

食品添加物の一日摂取量調査研究 —プロピオン酸及びアンモニアの摂取量について—

玉城宏幸・山城興博・城間博正・玉那覇康二・大城善昇

Studies on Daily Intake of Food Additives —Intake of Propionic Acid and Ammonia—

Hiroyuki TAMAKI, Okihiro YAMASHIRO, Hiromasa SHIROMA,
Koji TAMANAHA and Zensho OSHIRO

Key words: 食品添加物, プロピオン酸, アンモニア, マーケットバスケット方式

I はじめに

食品添加物の一日摂取量調査は、厚生省食品化学課の要請の下に全国12の地方衛研等により組織された食品添加物一日摂取量調査班により、昭和55年度から年度単位で実施され現在も継続中である。当所は昭和63年度から同調査に参加しており、平成7年度はプロピオン酸（保存料）及びアンモニア（製造用剤）の分析を担当した。今回はその調査結果について報告する。

II 調査方法

1. 参加研究機関及び地域分け

東部地域：札幌市衛生研究所，仙台市衛生研究所

山梨県衛生公害研究所，長野県衛生公害研究所

中部地域：東京都立衛生研究所，名古屋市衛生研究所
大阪市立環境科学研究所，武庫川女子大学

西部地域：島根県衛生公害研究所，香川県衛生研究所
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

試料の調製は、食品添加物測定用マーケットバスケット方式により行った。すなわち、各参加研究機関の地元のスーパーマーケット等で購入した148種344品目の食品を表1に示した7つの食品群に分け、食品別一日喫食量に従ってそれぞれの食品を調製日数分秤取し、1群を除いた他の群には秤取総量と等量の精製水を加え、群ごとに混合ホモゲナイズして調製した。このように各機関で調製された試料は、相互に他のすべての機関に送付し合った。各機関から送付された試料は、先の地域分けに従い、

同一地域の試料を群ごとに等量ずつ混合し分析用試料とした。

表1. 食品群の分類及び喫食量。

群番号	食品群	食品数	品目数	喫食量 (g)
1群	調味嗜好飲料	32	86	374.7
2群	穀類	27	47	103.8
3群	芋・豆・種実類	15	27	89.1
4群	魚介類・肉類	28	72	52.5
5群	油脂類・乳類	13	37	67.2
6群	砂糖類・菓子類	11	37	44.8
7群	果実・野菜・海草類	22	38	35.3
合 計		148	344	767.9

3. 分析方法

(1) プロピオン酸

食品衛生検査指針（食品中の食品添加物分析法）¹⁾に準じたが、検出感度を上げるため、水蒸気蒸留後に濃縮を行った。また、カラムクロマトグラフィーにおけるイオン交換樹脂の量を1gに増やした。

分析方法のフローシートを図1に、ガスクロマトグラフィー（GC）の測定条件を表2に、標準品のクロマトグラムを図2に示した。なお、この分析法における定量下限は1.0 μg/gである。

希釈前原体試料15 g

- 水 150ml
- 塩化ナトリウム 50 g
- リン酸 (1→10) 10ml
- シリコン油 2~3滴

水蒸気蒸留 (水酸化ナトリウム溶液 (1→100) 20mlに捕集)

- 留液280~290mlを採る
- 水で300mlとする

100ml分取

- 減圧乾固
- 水 3 mlに溶解

カラムクロマト (イオン交換樹脂 DOWEX50W-8 X 100-200mesh 1 g)

流出液 (ギ酸 (1→50) 0.5ml, クロトン酸 (500ppm) 0.5mlに受ける)

- 水で10mlとする

試料液

F I D - G C

図1. プロピオン酸の分析方法のフローシート.

表2. GC測定条件.

