

健康食品等における関与成分（機能性成分）の表示値と実際の含有量に関する実態調査

萩原拓幸、清水 充

Analysis of Catechins in Foods for Specified health Use and Other Drinks

Takuyuki HAGIWARA and Mitsuru SHIMIZU

Abstract

Catechins in food for specified uses and other drinks were measured by HPLC. Content of catechins in Foods for specified health use were about twice in other drinks. We confirmed that quality control of content in Food for specified health use were controlled very well.

Key words: catechins, foods for specified health use, HPLC

I 緒言

環境科学研究所では平成16年4月から健康増進法に基づく登録試験機関として、特定保健用食品（特保）の許可前試験を実施しているが、許可された製品中の関与成分量の確認は行って来なかった。

特保は消費者庁（平成21年9月以前は厚生労働省）が特別に保健用途表示を認めている食品であり、関与成分が表示値通りに含まれているかどうかは有効性や安全性の面で市民の健康に直結する。

茶カテキンは脂肪が気になる人向けの特保であるが、煎茶や一般の緑茶系飲料にも含まれる成分であり、特保と併用しやすいため、過剰摂取の懸念がある。

そこで特定保健用食品中の茶カテキン量を確認すると共に、一般の茶系飲料や煎茶中の茶カテキン量についても調査を行った。

また、調査結果を評価するために、分析法のバリデーションを行ったので併せて報告する。

II 方法

1) 試薬

茶カテキン類標準品として用いた8種類の茶カテキン（栗田工業製）の構造式を図1に示す。

その他の試薬は特級またはHPLC用を用いた。

2) 試料

特定保健用食品5種（緑茶系飲料2種・清涼飲料水3種）、緑茶系飲料6種（カテキン含有量表示があるもの4種、ないもの2種）を対象に、異なるロットの製品を購入して試料とした。また、ティーバッグの煎茶3種について、緑茶浸出液を調製して試料とした。

これらは0.2mol/L酢酸水溶液で倍に希釈し、メンブランフィルタでろ過してHPLCで測定を行った。

3) HPLC条件

装置: Agilent 1100

カラム: L-Column ODS (化学物質評価研究機構, 4.6×250mm, 粒径 5 μm)

温度: 35°C

移動相: A液 0.1mol/L 酢酸水溶液, B液 0.1mol/L 酢酸アセトニトリル溶液
A/B 97/3(5分) → 32分 → 80/20(5分)

流速: 1mL/min

注入量: 10 μL

検出器: ダイオードアレイ検出器(280nm)

III 結果及び考察

1) 茶カテキン含有量

試料はロット毎に n=3 で測定し、平均値を求めた。

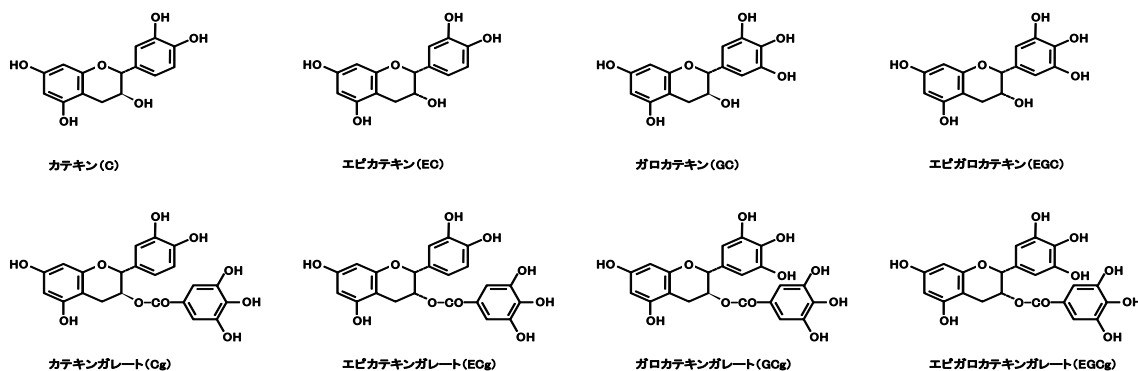


図1 8種類の茶カテキンの構造式

また、緑茶浸出液は、メーカーが推奨する淹れ方で各3試料を調製し、それぞれを測定した。

茶カテキン含量を各カテキン量とともに表1に示す。

一般の緑茶系飲料(緑茶浸出液も含む)中の茶カテキン含量は、特保飲料の半分程度であった。特保飲料では一日摂取目安量が示されているが、一般緑茶系飲料や煎茶を併飲することで過剰摂取も懸念される。しかし、許可申請時の過剰摂取試験(900~2700mgの茶カテキンを3ヶ月摂取)において安全性上問題が、無かったことが報告されており[1]、常識的な飲用方法であれば問題は無いと考えられる。

