

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 —2019年度—*

當間一晃・古謝あゆ子

Studies on Daily Intake of Glycyrrhizinic acid by Market Basket Method (FY2019)*

Kazuki TOUMA, and Ayuko KOJA

要旨: 国立医薬品食品衛生研究所及び8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、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0.401 mg/人/dayとなった。

Abstract: Daily intakes of licorice extract, the major components of glycyrrhizinic 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 eight local institutes of public health in fiscal year 2019. The market basket samples were analyzed and the daily intakes of glycyrrhizinic acid were estimated as 0.401 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, Glycyrrhizinic acid, 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(以下、「国立衛研」という。)および6つの地方衛生研究所が参加して再開された。2006年度に食品リストが改められ特定保健食品が追加されたが、2010年度に廃止され、現行の食品リストになった。2019年度は、国立衛研と8つの地方衛生研究所が参加して行われた。

2019年度は成人(20歳以上)を対象として、一日摂取量調査を実施し、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、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成人(20歳以上)の一日摂取量について、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

国立衛研(東京)、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、千葉県衛生研究所、香川県環境保健研究センター、広島県立総合技術研究所保健環境センター、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。

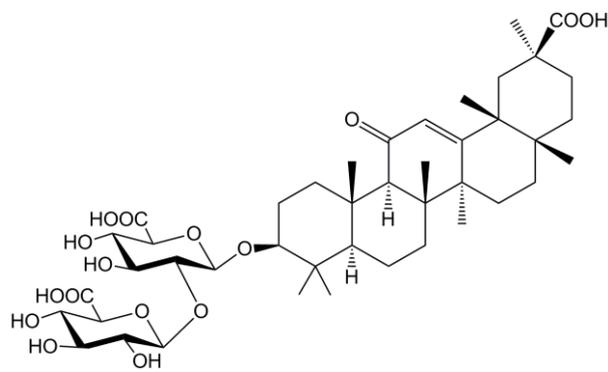


図1. グリチルリチン酸の構造式。

* 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。

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189、製品の総数は286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、東京都健康安全研究センター、千葉県衛生研究所と広島県立総合技術研究所保健環境センターを除く6機関が地元で購入し、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。

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。

表1. 調査に用いた食品群の分類及び一日喫食量。

群番号	食品群名	食品数	品目数	一日喫食量(g)
1群	調味嗜好飲料	41	63	706.4
2群	穀類	27	40	120.3
3群	いも類	7	13	49.8
	豆類	16	18	74.6
	種実類	5	5	2.6
4群	魚介類	12	18	29.3
	肉類	4	8	11.6
	卵類	1	3	2.5
5群	油脂	9	11	13.4
	乳類	14	26	48.5
6群	砂糖類	4	4	2.5
	菓子類	23	51	27.4
7群	果実類	3	3	0.9
	野菜類	20	20	23.1
	海藻類	3	3	0.2
合計		189	286	1113.1

3. 試薬

(1) 標準品

グリチルリチン酸の標準品として、富士フィルム和光純薬工業株式会社製 高速液体クロマトグラフ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、測定機器に供す前の試験液のろ過には THOMSON 製フィルターバイアル PVDF 0.45 μm を用いた。固相抽出に用いた有機溶媒、蒸留水および HPLC の移動相には富士フィルム和光純薬株式会社製 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を使用した。

