

国産料理用調味料(和風だし, 洋風だし及び中華だし)中の多環芳香族炭化水素の定量

館野 つや子

(平成14年10月3日受理)

Polycyclic Aromatic Hydrocarbons resulting from the Seasoning of Cooking

(Katsuo-bushi, kombu and niboshi extract, Beef and vegetables extract, Chiken, pork, vegetable extract)

TATENO, Tsuyako

(Received on October 3, 2002)

キーワード: 多環芳香族炭化水素, 調味料, 食品

Key words: polycyclic aromatic hydrocarbons, seasoning, food

緒言

著者らは, 30年来, 日本食品中の(穀類^{1), 2), 魚介類^{3)~7)}, 野菜類及^{8), 9)}び乳製品^{10), 11)}, 果物類¹²⁾及び油脂類¹³⁾等)のBenzo(a)pyreneを始めとする, 数十種類のPolycyclic Aromatic Hydrocarbons(以下PAHと略す)の分析方法の検討及び定量を行ってきた。}

近年, 食の洋風化にともない, 多種類の調味成分(乳糖, 豚エキス, 野菜エキス, デキストリン, 甘味料及び香辛料等)が混合され, 料理用調味料として, 市販され, 料理及びスープ類に広く用いられている。

この料理用調味料中のPAHの定量についての報告はほとんど見られない。

そこで, 今回は, 上記国産の料理用調味料(和風だし, 洋風だし及び中華だし)中のPAHの定量を行った。

分析方法

1. 試料

試料は平成12年2月~12年11月東京都内で市販されていた, 国産料理用調味料の和風だし7種類, 洋風だし7種類及び中華だし7種類合計21種類を用いた。

2. 試薬

n-ヘキサン及びジエチルエーテル等は, 液体クロマト用及び残留農薬用, 和光純薬工業製その他の試薬は前報⁷⁾に従った。

3. 装置及び器具

ソックスレー抽出管及びカラム管等は, 前報⁷⁾に従った。

4. 試料の調整

各種料理用調味料は, よく粉碎し, その15gを用いた。

5. 抽出及びPAH分析

試料は円筒ろ紙に入れ, 次にソックスレー抽出管に入れ, n-ヘキサン100mlを加え, 前報⁷⁾に従い, ソックスレー抽出, シリカゲルカラムクロマトグラフィー, 1%含水アルミナカラムクロマトグラフィー及び蛍光測定を実施した。

以上21試料は, 各1試料につき2回ずつ採取し, それぞれ分析を行った。

6. 添加回収実験

添加回収実験は, Benzo(a)pyreneを始めとする多くの食品から検出している10種類のPAHについて, 1種類ずつ料理用調味料15gに加えた。すなわち, 同一容器中の料理用調味料を試料とし, 円筒ろ紙に15gずつを入れ, 次にソックスレー管に入れ, 各PAH標準液(10.00~106.00ng)をそれぞれ1.0~2.0mlずつ添加した標準添

表1 料理用調味料のPAH添加回収率

| P A H | 試料(g) | 添加量(ng) | 検出量(ng) | 回収率(%) |
|------------------------|-------|---------|---------|--------|
| Benzo(a)anthracene | 15 | 70.05 | 79.67 | 113 |
| Fluoranthene | 15 | 68.50 | 65.14 | 95 |
| Benzo(a)pyrene | 15 | 50.00 | 44.12 | 88 |
| Anthracene | 15 | 72.50 | 61.25 | 78 |
| Dibenz(a, h)anthracene | 15 | 21.80 | 18.48 | 84 |
| 3-Methylcholanthrene | 15 | 48.00 | 52.08 | 109 |
| Benzo(e)pyrene | 15 | 106.00 | 120.00 | 113 |
| Coronene | 15 | 55.00 | 50.10 | 91 |
| Perylene | 15 | 10.00 | 8.00 | 80 |
| Dibenz(a, c)anthracene | 15 | 51.00 | 50.66 | 99 |
| Benzo(k)fluoranthene | 15 | 4.85 | 4.95 | 102 |

