

平成11年度「食品添加物の一日摂取量調査研究」の 結果について

Results of 1999 Surveillance in Daily Intakes of Food Additives

担当者 木原 敏博 川島 清輝*

1. はじめに

当所では、昭和57年度から厚生省を中心に行われている「食品添加物1日摂取量調査研究」に参加して各種の食品添加物の分析を行ってきた。

今年度分析を担当している機関は、当所を含め仙台市衛生研究所、長野県衛生公害研究所、東京都立衛生研究所、武庫川女子大、香川県衛生研究所、島根県衛生公害研究所、北九州市環境科学研究所、沖縄県衛生環境研究所の9ヶ所である。

平成11年度は生鮮食品を対象に、天然にも存在する添加物(調査ではB群物質と称する)についての摂取量の調査を行った。当所の担当添加物はグリセリン、グリセリン脂肪酸エステルである。

2. 方 法

2-1 調査期間

試料の発送

平成11年9月21日

試料の分析

平成11年9月～平成12年3月

2-2 試料の調整

厚生省が定めた食品添加物測定用マーケットバスケット方式にしたがって試料を調整した。すなわち札幌市内大手スーパー等より市販の生鮮食品を購入、表1に示した食品群に分類して各群毎に混

表1 食品群別分類および喫食量

生鮮食品大分類	購入原料	喫食量(g)
2群 (穀類)	4品目	202.9
3群 (いも・豆・種実類)	9品目	50.4
4群 (魚介類・肉類・卵)	39品目	170.8
5群 (油脂類・乳類)	1品目	117.9
7群 (果実・野菜・海草類)	79品目	351.1
合 計	132品目	893.2

合する。ちなみに2群の4品目のうち、喫食量のほとんどは米である。また5群の1品目は牛乳である。5群を除く各群には同量の精製水を加えてホモジナイザーで均一化する(精製水を加える前の試料を希釈前原体と呼ぶ)。これらを容器に充填した後凍結し、ドライアイス封入のもと参加研究機関に送付した。一方、他の各参加研究機関でも同様に試料を購入、調整して互いに試料を送付する。当所に送付された試料は、摂取状況の地域による差を把握するため、東部グループ(札幌市、仙台市、長野県)、中部グループ(東京都、兵庫県、香川県)、および西部グループ(島根県、北九州市、沖縄県)の3グループに分け、グループ毎に各食品群を混合したものを分析に供した。

2-3 試 薬

標準品

* 札幌市保健所

ステアリン酸モノグリセリド(GE-St)：モノステアリン 化学用(半井化学薬品)
 パルミチン酸モノグリセリド(GE-Pa)：モノパルミチン 一級(半井化学薬品)
 グリセリン：吸光分析用(和光純薬)
 シリル化剤：

N,O-ビストリメチルシリルトリフルオロアセトアミド(BSTFA)(GLサイエンス)

トリメチルシリルイミダゾール(TMSI)(GLサイエンス)

カラム充填剤：Silicagel 60 extrapure (MERCK)

テトラヒドロフラン(THF)(和光特級)

その他試薬は残留農薬用を用いた。

2-4 装置

GC：HP5890SERIES (FID)(Hewlett Packard)を用いた。

2-5 グリセリン

分析方法

分析法を図1に示す。試料の適量を50mlの共栓メスシリンダーに採り，エチルアルコールで50mlにメスアップする。試料は既にホモジナイズされているので手で10秒ほど激しく振るだけで抽出操作は十分である。次に不溶物が沈殿するまで冷蔵庫でしばらく静置したのち，上清をグリセリンの含有量に応じて適量 50mlの遠沈管に採る。試料採取量，および上清の採取量を表2に示す。高沸点物質はGCのライナーやカラムに汚れとなって残り，感度や再現性に影響を与えるのでなるべく除く方が望ましい，そこで昨年度と同様に，上清をエーテルで50mlにメスアップしたあと遠心分離を行った。遠心分離したのち上清を全量50mlのナスフラスコに採り減圧乾固する。乾固後，トリメチルシリル化してキャピラリーGC(FID)により測定した。GC条件を表3に示す。