4. 分析法

本調査は 2015 年度の仲間らの報告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。

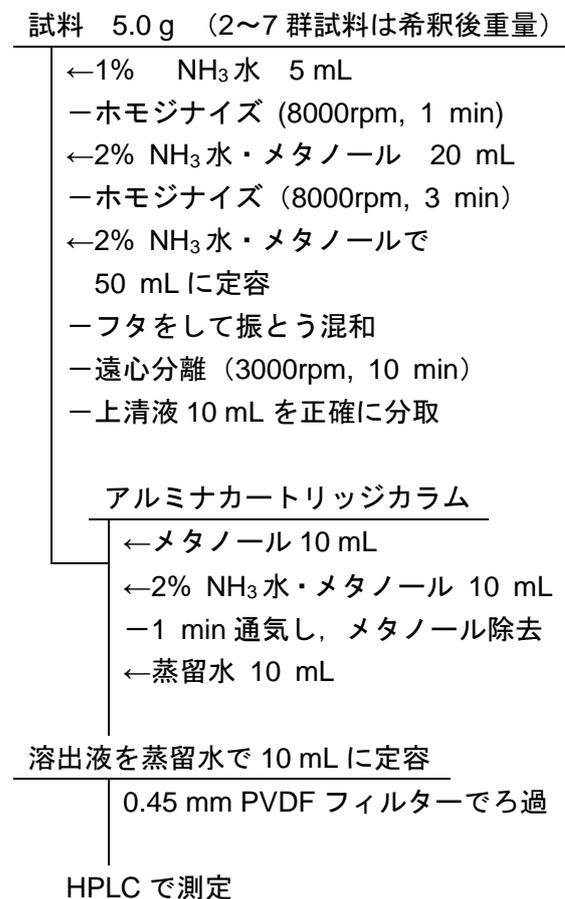


図2. グリチルリチン酸分析フローチャート。

表 2. HPLC 条件.

機種	SHIMADZU NexeraX2 series SPD-M30A
カラム	Wakosil-II 5C18 HG ($\phi 4.6 \times 150$ mm)
カラム温度	40 °C
移動相	アセトニトリル : メタノール : 2% 酢酸 12 : 5 : 15
流速	1 mL/min, 測定波長 : 254 nm, 注入量 : 10 μ L

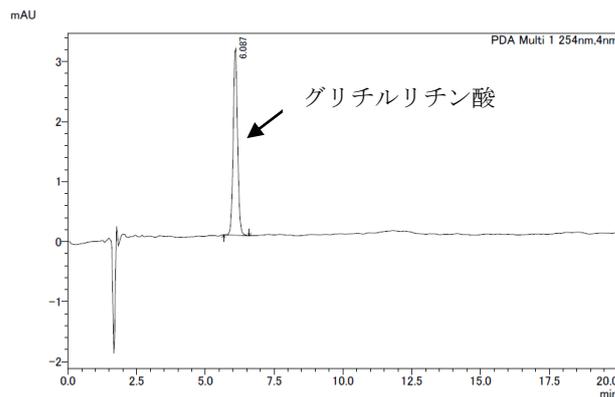


図 3. グリチルリチン酸標準液 5.0 μ g/mL の HPLC クロマトグラム.

Ⅲ 結果および考察

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, 80 μ g/g になるようにグリチルリチン酸を添加し, 添加回収試験を行った. 香川 7 群試料にグリチルリチン酸を 80 μ g/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 0.6 μ g/g, 定量下限 3 μ g/g となり, 2 - 7 群では検出下限 1.2 μ g/g, 定量下限 6 μ g/g となった.

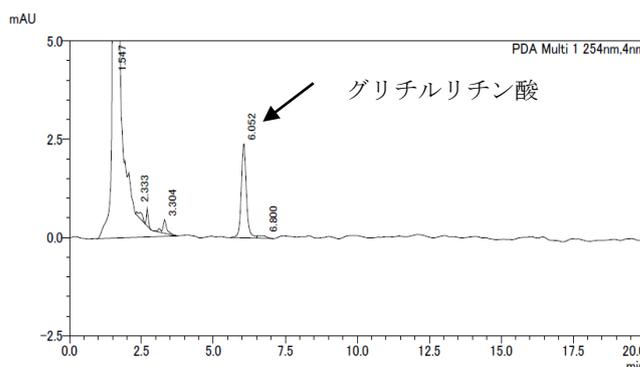


図 4. 香川 7 群 80 μ g/g 添加溶液の HPLC クロマトグラム.

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	96.6%	86.5%	90.5%	81.4%	75.4%	81.6%	102.5%

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. 長崎 1 群から最も多く検出され, 3.40 μ g/g であった. また長崎の 3 群と 7 群から痕跡量 (定量下限値未満) が検出され, 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一日総摂取量を表 5 に示した. 摂取量の平均値は, 20 歳以上で 0.401 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 0.401mg/人/day (100%) となった. 機関別の総摂取量では, 長崎が 2.40mg/人/day となった.

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 12 検体を分析したところ, 9 検体から 7.01 μ g/g - 72.8 μ g/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 群の液体だし (66.4 μ g/g), 同じく長崎 1 群のしょうゆ (72.8 μ g/g) などがあった. 東京 4 群の塩魚もしくは干し魚は, 検出下限値未満で, 長崎 3 群のいも・加工品及び沖縄 7 群の野沢菜 (塩漬) は, 痕跡量が検出された.