加試料及び対象としての標準無添加試料についても標準添加試料と同一容器中の料理用調味料を上記同様に分析を行った。

結果及び考察

1. 添加回収実験結果を表1に示した。

回収率は、78～113%の結果が得られた。

2. 国産料理用調味料中のPAH分析結果

1) 料理用調味料の和風だし

試料7種類、1試料につき2回ずつ合計14回分析を行った際の、PAH20種類の検出量及び平均値を表2に示した。各PAH平均値が5.00ng/g以上検出したものは、Fluoranthene 18.05ng/g、Coronene 11.90ng/g、Anthracene 8.03ng/g及びBenzo(a)anthracene 7.04ng/gであった。また、PAHの中で発がん性の高いBenzo(a)pyreneは1.22ng/gであった。

2) 料理用調味料中の洋風だし試料7種類、1試料につき2回ずつ合計14回分析を行った際の、PAH20種類の検出量及び平均値を表3に示した。各PAH平均値が0.10ng/g以上検出したものは、Fluoranthene 0.68ng/g、Acenaphthene 0.32ng/g及びCoronene 0.29ng/gであった。また、PAHの中で発がん性の高いBenzo(a)pyreneは0.09ng/gであった。

3) 料理用調味料の中華だし、試料7種類、1試料につき2回ずつ合計14回分析を行った際の、PAH

20種類の検出量及び平均値を表4に示した。各PAH平均値が1.00ng/g以上検出したものは、Fluoranthene 1.83ng/gであった。また、PAHの中で発がん性の高いBenzo(a)pyreneは0.12ng/gであった。

まとめ

- 1) 料理用調味料3者より共通して高い検出量のPAHは、Fluorantheneであった。
- 2) 料理用調味料3者のPAH検出量の比較で、検出量が高い傾向にあるものは、和風だしで次いで中華だし、洋風だしが一番低い傾向を示した。

表2 料理用調味料の和風だしの多環芳香族炭化水素の含有量

(ng/g)

| | 1 | | 2 | | 3 | | 4 | | 5 | | 6 | | 7 | | 平均 |
|---------------------------------|--------------------|-------|-------|-------|-------|-------|------|------|-------|-------|-------|-------|------|------|-------|
| | 1 | 2 | 1 | 2 | 1 | 2 | 1 | 2 | 1 | 2 | 1 | 2 | 1 | 2 | |
| | Benzo(a)anthracene | 34.20 | 10.15 | 5.60 | 4.13 | 2.59 | ND | ND | ND | 26.84 | 14.98 | ND | ND | 0.06 | |
| Benzo(e)pyrene | 2.30 | 2.45 | 1.50 | 1.60 | 0.83 | 1.05 | 0.14 | 0.05 | 2.01 | 2.59 | 1.08 | 1.23 | 0.20 | 0.08 | 1.22 |
| Dibenz(a, h)anthracene | ND* | ND | ND | ND | 0.07 | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | 0.06 | ND | 0.01 |
| 3-Methylcholanthrene | ND | ND | 0.94 | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | 0.06 | ND | 0.07 |
| Benzo(e)pyrene | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | |
| Fluoranthene | 22.43 | 94.78 | 16.67 | 20.18 | 13.19 | 10.00 | ND | 1.53 | ND | ND | 40.59 | 28.82 | 2.46 | 2.01 | 18.05 |
| 1, 12-Benzoperylene | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | |
| Anthracene | 17.30 | 11.69 | 6.04 | 4.84 | 3.68 | 3.01 | 0.03 | 0.05 | 39.27 | 9.89 | 12.72 | 3.87 | ND | ND | 8.03 |
| Phenanthrene | 3.90 | ND | 13.47 | 3.88 | ND | ND | 1.35 | ND | ND | ND | ND | 4.14 | ND | ND | 1.91 |
| Coronene | 3.70 | 5.19 | 11.91 | 13.23 | 4.96 | 4.76 | 0.16 | 0.37 | 25.19 | 76.77 | 9.19 | 7.20 | 3.56 | 0.42 | 11.90 |
| Fluorene | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | |
| 2, 3-Benzofluorene | 2.50 | 2.35 | 0.08 | 0.46 | ND | 0.54 | ND | ND | 5.52 | 22.55 | 2.20 | 4.74 | ND | ND | 2.92 |
| 1-Methylphenanthrene | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | |
| Perylene | 0.50 | 0.40 | 0.29 | 0.33 | 0.12 | 0.16 | ND | ND | 0.54 | 0.60 | ND | 0.28 | ND | 0.01 | 0.23 |
| Dibenz(a, c)anthracene | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | |
| 9, 10-Dimethylbenz(a)anthracene | ND | ND | 4.16 | 3.26 | 0.92 | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | 0.60 |
| 9-Methylanthracene | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | |
| 5, 12-Dihydronaphthacene | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | ND | |
| Benzo(k)fluoranthene | ND | ND | 0.02 | 1.10 | 0.96 | 0.67 | 0.01 | 0.02 | ND | 4.62 | 1.82 | 0.59 | 0.01 | 0.03 | 0.70 |
| Acenaphthene | ND | 12.06 | 11.98 | ND | ND | 1.16 | ND | ND | ND | 7.32 | ND | ND | ND | 1.12 | 2.40 |

