

マーケットバスケット方式による食品中の 品質保持剤（プロピレングリコール）の一日摂取量調査

内山亜喜子・古賀梓美・小嶋慎太郎

福岡市保健環境研究所保健科学課

Study of Daily Intake of Propylene Glycol by Market Basket Method

Akiko UCHIYAMA, Azumi KOGA and Shintaro KOJIMA

Health Science Division, Fukuoka City Institute for Hygiene and the Environment

要約

マーケットバスケット方式を用いて、福岡市民が食事によって一日に摂取する品質保持剤（プロピレングリコール）についての実態調査を行った。調査試料は、国民栄養調査結果を参考に、福岡市内の食品販売店等で購入した加工食品327品目を8つの食品群に分類し用いた喫食量をもとに群毎に試料を混合・調製し、メタノールで抽出処理を行った後、ガスクロマトグラフで測定した。その結果、1群、2群および5～8群からプロピレングリコールを検出し、喫食量から算出した一人あたりのプロピレングリコール一日摂取量は13.7 mgであり、一日許容摂取量の1.09%と安全性に問題ない量であった。

Key Words : マーケットバスケット方式 market basket method, 一日摂取量 daily intake, 品質保持剤 stabilizer, プロピレングリコール propylene glycol

1 はじめに

食品添加物、農薬および動物用医薬品には、FAO/WHO 合同食品添加物専門家会議や FAO/WHO 合同残留農薬専門家会議で評価された ADI（一日許容摂取量）が設定されており、その ADI をもとに食品添加物の最大使用量や使用対象食品が個々に定められている。食品添加物は食品からの摂取によってヒトの健康に影響を与える可能性はほとんどないと考えられている。しかし、より一層の安全性を確保するためには、日常生活において食品添加物をどの程度摂取しているかを把握する必要がある。そこで、日本人が一日に摂取する食品添加物の量を調査するため、昭和 57 年から国立衛生試験所を中心としてマーケットバスケット方式を用いた調査が開始された^{1, 2)}。平成 14 度からは、国立医薬品食品衛生研究所および全国 6 地方衛生研究所によって継続して実施されている。その報告の中で、食品からの摂取量が多く、また ADI 比も高い食品添加物の一つとしてプロピレングリコールが挙げられている²⁾。プロピレングリコールは食品の保湿・保

水の目的からめん類やいかくん製品等の品質保持剤として使用されるほか、保存料や着色料等といった他の食品添加物の溶剤としても広く使用されている³⁾。

そこで本所でも、福岡市民の「食の安全・安心」を確保するため、マーケットバスケット方式を用い、市民が食事から摂取するプロピレングリコールについて独自に実態調査を行ったので報告する。

2 試験方法

2.1 試料の調製

平成 13～15 年度国民栄養調査を参考に、平成 20 年 2 月に福岡市内の食品販売店等で購入した加工食品 327 品目を 8 つの食品群に分類した。それらの食品をそれぞれ均質化した後、食品群毎に喫食量比に従って採取し、ミキサーで混合した。なお、2～7 群については採取量と等量の蒸留水を加えた。各食品群の食品分類、食品数、購入品目数および一日喫食量を表 1 に示す。プロピレング

リコール使用の表示がある食品はなかったため、個別分析は実施しなかった。

表1 食品群の分類および一日喫食量

群番号	食品分類	食品数	購入品目数	一日喫食量(g)
1群	調味嗜好飲料	41	75	511.7
2群	穀類	37	47	107.0
3群	いも類, 豆類, 種実類	26	28	86.1
4群	魚介類, 肉類, 卵類	33	51	57.6
5群	油脂類, 乳類	21	37	44.5
6群	砂糖類, 菓子類	27	49	17.9
7群	果実類, 野菜類, 海藻類	29	33	26.6
8群	特定保健用食品	3	7	3.9
合計		217	327	855.1