添加回収試験

各食品群に，グリセリンを添加したときの回収

試料適量を 50ml メスシリンダーに採り，エタノールで 50ml にメスアップ

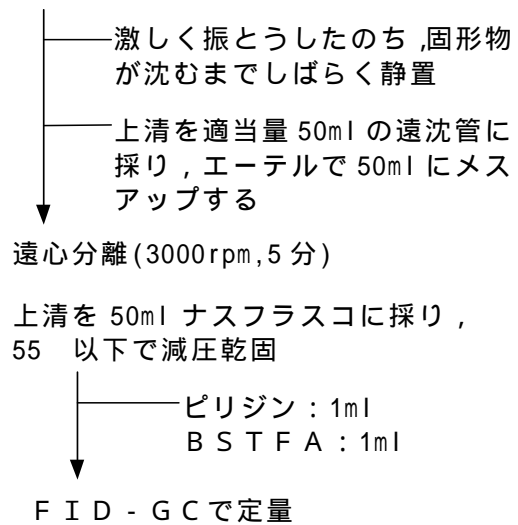


図1 グリセリンの分析法

表2 各群における採取量

食品群	試料採取量 (g)	上清採取量 (ml)
2群	10(5)	4
3群	10(5)	4
4群	5(2.5)	4
5群	10(10)	10
7群	10(5)	2

()内は希釈前原体としての採取量

表3 GC条件

GC	HP5890SERIES (FID)
分析カラム	DB-17HT 15m-0.25mm-0.15 μ m
オーブン温度	70 (3min)-(2 /min)-80 - (25 /min)-360 (1min)
注入口温度	330
注入量	1 μ l
キャリア-圧	10.0psi , 80 (constant flow mode),He,

率を表4に示した。添加量は各食品群の過去のデータからグリセリン濃度を考慮して、比較的グリセリン濃度の高い4群には原体当たり200 µg、グリセリン濃度の低い5群には50 µg、残りの群には100 µg添加した。結果89.82～102.27%の回収率が得られた。図3にGCクロマトグラムを示す。

表4 グリセリンの食品群別添加回収率(%)

食品群	原体当たりの添加量(µg/g)	回収率
2群	100	98.74
3群	100	102.27
4群	200	101.78
5群	50	98.99
7群	100	89.82

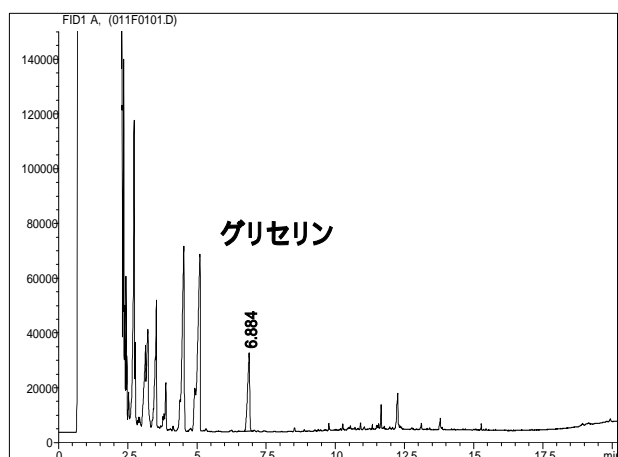


図3 グリセリンのGCクロマトグラム

2-6 グリセリン脂肪酸エステル

分析方法

グリセリン脂肪酸エステルも他の乳化剤同様、脂肪酸組成やエステル化度の異なるものの混合物であり¹⁾、すべてのものについて分析するのは困難なため、ステアリン酸モノグリセリド(モノステアリン)、及びパルミチン酸モノグリセリド(モノパルミチン)を分析対象とした。操作にはクロロホ

