

## プロピレングリコールの1日摂取量について

### Actual Daily Intake of Propylene Glycol

小塚信一郎 吉田 俊一 西野 茂幸 山口 敏幸  
平田 睦子 花井 潤師 白石由美子 青木 襄  
高杉 信男

Shin-ichiro Kozuka, Shun-ichi Yoshida, Shigeyuki Nishino,  
Toshiyuki Yamaguchi, Mutsuko Hirata, Junji Hanai,  
Yumiko Shiroishi, Minoru Aoki and Nobuo Takasugi

昭和57年度厚生省食品添加物摂取量調査研究班（班長：慶田雅洋・前国立衛生試験所大阪支所食品部長）の一員として、厚生省食品化学課方式（改良マーケット・バスケット方式）に基づいて調製された全国10都市の試料中のプロピレングリコールを分析し、その1人1日摂取量を求めた。

検出率は43%で、穀類から最高750 ppmが検出され、それからの摂取率が70%以上を占めたが、1人1日平均摂取量は43mgで、日本人の平均体重を50kgとした場合の1日摂取許容量（ADI）に対する割合は、わずか3.4%にすぎなかった。

#### 1. 緒 言

食品添加物の安全性評価には、その添加物の毒性と生体側の脆弱性の検討に加え、食品からの摂取量を知ることが必要不可欠である<sup>1)</sup>。現在、我々は通常食品添加物を1日に60~70種類摂取しているといわれている<sup>2)</sup>が、それらの全国的規模での1日摂取量報告<sup>3)~5)</sup>は非常に少ない。

プロピレングリコール（以下「PG」）は、湿潤性や溶解性などに優れた特性をもっているために、生めん、ぎょうざ等の皮類及びいかくん製品の品質保持剤や着色料、着香料、保存料などの各種添加物の溶剤として広く用いられているが、生体内では酸化されて乳酸を生成し、正常な代謝経路を経る<sup>6)</sup>ことから、比較的 안전한食品添加物とみなされ、FAO/WHO合同食品添加物専門委員会はそのADIを0~25 mg/kg・体重に設定している<sup>7)</sup>。

今回著者らは昭和57年度厚生省食品添加物摂取量調査研究班（以下「研究班」）の一員として、

全国10都市の試料中のPG含有量を測定し、その1日摂取量を求めたので報告する。

#### 2. 方 法

##### 2-1 試 料

昭和57年11月から12月にかけて、厚生省食品化学課方式<sup>8)</sup>の食品添加物含有食品喫食量表（国民栄養調査、家計調査及び食品生産統計から、食品別1人1日平均喫食量を算出したもの）に基づき、研究班の10機関（表1）がそれぞれの地元のスーパー（大手、中堅、中小）、小売店からまとめて180種の食品を購入し、秤取、8群（表2）分類後、未調理のまま各群ごとに0~3.5倍のホモジナイズしたものを試料とした。

なお、他機関が調製した試料は冷凍状態で送付を受け、一括冷凍保存し58年1月に再びホモジナイズして分析に供した。

表1 研究機関名及び食品購入先

研究機関 (都市名)	食品購入先
札幌市衛生研究所 (札幌市)	地元小売店
仙台市衛生試験所 (仙台市)	中小スーパー
国立衛生試験所 (東京都)	中堅スーパー
東京都衛生研究所・多摩支所 (立川市)	大手スーパー
山梨県衛生公害研究所 (甲府市)	地元小売店
長野県衛生研究所 (長野市)	地元小売店
国立衛生試験所・大阪支所 (大阪市)	中堅スーパー
和歌山県衛生研究所 (和歌山市)	中小スーパー
島根県衛生公害研究所 (松江市)	地元小売店
北九州市環境衛生研究所 (北九州市)	中小スーパー

表2 食品群別の分類名, 種類及び喫食量

群	加工食品大分類	種類	喫食数(9)
1	調味嗜好飲料	29	350.0
2	穀類	16	125.0
3	いも類, 豆類	7	82.5
4	魚介類, 肉類	32	60.0
5	油脂類, 乳類	12	62.5
6	砂糖類, 菓子類	19	49.5
7	果実類, 野菜類, 海藻類	19	37.5
8	加工食品, 推定食品, 少量食品, その他	46	27.6
	合計	180	794.6

