クロレラ錠及びクロロフィルを含有する健康食品中の フェオホルバイド量について

(昭和 60 年 2 月 7 日受理)

橋本清澄*

Pheophorbide Contents in Chlorella Tablets and "Health Food"

Kiyosumi HASHIMOTO

(Public Health Institute of Hyogo Prefecture:
2-1, Arata-cho, Hyogo-ku, Kobe, Japan)

Key words: クロレラ錠 chlorella tablet; 健康食品 health food; フェオホルバイド pheophorbide; クロロフィラーゼ chlorophyllase; 光過敏性皮膚障害 photosensitive dermatitis; 市場調査 marketing research

緒 言

近年, いわゆる健康食品と称して多種多様な製品が市販され, 健康管理への関心の高まりから, その消費量は増加する傾向にある¹⁾. しかし, これら健康食品の含有成分, 製造方法など品質に関しては不明な点が多く, 衛生学的な実態調査²⁾も少ないことから, その安全性が問題視されている. 特に, クロレラ錠については, 摂取したヒトの間に光過敏性の皮膚障害が発生し, その原因物質はクロロフィル分解物のフェオホルバイド a であることが明らかにされた^{3), 4)}. このような危害を未然に防止するため, 1981年5月厚生省からクロレラ製品中のフェオホルバイド (PB) 量に関する指導基準が示され⁵⁾, これにもとづく市場調査の結果も報告されているが^{6)~8)}, 経年変化を調査した報告は少ない.

今回, 1982年から1984年にわたって市販クロレラ錠中の PB 量を調査し, その経年変化を検討したところ, 興味ある知見を得た. さらに, クロロフィルを含有する健康食品中の PB 量についても調査したので, これらの結果を報告する.

実験方法

1. 試 料

試料は, 1982年~1984年の間に兵庫県下デパートの健康食品あるいは自然食品コーナー, または薬局, 健康食品専門店などで購入したものをを用いた.

クロレラ錠28銘柄55検体, クロロフィルを含有する健康食品14銘柄18検体について調査した.

2. 試 薬

ジエチルエーテルは酸価・過酸化価測定用を, 他の試薬は市販特級品をそのまま使用した.

3. 装 置

ホモジナイザー: IKA Werk 社製, ULTRA TURRAX (TP 18-10 S2)

分光光度計: 日立製, 200-20型自記分光光度計

4. 分析方法

観ら⁹⁾の方法に準拠して, 既存 PB 量及び総 PB 量測定用試験溶液を調製した. これらの試験溶液について 667 nm の吸光度を測定し, フェオホルバイド a の 667 nm における比吸光係数 70.2⁹⁾から, それぞれの PB 量を算出した. なお, PB 量 5 mg% 未満の試料は不検出 (ND) とした.

結果及び考察

1. クロレラ錠中の既存 PB 量及び総 PB 量

1982~1984年に実施したクロレラ錠中の PB 量調査結果を Table 1 に示した.

1982年は13検体について調査した. 既存 PB 量は 18~139 mg% (平均 46 mg%), 総 PB 量は 33~606 mg% (平均 203 mg%) であり, 指導基準 (既存 PB 量 100 mg%, 総 PB 量 160 mg%)⁵⁾を越えるものは, 5 検体であった. 1983年は19検体について調査した. 既存 PB 量は 8~118 mg% (平均 43 mg%), 総 PB 量は 12~386 mg% (平均 143 mg%) であり, 指導基準を越えるものは7検体であった. 1984年は23検体について調査した. 既存 PB 量は 13~375 mg% (平均 53 mg%), 総 PB 量は 14~943 mg% (平均 124 mg%) であり, 指導基準を越えるものは3検体であった.

* 兵庫県衛生研究所: 神戸市兵庫区荒田町2丁目1

Table 1. Existing and Total Pheophorbide Contents in Chlorella Tablets (1982-1984)

Sample No.	1982		1983		1984	
	Existing pheophorbide (mg%)	Total pheophorbide (mg%)	Existing pheophorbide (mg%)	Total pheophorbide (mg%)	Existing pheophorbide (mg%)	Total pheophorbide (mg%)
1	56	85	48	113	23	28
2	40	606	8	12	47	51
3	41	459	57	113	42	54
4	22	136	35	135	33	83
5	19	84	15	146	26	49
6	21	59	12	114	28	354
7	36	129	36	130	28	38
8	73	435	118	267	48	99
9	80	293	88	235	92	180
10	31	54	29	68	32	43
11	18	33	20	40	13	14
12	—	—	34	386	21	130
13	—	—	55	170	48	121
14	—	—	80	174	34	39
15	—	—	56	180	47	92
16	—	—	38	62	72	97
17	139	187	—	—	—	—
18	23	75	—	—	—	—
19	—	—	32	220	—	—
20	—	—	20	105	—	—
21	—	—	32	47	—	—
22	—	—	—	—	33	47
23	—	—	—	—	23	46
24	—	—	—	—	24	38
25	—	—	—	—	20	119
26	—	—	—	—	24	24
27	—	—	—	—	88	154
28*	—	—	—	—	375	943
n	13	13	19	19	23	23
Mean±S.D.	46±34.5	203±186.3	43±28.1	143±89.9	53±73.2	124±193.0