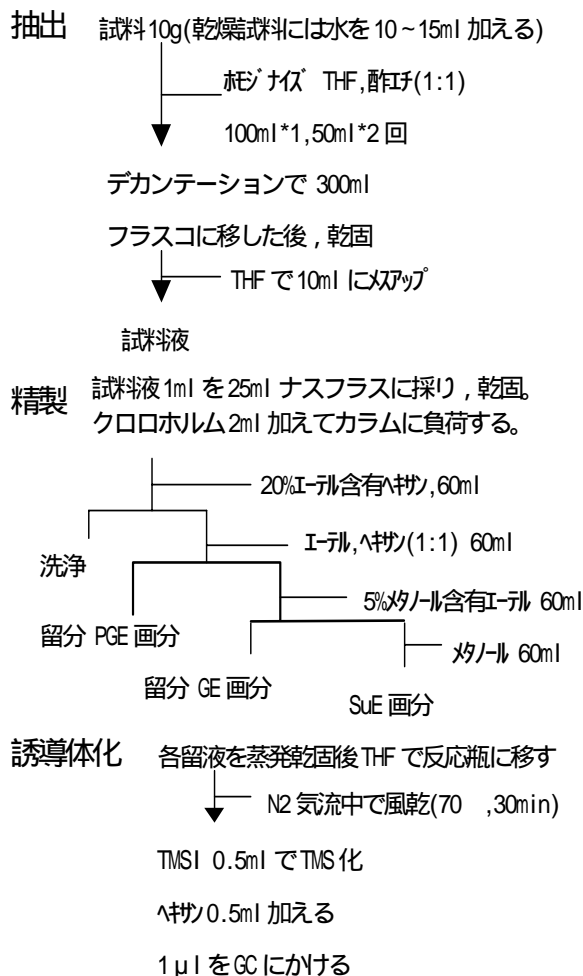


図4 グリセリン脂肪酸エステルの分析法

表5 カラム精製条件

充填剤	Silicagel 60 extrapure(MERCK), 110 で活性化
カラムサイズ	15mm × 150mm
充填法	20%I-TEL含有A-PHにて湿式充填 (高さ10cm)

表6 GC条件

GC	HP5890SERIES (FID)
分析カラム	DB-17HT 15m-0.25mm-0.15 µm
オープン温度	160 -(10 /min)-360 (5min)
注入口温度	330
注入量	1 µl
キャリア-圧	10.0psi, 160 (constant flow mode),He,

ルムを使用せず，また系統的にプロピレングリコール脂肪酸エステル(PGE)，シヨ糖脂肪酸エステル(SuE)も分析できる方法を準用した²⁾。分析法のフローを図4に示す。精製段階で，試料液を乾固した際，固形物が20%エーテル含有ヘキサンに溶解せず，試料をカラムに負荷し難かったので，この操作のみクロホルム2mlを使用して固形物を溶解してからカラムに負荷した。精製カラム条件を表5に，GC分析条件を表6に示す。

また3群と7群についてはパルミチン酸モノグリセリドの位置に妨害ピークが出て定量が困難だったのでGC/MSで確認した。GC/MS条件を表7に示す。

表7 GC/MS条件

GC/MS	HP5973
分析カラム	DB-17HT 15m-0.25mm-0.15 μm
モード	コンスタントフローモード 初期流量：0.97 ml/min 平均線速度：53cm/sec
オープン温度	160 -(10 /min)-360 (5min)
注入口	モード：スプリットレス 温度：330 圧力：5.15psi トータルフロー：63.8 ml/min ページ流量：60 ml/min ガスセーバー：off ページ時間：2.00 min
注入量	1 μl
MS	モード：SIM トランスファーヒータ：280
MS/ラマター(m/z)	モノパルミチン：371.3 459.3 モノステアリン：399.3 487.4

添加回収試験

各食品群に，グリセリン脂肪酸エステルを添加したときの回収率を表8，表9に示した。実際に添加しているのはモノステアリンのみであるが，使用したモノステアリン中には25%モノパルミチンが含まれているので，モノステアリンとモノパルミチンの添加量の比が3：1になっている。モノパルミチン(GE-Pa)で85.85～99.47%，モノステアリン(G

表8 モノパルミチンの食品群別添加回収率(%)

食品群	原体当たりの添加量(μg/g)	回収率
2群	100	99.47
3群	50	93.01
4群	50	91.69
5群	12.5	95.00
7群	50	85.85

表9 モノステアリンの食品群別添加回収率(%)

