

資 料

いわゆる痩身用健康食品からのセンノシド検出事例について

神山恵理奈, 多田裕之, 河村 博

要 旨

ハネセンナを原材料に含むティーバッグタイプの健康茶の飲用により県内住民が下痢を起こした事例を受けて、当該製品及び他のいわゆる痩身用健康食品についてセンノシド含量等を調査した。その結果、ハネセンナまたはセンナ茎を原材料に含む9製品から0.04~2.90 mg/gの総センノシドが検出された。下痢を起こした苦情品にはティーバッグ1包あたり13.0 mgの総センノシドが含有されており、これを熱湯で抽出して飲用すると、3分抽出で4.8 mg、10分抽出で12 mgの総センノシドを摂取することになることがわかった。また、今回調査を行った苦情品以外の8製品のうち、ハネセンナを原材料に含む2製品とセンナ茎を原材料に含む2製品にも、ティーバッグ1包あたりまたは1日摂取目安量あたり、3.5 mg以上のセンノシドが含まれていた。

キーワード：健康食品、センノシド、ハネセンナ、ゴールデンキャンドル、センナ

1 はじめに

近年、インターネットやドラッグストアを通じてダイエットなどを目的としたいわゆる健康食品が数多く流通している。平成23年7月、インターネット販売で健康茶を購入した県内の住民から、飲用し始めて3~4日目あたりから下痢を起こしたとの相談が保健所に寄せられた。当該商品のパッケージには原材料として「ゴールデンキャンドル」が記載されていた。ゴールデンキャンドル (*Cassia alata*, 図1) は、医薬品(下剤, 便秘薬等)に用いられるセンナ (*Cassia angustifolia* Vahl または *Cassia acutifolia* Delile) と近縁の植物であり、ハネセンナ、キャンドルブッシュとも呼ばれている(以下「ハネセンナ」とする)。センナは、瀉下作用を有するセンノシドを含有しており、その果実・小葉・葉柄・葉軸は、医薬品の範囲に関する基準¹⁾(昭和46年6月1日付け薬発第476号厚生省薬務局長通知)において、「専ら医薬品として使用される成分本質(原材料)」「(専ら医薬品リスト)に収載されているため、食品への使用は禁止となっている。一方、センナの茎及びハネセンナ(全草)は、「医薬品的効能効果を標ぼうしない限り医薬品と判断しない成分本質(原材料)リスト」(非専ら医薬品リスト)に収載されているため、食品に使用することができる。しかしながら、センナと同様にハネセンナにもセンノシドが含まれていることが報告されている^{2,3)}。

当所では今回の事例を受けて、当該商品および他の市販品について、鏡検により内容物の形態観察を行う

とともに、センノシド含量及び熱湯によるセンノシド溶出量を調査したので報告する。



図1 ハネセンナ (*Cassia alata*)

2 材料と方法

2.1 供試材料及び試薬

供試材料：飲用により下痢を起こしたと相談のあったティーバッグタイプの製品を試料Aとし、その他、原材料にハネセンナまたはセンナ茎の表示のある市販の健康食品8製品を試料B~Iとして用いた(表1)。なお、試料A~Eはティーバッグタイプ、試料F~Iは粒タイプの製品である。また、日本薬局方センナ末(本草製薬)を参考品として用いた。

試薬：和光純薬工業製のメタノール(特級, HPLC用, LC/MS用)、ギ酸(特級)、酢酸(特級)、酢酸ナトリウム(特級)、アセトニトリル(HPLC用)、炭酸水素ナトリウム(特級)及び東京化成工業製の臭化テトラ *n*-ヘプチルアンモニウム(EP)を用いた。

表1 供試材料

形状	試料	表示重量	表示1日 摂取目安量	表示原材料 ^{a)}
ティー バッグ タイプ	A	5 g/包	表示なし	ゴールデンキャンドル, ほうじ茶, ハトムギ 他 (24)
	B	5 g/包	1 包	ゴールデンキャンドル, 桑葉, ほうじ茶 他 (21)
	C	5 g/包	表示なし	キャンドルブッシュ, ハトムギ, 紅茶 他 (5)
	D	3 g/包	表示なし	ハトムギ, ウーロン茶, プーアル茶, キャンドルブッシュ 他 (8)
	E	2g/包	表示なし	ルイボスティ, アマチャ, キャンドルブッシュ 他 (6)
粒 タイプ	F	300 mg/粒	4 粒	バンシヤクキ, セルロース, 黒大豆 他 (29)
	G	300 mg/粒	5 粒	イヌリン, 植物発酵エキス, キャンドルブッシュ末 他 (20)
	H	300 mg/粒	4 粒	キダチアロエエキス末, デキストリン, バンシヤクキエキス末 他 (30)
	I	264 mg/粒	5~6 粒	バンシヤクキ, 麦芽糖, ぶどう糖, セルロース 他 (13)