2.2 試薬

プロピレングリコール：特級，和光純薬工業（株）製を用いた。

標準原液：プロピレングリコールを 1000 µg/mL となるようにメタノールで調製した。

標準溶液：標準原液をメタノールで適宜希釈した。

その他試薬：特級試薬を使用した。

2.3 装置および測定条件

装置はガスクロマトグラフ（Agilent 社製 7890A シリーズ）を用いた。

定量用測定条件を表 2，確認用測定条件を表 3 に示す。

表2 GC 条件（定量用測定条件）

カラム	J&W DB-WAX (0.25 mm i.d. × 30 m, 膜厚 0.25 µm)
注入口温度	200
検出器温度	250
カラム温度	<1~5 群, 7 群, 8 群> 55 (1 min) 15 /min 180 (2 min) <6 群> 55 (1 min) 20 /min 140 (0 min) 10 /min 180 (0 min)
ポストラン	220 (5 min)
キャリアーガス	He 1 mL/min
試料注入法	パルスドスプリットレス 1 µL
検出器	FID

表3 GC 条件（確認用測定条件）

カラム	J&W DB-FFAP (0.25 mm i.d. × 30 m, 膜厚 0.25 µm)
注入口温度	200
検出器温度	250
カラム温度	55 (1 min) 20 /min 140 (0 min) 10 /min 180 (0 min)
ポストラン	220 (5 min)
キャリアーガス	He 1 mL/min
試料注入法	パルスドスプリットレス 1 µL
検出器	FID

2.4 抽出方法

衛生試験法⁴⁾に準じて、混合試料 10 g (2 群~7 群は試料調製時に等量の水を混合したため 20 g) にメタノール 20~30 mL を加えて 15 分振とうし、2 時間静置した。遠心分離 (3000 rpm, 10 min) した後、上清を No.5A ろ紙でろ過した。残渣にメタノールを加えて攪拌、遠心分離した後、上清をろ紙でろ過して最初の上清に加えた。同操作を 2 回繰り返して、上清をメタノールで 100 mL に定容した。無水硫酸ナトリウムおよびメンブランフィルター (0.20 µm) を用いて脱水ろ過し、試験溶液とした。なお、5 群および 6 群は油脂を多量に含んでいたため冷凍遠心分離 (-5℃, 3000 rpm, 10 min) とし、冷却した器具を用いて上清をろ紙でろ過した。

2.5 定量試験

絶対検量線法を用い、標準溶液のピーク面積から作成した検量線により、試験溶液中のプロピレングリコール濃度を求めた。

2.6 確認試験

定量用とは性質が異なるカラムおよび GC 測定条件を用い、全群において定性試験を行った。

3 結果および考察

3.1 抽出条件の検討

食品衛生検査指針⁵⁾では、一般食品からの抽出には還流加熱操作を行うメタノール抽出法、めん類にはより簡便なメタノール抽出法が用いられている。一方、衛生試験法では、振とうのみの簡便なメタノール抽出法が用いられている。

食品衛生検査指針および衛生試験法に準じて予備試験を行ったところ、回収率は食品衛生検査指針で 95.3~

98.6% ,衛生試験法で 103~111%と大きな差はなかったため、操作が簡便な衛生試験法に準じて抽出を行うこととした。

3.2 定量下限および検量線の直線性

標準溶液 1.0 µg/mL (ADI=25 mg/kg/day の 0.04%相当) において S/N 10 であることを確認し、試験溶液の定量下限を 1.0 µg/mL と設定した。また、1.0~20 µg/mL の濃度範囲での各ピーク面積と濃度との相関係数は 0.999 以上と良好な直線性を示した。

