

マーケットバスケット方式によるグリチルリチン酸摂取量調査 —2015年度—*

仲間幸俊・古謝あゆ子**・高嶺朝典・佐久川さつき・恵飛須則明

Studies on Daily Intake of Glycyrrhizic acid by Market Basket Method (FY2015)*

Yukitoshi NAKAMA, Ayuko KOJA**, Tomonori TAKAMINE, Satsuki SAKUGAWA and Noriaki EBISU

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「食品添加物の一日摂取量調査」の一環として、甘味料であるカンゾウ(甘草)の成分、グリチルリチン酸の摂取量調査を行った。マーケットバスケット試料を調査した結果、グリチルリチン酸は0.368 mg/人/dayとなった。

Abstract: Daily intakes of licorice extract, the major components of glycyrrhizic acid, were studied as a part of the collaborative researches, "studies on daily intakes of food additives", performed by the National Institute of Health Sciences and five local institutes of public health in fiscal year 2015. The market basket samples were analyzed and the daily intakes of glycyrrhizic acid were estimated as 0.368 mg/person/day.

Key words: 食品添加物, Food additive, 甘味料, Sweetener, 甘草, Licorice, グリチルリチン酸, Glycyrrhizic acid, マーケットバスケット方式, Market basket method, 1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1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年度から継続実施されており、2000年度から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衛生研究所および複数の地方衛生研究所が参加して再開された。2015年度は、2011年度に更新された食品リストを元にして摂取量調査が行われ、沖縄県は甘味料であるグリチルリチン酸の分析を担当した。

グリチルリチン酸はカンゾウ属植物 (*Glycyrrhiza* species) から得られる甘味料であり¹⁾、国内では既存添加物のカンゾウ抽出物、指定添加物のグリチルリチン酸二ナトリウムとして用いられている。構造を図1に示す。当物質は安定な構造を有するトリテルペン配糖体であり、遊離酸は水に不溶であるが、二ナトリウム塩および二カリウム塩、二アンモニウム塩とすることで水への溶解性を持つ。本報ではグリチルリチン酸の国内の1日摂取量について、当研究所で分析した結果を報告する。

II 方法

1. 参加研究機関

国立医薬品食品衛生研究所(東京)、札幌市衛生研究

所、仙台市衛生研究所、千葉県衛生研究所、香川県環境保健研究センター、長崎市保健環境試験所、沖縄県衛生環境研究所。以下地名で示す。

2. 試料

食品群別試料の調製は、独立行政法人国立健康・栄養研究所のデータに基づき国立医薬品食品衛生研究所が作成した加工食品分別リストを元に行った。使用した食品数は172、製品の総数は263で、これを表1に示した7つの食品群に分類した。各群の食品は参加研究機関それぞれが地元で購入した。食品ごとに加工食品分別リストの規定量を採取して1群はそのまま、2-7群は同量の水を加えて、ミキサーで食品群ごとに混合均一化した。

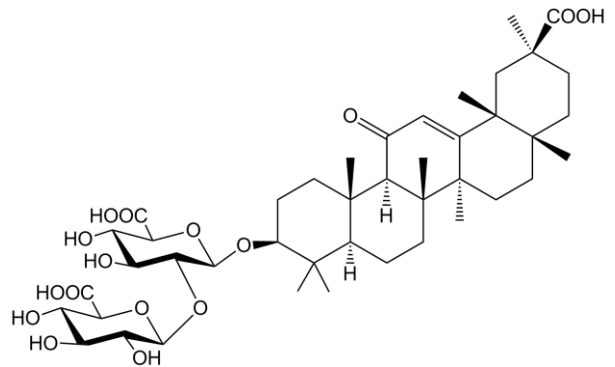


図1. グリチルリチン酸の構造式。

* 本研究は厚生労働省医薬局食品保健部食品添加物一日摂取量調査費によって実施した。

**現所属：沖縄県南部保健所

混合した試料をプラスチック容器に小分け凍結し、各機関に送付した。また、食品表示欄に調査対象添加物の記載がある製品については、混合試料用の他に、個別分析用も購入し、それぞれ担当機関に送付した。当研究所ではカンゾウ又は甘草の表示がある製品について、個別に分析を行った。なお、指定添加物名のグリチルリチン酸二ナトリウム又は二カリウム表示の食品はなかった。

表 1. 調査に用いた食品群の分類及び 1 日喫食量.