### 2-2 試薬及び装置

- (1) PG: 試薬特級 (関東化学(株)製)
- (2) メタノール, クロロホルム: 試薬特級 (和光純薬(株)製)
- (3) エキストレルートカラム: エキストレルート (メルク社製) 11g をガラスカラム (内径20mm, 高さ300mm) に入れ, 2~3回タッピングしたもの
- (4) ホモジナイザー: ポリトロン® (KINEMA-TICA GMBH社製)
- (5) ガスクロマトグラフ (以下「GC」): 日立163形, FID付き

測定条件は, 公定法<sup>9)</sup> 及び山田ら<sup>10)</sup> に従った。

### 2-3 分析方法

おおむね公定法<sup>9)</sup> に準じたが, 定量下限を下げるため若干改良を加え, つぎのように行った。すなわち, 各試料からそれぞれ2検体5~10gずつを採り, 50~100mlのメタノールで2回ホモジナイズし, その抽出液をK-D濃縮器で10~20mlに濃縮して試験溶液とした。ただし, 1群の試料は, その10gにメタノールを加え20mlとして試験溶液とし, 2群と6群の試料の場合は, 濃縮液をエキストレルートカラムに注ぎ, クロロホルム50mlでPGを溶出後減圧濃縮し, メタノールを加え10~20mlとして試験溶液とした。

ついで, この試験溶液2μlをGCに注入し, あらかじめ作成した絶対検量線から濃度を求め, 2検体の平均値をPG含有量とした。

なお, 当所で調製した試料にPGを100ppm添加して回収実験を行った結果 (表3), 平均回収率80~100%, 変動係数7.7%以下と良好な結果が得られた。

表3 PGの添加回収率

食品群番号	平均回収率 (%)	変動係数 (%)
1	87	1.8
2	93	7.7
3	99	2.2
4	94	7.0
5	100	5.4
6	84	2.3
7	92	5.4
8	80	4.6

試料: 当所調製のもの  
 添加量: 100ppm  
 実験回数: 3回

### 3. 結果及び考察

#### 3-1 含有量について

食品群別のPG含有量分布は図1のとおりである(定量限界20ppm)。

すなわち、全80試料中34試料(43%)からPGが検出された。総体的には、おおむね、5、6群の全試料から20~200ppm、また2群の6試料から100~750ppmが検出されたが、1、4、7群では2~3試料からの30~50ppmにとどまり、8群では1例のみで、3群はすべて不検出であった。

個別では、1群は、10試料中わずか2試料から検出されたにすぎず、平均含有量(以下「平均値」)は8.2ppmであった。この検出試料にはいずれも同じメーカー製のしょう油が含まれており、また、同じ種類のパラオキシ安息香酸エステル類(以下「エ

ステル類」)が検出され、更に、PGが難溶性エステル類の溶剤として広く用いられており、その際に、しょう油の保存性を高める相乗効果ももたらす<sup>11)</sup>ことから、1群の由来食品は特定のしょう油とほぼ断定できる。

2群からは、最高の750ppmが検出された。平均値は、244ppmで他群のそれに比べ3~40倍(3群をのぞく)の較差を示したが、これは由来食品と推定される生めんに対する使用基準が他のそれよりも高いためと考えられる。

