

マーケットバスケット方式による グリセリン脂肪酸エステルの摂取量調査*

古謝あゆ子・玉那覇康二

Study of Daily Intakes of Glycerin Fatty Acid Ester by Market Basket Method.

Ayuko KOJA and Koji TAMANAHA

要旨：国立医薬品食品衛生研究所及び6つの地方衛生研究所の共同研究「食品添加物一日摂取量調査」の一環として、乳化剤であるグリセリン脂肪酸エステルの調査を行った。グリセリン脂肪酸エステルの主成分であるモノパルミチン、モノステアリンについて、マーケットバスケット試料を分析した結果、一日摂取量は、モノパルミチンが26.2mg、モノステアリンが46.6mgとなった。

Abstract: The daily intakes of glycerin fatty acid ester which is a kind of emulsifier were studied as a part of the collaborated studies on the Japanese daily intake of food additives with the National Institute of Health Sciences and six local public health institutes. Analysis of monopalmitin and monostearin which are major components of glycerin fatty acid ester by market basket samples showed daily intake of monopalmitin is 26.6mg and that of monostearin, 46.6mg respectively.

Key words：食品添加物 food additive, 乳化剤 emulsifier, グリセリン脂肪酸エステル glycerin fatty acid ester, モノステアリン monostearin, モノパルミチン monopalmitin, マーケットバスケット方式 market basket method, 一日摂取量 daily intake

I はじめに

マーケットバスケット方式による食品添加物の一日摂取量調査は厚生省食品化学課、国立衛生試験所大阪支所が中心となって1981年から継続実施されており、2000年から2年間の中断を経た後、2002年度より、厚生労働省食品保健部基準課の事業として国立医薬品食品研究所および6つの地方衛生研究所が参加して再開された。2005年度は強化剤・乳化剤の一日摂取量調査を実施し、沖縄県は乳化剤であるグリセリン脂肪酸エステルを担当することとなった。その概要について報告する。

II 調査方法

1. 参加研究機関

国立医薬品食品衛生研究所、札幌市衛生研究所、仙台市衛生研究所、東京都健康安全研究センター、香川県環

境保健研究センター、北九州市環境科学研究所、沖縄県衛生環境研究所

2. 試料の調製

調査を行う食品の種類および量は、平成14年版食品産業統計年表、平成12年度国民栄養調査結果に基き、既報¹⁾に準じて分別、収集した。使用した製品の総数は343、食品数は147で、これを7つの食品群に分類した(表1)。各群の食品は国立医薬品食品衛生研究所を除く地方衛生研究所6機関が地元で購入し、それぞれの食品の規定量を採取し、1群以外は同量の水を加えて均一化し、各機関に冷凍で搬送した。平成14~16年度に行った個別食品による調査は、対象が表示義務のない強化剤と一括名表示が認められる乳化剤であることなどから、今回は行わなかった。

*：本研究は厚生労働省医薬食品局食品安全部 基準審査課の事業として実施した。

表1. 食品群の分類及び一日喫食量

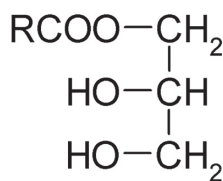
群	食品群名	食品数	製品数	一日喫食量(g)
1群	調味嗜好飲料	32	86	387.7
2群	穀類	28	50	118.1
3群	いも類・豆類・ 種実類	16	28	89.6
4群	魚介類・肉類	26	68	54.7
5群	油脂・乳類	13	37	77.1
6群	砂糖類・菓子類	11	37	43.4
7群	果実類・野菜類 ・海草類	21	37	30.6
合計		147	343	801.2

3. 試薬

標準品はモノステアリン酸グリセロール (和光純薬) から調製した標準液を, モノステアリン (ナカライテスク), モノパルミチン (AccuStandard)を用いて各成分の濃度を確認して使用した. C18カートリッジカラムはBondElut Jr C18(varian) を, TMS化剤としてトリメチルシリルイミダゾール(GLサイエンス)を, その他の試薬類は特級を使用した.

4. 分析方法

グリセリン脂肪酸エステルは脂肪酸組成, エステル化度の異なるものの混合物であるが, 今回は, その中で主成分とされているパルミチン酸モノグリセリド (モノパルミチン) および, ステアリン酸モノグリセリド (モノステアリン) について測定を行った. これらの構造式を図1に示す.



