

オゾン酸化による人工甘味料分解の基礎的検討 第二報

Basic Study on Decomposition of Artificial Sweetener by Ozone Oxidation, Part 2

○陳冰子*、Nanthapong Chantaraprachoom*、濱崎竜英*、谷口省吾*、水野忠雄**

*：大阪産業大学，**：摂南大学

論文要旨

本研究は、回分式実験によりオゾンと4種の人工甘味料の反応量論について検討した。初期人工甘味料濃度を0.2 mmol/L、オゾン水濃度を0.0015~0.0096 mmol/Lとして2分間反応させた。スクラロースについてはほとんど分解せず、オゾンの減少も少なかったことからほとんど反応が起こっていないと考えられた。サッカリン二水和物、アスパルテーム、アセスルファムカリウムは、オゾン1 molに対して、それぞれ0.92 mol、ア 0.67 mol、1.1 mol 分解することが確認できた。

This study was conducted the stoichiometry of ozone and four kinds of artificial sweeteners by batch experiments. The reaction was carried out for 2 minutes with an initial artificial sweetener concentration of 0.2 mmol/L and an ozone concentration of 0.0015 to 0.0096 mmol/L in a reactor. Sucralose was hardly decomposed and ozone decrease was small, so it was considered that almost no reaction occurred. It was confirmed that saccharin dihydrate, aspartame and acesulfame potassium decompose 0.92 mol, 0.67 mol and 1.1 mol of ozone with respect to 1 mol of ozone, respectively.

キーワード：オゾン酸化、人工甘味料、回分式実験

1. はじめに

2019年度の前々報¹⁾では、4種の人工甘味料を対象として、オゾンを連続的に供給するオゾン酸化およびオゾン/過酸化水素による促進酸化の半回分式実験を行い、開始10分程度でいずれの人工甘味料も分解することを確認し、また促進酸化がより人工甘味料を分解することがわかった。2020年度の前報²⁾では、オゾン酸化に絞り、オゾンと人工甘味料の1つであるサッカリンの量論を確認するため、回分式実験による基礎的な検討を行った。本研究は前報²⁾で行ったサッカリンに加え、スクラロース、アスパルテームおよびアセスルファムの4種について、濃度を0.1 mmol/Lから0.2 mmol/Lに改めて回分式実験を行い、量論（オゾン消費量と人工甘味料分解量との関係）の確認を行った。実験に供した人工甘味料は、厚生労働省が食品添加物の指定添加物としているサッカリンナトリウム二水和物 ($C_7H_4NNaO_3S \cdot 2H_2O$ 、「サッカリン」と表す)、スクラロース ($C_{12}H_{19}Cl_3O_8$)、アスパルテーム ($C_{14}H_{18}N_2O_5$) およびアセスルファムカリウム ($C_4H_4KN_2O_4S$ 、「アセスルファム」と表す) の4種とした。

2. 実験方法

2.1 実験装置

前報²⁾で用いたPSA式オゾン発生器(SGA-01A-PSA4、住友精密工業株式会社製)によって発生したオゾンを、ガス洗浄瓶に入れた超純水に連続的に送入してオゾン水を生成した。この時のオゾン

ガス濃度は 50 mg/L、流量は 0.5 L/分とした。生成したオゾン水の溶存オゾン濃度は実測値で 7.4～8.8 mg/L であった。一方、人工甘味料は 0.2 mmol/L として、これを試水とした。

オゾンと人工甘味料の反応は、図-1 に示すような回分式実験装置によって実験を行った。200 mL の注射筒には、人工甘味料濃度が 0.2 mmol/L の試水を 100 mL 入れ、また注射筒内に攪拌子を入れてマグネティックスターラーで注射筒内の試水を攪拌できるようにした。

注入するオゾン水は、ガス洗浄瓶から 50 mL の注射筒で 0、10、20、30、40 および 50 mL 取り出し、その後、総量が 50 mL になるように超純水を 50 mL の注射筒内に注入して混合し、オゾン濃度が違うオゾン混合水を作成した。オゾン混合水の注入方法は、オゾン混合水 50 mL 全量を試水が入っている 200 mL の注射筒に接続して気泡が入らないように注意して注入した。このような操作で、オゾン水、超純水および試水の総量を全て 150 mL とした。筒内に気泡がないことを目視で確認した上で 2 分間攪拌し、その後、200 mL 注射筒より試水を採取して水温、pH、溶存オゾン、TOC および人工甘味料濃度を測定した。