3群からの検出は皆無であったが、これはいも類や豆類の加工品にPGを使用した例が見あたらないことから妥当と推察される。

4群では、3試料から27~30ppm検出され、平均値は8.5ppmであった。由来食品として魚肉ソー

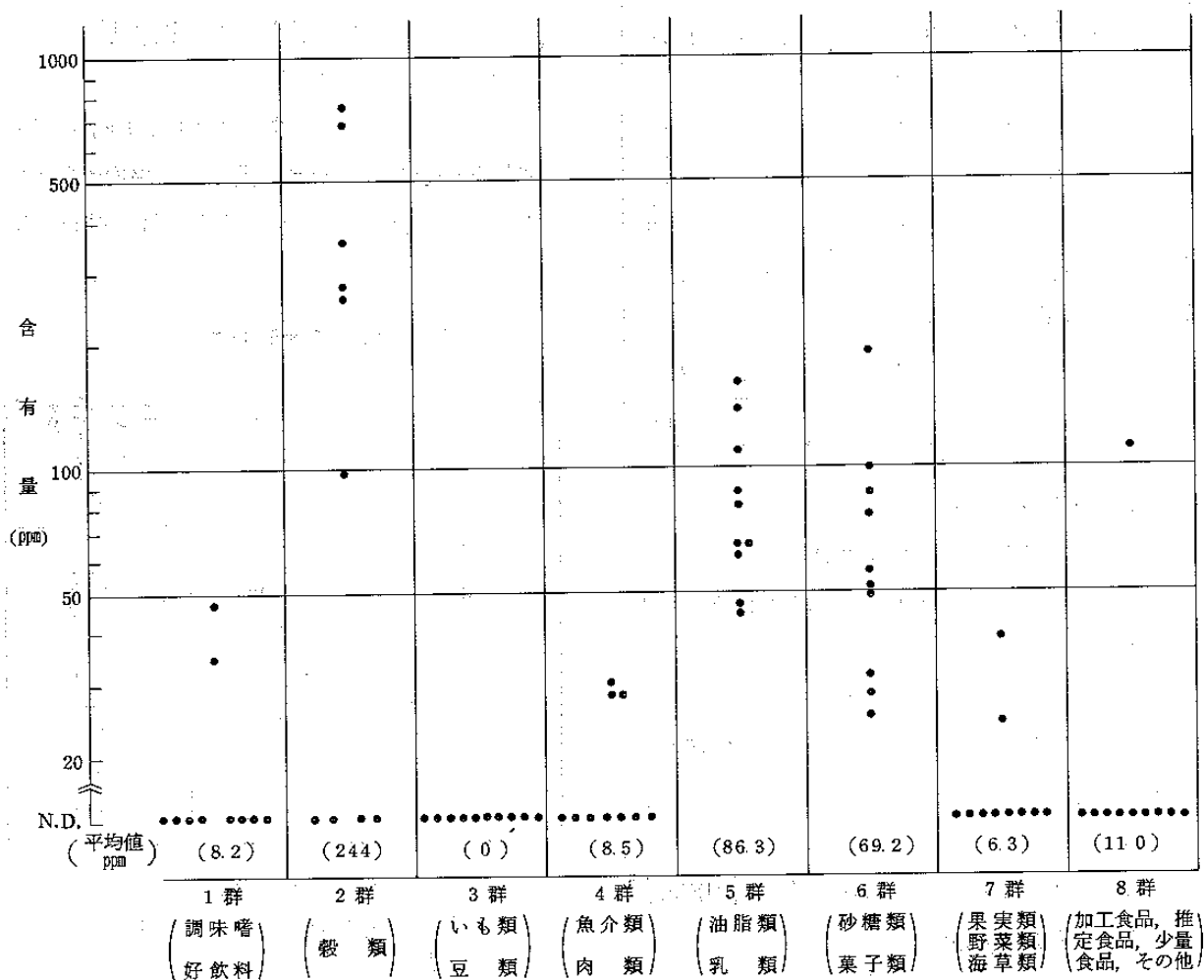


図1 食品群別のPG含有量分布

セージ、なると巻やいかくんせいなどが推定されるが、これはPGが着色料の溶剤特に魚肉ねり製品の着色の際に使用される<sup>12)</sup>ことや後者の品質保持剤としての使用によるものと考えられる。

5群と6群では、その全試料からそれぞれ45~160ppm(平均値86.3ppm)及び25~190ppm(平均値69.2ppm)が検出された。由来食品は5群がアイスクリーム、アイスマルクなど、6群ではキャラメル、ケーキ、ゼリーなどが推定されるが、これはPGが着色料、着香料、保存料などの添加物の溶剤として使用されている<sup>10), 13), 14)</sup>ためと考えられる。

7群では、2試料からそれぞれ24ppm, 39ppm(平均値6.3ppm)検出されたにすぎなかった。由来食品は着色料や保存料の使用表示のある佃煮や果実缶詰などが推定されるが、含有量を調査した報告はない。したがって、今後これらの加工食品について使用実態調査を行う必