2) 茶カテキン分析のバリデーション

本研究の目的である特保飲料の茶カテキン含量の妥当性確認のために、分析法のバリデーションを行い、次の指標を得た。

(1) 直線性と範囲

8種類のカテキンについて、4~280 $\mu\text{g}/\text{mL}$ の濃度範囲で良好な直線性($r^2=1.000$)の検量線が得られた。

これは試料中濃度0.8~56 mg/100mLに相当する。

(2) 定量下限値

定量下限値は、HPLCにおける定量下限濃度付近(2 $\mu\text{g}/\text{mL}$)の標準溶液の標準偏差 $\times 10$ で求めた。

表1-1 試料一覧(特定保健用食品)

試料番号 試料名(ロット数)	カテキン含有量, mg/100mL										備考
	C	EC	GC	EGC	Cg	ECg	GCg	EGCg	総量		
1 緑茶系飲料	1	1.8	1.3	4.7	5.4	4.8	3.9	22.4	20.2	64.5	表示値:197 mg/350mL (平均値:229 mg/350mL) ◎一日摂取目安量:2本
	2	1.7	1.3	4.6	3.8	4.9	4.3	24.4	21.3	66.3	
	3	1.6	0.7	5.0	4.1	4.7	4.2	23.7	21.4	65.5	
2 "	1	8.9	8.1	34.7	34.4	6.7	8.7	33.9	34.9	170	表示値:540 mg/350mL (平均値:593 mg/350mL) ◎一日摂取目安量:1本
	2	9.6	8.4	36.3	32.5	6.8	9.0	35.0	36.0	174	
	3	9.0	8.7	37.0	33.5	6.1	8.4	33.4	35.3	171	
	4	8.4	7.4	35.3	32.4	6.7	8.4	31.5	35.2	165	
	5	8.5	7.3	35.9	32.3	6.7	8.2	31.8	35.0	166	
	6	8.4	8.3	36.0	30.6	7.0	9.4	32.2	38.7	171	
3 清涼飲料水	1	3.1	11.0	10.1	42.4	1.7	10.3	3.3	41.0	123	表示値:540 mg/500mL (平均値:620 mg/500mL) ◎一日摂取目安量:1本
	2	3.2	11.1	10.6	42.6	1.7	10.5	3.7	42.0	125	
	3	3.0	10.4	10.5	44.5	1.0	9.9	3.5	39.8	123	
	4	3.0	10.6	10.6	44.6	1.0	9.6	3.7	40.4	124	
	5	3.0	10.7	10.4	43.6	1.5	10.4	3.7	42.7	126	
4 "	1	3.0	10.5	10.3	41.8	1.8	10.3	3.3	41.2	122	表示値:540 mg/500mL (平均値:622 mg/500mL) ◎一日摂取目安量:1本
	2	3.1	11.3	10.2	42.6	1.7	10.7	3.6	41.4	125	
	3	3.2	10.9	11.4	45.7	1.0	10.1	3.8	40.1	126	
5 "	1	2.9	9.9	10.2	43.8	1.2	10.1	3.8	42.2	124	表示値:540 mg/500mL (平均値:624 mg/500mL) ◎一日摂取目安量:1本
	2	2.9	10.2	10.0	43.8	1.2	10.3	3.6	42.2	124	
	3	2.8	10.0	10.2	44.3	1.2	10.2	3.7	43.6	126	
定量下限		0.1	0.07	0.2	0.2	0.04	0.02	0.07	0.1	0.2	

表1-2 試料一覧(一般緑茶系飲料及び煎茶)