機種	: 島津 GC-7AG
カラム	: ガスクロパック56, 80-100mesh I, d2.6mm×1.5m
カラム温度	: 190°C
検出器温度	: 220°C
N ₂ 流量	: 40ml/min
検出器	: F I D

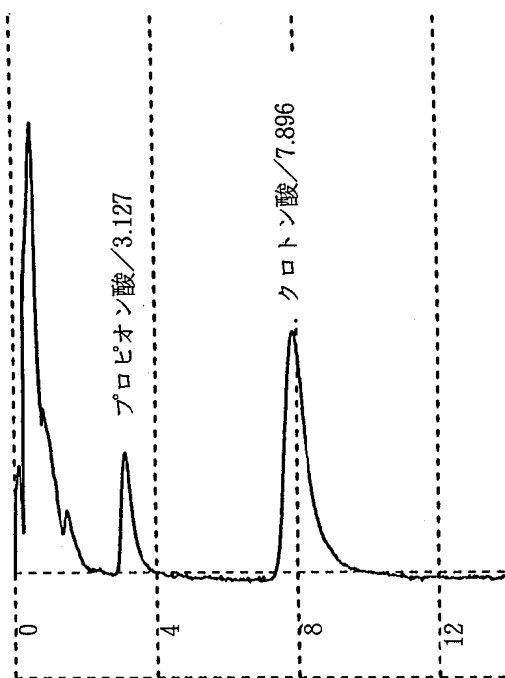


図2. プロピオン酸標準品 (8 μg/ml) のクロマトグラム.

(2) アンモニア

外海らのガスクロマトグラフィーによるアンモニアの定量法²⁾を改良した昭和63年度食品添加物一日摂取量調査の分析法³⁾に準じて行った. ただし試料採取量は5 gとし, 抽出に用いたトリクロロ酢酸は30mlとした.

分析方法のフローシートを図3に, ガスクロマトグラフィー (GC) の測定条件を表3に, 標準品のクロマトグラムを図4に示した.

希釈前原体試料 5 g

- 10%トリクロロ酢酸 (30ml, 30ml)
- 振とう抽出 (5分)
- 30分放置 (氷冷)
- 遠心分離 (3000rpm, 10分)

上 清

- pH 5 に調整 (5 N KOH)

定 容 (100ml)

- 1 ml分取

バイアルびん

- 酢酸緩衝液 3 ml
- 60°C 加温
- クロラミンT 1 ml
- 60°C 15分

気 相 (1 ml)

G C

図3. アンモニアの分析方法のフローシート.

表3. GC測定条件.

機種	: 島津 GC-7AG
カラム	: Chromosorb 103, 100-120mesh I, d 2.6mm×1.5m
カラム温度	: 100°C (4 min) → 32°C/min昇温 → 220°C
検出器温度	: 240°C
N ₂ 流量	: 30ml/min
検出器	: F I D

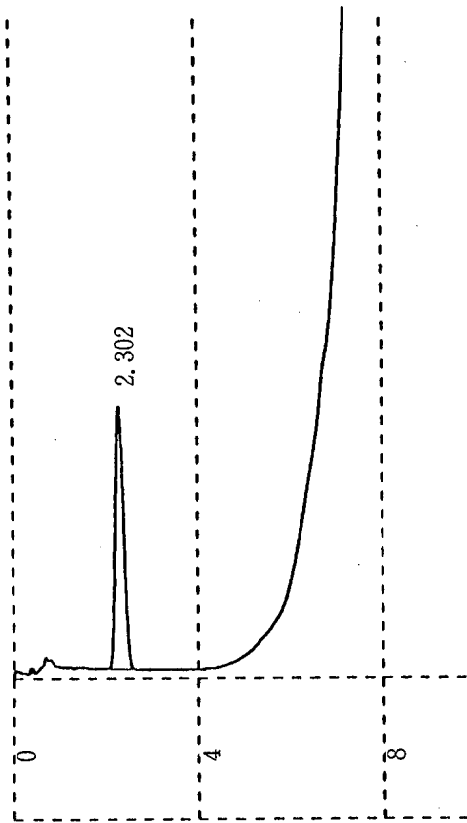


図4. アンモニア標準品 (20 µg/ml) のクロマトグラム.

4. 添加回収実験

(1) プロピオン酸

各食品群にプロピオン酸10 µg/gを添加し回収率を求めた。結果は表4に示したとおり、回収率89.3~100%と良好であった。

表4. プロピオン酸の添加回収実験結果.