要があると考えられる。

8群では、1試料から110ppm検出されたが、これはPGがぎょうざの皮に使用されたためと考えられる。

### 3-2 摂取量について

食品群別・都市別のPG1日摂取量(以下「摂取量」)は表4の、また、購入先別の摂取量は表5のとおりである。

#### (1) 食品群別・都市別及び購入先別摂取量

摂取量平均は43mgであった。各群からの摂取量平均と摂取率平均は2群が30mg, 70.4%で大半を占め、5群, 5.4mg, 12.7%, 6群, 3.3mg, 7.7%及び1群, 2.8mg, 6.6%で、この四群が摂取量のほとんどを占めていた。また、都市別摂取量は、北九州市が最高の115mg, ついで和歌山市が102mgで、最低は長野市12mg, 立川市11mg, 大阪市10mgであり、最多・最少比は11倍であった。これは2群の摂取量が0~94mgとその差が極めて大きいため

表4 食品群別・都市別のPG1日摂取量

単位: mg

群	加工食品大分類	都市名										摂取量平均	摂取率平均(%)
		札幌市	仙台市	東京都	立川市	甲府市	長野市	大阪市	和歌山市	松江市	北九州市		
1	調味嗜好飲料	0	0	0	0	0	0	0	0	16	12	2.8	6.6
2	穀類	12	45	35	0	32	0	0	86	0	94	30	70.4
3	いも類, 豆類	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
4	魚介類, 肉類	2	0	0	2	0	0	0	2	0	0	0.6	1.4
5	油脂類, 乳類	4	4	10	5	3	7	9	5	3	4	5.4	12.7
6	砂糖類, 菓子類	2	3	1	4	4	5	1	9	2	2	3.3	7.7
7	果実類, 野菜類, 海藻類	1	0	0	0	0	0	0	0	1	0	0.2	0.5
8	加工食品, 推定食品, 少量食品, その他	0	0	0	0	0	0	0	0	0	3	0.3	0.7
1日摂取量		21	52	46	11	39	12	10	102	22	115	43	100.0

表5 購入先別のPG1日摂取量

単位: mg

購入先	摂取量	平均摂取量
大手スーパー	11	11
中堅スーパー	46, 10	28
中小スーパー	52, 102, 115	90
地元小売店	21, 39, 12, 22	24
平均		43

あり、その由来食品と推定される生めん中のPG含有の有無が摂取量に大きな影響を与えているものと考えられる。

また、購入先別の摂取量差も大きく、最高9倍であった。すなわち、中小スーパーの値が最も高く90mgで、以下中堅スーパー28mg、小売店24mgと続き、最低は大手スーパーの11mgであった。

このように都市別及び購入先別の摂取量差が大きいことは、全国的にみて生めんに対するPGの使用実態にかなりのバラツキがあることを示唆しているものと考えられる。しかしながら、PGの使用実態をより明確にするには、全国の調査網を更に広げ、かつ、地域別及び購入先別にバランス良く調査対象を選定し、摂取量調査を行う必要があることはいままでもない。

#### (2) 既調査推定値及びADIとの比較

昭和55年度の厚生省使用実態調査<sup>15)</sup>で推定された摂取量平均(339mg)と対比すると、本調査のそれは約1/8となり、日本人の平均体重を50kgとした場合のADI(1,250mg/50kg・体重)に対する割合(以下「ADI比」)も27%から3.4%に激減した。これは、前者がSelective Study of individual food<sup>16)</sup>、後者がMarket Basket Studyという調査方式の違いのほか、昭和56年に、新たにPGの使用基準が定められたことにより、その使用が減少したためと考えられる。

また、2群の由来食品と推定される生めん中のPGは、喫食の際70%がゆで汁に溶出する<sup>17)</sup>ために摂取量は約9mgとなる。したがって、実際の摂取量平均は43mgから約22mgとなり、ADI比もわずか18%にすぎない。

#### (3) 生産統計からの推定値と比較

PG生産量4,500トン<sup>18)</sup>、人口1億1千万人から摂取量平均を推定すると112mgとなり、本調査のそれは約1/3にすぎなかった。PGは、他用途への転用や、製造過程での損失が少ないとされるので、この差は品質保持剤としての季節変動(夏

季に多く、冬季に少ない傾向にある)によるものであると考えられている<sup>19)</sup>。したがって、PGの1日摂取量をより正確に把握するには夏季にも本調査を行う必要があると推察する。