試料番号 試料名(ロット数)	カテキン含有量, mg/100mL										備考	
	C	EC	GC	EGC	Cg	ECg	GCg	EGCg	総量			
7	"	1	4.7	2.9	17.9	14.1	2.4	2.4	14.8	14.1	73.3	表示値: 360 mg/500mL (平均値: 369 mg/500mL)
		2	4.6	3.0	17.7	11.6	2.6	2.6	16.8	15.3	74.0	
		3	4.4	2.6	18.7	11.9	2.4	2.3	16.2	15.7	74.2	
		4	3.8	2.4	16.8	11.7	2.3	2.3	15.3	15.9	70.5	
		5	4.1	2.6	17.8	11.7	2.7	2.7	17.6	17.4	76.5	
8	"	1	4.4	2.7	18.5	12.7	2.7	2.5	16.4	16.3	76.1	表示値: 360 mg/500mL (平均値: 381 mg/500mL)
		2	4.4	2.6	18.5	12.7	2.7	2.5	16.5	16.2	76.2	
		3	5.2	2.9	17.6	12.4	2.6	2.6	17.2	15.9	76.3	
		4	5.1	2.9	17.6	13.0	2.5	2.5	16.4	16.0	75.9	
9	"	1	4.2	3.3	20.7	15.0	1.8	1.9	11.3	11.5	69.7	表示値: 375 mg/500mL (平均値: 374 mg/500mL)
		2	4.5	3.5	21.8	15.6	1.9	2.2	12.4	12.7	74.7	
		3	4.5	4.7	22.0	20.2	1.2	2.3	10.9	14.0	79.9	
10	緑茶系飲料 (表示無し)	1	3.5	3.0	17.5	12.4	1.2	1.4	7.5	8.5	54.9	—
		2	3.7	2.7	17.9	11.1	1.2	1.2	6.9	7.2	51.8	
		3	3.5	3.5	17.1	14.7	0.7	1.2	6.0	7.6	54.2	
		4	3.4	3.5	17.0	15.0	0.7	1.2	6.2	8.0	54.9	
11	"	1	3.7	1.9	15.9	10.7	1.5	1.2	8.3	8.6	51.7	—
		2	3.6	1.9	15.2	9.2	1.5	1.1	8.3	8.0	48.8	
		3	3.5	1.7	12.2	8.5	1.3	1.0	8.3	7.9	44.4	
		4	3.4	1.6	12.1	8.5	1.2	0.9	8.3	7.7	43.9	
12	緑茶浸出液	1	0.4	3.3	1.8	13.7	0.2	1.9	0.9	14.2	36.6	ティーバッグ(茶葉 2g)を 熱湯150mLで60秒浸出
		2	0.5	3.7	2.1	15.3	0.2	2.2	1.1	16.0	41.0	
		3	0.4	2.7	1.8	10.4	0.2	1.6	1.1	11.4	29.6	
13	"	1	0.5	5.0	2.5	20.3	0.2	2.4	0.9	14.8	46.6	ティーバッグ(茶葉 2g)を 熱湯120mLで60秒浸出
		2	0.5	6.1	2.7	24.5	0.2	2.9	0.9	17.8	55.6	
		3	0.5	6.7	2.9	27.3	0.2	3.2	0.9	19.6	61.4	
14	"	1	0.7	6.8	3.7	30.5	0.2	3.5	1.3	24.0	70.8	ティーバッグ(茶葉 1.8g) を熱湯120mLで30秒浸出
		2	0.7	6.6	3.8	29.9	0.2	3.3	1.3	22.9	68.8	
		3	0.7	6.5	3.5	29.2	0.2	3.3	1.2	22.6	67.1	
定量下限			0.1	0.07	0.2	0.2	0.04	0.02	0.07	0.1	0.2	

定量下限値は、検液濃度で0.1~1µg/mLであった。試料含有量に換算した各カテキンの定量下限値を表1に示した。茶カテキン総量の定量下限値は各カテキンの定量下限値のうち、最も高い値とした。

(3) 真度

真度は緑茶系飲料と清涼飲料水に100µgの各カテキンを添加した試料の回収率によって評価した。

平均回収率は、緑茶系飲料で99.7%、清涼飲料水で99.0%であり、真度として非常に良好であった。

(4) 併行再現精度と室内再現精度

ハンドブック[2]に従ってMicrosoft Excelの分析ツール(分散分析:一元配置)を用いて併行再現精度及び室内再現精度を計算した。それぞれ、標準偏差で1.38及び14.5、相対標準偏差で0.21及び2.29であった。

3) 製品のロット間のばらつき

特定保健用食品及び茶カテキンの含量表示がある緑茶系飲料について、ロット間の茶カテキン含量のばらつきを最大・最小及び平均値で図2に示した。

試料5や8のようにロット間のばらつきが室内再現精度と同等かそれ以下の場合、茶カテキン含量にロット差があるとは言えないが、他の試料では茶カテキンの含量にロット差が認められた。