食品群	原体当たりの添加量(μg/g)	回収率
2群	300	97.60
3群	150	93.93
4群	150	100.41
5群	37.5	94.27
7群	150	84.41

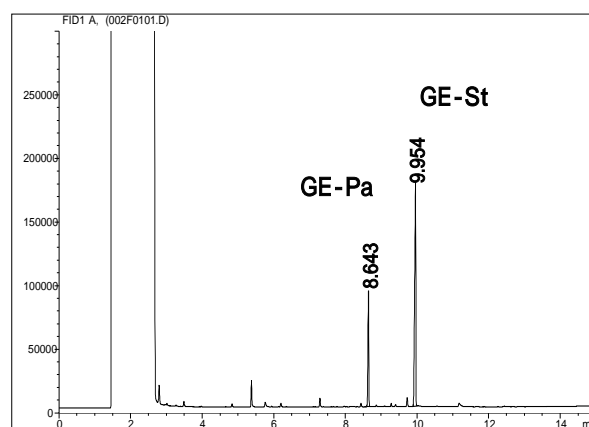


図5 GEのクロマトグラム

E-St)で84.41～100.41%，の回収率が得られた。

図5にGCクロマトグラムを示す。

3. 結果および考察

3-1グリセリン(Gly)

グリセリンは食品添加物として着色料，着香料の溶媒として使用される他，モノグリセリドの原料としても使われる。冷菓子類には分散や結晶化防止に使用される。また半乾燥食品，和菓子，ゼ

リー、チューイングガムなどに、新鮮味の保持や水分活性値の降下による微生物の生育防止、砂糖などの結晶析出防止など広範囲な目的で使用されている³⁾。また天然成分としても食品中に広く存在している。今年度は生鮮食品を対象にしているので定量値は天然由来のものと考えられる。

生鮮食品におけるグリセリンの食品群別含有量の結果を表10に示す。各食品群別のグリセリン含有量は、魚介類・肉類・卵の4群が352.64 µg/gで最も含有量が多い。次いで2群, 3群, 7群が150 µg/g程度の含有量, 含有量が最も低いのは5群の乳類で平均含有量は13.52 µg/gであった。

含有量と喫食量から計算されたグリセリンの食品群別1日摂取量の結果を表11に示す。今年度のグリセリンの総摂取量は163.14mg/dayであった。4群の60.23mg/dayと7群の63.54mg/dayが高い値で、総摂取量の7割以上は4群と7群からの摂取である。次いで2群の28.78mg/day, 3群と5群は10 mg/day以下の摂取となっている。地域別には中

部グループの4群が他の地域よりも摂取量が高く、総摂取量も若干多くなっている。

昨年度(平成10年度)は加工食品からのグリセリンを定量して、摂取量が1025.73mg/dayとなったので、生鮮食品と加工食品合わせた食品中の1日摂取量は1188.87mg/dayとなった。

3-2グリセリン脂肪酸エステル(GE)

グリセリン脂肪酸エステル(GE)は古くから広範囲な用途で用いられている乳化剤であり、世界各国においても食用乳化剤の過半数を占めている。乳飲料、アイスクリーム、生クリームなどには乳化安定のために、ケーキ、ビスケットなどには起泡剤として、豆腐の製造には消泡剤として用いられる。またパン、麺類等でん粉質の食品にはでん粉の糊化、老化防止に使用される。その他チューイングガム、あめ、各種練り製品等種々の食品に広く用いられる⁴⁾。またグリセリン脂肪酸エステルはグリセリンと同様、脂肪成分として天然にも存在している。今回は生鮮食品が対象なので、定

表10 平成11年度 グリセリンのグループ別、食品群別含有量(µg/g)

グループ名	2群	3群	4群	5群	7群
東部	139.26	180.89	255.76	12.39	213.58
中部	169.65	181.77	471.40	14.87	176.97
西部	116.62	172.59	330.75	13.30	152.39
平均値	141.84	178.42	352.64	13.52	180.98

表11 平成11年度 グリセリンのグループ別、食品群別1日摂取量(mg/day)