群番号	食品群名	食品数	品目数	1 日喫食量(g)
1 群	調味嗜好飲料	33	49	337.4
2 群	穀類	26	39	84.8
3 群	いも類	6	12	31.1
	豆類	15	17	34.4
	種実類	4	4	1.0
4 群	魚介類	12	18	12.1
	肉類	4	8	12.8
	卵類	1	3	0.8
5 群	油脂	8	10	9.0
	乳類	13	25	65.3
6 群	砂糖類	3	3	1.8
	菓子類	23	51	36.3
	野菜類	19	19	6.0
7 群	果実類	3	3	1.9
	海藻類	2	2	0.1
合計		172	263	634.8

3. 試薬

(1) 標準品

グリチルリチン酸の標準品として、和光純薬工業株式会社製生薬研究用グリチルリチン酸を用いた。

(2) その他試薬等

固相抽出カラムは Waters 社製 Sep-Pak AluminaN Plus (1710 mg) を、固相抽出に用いた有機溶媒、蒸留水および HPLC の移動相には高速液体クロマトグラフ用を、抽出時に用いた試薬類は特級、水は RO 水を使用した。

4. 分析法

本調査は 2011 年度 of 古謝らの報告²⁾と同様に行った。分析方法のフローチャートを図 2 に、HPLC の分析条件を表 2 に示した。

グリチルリチン酸のクロマトグラムを図 3 に示した。

試料 5.0 g (2~7 群試料は希釈後重量)

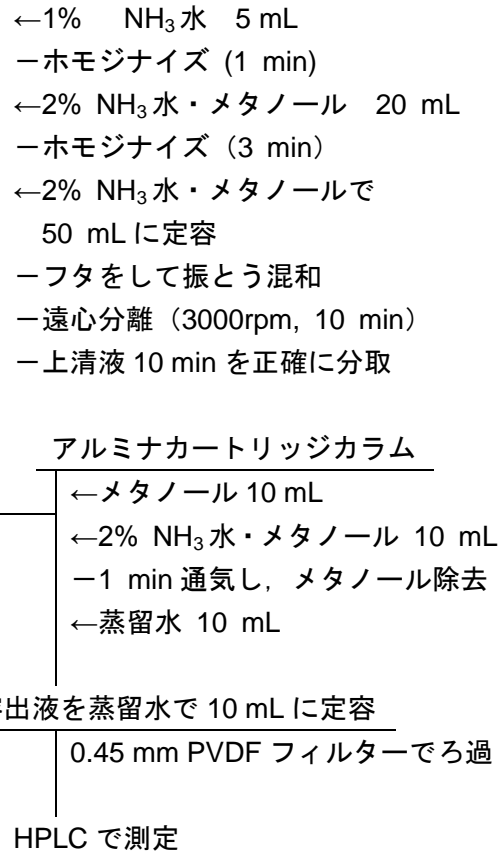


図 2. グリチルリチン酸分析フローチャート

表 2. HPLC 条件

機種	HP1100 series DAD G1315A
カラム	Wakosil-II 5C18 HG (φ4.6×150mm)
カラム温度	40 °C
移動相	アセトニトリル : メタノール : 5%酢酸 12 : 5 : 15
流速	1 mL/min, 測定波長 : 254 nm,
注入量	10 μL