3.3 測定条件の検討

一般的にプロピレングリコールの分析で使用される 2 種類のカラム WAX および FFAP を用い、定量および確認を行うための GC 条件について検討を行った。

森谷らの報告⁶⁾を参考に測定条件を検討した。まず、WAX を用いて検討したところ、ほぼ全ての食品群において妨害ピークとの分離および回収率は良好であった。しかし、6 群のみ妨害ピークとの分離が不十分であったため、カラム温度の昇温条件を検討した。目的ピーク検出前後の昇温を緩やかにすることで妨害ピークとの分離が良好となり、6 群のみカラム温度の昇温条件が異なる個別測定条件を設定することとした。また、6 群用個別測定条件を用いて他の食品群を測定したところ、ほぼ全ての食品群において妨害ピークとの分離が不十分であった。つぎに、FFAP を用いて検討したところ、全ての食品群において妨害ピークとの分離は良好であったが回収率が若干悪かった。

以上の結果から、定量用測定条件は表 2 のとおり WAX を用いた 2 種類の GC 条件とした。また、確認用測定条件は表 3 のとおり FFAP を用いた GC 条件とした。

3.4 添加回収試験

1~7 群には定量下限値の 10 倍、試料含有量が多い 8 群は試料由来含有量の 2 倍となるように標準品を添加し、回収実験 (n=3) を行い、その平均値を回収率とした。結果を表 4 に示す。回収率は 77.4~96.2% の範囲であった。

3.5 摂取量調査結果

定量試験の結果、1 群、2 群および 5~8 群からプロピレングリコールを検出した。3 群および 4 群は定量下限値未満であった。食品群別含有量を表 5 に示す。また、確認試験の結果、全ての食品群においてプロピレングリコールのピークを確認した。

食品群別含有量から算出した食品群別一日摂取量は、7 群が最も少なく 0.4 mg、1 群が最も多く 8.1 mg であった。食品群別一日摂取量を表 6 に示す。

プロピレングリコールの ADI は 25 mg/kg/day である。ADI から計算した一人あたり (体重 50 kg とした場合) の ADI は 1250 mg/day である。今回、マーケットバスケット方式による実態調査から求めたプロピレングリコール一日摂取量は表 6 に示すように 13.7 mg であり、ADI の 1.09% と安全性に問題ない量であった。

表4 添加回収試験結果 (%)

									(n=3)
添加物名	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	
プロピレングリコール	94.0	82.8	89.4	83.0	77.4	87.1	77.8	96.2	

表5 食品群別含有量 (µg/g)

									(n=3)
添加物名	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	
プロピレングリコール	15.9	18.2	N.D.	N.D.	26.0	59.2	15.5	247.7	

N.D.: 定量下限値未満

表6 食品群別一日摂取量 (mg)

添加物名	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	総摂取量
プロピレングリコール	8.1	1.9	N.D.	N.D.	1.2	1.1	0.4	1.0	13.7

N.D.: 定量下限値未満

4 まとめ

マーケットバスケット方式を用い、福岡市民が食事によって一日に摂取するプロピレングリコールについて独自に実態調査を行った。一人あたりのプロピレングリコール一日摂取量は13.7mgであり、ADIの1.09%と安全性に問題ない量であった。

文献

- 1)食品添加物研究会編:あなたが食べている食品添加物 - 食品添加物一日摂取量の実態と傾向 - (本編), 日本食品添加物協会, 2~5, 2001
- 2)伊藤誉志男: Foods and Food Ingredients Journal of Japan, Vol.212, No10, 2007 別冊
- 3)谷村顕雄ら監修: 第8版食品添加物公定書解説書, (株) 廣川書店, D-1473~1479, 平成19年12月10日
- 4)日本薬学会編: 衛生試験法・注解 2005, 312~314
- 5)厚生労働省監修: 食品衛生検査指針 - 食品添加物編 - , (社) 日本食品衛生検査協会, 519~524, 2003
- 6)森谷昌幸, 他: 食品添加物一日摂取量調査 - 加工食品中の品質保持剤(プロピレングリコール)について - , 仙台市衛生研究所報, 第34号, 平成16年度