a) 表示原材料のうち、実線の下線はハネセンナ、点線の下線はセンナ茎を示す。カッコ内の数値は全表示原材料数を示す。

センノシド標準溶液：和光純薬工業製のセンノシド A (生薬試験用) 及びセンノシド B (生薬試験用) をそれぞれ 1%炭酸水素ナトリウム溶液に溶解して 0.5 mg/mL の標準原液を調製した。5 mL のセンノシド A 標準原液及び10 mL のセンノシド B 標準原液を採取し、メタノールで希釈して 50 mL とし、標準溶液として用いた。

2.2 鏡検による形態観察

試料をスケール付スライドガラス上に取り、精製水と混ぜた後カバーガラスをかけ、顕微鏡で 100~200 倍で観察した。

2.3 センノシド含量の測定

第十六改正日本薬局方センナ定量法⁴⁾に従って行った。試料を小型ミルで粉末にし、各 0.5 g を遠沈管に取り、25 mL の 70%メタノールを加えて振とうした後、遠心分離し、上澄液を分取した。さらに、10 mL の 70%メタノールで同様に 2 回抽出し、それぞれ上澄液を分取した。上澄液を合わせ、70%メタノールを加えて 50 mL とし、これを試料溶液とした。この試料溶液を高速液体クロマトグラフ (HPLC) で測定し、センノシド A 及びセンノシド B を定量した。また、試料溶液をメタノール/水 (7:3) で 50 倍希釈し、液体クロマトグラフ/タンデム質量分析計 (LC-MS/MS) で MS/MS スペクトルを測定した。なお、センノシド A とセンノシド B の合計を総センノシドとした。

2.4 装置及び測定条件

2.4.1 HPLC 条件

装置は HP1100 シリーズシステム (Agilent), カラムは Mightysil RP-18GP (関東化学, 4.6 mm×150 mm, 3 µm) を用いた。移動相は 0.1 mol/L 酢酸・酢酸ナトリウム緩衝液 (pH 5.0) / アセトニトリル (17:8) 1000 mL に臭化テトラ *n*-ヘプチルアンモニウム 2.45 g を溶かしたものとした。流速は 0.9 mL/min, カラム温度は 50°C, 注入量は 10 µL とし、フォトダイオードアレイ (測定波長 340 nm) で検出した。

2.4.2 LC-MS/MS 条件

装置は Agilent 1200 システム (Agilent) -4000 Q TRAP (AB SCIEX), LC 用カラムは Cadenza CD-C18 (インタクト, 2 mm×150 mm, 3 µm) を用いた。移動相は、0.05%ギ酸 (移動相 A) とメタノール (移動相 B) のグラジエントとし、グラジエント条件は、5%B (0~1 分) →30%B (1~25 分) →100%B (25~30 分) とした。流速は 0.2 mL/min, カラム温度は 40°C, 注入量は 5 µL とした。MS/MS のイオン化法は、エレクトロスプレーイオン化法のネガティブモードを用いた。スキャン条件は、スキャンタイプ EPI, DP=-115 V, CE=-50 V, ターボガス温度 400°C で測定した。

2.5 センノシド溶出量の測定

ティーバッグ 1 包に各製品記載の飲用方法に従って 300 mL, 400 mL または 500 mL の熱湯を加え、3~10 分間抽出した後、上清約 1.5 mL を採取し放冷した。その 1.0 mL を取りメタノールを加えて 2.0 mL とし、これを 0.45 µm 孔径のメンブランフィルターでろ過し、この試料溶液を HPLC で測定した。

3 結果

3.1 鏡検による形態観察

顕微鏡によりティーバッグタイプの試料 A~D の内容物を観察したところ、ハネセンナに特有のまっすぐな鋭尖頭の短い単細胞毛と乳頭状突起が見られ、ハネセンナが含まれていることが確認できた (図 2 a, b)。また、4 試料ともセンナのやや湾曲し、表面にいぼ状のはん点がある単細胞毛 (図 2 c) は観察されなかった。

3.2 センノシド含量の測定

試料 A のセンノシドを測定したところ、2.54 mg/g の総センノシドが検出され、ティーバッグ 1 包あたり 13.0 mg の総センノシドが含まれていることが明らかになった (表 2)。また、試料 B 及び C からは、それぞれ 1.77 mg/g, 1.41 mg/g の総センノシドが検出された (表 2)。粒タイプ製品の試料 F 及び I からも比較的