R=C₁₅H₃₁ モノパルミチン

R=C₁₇H₃₅ モノステアリン

図1. グリセリン脂肪酸エステルの構造式

グリセリン脂肪酸エステルの分析法については, 食品添加物分析法²⁾において参照分析法として示されているが, 抽出操作に多量のクロロホルムを必要とするため, 今回は木原・川島の方法^{3),4)}を参考にして分析方法を検討した. シリカゲルカラム精製は, ガラスクロマト管に樹脂を充填するかわりに, 市販のシリカゲルミニカラムを用いて行った.

GC測定のためのTMS化は, 文献と同様にトリメチルシリルイミダゾール (TMSI) を用いた. TMS化は文献⁴⁾では

70℃で行ったとされているが, 常温(20℃前後)で問題なく速やかに定量的に進行することが確認された. ただし, 最終残留物に水, メタノール等が残留していると, それらとTMSIが反応し, 反応物が固化したりヘキサンに溶解せず二層に分離するなどの現象が見られたため, 精製前に無水硫酸ナトリウムによる脱水を行い, TMS化前の溶媒除去を, 残留物が固形物もしくはオイル状物質のみになるまで時間をかけて行った. 検量線は今回測定した範囲 (モノパルミチン1.6~80µg/ml, モノステアリン4.0~200µg/ml) において, 直線を示した (図2).

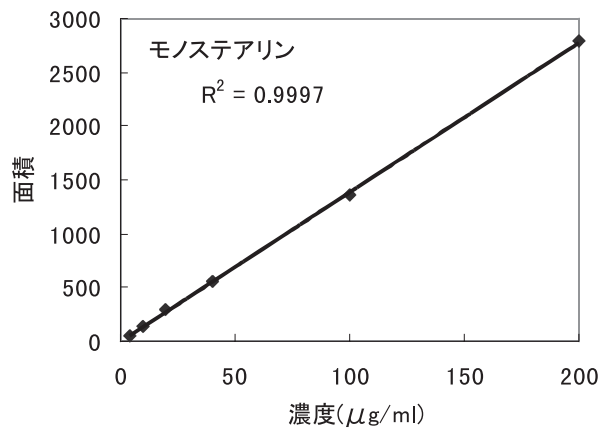
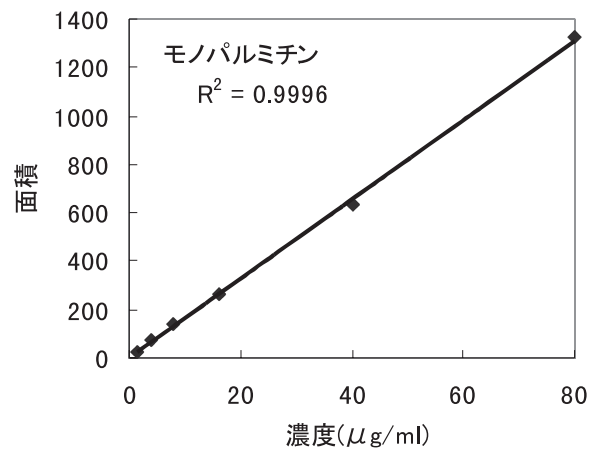


図2. 検量線 (上:モノパルミチン,下:モノステアリン)

分析方法のフローチャートを図3に, GC/FIDの測定条件を表2に, 標準品及び試料のクロマトグラムを図4に示した. 一部の試料において, モノステアリンのピーク手前に夾雑物がショルダーとして現れ, 分離が困難であったため, GCの昇温条件を変更した.

III 結果および考察

1. 添加回収試験及び検出限界値

各食品群にモノパルミチンの濃度が32μg/g, モノステアリンの濃度が80μg/g (1群はそれぞれ64μg/g, 160μg/g) になるように標準品を添加し, 回収実験を行った. 結果は表3に示したとおり, モノパルミチンで76.5~100.0%, モノステアリンで82.9~102.0%とほぼ

良好であった.

また, 本法による検出限界を日本工業規格(JIS)高速液体クロマトグラフィー通則に従い, 標準溶液の繰り返し注入により求めたところ, モノパルミチンで0.4μg/g, モノステアリンで0.6μg/gとなった(1群はその1/2の濃度).