茶カテキン含量のロット差は、特保飲料では平均値の数%程度で、10%程度の一般飲料、30%程度の緑茶浸出液と比べて小さく、表示値を下回るロットも無かった。特保では有効性を担保するために食品中の関与成分量は、表示値以上、表示値+20%以下であることが求められるが、今回の調査では品質管理がしっかりと行

われていることが確認された。

一方、一般緑茶系飲料には茶カテキン含量を表示したもの(試料6~9)がある。この様な成分量の表示については、栄養成分量やビタミン・ミネラル量であれば栄養表示基準による規制を受けるが、茶カテキンの表示は任意のもので、特に法律的な規制は無い。

今回、確認したところでは、実際の茶カテキン含量は表示値の±10%程度であった。表示量と実際の含量との乖離については、栄養表示基準[3]では±20%を許容範囲としており、これに準拠すると±10%は問題ないレベルと考えられる。

3) 茶カテキンの組成

各試料のカテキン組成には、図3に示すような固有の組成パターンが見られた。

組成パターンは、GCとEGC及びそのガレート体が多い「リボン型」と、EGCとそのガレート体が多い「針型」の二つに大きく分かれた。前者は緑茶系飲料で見られ、後者は特保の清涼飲料水と緑茶浸出液で見られた。

元々緑茶に含まれるカテキンはエピカテキンタイプが大部分で、カテキンタイプはほとんど無い。緑茶浸出

液の組成パターンが針型となるのはこれが原因である。また、清涼飲料水には茶抽出物が配合されているので、組成パターンが緑茶浸出液と似通ったと考えられる。

一方、緑茶をオートクレーブ処理するとエピカテキンタイプのカテキンが異性体化し、カテキンタイプに変換

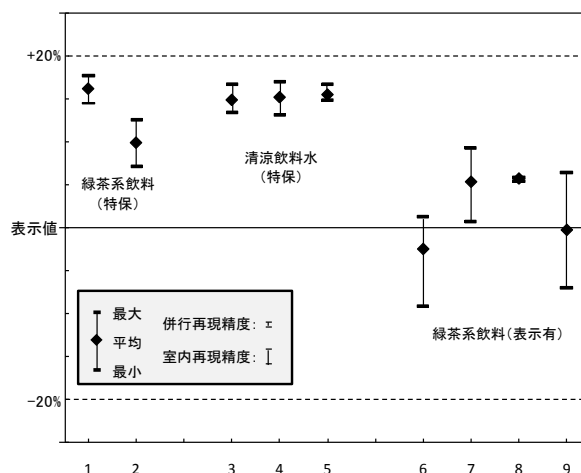


図2 ロットの違いによる茶カテキン含量のばらつき

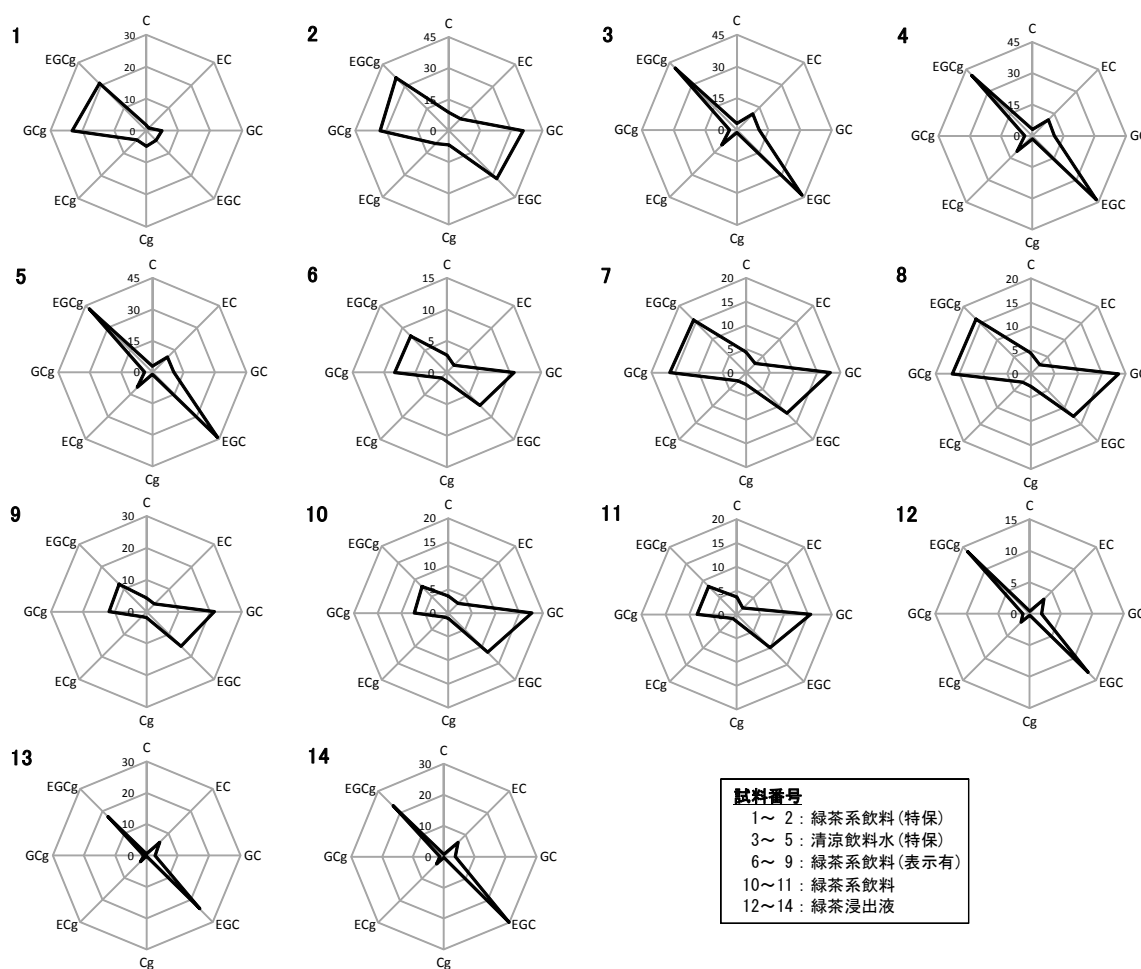


図3 各試料に含まれるカテキン8種類の割合