高い含量の総センノシドが検出され、製品記載の1日摂取目安量に従うと、それぞれ1日あたり3.5 mg, 4.7 mgの総センノシドを摂取することになることが判明した(表3)。HPLCにより検出されたピークのUVスペクトルを測定したところ、いずれもセンノシドA及びBの標準スペクトルと一致した(図3)。また、LC-MS/MSによるプロダクトイオンスクリーン測定を行ったところ、いずれもセンノシドA及びBの標準スペクトルと一致した。

3.3 センノシド溶出量の測定

ティーバッグタイプの製品を飲用した場合のセンノシド摂取量を調べるために、試料A～Dの各1包を製品記載の飲用方法に従って熱湯で抽出し、熱湯中へのセンノシド溶出量を測定したところ、3分間の抽出で試料Aは4.8 mg, 試料Bは5.2 mg, 試料Cは5.4 mg,

試料Dは0.6 mgの総センノシドが検出された(図4)。また、10分間の抽出では、センノシド含量の94～100%が溶出していた。

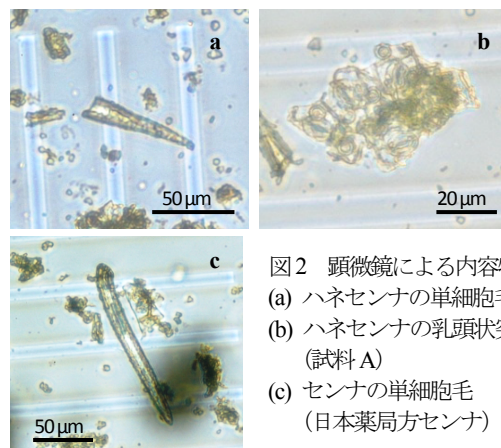


図2 顕微鏡による内容物の観察
(a) ハネセンナの単細胞毛(試料A)
(b) ハネセンナの乳頭状突起(試料A)
(c) センナの単細胞毛(日本薬局方センナ)

表2 ティーバッグタイプ製品のセンノシド含量

試料	センノシドA (mg/g)	センノシドB (mg/g)	総センノシド	
			(mg/g)	1包量(mg/包)
A	0.96	1.58	2.54	13.0
B	0.67	1.10	1.77	9.3
C	0.52	0.89	1.41	7.4
D	0.08	0.15	0.23	0.69
E	0.01	0.03	0.04	0.08

表3 粒タイプ製品のセンノシド含量

試料	センノシドA (mg/g)	センノシドB (mg/g)	総センノシド	
			(mg/g)	1日量(mg/日)
F	1.18	1.67	2.85	3.5
G	0.10	0.18	0.28	0.4
H	0.23	0.32	0.55	0.6
I	1.19	1.71	2.90	4.7