*: made in Taiwan

このように、クロレラ錠 (55検体) のすべての検体から既存の PB を検出し、指導基準を越えるものが合計 3 検体あることがわかった。一方、総 PB 量についても高値を示すものが多く、指導基準を越えるものは、既存 PB 量の指導基準を越えた 3 検体を含めて合計 15 検体であった。また、皮膚障害をおこしたクロレラ錠の最低値 300 mg%³⁾ を越える製品 (Table 1, No. 28) も検出されたが、調査の結果、この製品は台湾で製造され、指導基準が示される以前 (1981年 1 月) に輸入されたものであることがわかった。

観ら⁶⁾は、1982年にクロレラ錠 (26検体) 及びクロレラ類似食品 (5 検体) について市場調査を行い、クロレラ錠の既存 PB 量は 7~149 mg% (平均 50 mg%)、総 PB 量は 26~776 mg% (平均 225 mg%) であったと報

告している。今回の調査のうち、1982年の結果はこれらの調査結果とほぼ一致した。

2. クロレラ錠中の既存 PB 量及び総 PB 量の経年変化

上記の測定結果にもとづいて、各年ごとの既存 PB 量及び総 PB 量の平均値をプロットし、その経年変化を検討した。その結果、既存 PB 量は 43~53 mg% とほぼ一定の値を与え、変化がみられなかったのに対して、総 PB 量は漸次減少し、1982年の平均値 203 mg% を 100% とすると、1983年では約 70% に、1984年では約 60% になっていることがわかった (Fig. 1)。

また、総 PB 量の指導基準を越える製品の検出率は、1982年が 5/13 (38%)、1983年が 7/19 (37%) と高率であるのに対して、1984年では 3/23 (13%) と著しく減

Fig. 1. Yearly changes of existing and total pheophorbide contents in chlorella tablets

○—○, mean value of total pheophorbide contents
●—●, mean value of existing pheophorbide contents

Fig. 2. Yearly change of chlorophyllase activities in chlorella tablets

●—●, mean value of eleven samples (Table 2, No. 1-11)

少した。

坂井ら⁹⁾は、1982年と1983年に富山県内で生産されたクロレラ製品について PB 量を調査し、1982年は7検体のうち2検体が総 PB 量の指導基準を越えていたが、1983年では既存 PB 量の平均値が約 60% に、総 PB 量のそれは約 40% に減少し、用いた試料 (10検体) のすべてが指導基準に適合したと報告している。今回の市場調査では、このように顕著な減少はみられなかったが、総 PB 量では同様の傾向が認められた。

3. クロレラ錠中のクロロフィラーゼ活性度とその経年変化

PB はクロロフィルの分解物であり、その生成にはクロロプラスト中に存在するクロロフィラーゼが大きく関与することが知られている¹⁰⁾。従って、クロロフィラー

Table 2. Chlorophyllase Activities in Chlorella Tablets (1982-1984)

Sample No.	Chlorophyllase activity (mg%)		
	1982	1983	1984
1	29	65	5
2	566	4	4
3	418	56	12
4	114	100	50
5	65	131	23
6	38	102	326
7	93	94	10
8	362	149	51
9	213	147	88
10	23	39	11
11	15	20	1
12	—	352	109
13	—	115	73
14	—	94	5
15	—	124	45
16	—	24	25
17	48	—	—
18	52	—	—
19	—	188	—
20	—	85	—
21	—	15	—
22	—	—	14
23	—	—	23
24	—	—	14
25	—	—	99
26	—	—	0
27	—	—	66
28*	—	—	568
n	13	19	23
Mean ±S.D.	157±179.5	100±79.4	71±128.5

*: made in Taiwan

ゼ活性を有するクロレラ錠については、保存中に PB が生成される可能性がある。このことから、厚生省通達⁵⁾では、クロロフィラーゼを失活させることが加工上の指導事項とされ、また総 PB 量から既存 PB 量を減じた値をクロロフィラーゼ活性度とし、クロロフィラーゼの失活の程度を調べる指標とされている。そこで、クロロフィラーゼ活性度の経年変化を検討したところ、Table 2 に示すように、各年ごとの平均値は 157 mg%、100 mg%、71 mg% と減少する傾向がみられ、メーカーでの品質改善が行われていることを示唆した。

さらに、3 年間を通して試料に供された同一銘柄の検体 (Table 2, No. 1-11) について、各年ごとのクロロフィラーゼ活性度の平均値を算出し、その経年変化を検討した。その結果、1982年は 176 mg% であったが、1983年は 82 mg% に減少し、1984年では 53 mg% と顕

Table 3. Existing and Total Pheophorbide Contents in "Health Food" (1982-1984)