されることが報告されており[5]、緑茶系飲料の製造工程でも同様の異性体化が起こって、リボン型の組成となったと考えられる。

リボン型の中でも特保飲料は、一般飲料と比べてガレート型のカテキン組成が多い。一般にガレート型カテキンは、遊離型カテキンよりも生理活性が高いことが指摘されており[6-7]、試料1は「ガレート型カテキン 90%含有」を謳って、意図的にガレート型カテキンを増やしている。

特保は個別にヒト試験の結果を評価したうえで許可が与えられるため、その有効性については一定の保証があるが、一般緑茶系飲料と特保飲料では、カテキン組成が異なるため、茶カテキン含有量が同等であったとしても、特保と同様の効果が期待できる保証はない。

参考文献

- 1) 花王, 茶カテキンの安全性,
<http://www.kao.co.jp/rd/eiyo/about-cat/cat09.html>, (2011/7/7)
- 2) 安井明美 編. 食品分析法の妥当性確認ハンドブック. 千葉: サイエンスフォーラム; 2010. 73-106頁.
- 3) 栄養表示基準, 厚労告176, 平成15.4.24
- 4) 畑田幸栄, 宇野英俊, 山内仁史, 水英雄, 香川美由紀, 大住孝彦他. 《統計が苦手な人のための》分析法バリデーションにおける統計手法とその解釈. 東京: サイエンス&テクノロジー; 2007. 5-24頁.
- 5) 黄素梅, 井上和美, 李岩, 田中隆, 石丸幹二. オートクレーブ処理した茶葉および茶ドリンクのカテキン成分. 日食化誌 2004; 11(2): 99-102.
- 6) 鈴木裕子, 小林誠, 海野知紀, 野澤歩, 堤坂裕子, 角田隆巳. 高脂肪食飼育ハムスターにおけるガレート型カテキンの脂質代謝改善作用. 日食工誌 2005; 52: 167-171.
- 7) 梶本修身, 梶本佳孝, 武田雅也, 野澤歩, 鈴木裕子, 角田隆巳. 女性を対象とした長期摂取におけるガレート型カテキン配合飲料の血清コレステロール低下作用. HealthSciences 2006; 22: 60-71.