試料 5.0g (2~7群試料は希釈後)

+THF・酢酸エチル (1:1)25ml, 20ml, 20ml
 ホモジナイズ 3分
 遠心分離 5分 3,000rpm

上清液

無水硫酸ナトリウムで脱水
 ろ紙 (No.2) でろ過
 ろ紙上の残留物を酢酸エチル 5ml × 2 で洗浄
 溶媒留去 (減圧, 40℃)
 THF で 5.0ml に定容
 1ml 分取
 溶媒留去 (減圧, 40℃)
 +クロロホルム 1ml

シリカゲルミニカラム(BondElut Jr Si 500mg)
 (あらかじめヘキサン5mlで洗浄)

20% エーテル含有ヘキサン 5ml で洗浄
 10% メタノール含有エーテル 5ml で溶出
 溶媒留去
 (減圧, 40℃, 残留物が固形物もしくは
 オイル状物質のみになるまで)
 +TMSI 0.5ml
 +ヘキサン 0.5ml

GC/FID分析

図3. モノパルミチン、モノステアリンの分析フローチャート

表2. GC/FID測定条件

機種: Agilent 6980
 カラム: DB-17HT(30m×0.25mm 膜厚0.15μm)
 注入温度: 330℃ 検出器温度: 300℃
 カラム温度: 160℃-10℃/分-360℃(10分)
 一部試料にて
 160℃-5℃/分-280℃-20℃/分-
 360℃ (10分)
 キャリアガス: He 1ml/min
 試料注入法: スプリットレス 注入量: 1μl
 洗浄液A:メタノール、洗浄液B:アセトン

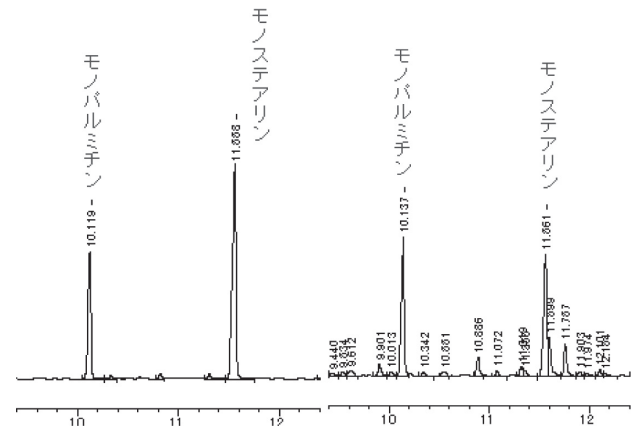


図4. グリセリン脂肪酸エステルのクロマトグラム (左: 標準品、右: サンプル)

表3. 添加回収率 (n=3)

	第1群	第2群	第3群	第4群	第5群	第6群	第7群	平均
	調味嗜好飲料	穀類	いも・豆・種実類	魚介類肉類	油脂類乳類	砂糖類菓子類	果実・野菜・海草類	
モノパルミチン	83.7	84.8	87.3	89.3	87.1	100.0	76.5	87.0
モノステアリン	86.7	94.4	88.9	90.3	102.0	99.3	82.9	92.1

単位: %

表4. 各機関別・群別モノパルミチン含有量

単位：ug/g

	第1群 調味 嗜好飲料	第2群 穀類	第3群 いも・豆・ 種実類	第4群 魚介類 肉類	第5群 油脂類 乳類	第6群 砂糖類 菓子類	第7群 果実・野菜 ・海草類	総含有量
札幌	1.73	75.18	111.78	23.63	94.26	65.45	12.25	384.38
仙台	2.51	59.74	42.76	53.22	78.99	64.13	7.40	308.75
東京	2.87	61.36	24.52	44.67	81.43	80.11	12.63	307.52
香川	2.75	62.09	43.77	55.37	111.47	67.97	10.09	353.50
北九州	9.98	43.70	82.44	42.73	220.70	107.89	10.32	517.75
沖縄	9.36	77.37	136.64	34.80	147.21	55.32	6.22	466.92
平均値	4.02	67.14	48.30	39.71	88.69	70.45	10.77	329.08

表5. 各機関別・群別モノステアリン含有量

単位：ug/g

	第1群 調味 嗜好飲料	第2群 穀類	第3群 いも・豆・ 種実類	第4群 魚介類 肉類	第5群 油脂類 乳類	第6群 砂糖類 菓子類	第7群 果実・野菜 ・海草類	総含有量
札幌	5.99	62.83	222.04	30.31	274.59	56.77	13.91	666.43
仙台	7.87	56.35	80.86	78.86	191.81	83.53	6.32	505.61
東京	3.26	54.05	75.49	200.60	288.59	64.87	10.61	697.47
香川	9.12	70.15	154.11	91.34	235.32	71.57	8.91	640.53
北九州	9.98	43.70	82.44	42.73	220.70	107.89	10.32	517.75
沖縄	9.36	77.37	136.64	34.80	147.21	55.32	6.22	466.92
平均値	7.60	60.74	125.26	79.77	226.37	73.32	9.38	582.45