なお、実験中の注射筒内での溶存オゾンの自己分解や微細気泡中への拡散の可能性については、前報²⁾ の実験で確認しており、本実験方法では、5 分を経過しても試水が純水であれば溶存オゾン濃度は減少せず、注射筒内の溶存オゾン濃度を保持していることがわかっている。

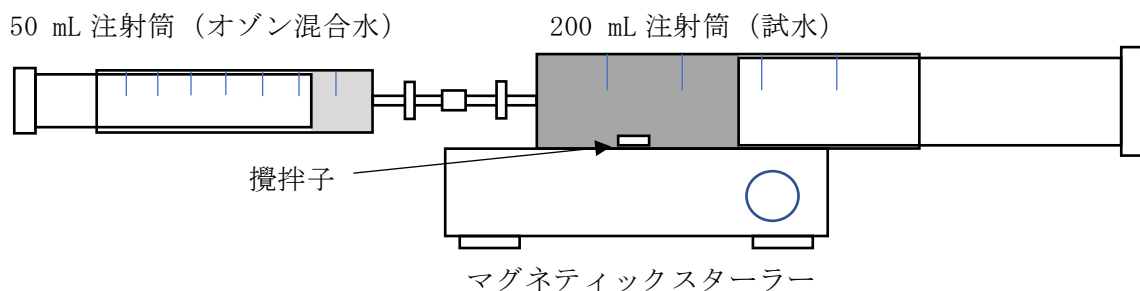


図-1 回分式実験装置の概要

2. 2 反応時間の設定

反応時間は、前報²⁾ で行った実験で得られた 2 分とした。これは 2 分で分解が終了し、2 分以上経過しても人工甘味料の濃度に変化がなかったためである。

2. 3 測定方法

溶存オゾンは、試水を採取した後、直ちにインジゴ吸光法³⁾ で測定した。併せて水温と pH を pH 計 (堀場製作所製) で測定した。TOC は、採取した試水を高純度窒素ガスで残留する溶存オゾンを排除した上で、TOC 計 (TOC-V_{CSH}、島津製作所製) を用いて NPOC 法⁴⁾ によって測定した。人工甘味料濃度は TOC と同様に溶存オゾンを排除して LC/MS/MS で測定した。LC/MS/MS の HPLC はアジレント・テクノロジー株式会社製の Agilent 1100、MS/MS は株式会社エービー・サイエックス製の 3200 QTRAP である。

3. 実験結果と考察

3. 1 pH および水温

人工甘味料原水と反応後の試水の pH を表-1 に示す。実験後の pH はいずれも低下し、オゾン量が多いとより低下した。なお、水温は 22.7～24.2°C の範囲内であった。

表-1 実験前の試水および実験後の試水の pH

人工甘味料の種類	実験前の試水の pH	実験後の試水の pH					
		オゾン水量					
		0 mL	10 mL	20 mL	30 mL	40 mL	50 mL
サッカリン	6.44	6.43	6.18	5.95	5.80	5.10	5.41
スクラロース	6.08	6.72	6.50	6.78	6.75	6.49	6.37
アスパルテーム	6.85	6.75	6.56	6.50	6.34	6.30	6.18
アセスルファム	5.75	5.55	5.03	4.83	4.83	4.73	4.83

3. 2 スクラロースについて

本研究では、4種の人工甘味料を試料とし、4種とも同様の実験を行った。しかしながら、反応器内にある0.02 mmolのスクラロースは、0.015~0.007 mmolのオゾンを経験しても、スクラロースが減少せず、スクラロースの分解を確認することができなかった。

3. 3 オゾン消費量と人工甘味料分解量との関係

オゾン消費量に対するサッカリン、アスパルテームおよびアセスルファムの分解量の関係を図-2に示す。スクラロースの分解は確認できなかったため含めていない。オゾン1 mmolに対してサッカリンは0.92 mmol、アスパルテームは0.67 mmol、アセスルファムは1.1 mmol分解することがわかった。