## 4. 結 語

昭和57年度厚生科学研究「食品添加物の1日摂取量調査に関する研究」の一環として、厚生省食品化学課方式に基づいて、全国10都市(札幌、仙台、東京、立川、甲府、長野、大阪、和歌山、松江、北九州)において調製した試料を分析し、PGの1日摂取量を算出した。

(1) 全80試料中34試料(43%)からPGが検出された。総体的には、おおむね5、6群の全試料から20~200ppm、また、2群の6試料からは100~750ppmが検出されたが、1、4、7群では2~3試料からの30~50ppmにとどまり、8群では1例のみで、3群はすべて不検出であった。由来食品は、1群しょう油、2群生めん、4群魚肉ソーセージ、いかくんせい、5群アイスクリーム、アイスマルク、6群キャラメル、ケーキ、ゼリー、7群佃煮、果実缶詰、8群ぎょうざなどと推定される。

(2) 摂取量平均は43mgで、ADI比は3.4%であった。このうち、30mg(70.4%)は2群からの摂取であるが、この由来食品と推定される生めん中のPGは、喫食の際70%がゆで汁に溶出するため、実際の摂取量平均は約22mgとなり、ADI比もわずか18%にすぎない。

(3) 都市別摂取量は10~115mgで11倍の、また、購入先別摂取量も11~90mgで9倍と大きな較差がみられたが、これは全国的にも業態的にも、生めんに対するPGの添加率にかなりのバラツキがあることを示すものであると考えられる。

(4) PGの使用量は季節により変動すると考えられるため、年平均の摂取量を求めるには夏季と冬季の年2回の調査を行う必要があると考える。

終わりに、採取試料の食品リストを送付して頂いた本調査研究班の諸氏に深謝致します。

(この論文の概要は、昭和58年11月、第42回日本公衆衛生学会総会において発表した)

## 5. 文 献

- 1) 内山充：食衛誌，21(5)，344(1980)。
- 2) 慶田雅洋，一色賢司，伊藤誉志男，加藤丈夫，神蔵美枝子，豊田正武，深澤喜延，米田孟弘：“昭和55，56年度厚生科学研究。食品添加物の1日総摂取量調査に関する研究” P.1(1982)。
- 3) 科学技術庁資源調査会編：“食品添加物の現状と問題点” P.97~101(1969)，大蔵省印刷局。
- 4) 豊田正武，伊藤誉志男，加藤丈夫，深澤喜延，神蔵美枝子，一色賢司，慶田雅洋：栄養と食糧，35(2)，111~119(1982)。
- 5) 豊田正武，伊藤誉志男，一色賢司，加藤丈夫，神蔵美枝子，深澤喜延，米田孟弘，慶田雅洋：日本栄養・食糧学雑誌，36(2)，85~96(1983)。
- 6) Rudney, H : J. Biol.Chem., 210, 360(1954)。
- 7) WHO：“Food Additives Series”，No 5, P.491(1974)。
- 8) 厚生省食品添加物摂取量調査研究班：“昭和58年度食品添加物の1日摂取量調査に関する研究” P.1~12(1983)。
- 9) 厚生省環境衛生局食品化学課編：“食品中の食品添加物分析法” P.603~608(1982)，講談社。
- 10) 山田利治，長田幸郎，中岡正吉，伊藤和敏：食衛誌，24(3)，340~343(1983)。
- 11) プロピレングリコール技術委員会：ニューフードインダストリー，22(5)，14~23(1980)。
- 12) 石館守三監修：“第四版食品添加物公定書解説書” P.B-843~848(1979)，廣川書店。
- 13) 梶原直子，川井英雄，細貝祐太郎：日本食品工業学会誌，28(9)，471~475(1981)。
- 14) プロピレングリコール技術委員会：ニューフードインダストリー，6(11)，21(1964)。
- 15) 丹治敏英：食品衛生研究，31(8)，623~629(1981)。
- 16) 内山 充：食品衛生研究，33(6)，523(1983)。
- 17) 後藤宗彦，山崎澄子，米田孟弘，竹下忠昭：島根衛公研所報，22，132~134(1980)。
- 18) 日本食品添加物協会調べ。
- 19) 厚生省食品添加物摂取量調査研究班：文献8)のP.66~69。