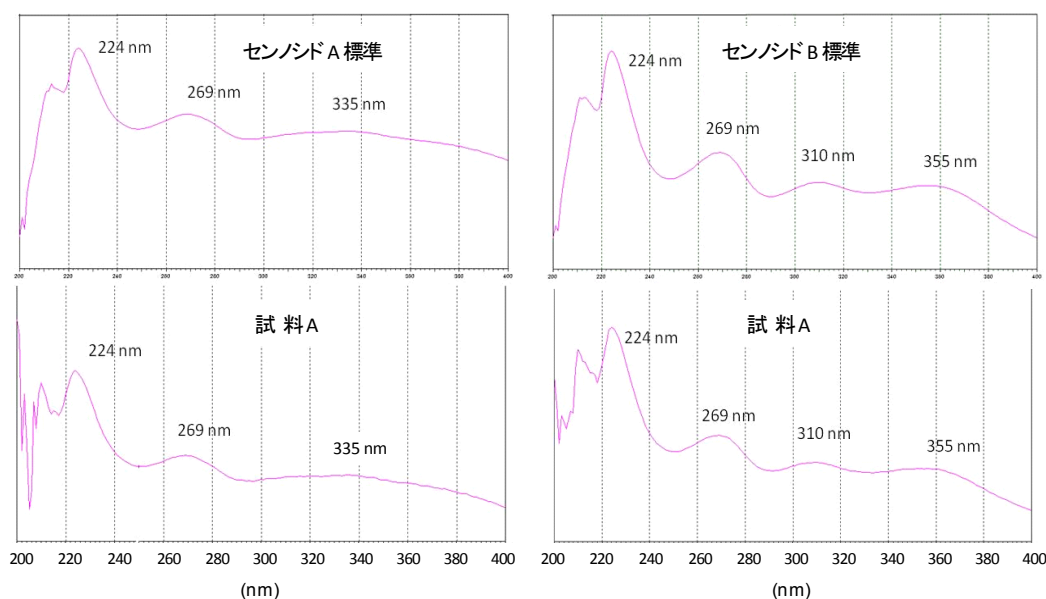


図3 センノシドA及びBのUVスペクトル

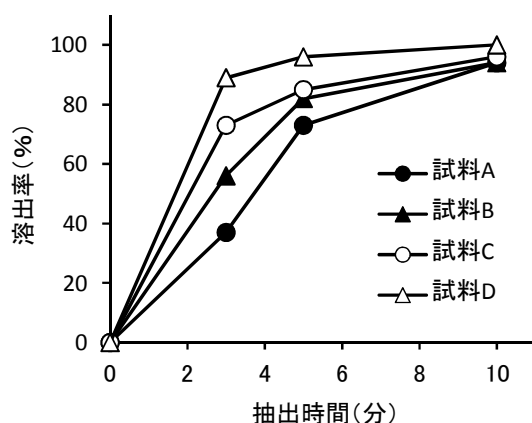


図4 熱湯中へのセンノシド溶出量

4 考 察

ハネセンナまたはセンナ茎を原材料に含む健康食品9製品から0.04~2.90 mg/gの総センノシドが検出された。相談が寄せられた製品にはティーバッグ1包あたり13.0 mgの総センノシドが含有されており、これを熱湯で抽出して飲用すると、3分抽出で4.8 mg、10分抽出で12 mgの総センノシドを摂取することになることがわかった。市販されている主なOTC医薬品(便秘薬)には、1回服用量あたり5~25 mg程度のセンノシドが含まれている(図5)。今回の事例では、ハネセンナを含む健康茶の飲用により医薬品に匹敵する量のセンノシドを摂取したことになり、これによって下痢を起こしたものと考えられた。また、今回調査を行った苦情品以外の8製品のうち、ハネセンナを原材料に含む2製品(試料B及びC)とセンナ茎を原材料に含む2製品(試料F及びI)にも相当量のセンノシドが含まれていることが明らかとなった。現状では、ハネセンナおよびセンナ茎は非専ら医薬品リストに収載されており、これを健康食品の原材料として使用しても直ちに薬事法違反にはならないが、下剤成分であるセンノシドを含有しているため、摂取にあたっては注意が必要である。今回のような事例が多発する場合には、

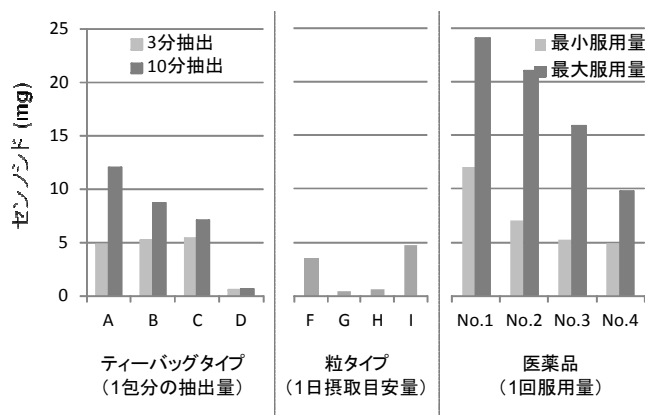


図5 センノシド摂取量の比較

医薬品 No.1~4 は、便秘薬として販売されている4種類のOTC医薬品の1回服用量に含まれるセンノシドの量を示す。

ハネセンナを専ら医薬品リストに登録変更するなどの規制措置が必要となるものと考える。

謝 辞

センナおよびハネセンナの形態観察についてご指導をいただきました岐阜薬科大学薬草園研究室の酒井英二准教授に感謝いたします。

文 献

- 1) 厚生省薬務局長通知: 医薬品の範囲に関する基準, 無承認無許可医薬品の取締りについて, 昭和46年6月1日, 薬発第476号, 1971.
- 2) 鈴木幸子, 荒金眞佐子, 吉澤政夫, 北川重美, 塩田寛子, 岸本清子 他: 健康食品に配合される *Cassia* 属植物の鑑別, 東京健安研セネ年報, 60, 91-96, 2009.
- 3) 高橋市長, 石井俊靖, 西條雅明, 長谷川貴志, 岡田博, 永田知子: *Cassia alata* L. (ハネセンナ) 各部位におけるセンノシド A, B 及びアントラキノン類の含有量, 生薬学雑誌, 64, 21-25, 2010.
- 4) 医薬品各条 生薬等 センナ, 第十六改正日本薬局方, 1533-1535, 2011.

Detection of Sennosides in Dietary Supplements

Erina KOHYAMA, Hiroyuki TADA, Hiroshi KAWAMURA

Gifu Prefectural Research Institute for Health and Environmental Sciences:
1-1, Naka-fudogaoka, Kakamigahara, Gifu, 504-0838, Japan