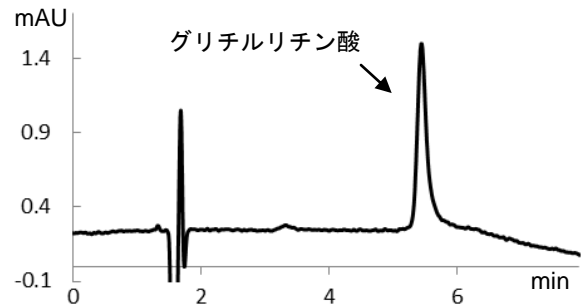


図 3. グリチルリチン酸標準液 2.0 μg/mL の HPLC クロマトグラム

Ⅲ 結果

1. 食品群別試料の添加回収率, 定量下限値

各機関の食品群別試料から, グリチルリチン酸の含有量が定量下限未満となる試料を食品群ごとに1つずつ選び, 20 µg/g になるように添加し, 添加回収試験を行った. 沖縄5群試料にグリチルリチン酸を20 mg/g 添加したサンプルのクロマトグラムを図4に示した. 添加回収試験は3回ずつ行った. 添加回収試験の結果を表3に示した.

また, 検出下限および定量下限を日本工業規格 (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, 1群では検出下限0.49 µg/g, 定量下限1.46 µg/g となり, 2-7群では検出下限0.97 µg/g, 定量下限2.92 µg/g となった.

表3. グリチルリチン酸の添加回収率 (n=3)

	第1群	第2群	第3群	第4群	第5群	第6群	第7群
	調味嗜好飲料	穀類	いも類・豆類・種実類	魚介類・肉類・卵類	油脂類・乳類	砂糖類・菓子類	果実類・野菜類・海藻類
グリチルリチン酸	100.5%	84.9%	98.0%	101.6%	77.5%	81.5%	103.0%

2. 食品群別試料測定結果

食品群別試料の測定結果を表4に示した. 香川7群から最も多く検出され, 4.889 µg/g であり, 次いで長崎1群から2.958 µg/g 検出された. また札幌と沖縄の1群, 香川と沖縄の1群, 長崎と沖縄の7群から痕跡量(定量下限値未満)検出され, 2群及び4-6群からは検出されなかった. この試験結果から計算した1日総摂取量を表5に示した. 摂取量の平均値は, 20歳以上で0.368 mg/人/day となった.

グリチルリチン酸の食品群別の総摂取量の平均および寄与率は1群が0.348 mg (95%)と最も高く, 次いで7群が0.0197 mg (5%)となった. 機関別の総摂取量では,

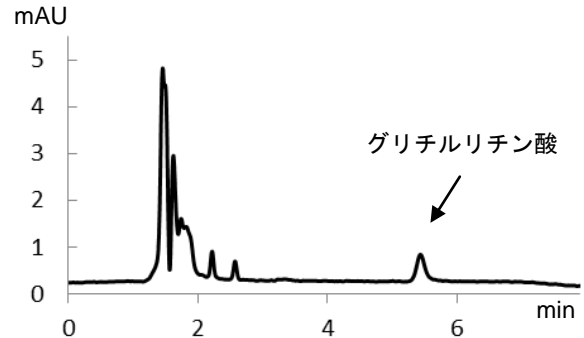


図4. 沖縄5群 20 µg/g 添加溶液の HPLC クロマトグラム.

長崎が2.089 mg と最も多く, 次いで香川0.118 mg となり, 約20倍程度差があった.

3. 個別試料測定結果

個別食品の分析結果を表6に示した. 個別食品, 全20検体を分析したところ, 19検体から3.60 µg/g - 76.29 µg/g のグリチルリチン酸が検出された. 含有量が高かったものには, 長崎1群のしょうゆ (76.29 µg/g), 沖縄1群のソース (64.72 µg/g) などがあった. 東京2群の焼きそばカップ麺は, 麺とその他のかやく, ソース, スパイス, 青のりを分けて分析を行ったが, どれも検出下限値未満となった. また, 長崎のマカロニ・スパゲッティも検出下限値未満となった.