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 (1群 0.6 µg/g, 2-7群 1.2 µg/g) 未満, tr: 痕跡量 (µg/g)

機関名	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	N.D.	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.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
長崎	3.40	N.D.	tr	N.D.	N.D.	N.D.	tr
沖縄	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
平均	0.567	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000

表 5. 各機関別・群別グリチルリチン酸一日総摂取量. (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	0
長崎	2.40	0	0	0	0	0	0	2.40
沖縄	0	0	0	0	0	0	0	0
平均	0.401	0	0	0	0	0	0	0.401

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
長崎	1群	ソース	11.8
長崎	1群	しょうゆ	66.4
長崎	1群	液体だし	72.8
沖縄	1群	ソース	37.1
札幌	3群	さつまいも・加工品	7.01
長崎	3群	いも・加工品	tr
沖縄	3群	味噌	19.0
東京	4群	塩魚もしくは干し魚	N.D.
仙台	7群	塩昆布	45.3
長崎	7群	干し大根(たくあん漬け)	10.6
沖縄	7群	野沢菜(塩漬)	tr
沖縄	7群	塩昆布	41.4

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 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	-	-	0.108	-	-	-	-
仙台	-	-	-	-	-	-	0.0853
東京	-	-	-	N.D.	-	-	-
香川	-	-	-	-	-	-	-
長崎	2.35	-	0.000	-	-	-	1.54
沖縄	0.103	-	0.603	-	-	-	0.0779
平均	0.409	0.000	0.118	0.000	0.000	0.000	0.284

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一日総摂取量.

N.D. : 検出下限未満, - : 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 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	総摂取量
札幌	-	-	0.0138	-	-	-	-	0.0138
仙台	-	-	-	-	-	-	0.00206	0.00206
東京	-	-	-	N.D.	-	-	-	0.000
香川	-	-	-	-	-	-	-	0.000
長崎	1.66	-	0.000	-	-	-	0.0373	1.70
沖縄	0.0730	-	0.0765	-	-	-	0.00188	0.151
平均	0.289	0.000	0.0150	0.000	0.000	0.000	0.00687	0.311

4. 表示群の機関別・食品群別含有量及び一日摂取量

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 0.118 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一日総摂取量を表 8 に示した。一日総摂取量の平均値は 0.311mg/人/day となり、群別試料から求めた総摂取量 0.401mg/人/day より低い値となった。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 0.289 mg/人/day で、全体の 93%を占めており、3 群が 0.0150 mg/人/day で、全体の 5%となり、7 群が 0.00687 mg/人/day で、全体の 2%となった。また、機関別に見ると、長崎、沖縄、札幌、仙台的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 2 群、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より低い結果を示した。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。

5. 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^{2,3,4,5)}(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、それ以降の年は概ね同じような値で推移しているといえる。

表9. グリチルリチン酸の一日摂取量の推移.

年度	(mg/人/day)	
	群別試料	個別食品
2002	0.475	0.595
2006	0.264	0.267
2011	0.311	0.408
2015	0.368	0.407
2019	0.401	0.311

6. 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一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) はヒト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⁶⁾。今回の結果では群別のグリチルリチン酸の20歳以上の一日摂取量が1番多い長崎県で 2.40 mg/人/day、平均で 0.401 mg/人/day 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。

IV 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国内の成人 (20 歳以上) の一日摂取量の平均は食品群別試料から計算した値で 0.401mg、個別食品から求めた値で 0.311mg となり、群別試料、個別食品ともに1群からの寄与が最も大きく、それぞれ 0.401mg (100%)、0.289 mg (93%) を占めている。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。

V 参考文献

- 1) Hiroaki Hayashi, Hiroshi Sudo (2009) Economic importance of licorice. *Plant Biotechnology*, Vol. 26, No. 1 : 101-104.
- 2) 仲間幸俊・古謝あゆ子・高嶺朝典・佐久川さつき・恵飛須則明 (2016) 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ー2015 年度ー. 沖縄県衛生環境研究所報, 50 : 82-87.
- 3) 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ー2011 年度ー. 沖縄県衛生環境研究所報, 46 : 47-51.
- 4) 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.
- 5) 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.
- 6) 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