表6. 各機関別・群別モノパルミチン一日総摂取量

単位：mg

	第1群 調味 嗜好飲料	第2群 穀類	第3群 いも・豆・ 種実類	第4群 魚介類 肉類	第5群 油脂類 乳類	第6群 砂糖類 菓子類	第7群 果実・野菜 ・海草類	総摂取量
札幌	0.67	8.80	10.02	1.30	7.27	2.84	0.37	31.27
仙台	0.97	7.00	3.83	2.92	6.09	2.78	0.23	23.82
東京	1.08	7.19	2.20	2.45	6.28	3.48	0.39	23.06
香川	1.06	7.27	3.92	3.04	8.59	2.95	0.31	27.15
北九州	1.21	5.94	1.49	1.75	7.45	3.96	0.35	22.17
沖縄	4.33	10.98	4.51	1.62	5.34	2.33	0.33	29.44
平均値	1.55	7.86	4.33	2.18	6.84	3.06	0.33	26.15

表7. 各機関別・群別モノステアリン一日総摂取量

単位：mg

	第1群 調味 嗜好飲料	第2群 穀類	第3群 いも・豆・ 種実類	第4群 魚介類 肉類	第5群 油脂類 乳類	第6群 砂糖類 菓子類	第7群 果実・野菜 ・海草類	総摂取量
札幌	2.32	7.36	19.89	1.66	21.17	2.46	0.43	55.29
仙台	3.04	6.60	7.25	4.33	14.79	3.63	0.19	39.82
東京	1.26	6.33	6.76	11.01	22.25	2.82	0.32	50.76
香川	3.53	8.21	13.81	5.01	18.14	3.11	0.27	52.09
北九州	3.86	5.12	7.39	2.35	17.02	4.68	0.32	40.72
沖縄	3.62	9.06	12.24	1.91	11.35	2.40	0.19	40.78
平均値	2.94	7.11	11.22	4.38	17.45	3.18	0.29	46.58

表8. 乳化剤表示検体数 (カッコ内はうちグリセリン脂肪酸エステル個別名表示があったもの)

	第1群 調味 嗜好飲料	第2群 穀類	第3群 いも・豆 ・種実類	第4群 魚介類 肉類	第5群 油脂類 乳類	第6群 砂糖類 菓子類	第7群 果実・野菜 ・海草類
札幌	6	17	1(1)	2	17(1)	10	3
仙台	6	13(1)	2(1)	4	13	15	3
東京	4	15	2(1)	0	14(1)	20	2
香川	5	15	2(1)	4	12	12	4(1)
北九州	4	12	3(1)	1	16	13	3
沖縄	4	12(1)	2(1)	6	14	11	6(1)

※消泡剤としてグリセリン脂肪酸エステルが使用されたものについては、残留の可能性が低いためリストに含めていない。

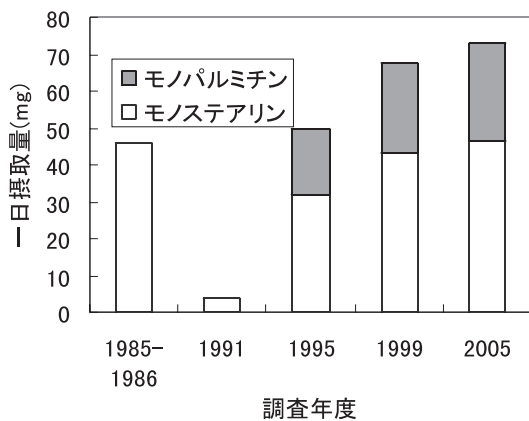


図5. 一日摂取量の推移 (1991年以前は単成分のみ調査)

2. 測定結果

モノパルミチン、モノステアリンの各機関別、食品群別含有量を表4～表5に、一日摂取量を表6～表7に示した。両物質とも、すべての食品群から検出され、モノパルミチンの一日摂取量は26.2mg、モノステアリンの一日摂取量は46.6mgとなった。

一日摂取量を食品群別に見ると、モノパルミチンで2, 5群, モノステアリンで3, 5群の寄与が高かった。グリセリン脂肪酸エステルは、主に乳化剤として様々な食品に使用されているが、脂肪の成分として天然にも存在している。グリセリン脂肪酸エステルの物質名、もしくは「乳化剤」の一括表示名が表示された食品のリストを表8に示す。リストに挙げられた食品の数と含有量の間に明確な相関は見られなかった。また、東京4群は表示食品がないにも関わらず、食品群別試料の含有量が高めであったことから、こうした脂肪を多く含む試料においては、天然成分が摂取量に与える寄与が高いのではないかと考えられる。