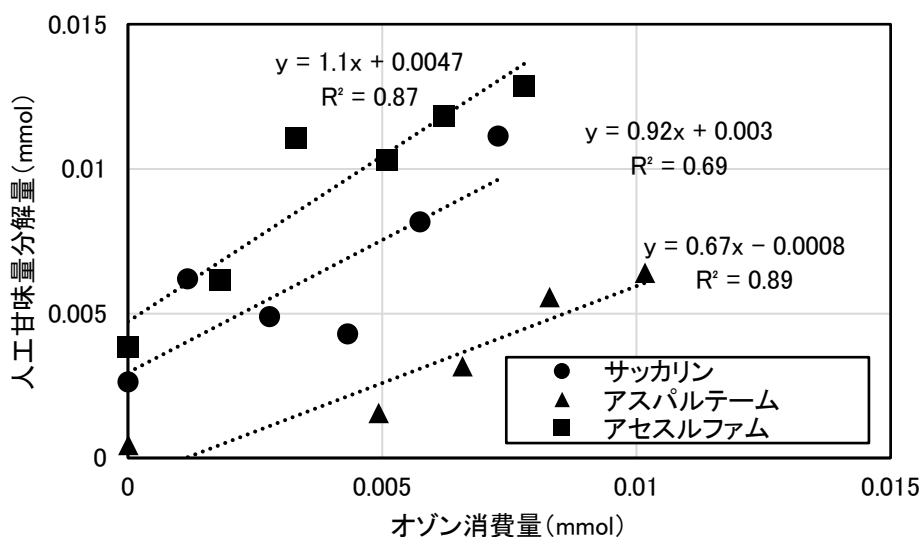


図-2 オゾン消費量とサッカリン、アスパルテームおよびアセスルファム分解量の関係

3. 4 TOC

実験前の試水および実験後の試水の TOC 濃度を表-2 に示す。ここで示す実験前の試水の TOC 濃度は、実験後の試水量 (150 mL) に換算している。実験に供した人工甘味料すべてにおいて、オゾン水量を変えても TOC 濃度はほとんど変化がなかった。

表-2 実験前の試水および実験後の試水の TOC 濃度

人工甘味料の種類	実験前の試水の TOC (mgC/L)	実験後の試水の TOC (mgC/L)					
		オゾン水量					
		0 mL	10 mL	20 mL	30 mL	40 mL	50 mL
サッカリン	11.7	11.5	12.1	11.6	11.6	11.3	11.9
スクラロース	29.5	29.6	29.3	29.3	28.5	29.3	29.7
アスパルテーム	30.1	29.1	28.8	28.3	28.1	27.2	28.8
アセスルファム	6.60	6.59	6.50	6.44	6.63	6.63	6.62

4. まとめ

本研究の結果から、オゾン 1 mol に対してサッカリンは 0.92 mol、アスパルテームは 0.67 mol、アセスルファムは 1.1 mol 分解することがわかった。一方で、同法によるスクラロースの分解は確認できなかった。また、TOC の結果から、人工甘味料が分解しても有機物の副生成物が生成されていることも改めてわかった。今後は、反応量論の精度を向上させるために、pH を調製する、*t*-ブタノールなどのスカベンジャーを用いるなどの検討を行うことにする。

参考文献

- 1) 陳冰子、李程、谷口省吾、濱崎竜英、水野忠雄：オゾン/過酸化水素処理による人工甘味料の分解，第 28 回日本オゾン協会年次研究講演集，107～110（2019）
- 2) 濱崎竜英、陳冰子、谷口省吾、橋口亜由未、水野忠雄：オゾン酸化による人工甘味料分解の基礎的検討、第 29 回日本オゾン協会年次研究講演集，17～20（2021）
- 3) 特定非営利活動法人日本オゾン協会：オゾン濃度測定方法-改訂版（2016）
- 4) 島津製作所 Web サイト「NPOC（不揮発性有機炭素）の測定」
<http://www.an.shimadzu.co.jp/enviro/water/toc/prncpl-s.htm>（2021 年 8 月閲覧）