食品群	試料採取量 (g)	添加量 (µg)	添加濃度 (µg/g)	回収率 (%)
1群	15	150	10	100
2群	15	150	10	97.0
3群	15	150	10	89.3
4群	15	150	10	97.0
5群	15	150	10	97.3
6群	15	150	10	100
7群	15	150	10	94.0

n = 3

(2) アンモニア

各食品群にアンモニア200 µg/gを添加し回収率を求めた。結果は表5に示したとおり回収率62.7~90.5%であった。

表5. アンモニア添加回収実験結果.

食品群	試料採取量 (g)	添加量 (µg)	添加濃度 (µg/g)	回収率 (%)
1群	2.5	500	200	90.5
2群	2.5	500	200	62.7
3群	2.5	500	200	84.0
4群	2.5	500	200	85.0
5群	2.5	500	200	84.0
6群	2.5	500	200	73.2
7群	2.5	500	200	87.0

n = 3

III 結果及び考察

1. プロピオン酸

プロピオン酸の地域別、食品群別の含有量を表6に示した。プロピオン酸はすべての地域及び食品群から検出された。食品群別含有量の平均値で見ると、4群(魚介類, 肉類)の6.7 µg/gが最も高く、6群(砂糖類, 菓子類)の5.4 µg/g、2群(穀類)の4.0 µg/gと続いている。プロピオン酸は冷凍調理食品中になんかなり含まれているという調査事例があることから、4群の含有量が高くなったのはそれに含まれる冷凍食品が原因ではないかと考えられる。また、プロピオン酸の添加が許可されているパン、洋菓子類を含む6群と2群の含有量が高いのもうなづける。

地域別に比較してみると、2群において西部が5.2 µg/gで東部の3.0 µg/g、中部の3.7 µg/gより若干高くなっている。これは西部が東部、中部に比べて気候的に暑いことから、パン類に添加されるプロピオン酸の量が多くなることに起因しているものと考えられる。しかし、6群においては西部の2.9 µg/gに対して東部6.8 µg/g、中部6.5 µg/gとなっており、2群の傾向とは逆の結果となっていた。

前回の調査結果(昭和63年度)では、2群の含有量が12.78 µg/gと他の群よりとびぬけて高かった。これはパン類に添加されるプロピオン酸により、大きく影響を受けたものと考えられる。前回の調査結果においても、今回においても、2群及び4群にプロピオン酸の含有量が高かったのは同じ傾向であった。

プロピオン酸の地域別、食品群別摂取量を表7に示した。食品群別摂取量の平均値で見ると、1群から0.6mg/日、2群から0.4mg/日、4群から0.4mg/日摂取していた。1群は含有量では最も低いが、一日の喫食量が他の群よりかなり多いことから最も多く摂取する結果となった。

2群, 4群については含有量が高いので摂取量も多くなる結果となった。

地域別の一日摂取量は, 東部2.3mg, 中部2.1mg, 西部2.2mgとほとんど差はなかった。これらの平均値の2.2mgは前回の調査結果の1.723mgより若干高くなっていった。一日摂取量としては前回と今回とで大きな差はないように思われるが, 食品群別の摂取量で比較すると各群それぞれにかなりの差が生じていた。今後さらなる調査により, プロピオン酸摂取の傾向を明らかにする必要があると思われる。

表6. プロピオン酸の地域別, 食品群別含有量。

		(μg/g)							
グループ名	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	
東部	1.5	3.0	3.4	7.0	4.4	6.8	3.4		
中部	1.4	3.7	3.4	7.2	2.0	6.5	3.0		
西部	1.6	5.2	4.5	6.0	1.5	2.9	3.4		
平均値	1.5	4.0	3.8	6.7	2.6	5.4	3.3		
昭和63年度									
平均値	ND	12.78	0.64	2.45	0.44	ND	0.26	0.42	

(ND < 1 μg/g)

表7. プロピオン酸の地域別, 食品群別摂取量。

		(mg)							
グループ名	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	一日摂取量
東部	0.6	0.3	0.3	0.4	0.3	0.3	0.1		2.3
中部	0.5	0.4	0.3	0.4	0.1	0.3	0.1		2.1
西部	0.6	0.5	0.4	0.3	0.1	0.1	0.1		2.2
平均値	0.6	0.4	0.3	0.4	0.2	0.2	0.1		2.2
昭和63年度									
平均値	0	1.482	0.047	0.147	0.026	0	0.01	0.011	1.723