グループ名	2群	3群	4群	5群	7群	総摂取量
東部	28.26	9.12	43.68	1.46	74.99	157.51
中部	34.42	9.16	80.52	1.75	62.14	187.99
西部	23.66	8.70	56.49	1.57	53.50	143.92
平均値	28.78	8.99	60.23	1.59	63.54	163.14

量値は天然由来の数値と考えられる。

生鮮食品中のモノステアリンの食品群別含有量と1日摂取量を表12, 表13に, モノパルミチンの食品群別含有量と1日摂取量を表14, 表15に示す。モノステアリンの食品群別含有量は穀類の2群と魚介類・肉類・卵の4群が高く 130.63

μg/g および 170.45 μg/g, 次いで乳類(牛乳)の5群が 10.35 μg/g, 3群と7群は不検出であった。

1日摂取量は, 平均総摂取量が 56.84mg/day であった。食品群別では, 2群が 26.51mg/day, 4群が 29.11mg/day となり, これら2つの食品群で生鮮食品からの摂取量のほとんどを占めている。

表12 平成11年度 モノステアリンのグループ別、食品群別含有量(μg/g)

グループ名	2群	3群	4群	5群	7群
東部	326.83	ND	108.23	11.41	ND
中部	45.97	ND	170.03	10.69	ND
西部	19.11	ND	233.09	8.94	ND
平均値	130.63	ND	170.45	10.35	ND

表13 平成11年度 モノステアリンのグループ別、食品群別1日摂取量(mg/day)

グループ名	2群	3群	4群	5群	7群	総摂取量
東部	66.31	0.00	18.49	1.34	0.00	86.14
中部	9.33	0.00	29.04	1.26	0.00	39.63
西部	3.88	0.00	39.81	1.05	0.00	44.74
平均値	26.51	0.00	29.11	1.22	0.00	56.84

表14 平成11年度 モノパルミチンのグループ別、食品群別含有量(μg/g)

グループ名	2群	3群	4群	5群	7群
東部	246.52	ND	54.82	12.20	ND
中部	217.21	ND	100.12	11.56	ND
西部	111.32	ND	114.98	10.27	ND
平均値	191.68	ND	89.97	11.34	ND

表15 平成11年度 モノパルミチンのグループ別、食品群別1日摂取量(mg/day)

グループ名	2群	3群	4群	5群	7群	総摂取量
東部	50.02	0.00	9.36	1.44	0.00	60.82
中部	44.07	0.00	17.10	1.36	0.00	62.54
西部	22.59	0.00	19.64	1.21	0.00	43.44
平均値	38.89	0.00	15.37	1.34	0.00	55.60

残りの5群からの摂取は総摂取量の2%程度である。地域別には東部グループの2群が他の地域よりも大幅に高く66.31mg/dayとなっており、その影響で総摂取量も東部グループが他の地域の2倍程度の86.14mg/dayとなっている。

モノパルミチンについても、3群と7群からは不検出であった。モノステアリンと同様、2群と4群が191.68 μ g/g、89.97 μ g/gと含有量が高く、5群は11.34 μ g/gであった。

1日摂取量について、モノパルミチンの総摂取量の平均は55.60mg/dayである。食品群別に見ると2群からの摂取が一番高く38.89mg/dayで全体の約7割を占めている。次いで4群の15.37mg/dayである。地域別には、大幅に摂取量の異なる地域はなく東部グループの2群も他の地域と同様のレベルである。昨年度(平成10年度)に行った加工食品からのグリセリン脂肪酸エステル摂取量は、モノステアリンで43.39mg/day、モノパルミチンで24.06mg/dayであった。よって生鮮食品と加工食品合わせた食品中の1日摂取量はモノステアリンで100.23mg/day、モノパルミチンで79.66mg/dayとなった。

4. 文 献

- 1)厚生省,第6版食品添加物公定書,228-229,1992
- 2)木原敏博,太田紀之,佐藤勇次,他:キャピラリーGCによる乳化剤の分析について,日本食品衛生学会第70回学術講演会要旨集,63,1995
- 3)石館守三,谷村顕雄監修:第5版食品添加物公定書解説書,253-258,1987
- 4)石館守三,谷村顕雄監修:第5版食品添加物公定書解説書,258-264,1987