表4. 各機関別・群別グリチルリチン酸含有量. N.D.: 検出下限 (0.01 µg/g) 未満, tr: 痕跡量 (µg/g)

機関名	第1群 調味嗜好飲料	第2群 穀類	第3群 いも類・豆類・種実類	第4群 魚介類・肉類・卵類	第5群 油脂類・乳類	第6群 砂糖類・菓子類	第7群 果実類・野菜類・海藻類
札幌	tr	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
仙台	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
東京	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
香川	N.D.	N.D.	tr	N.D.	N.D.	N.D.	4.889
長崎	2.958	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	tr
沖縄	tr	N.D.	tr	N.D.	N.D.	N.D.	tr
平均	0.493	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.815

表 5. 各機関別・群別グリチルリチン酸 1 日総摂取量. (mg/人/day)

機関	第 1 群	第 2 群	第 3 群	第 4 群	第 5 群	第 6 群	第 7 群	総摂取量
	調味嗜好飲料	穀類	いも類・豆類・種実類	魚介類・肉類・卵類	油脂類・乳類	砂糖類・菓子類	果実類・野菜類・海藻類	
札幌	0	0	0	0	0	0	0	0
仙台	0	0	0	0	0	0	0	0
東京	0	0	0	0	0	0	0	0
香川	0	0	0	0	0	0	0.118	0.118
長崎	2.089	0	0	0	0	0	0	2.089
沖縄	0	0	0	0	0	0	0	0
平均	0.348	0	0	0	0	0	0.0197	0.368

表 6. 個別食品中のグリチルリチン酸の含量. (µg/g)

機関名	食品群	食品名	含量	機関名	食品群	食品名	含量
札幌	1 群	液体だし	0.464	香川	3 群	味噌	0.104
香川	1 群	ポン酢	0.0973	長崎	3 群	いも・加工品	0.0100
香川	1 群	ソース	0.0717	長崎	3 群	いも・加工品	0.0111
長崎	1 群	ソース	0.0117	沖縄	3 群	味噌	0.0907
長崎	1 群	しょうゆ	0.278	札幌	6 群	ポテトチップス	0.0000
長崎	1 群	しょうゆ	0.0100	仙台	7 群	塩昆布	0.0013
長崎	1 群	白だし	0.926	香川	7 群	たくあん漬	0.1130
沖縄	1 群	ソース	0.128	長崎	7 群	たくあん漬	0.0412
東京	2 群	焼そばカップめん	0.00	沖縄	7 群	たくあん漬	0.0542
長崎	2 群	マカロニ・スパゲティ	0.00	沖縄	7 群	塩昆布	0.0013

表 7. 個別食品測定値から算出した各機関別・群別グリチルリチン酸含有量.

N.D. : 検出下限 (0.01 µg/g) 未満, - : 対象となる個別食品がなかったもの (µg/g)

機関	第 1 群	第 2 群	第 3 群	第 4 群	第 5 群	第 6 群	第 7 群
	調味嗜好飲料	穀類	いも類・豆類・種実類	魚介類・肉類・卵類	油脂類・乳類	砂糖類・菓子類	果実類・野菜類・海藻類
札幌	0.656	-	-	-	-	0.000	-
仙台	-	-	-	-	-	-	0.0540
東京	-	N.D.	-	-	-	-	-
香川	0.239	-	0.817	-	-	-	4.672
長崎	1.735	N.D.	0.167	-	-	-	1.702
沖縄	0.181	-	0.715	-	-	-	2.294
平均	0.4689	0.0000	0.283	0.000	0.000	0.000	1.454

表 8. 個別食品測定値から算出した各機関別・群別グリチルリチン酸 1 日総摂取量.

- : 対象となる個別食品がなく, 摂取量が 0 mg/人/day となるもの (mg/人/day)

機関	第 1 群	第 2 群	第 3 群	第 4 群	第 5 群	第 6 群	第 7 群	総摂取量
	調味嗜好飲料	穀類	いも類・豆類・種実類	魚介類・肉類・卵類	油脂類・乳類	砂糖類・菓子類	果実類・野菜類・海藻類	
札幌	0.464	-	-	-	-	0.000	-	0.464
仙台	-	-	-	-	-	-	0.0013	0.0013
東京	-	0.000	-	-	-	-	-	0.000
香川	0.169	-	0.104	-	-	-	0.113	0.389
長崎	1.226	0.000	0.0212	-	-	-	0.0412	1.288
沖縄	0.128	-	0.0907	-	-	-	0.0555	0.274
平均	0.331	0.000	0.0360	0.000	0.000	0.000	0.0352	0.402