2. アンモニア

アンモニアの地域別, 食品群別含有量を表8に示した。アンモニアはすべての食品群から検出され, 3群, 4群, 7群の含有量が高かった, しかし, 地域差はほとんどなかった。分析値と各群の一日当りの摂取量からアンモニアの摂取量を算出し表9に示した。アンモニアの摂取量は, 東部234mg/日, 中部240mg/日, 西部218mg/日と地域差はほとんどなかった。1, 3, 4群の順で摂取量は高く, この3群で全体の80%を占めていた。平均値は230.8mg/日で, 前回の調査結果よりは少なくなっていた。これは, 1群からの摂取量が前回の1/2になって

いることに起因している。

アンモニアは製造用剤として凍り豆腐に, またその塩類が膨張剤として食品に使用されているが, いずれも使用分解され最終食品には残存しないといわれている⁵⁾。また, 添加物を使用していないと考えられる多くの食品からも検出され, 保存中にも含量が増加するといわれている⁵⁾。従って, 今回の調査で得られたアンモニアは大部分が食品由来と考えられる。

表8. アンモニアの地域別, 食品群別含有量。

		(μg/g)							
グループ名	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	
東部	263	120	646	611	162	167	435		
中部	266	114	606	746	152	192	467		
西部	223	91	707	596	144	128	435		
平均値	251	108	653	651	153	162	446		
昭和63年度									
平均値	524	80	951	760	84	185	440	334	

表9. アンモニアの地域別, 食品群別摂取量。

		(mg)							
グループ名	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	一日摂取量
東部	98.5	12.5	57.6	32.1	10.9	7.5	15.4		234.4
中部	99.7	11.8	54.0	39.2	10.2	8.6	16.5		240.0
西部	83.6	9.4	63.0	31.3	9.7	5.7	15.4		218.1
平均値	93.9	11.2	58.2	34.2	10.3	7.3	15.7		230.8
昭和63年度									
平均値	183.5	9.3	68.9	45.6	5.1	9.1	16.5	8.8	346.8

IV まとめ

食品添加物の一日摂取量調査を全国12機関において共同で行い, 当所で担当したプロピオン酸及びアンモニアの分析について以下のような結果を得た。

1. プロピオン酸はすべての地域及び食品群から検出され, 4群, 6群, 2群の順で含有量が高かった。
2. 地域別ではプロピオン酸は, 2群において西部が東部, 中部より若干含有量が高く, 6群において逆に東部, 中部より西部の含有量が低かった。
3. 前回の調査結果と今回の結果いずれにおいても, 2群及び4群でプロピオン酸の含有量が高かった。
4. プロピオン酸の一日摂取量は, 今回の方が前回よりも若干高くなっていたが, 食品群別摂取量で比較すると各群で差が大きかった。

5. アンモニアはすべての食品群から検出され、3群、4群、7群の含有量が高かった。しかし、地域差はほとんどなかった。

6. アンモニアの摂取量は1群、3群、4群の順で高く、この3群で全体の80%を占めていた。

7. アンモニアの摂取量の平均値は前回の調査結果より若干少なくなっていた。

8. 今回の調査結果で得られたアンモニアは大部分が食品由来と考えられた。

なお、本調査研究は厚生省の厚生科学研究「食品添加物の一日摂取量に関する調査」の一部として実施したものである。

V 参考文献

- 1) 厚生省生活衛生局(1989)食品衛生検査指針(食品中の食品添加物分析法), pp. 33-35.
- 2) 外海泰秀, 伊藤誉志男, 原田基夫(1984)食衛誌, 25: 41-46.
- 3) 厚生省生活衛生局食品化学課(1990)厚生省食品化学レポートシリーズNo. 53, 181pp.
- 4) 城照雄, 伊藤誉志男, 義平邦利, 藤井正美, 谷村顕雄(1992)食品中の食品添加物分析法解説書. 講談社, pp. 57-62.
- 5) 城照雄, 伊藤誉志男, 義平邦利, 藤井正美, 谷村顕雄(1992)食品中の食品添加物分析法解説書. 講談社, pp. 558-565.