*ND : Not detected < 0.01ng

(51)

留野
つや子

表3 料理用調味料の洋風だしの多環芳香族炭化水素の含有量

(ng/g)

| | 1 | | 2 | | 3 | | 4 | | 5 | | 6 | | 7 | | 平均 |
|---------------------------------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|
| | 1 | 2 | 1 | 2 | 1 | 2 | 1 | 2 | 1 | 2 | 1 | 2 | 1 | 2 | |
| Benzo(a)anthracene | 0.41 | ND* | 0.02 | ND | 0.03 |
| Benzo(e)pyrene | 0.05 | 0.15 | 0.08 | 0.14 | 0.05 | 0.11 | 0.10 | 0.08 | 0.06 | 0.03 | 0.07 | 0.10 | 0.13 | 0.11 | 0.09 |
| Dibenz(a, h)anthracene | ND | ND | ND | ND | ND | ND | 0.01 | ND | |
| 3-Methylcholanthrene | ND | |
| Benzo(e)pyrene | ND | |
| Fluoranthene | 2.66 | 0.08 | ND | ND | ND | ND | 1.90 | 2.05 | 0.02 | ND | ND | 0.68 | 1.23 | 0.93 | 0.68 |
| 1, 12-Benzoperylene | ND | |
| Anthracene | 0.23 | ND | 0.13 | 0.03 | ND | ND | ND | ND | ND | 0.06 | ND | ND | ND | ND | 0.03 |
| Phenanthrene | ND | |
| Coronene | 0.95 | 0.34 | 1.31 | ND | ND | ND | 0.68 | ND | 0.09 | 0.32 | 0.14 | 0.16 | ND | ND | 0.29 |
| Fluorene | ND | |
| 2, 3-Benzofluorene | ND | 0.06 | ND | |
| 1-Methylphenanthrene | ND | |
| Perylene | 0.02 | 0.01 | ND | 0.02 | 0.01 | 0.02 | ND | 0.01 | ND | ND | ND | 0.02 | ND | ND | 0.01 |
| Dibenz(a, c)anthracene | ND | |
| 9, 10-Dimethylbenz(a)anthracene | ND | |
| 9-Methylanthracene | ND | |
| 5, 12-Dihydronaphthacene | ND | |
| Benzo(k)fluoranthene | ND | ND | 0.12 | 0.05 | 0.09 | 0.02 | 0.04 | 0.03 | 0.01 | 0.02 | 0.02 | ND | ND | ND | 0.03 |
| Acenaphthene | ND | ND | ND | ND | 1.74 | 2.73 | ND | 0.32 |

*ND : Not detected < 0.01ng

表4 料理用調味料の中華だしの多環芳香族炭化水素の含有量

(ng/g)