4. 表示群の機関別・食品群別含有量及び 1 日摂取量
 個別食品の分析結果から換算した各群の含量を表 7 に示した. 群別試料では検出されなかった 3 群から 0.283 µg/g 検出された. また, 個別食品から計算上求めたグリチルリチン酸 1 日総摂取量を表 8 に示した. 1 日総摂取量の平均値は 0.402 mg となり, 群別試料から求めた総摂取量 0.368 mg より高い値となった. これは, 3 群と 7 群において, グリチルリチン酸が検出された食品の群別試料中の摂取割合が低く, 群別試料において痕跡量の検出となっているためである. 個別食品から計算したグリチルリチン酸の総摂取量における食品群別の寄与率を見ると, 1 群が 0.331 mg であり, 全体の 82% を占めていた. また, 機関別に見ると, 長崎, 札幌, 香川の順に総摂取量が多かった.

個別食品から計算上求めたグリチルリチン酸の群別含有量は, 群別試料と同様にすべての地域の 4 群 - 6 群で不検出となった. また 1 群においては, 群別試料の分析結果と概ね良い一致を示した. さらに, 3 群と 7 群においては, 群別試料から求めた値よりも高い結果となった.

4. 摂取量の推移

2002 年度調査からのグリチルリチン酸摂取量の推移を表 9 に示した(値は当調査の過去の報告書による). 群別試料, 個別試料とも 2006 年の調査で減少傾向が見られたが, これは購入した食品の選択によるものと考えられ, 2002 年以降は概ね同じような値で推移していると考えられる.

5. 海外の摂取量上限との比較

グリチルリチン酸は食品添加物の基準として 1 日の摂取基準は定められていない. しかし, 内閣府食品安全委員会のグリチルリチン酸モノアンモニウムの動物用医薬品評価書において, FAO/WHO 合同食品添加物専門家会

議 (JECFA) 及び欧州委員会 (EC) は人におけるグリチルリチン酸の定期的な摂取量上限を 100 mg/人/day 以内とすることで, 人口の大部分の健康を守る上で十分な数値であると報告している⁵⁾. 今回の結果ではグリチルリチン酸の 1 日摂取量は 1 番多い長崎県で 2.089 mg, 平均で 0.368 mg と, JECFA 及び EC の摂取量上限と比較して十分に少ない摂取量となっている.

表 9. グリチルリチン酸の 1 日摂取量の推移.

年度	摂取量の推移 (mg)	
	群別試料	個別食品
2002	0.4750	0.5948
2006	0.2643	0.2672
2011	0.3110	0.4080
2015	0.3679	0.4069

V まとめ

マーケットバスケット調査におけるグリチルリチン酸の 1 日摂取量は, 食品群別試料から計算した値で 0.368 mg, 個別食品から求めた値で 0.402 mg となり, 群別試料では 1 群から, 個別食品では 3 群からの摂取が最も高かった. 得られた値は JECFA 及び EC の摂取量上限と比較して十分に低く, 過去の調査と比較しても特に増減の傾向は見られなかった.

VI 参考文献

- 1) Hiroaki Hayashi, Hiroshi Sudo (2009) Economic importance of licorice. *Plant Biotechnology*, Vol. 26, No. 1 : 101-104.
- 2) 古謝あゆ子・佐久川さつき・國仲奈津子・高良武俊

- (2012) 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—2011 年度—. 沖縄県衛生環境研究所報, 46 : 47—51.
- 3) 照屋菜津子・古謝あゆ子・大城直雅・玉那覇康二(2007) 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 (平成 18 年度). 沖縄県衛生環境研究所報, 41 : 171—176.
- 4) 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.
- 5) 府食第 1 号, 平成 20 年 1 月 8 日付, 動物用医薬品に係る健康影響評価に関する審議結果について