値が低かったものと推察している。

#### 4. 総まとめ

著者らは、これまでにエビスグサ、ハブソウ、カワラケツメイ、クズ、クコ、カキ、アシタバ、ヤマモモなどの健康素材について DPPH ラジカル捕捉活性を測定し、その中でアカメガシワの活性が最も高く、有望な健康茶素材であることを明らかにしてきた<sup>5)</sup>。Katsube らも、抗酸化活性を有する健康茶素材をスクリーニングすることを目的とした評価試験により、アカメガシワ葉に最も強い抗酸化活性を見出した<sup>6)</sup>。また田畑は、既存抗酸化素材(商材)であり、抗酸化活性に関する報告が多数存

在する緑茶、ルイボスティー、赤ワインとの総ポリフェノール濃度ならびに DPPH ラジカル捕捉活性の比較実験を実施し、ポリフェノール濃度は、アカメガシワ葉が最も高い値を示すとともに、アカメガシワ葉の抗酸化活性は緑茶より高く、ルイボスティーと比較すると3.9倍、赤ワインと比較すると2.2倍高かったことを報告している<sup>7)</sup>。さらに田畑は、抗酸化活性を有する素材に関しては多くの報告が存在するが、緑茶を上回る抗酸化活性が報告された例はほとんどないことから、アカメガシワ葉は天然抗酸化素材としての利用価値が極めて高いとしている<sup>7)</sup>。また、著者らも健康茶の DPPH ラジカル捕捉活性について一連の研究を実施してきたが<sup>5)</sup>、その中で強い活性が認められた柿葉茶の活性値が400  $\mu\text{mol Trolox 相当量/g DW}$ <sup>18)</sup>であったことから、アカメガシワの DPPH ラジカル捕捉活性が非常に強いことが伺える。

本研究では、強い抗酸化活性を有するアカメガシワ葉について、蒸熱および焙煎処理の温度と時間の違いがアカメガシワ葉茶の色調、可溶性総ポリフェノール含量および DPPH ラジカル捕捉活性に及ぼす影響について検討した。その結果、蒸熱処理よりも焙煎処理のほうがそれらに及ぼす影響が大きいことがわかった。好ましい焙煎温度は、緑色の退色の結果から判断すると150℃以下、可溶性ポリフェノール含量および DPPH ラジカル捕捉活性の結果から判断すると200℃以下であることがわかった。

#### 謝 辞

アカメガシワ葉を提供いただきました島根県中山間地域研究センターの富川康之氏ならびに島根県産業技術センターの田畑光正博士に深く感謝いたします。

#### 文 献

- 1) 伊奈和男, 坂田完三, 富田勲, 伊勢村護: 茶の化学成分と機能, 弘学出版, 東京, p.105-119 (2002)
- 2) 勝部拓矢: ラット好塩基球白血細胞 (RBL-2H3) を用いた脱顆粒抑制活性の測定, 県内食品素材の機能性成分の解析と高付加価値化食品の開発研究報告書(平成11年度~平成13年度 県立試験研究期間連携推進事業), 島根県, p.116-120 (2002)
- 3) 豊川哲也, 鎌田康弘, 与座江利子: 県産資源を活用した機能性食品素材の開発, 沖縄工業技術センター研究報告, p.35-57 (2000)
- 4) 増田俊哉, 小山保夫, 稲葉謙, 戸井由紀子, 荒田智裕, 竹田美雄, 仲本勝男, 國永秀樹, 西里さおり, 野中亮: 沖縄産食用植物エタノール抽出物の抗酸化関連活性, 日本食品科学工学会誌, 49, 662-661 (2002)
- 5) 鶴永陽子, 仲谷敦志: ラジカル捕捉活性および ACE 阻害, 薬草等の栽培技術の確立と利用技術の開発研究成果報告書(平成12年度~平成14年度 重点的科学技術開発事業), p.48-53 (2002)
- 6) Katsube T., Tabata H., Ohta Y., Yamasaki Y., Anuurad E., Shiwaku K., and Yamane Y.: Screening for antioxidant activity in edible plant products: Comparison of low-density

- lipoprotein oxidation assay, DPPH radical scavenging assay, and folin-ciocalteu assay, *J Agric Food Chem*, **52**, 2391-2396 (2004)
- 7) 田畑光正：アカメガシワ葉の抗酸化活性及び活性成分の解析とヒト効果試験，鳥根県産業技術センター研究報告，**48**，1-11 (2012)
- 8) 村松敬一郎：茶の化学，朝倉書店，東京，p.53-54 (1991)
- 9) 津志田藤二郎：ポリフェノールの分析技術，食品と開発，**40**，11-13 (2005)
- 10) Swain T., and Hillis W. E. : The phenolic constituents of *prunus domestica*. I. The quantitative analysis of phenolic constituents, *J Sci Food Agric*, **10**, 63-68 (1959)
- 11) 須田郁夫：食品機能研究法，光琳，東京，p.218-220 (2000)
- 12) 青柳康夫，筒井知己：標準食品学総論，医歯薬出版，東京，p.156-157 (2007)
- 13) Anan T. : Changes of chemical compounds during green tea manufacturing, *JARQ*, **22**, 195-199 (1988)
- 14) 松尾洋介：茶葉およびケイヒの加工過程におけるポリフェノール成分の化学変化，長崎大学学術研究成果レポジトリ，<http://hdl.handle.net/10069/25050>
- 15) 青柳康夫，筒井知己：標準食品学総論，医歯薬出版，東京，p.170-171 (2007)
- 16) 鶴永陽子，高林由美，西万二郎：市販柿葉茶22種類の総アスコルビン酸含量，アストラガリン含量，ポリフェノール含量およびラジカル捕捉活性の差異，日本家政学会誌，**62** (7)，437-444 (2011)
- 17) 下橋淳子：褐変物質のDPPHラジカル消去能，駒沢女子大学研究紀要，**37**，17-22 (2004)
- 18) 鶴永陽子，松崎一，持田圭介，板村裕之：製造工程の違いが柿葉茶の機能性および機能性成分に与える影響，日本食品科学工学会誌，**51** (8)，401-405 (2004)