| | 1 | | 2 | | 3 | | 4 | | 5 | | 6 | | 7 | | 平均 | |
|---------------------------------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|
| | 1 | 2 | 1 | 2 | 1 | 2 | 1 | 2 | 1 | 2 | 1 | 2 | 1 | 2 | | |
| Benzo(a)anthracene | 0.04 | ND* | 0.44 | ND | 0.44 | ND | 0.15 | 0.08 |
| Benzo(e)pyrene | 0.15 | 0.10 | 0.12 | 0.17 | 0.14 | 0.08 | 0.20 | 0.17 | 0.13 | 0.10 | 0.10 | 0.01 | 0.12 | 0.11 | 0.12 | |
| Dibenz(a, h)anthracene | ND | ND | 0.01 | ND | 0.01 | ND | 0.02 | ND | | |
| 3-Methylcholanthrene | ND | ND | ND | ND | ND | ND | 0.01 | ND | | |
| Benzo(e)pyrene | ND | ND | 0.17 | ND | | |
| Fluoranthene | 5.13 | 4.85 | 6.33 | 1.40 | 1.48 | ND | 2.72 | 2.18 | ND | ND | ND | ND | ND | ND | 1.57 | 1.83 |
| 1, 12-Benzoperylene | ND | | |
| Anthracene | 0.24 | 0.31 | 0.08 | 0.33 | 0.89 | 0.14 | 0.22 | ND | 0.14 | ND | ND | ND | ND | ND | 0.12 | 0.18 |
| Phenanthrene | ND | | |
| Coronene | 0.02 | 0.07 | 1.06 | 0.26 | 1.51 | 0.11 | ND | ND | 0.39 | ND | 0.44 | ND | 2.20 | 0.35 | 0.46 | |
| Fluorene | ND | | |
| 2, 3-Benzofluorene | ND | ND | 0.14 | 0.10 | ND | | 0.02 |
| 1-Methylphenanthrene | ND | ND | ND | 0.03 | ND | | |
| Perylene | ND | ND | ND | ND | 0.01 | 0.01 | ND | 0.16 | ND | ND | 0.05 | ND | ND | 0.01 | 0.02 | |
| Dibenz(a, c)anthracene | ND | | |
| 9, 10-Dimethylbenz(a)anthracene | ND | | |
| 9-Methylanthracene | ND | 0.01 | 0.03 | 0.02 | ND | | |
| 5, 12-Dihydronaphtacene | ND | ND | 1.69 | ND | ND | ND | 1.27 | ND | ND | ND | 0.38 | ND | ND | ND | 0.24 | |
| Benzo(k)fluoranthene | ND | ND | ND | ND | 0.03 | 0.02 | ND | 0.07 | 0.01 | ND | 0.01 | 0.01 | 0.01 | ND | 0.01 | |
| Acenaphthene | ND | | |

※ND : Not detected < 0.01ng

文 献

- 1) 館野つや子: 東京家政大学研究紀要. 24, 115~118 (1984)
- 2) 館野つや子: 東京家政大学研究紀要. 37, 63~65 (1997)
- 3) 白石慶子, 白鳥つや子, 高畠英伍, : 食衛誌. 16, 178~181 (1975)
- 4) 館野つや子: 東京家政大学研究紀要. 26, 85~89 (1986)
- 5) 館野つや子: 東京家政大学研究紀要. 28, 103~107 (1988)
- 6) 館野つや子: 食衛誌. 39, 159~164 (1998)
- 7) 館野つや子: 東京家政大学研究紀要. 41, 45~56 (2001)
- 8) 館野つや子, 南雲葉子, 末永泉二: 食衛誌. 31, 271~276 (1990)
- 9) 館野つや子, 末永泉二: 食衛誌. 35, 206~209 (1994)
- 10) 館野つや子: 東京家政大学研究紀要. 34, 55~61 (1994)
- 11) 館野つや子, 影山百合子: 食衛誌. 40, 90~97 (1999)
- 12) 白石慶子, 白鳥つや子, 高畠英伍, : 食衛誌. 16, 187~188 (1975)
- 13) 白石慶子, 白鳥つや子: 食衛誌. 18, 426~430 (1977)

Summary

In recent years, according to become Western style of food, a great variety of ingredients seasoning (e.g. lactose, Pork extract, Vegetable extract, Dextrin, Sweetening and Spices etc.) widely used as Seasoning of Cook are mixed together and are put on the market. Few reports of PHA detection in this Seasoning of Cook can be seen.

In this trial, total amount of PAH is measured on Seasoning of Cooking for 21 materials selected 7 materials from Katsuo-bushi, Kombu and niboshi extract, Beef and Vegetables extract and Chicken, pork and Vegetable extract respectively. More over, the experiments of PAH additional collection are made for 11 materials.

As a result, additive collection rate was 78%~113%. Those mounts of average PAH detection is Katsuo-bushi, Kombu and niboshi extract : ND~18.05ng/g, Beef and Vegetables extract : ND~0.68ng/g, Chicken, pork and Vegetable extract : ND~2.87ng/g.

A mount of PAH detection of Katsuo-bushi, Kombu and niboshi extract tends to more. High mount of PAH detection Seasoning of Cooking above 3 extracts are Fluoranthene and Pyrene.