3. 摂取量の推移

加工食品におけるグリセリン脂肪酸エステルの摂取量の推移^{3),4),5)}を図5に示す。モノパルミチン、モノステアリンそれぞれを測定し始めた1995年以降のデータを見ると、両物質共に、若干増加傾向にある。また、1995年以降の推移を食品群別に表したグラフを図6に示す。今回の調査では、1995年、1999年の摂取量調査では、検出されなかった1群から両物質が検出された。これは分析機器の性能が向上して検出限界値が下がったことにより、これまで検出できなかった微量成分が検出可能となったためであると考えられる。それ以外の食品群では、5群が両成分とも増加傾向にあるものの、これまでの調査結果と比較して大きな差は見られなかった。

<謝辞>

食品の購入および、サンプルの調製に御協力頂きました大城直雅氏、照屋菜津子氏、安里周子氏、与儀健太郎氏、室井利允氏に心より感謝いたします。

IV まとめ

グリセリン脂肪酸エステルの主成分であるモノステアリン、モノパルミチンの一日摂取量を調査した。両物質とも、全ての食品群から検出され、一日摂取量はそれぞれ26.2mg, 46.6mgであった。

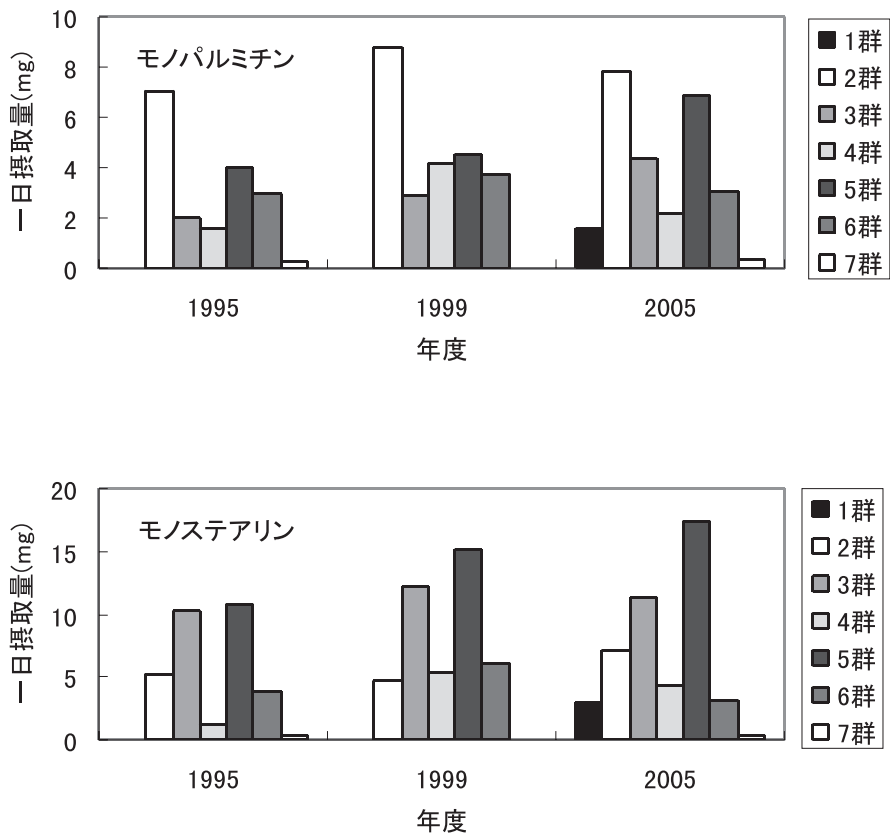


図6. 食品群別摂取量の推移

V 参考文献

- 1) 玉那覇康二・大城直雅(2003)マーケットバスケット方式によるグリチルリチン酸の摂取量調査. 沖縄県衛生環境研究所報, 37: 89-93.
- 2) 厚生省生活衛生局食品化学課(2000)グリセリン脂肪酸エステル. 食品中の食品添加物分析法, pp387-389.
- 3) 食品添加物学会編(2001) あなたが食べている食品添加物 総合版, 食品添加物協会, 187pp.
- 4) 木原敏博・川島清輝(2000) 平成11年度「食品添加物の一日摂取量調査」の結果について. 札幌市衛研年報, 27: 91-97
- 5) 木原敏博・太田紀之(1996) 平成7年度「食品添加物の一日摂取量調査」の結果について. 札幌市衛研年報, 23: 95-100