Sample No.	Sample name	1982		1983		1984	
		Existing pheophorbide (mg%)	Total pheophorbide (mg%)	Existing pheophorbide (mg%)	Total pheophorbide (mg%)	Existing pheophorbide (mg%)	Total pheophorbide (mg%)
1	Comfrey tablet	46	85	—	—	—	—
2	Kumazasa* (<i>Sasa albo-marginata</i>) extract granule	ND	ND	—	—	—	—
3	Kumazasa* (<i>Sasa albo-marginata</i>) extract tablet	21	21	—	—	—	—
4	Kale extract granule	5	48	—	—	—	—
5	Kale extract powder	5	6	—	—	—	—
6	Barley young leaf extract tablet	—	—	—	—	ND	19
7	Barley young leaf extract powder	ND	16	ND	16	ND	13
8	Spilurina tablet (A)	19	35	—	—	—	—
9	Spilurina tablet (B)	28	62	13	38	11	26
10	Spilurina tablet (C)	—	—	—	—	11	26
11	Spilurina tablet (D)	—	—	—	—	13	16
12	Spilurina tablet (E)	—	—	—	—	18	32
13	Alfalfa young leaf extract tablet	—	—	—	—	21	25
14	Makomo* (<i>Zizania latifolia</i>) young leaf powder	—	—	—	—	ND	ND

ND: less than 5 mg%

*: Japanese name

著に減少していることがわかった (Fig. 2). また, 1983年と1984年の2年間のみ調査を行った同一銘柄の検体 (Table 2, No. 12~16) においても同様の傾向がみられた。

これらのことから, 1982年及び1983年にクロロフィルの失活に関する行政指導が効果的に行われ, メーカーでの品質改善が行われつつあることが明らかになった。

ところで, 現在用いられている PB 分析法はフェオホルバイド a 以外のクロロフィル分解物もあわせて計測するため, フェオホルバイド a を分離定量する必要があると思われたが, これについては, 本稿とは別に報告した¹¹⁾。

4. クロロフィルを含有する健康食品中の既存 PB 量及び総 PB 量

上記のクロレラ錠以外に, クロロフィルを含有する健康食品中にも PB が存在する可能性があることから, これらの製品18検体について調査を行った。その結果, Table 3 に示すように, コンフリー, クマザサ (No.3), ケール, スピルリナ, アルファルファを原料とする製品から既存の PB を検出し, その測定値は 5~46 mg% であった。また, コンフリー, ケール, オオムギ, スピル

リナ, アルファルファを原料とする製品から, それぞれの既存 PB 量を上回る総 PB 量を検出し, クロロフィルラーゼ活性を有することがわかった。

クロロフィルを含有する健康食品中の PB 量は, クロレラ錠のそれと比較すると全体的に低値であったが, コンフリー, スピルリナを原料とする製品のようにクロレラ錠に匹敵するものもあることから, このような健康食品についても監視を行っていく必要があると考える。

結 論

1982年から1984年にわたって, 市販のクロレラ錠 (55検体) 及びクロロフィルを含有する健康食品 (18検体) 中の PB 量調査を行った結果, クロレラ錠のすべての検体から PB を検出し, 指導基準を越えるものが, 1982年に5検体, 1983年に7検体, 1984年には3検体あった。また, 各年ごとの平均値を求め, その経年変化を検討したところ, 既存 PB 量は変化がみられなかったが, 総 PB 量は漸次減少する傾向がみられた。さらに, 3年間を通して試料に供された検体について, クロロフィルラーゼ活性度の変化を検討したところ, その平均値は経年的に著しく減少し, 行政指導の効果があらわれているものと思われた。

一方, クロロフィルを含有する健康食品にも PB を

含有するものがみられたが、クロレラ錠の測定結果と比較すると全体的に低値であった。しかし、これらの中にはクロレラ錠に匹敵する PB を含有する製品もみられることから、クロレラ錠とあわせて監視を行っていく必要があると考える。

謝 辞

本調査を行うに当たり、試料の収集に御尽力いただいた兵庫県保健環境部食品衛生課の関係各位に感謝いたします。

文 献

- 1) 細谷憲政：食品衛生研究 **33**, 627～637 (1983).
- 2) 安田和男, 西島基弘, 斎藤和夫, 上村 尚, 井部明広, 永井敏廣, 牛山博文, 田端節子, 松本幸子, 直井家壽太, 二島太一郎：食衛誌. **25**, 371～377 (1984).
- 3) 田村行弘, 真木俊夫, 嶋村保洋, 西垣 進, 直井家壽太：同上, **20**, 173～180 (1979).
- 4) 天野立爾, 池 慶子, 内山 充：食品衛生研究 **28**, 739～745 (1978).
- 5) 厚生省通達, 環食第99号 (昭和56年5月8日).
- 6) 観 公子, 田村行弘, 真木俊夫, 小関正道, 直井家壽太：東京都衛研年報. **33**, 208～213 (1982).
- 7) 古川章子, 宮田淳子, 秋山由美子, 小鹿 晋, 小林英一：青森県衛研報告. **19**, 25～27 (1982).
- 8) 坂井敏郎, 山本 敦, 松永明信：富山県衛研年報. **7**, 252～253 (1984).
- 9) Brown S. R.: J. Fish Res. Bd. Canada **25**, 523～540 (1968).
- 10) 内山 充：食品衛生研究 **31**, 423～436 (1981).
- 11) 橋本清澄：薬誌. **105**, 33～37 (1985).