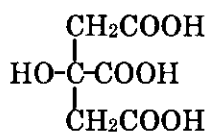
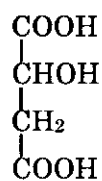


Fig. 7. 各種酸共存下における次亜塩素酸処理カットキャベツ中のクロロホルム生成量

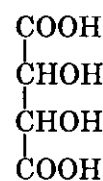
クエン酸



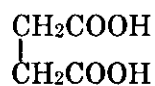
DL-リンゴ酸



DL-酒石酸



コハク酸



フマル酸

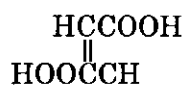


Fig. 8. 有機酸の構造式.

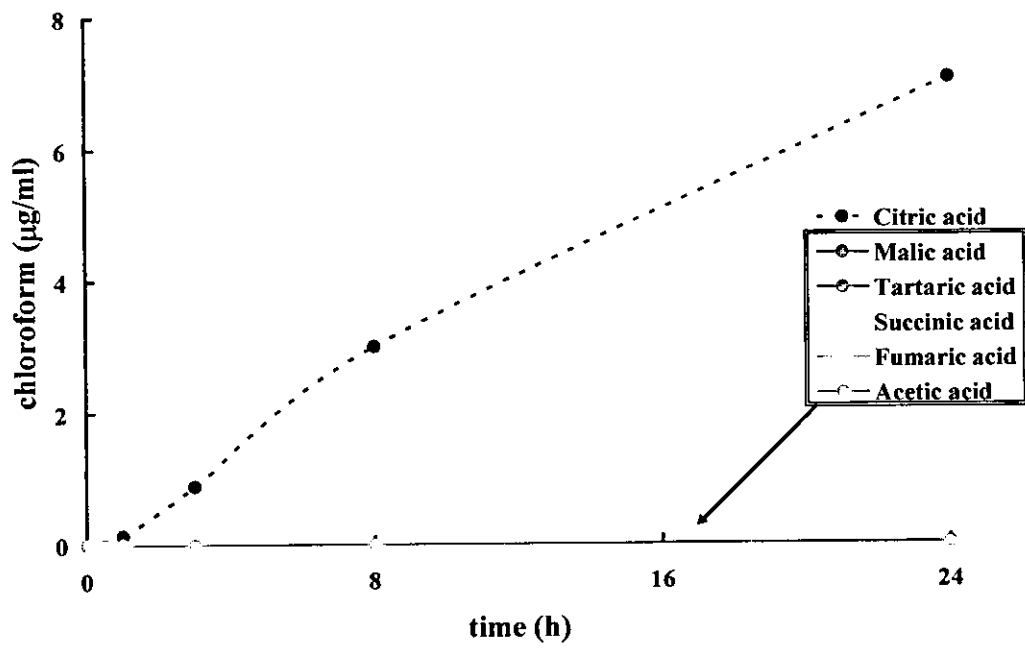


Fig. 9. 次亜塩素酸ナトリウムと有機酸混合液におけるクロロホルム生成量の経時変化

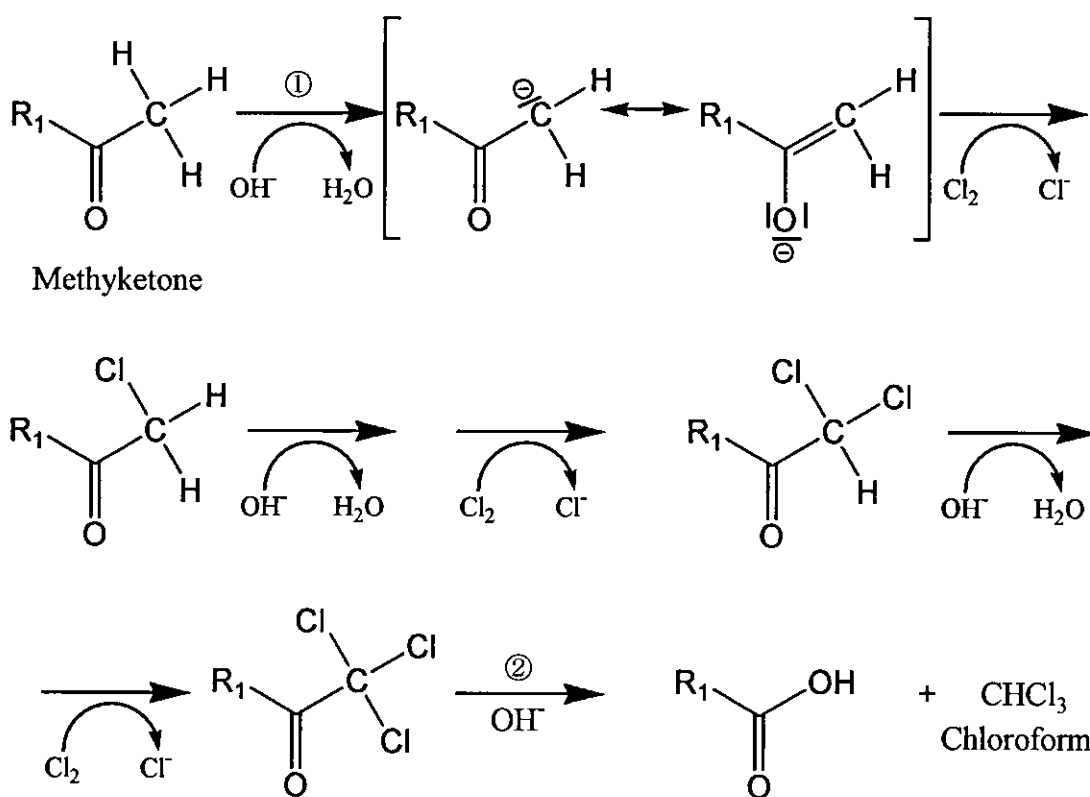
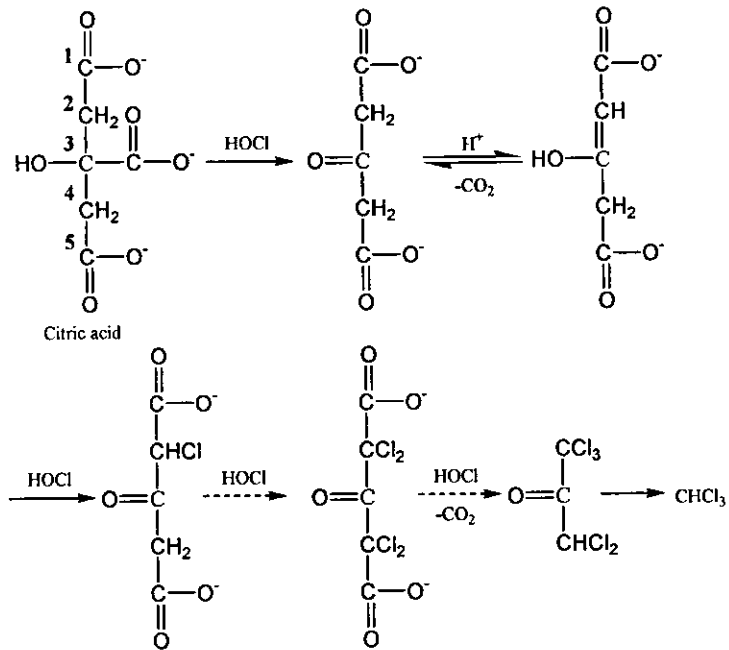


Fig. 10. ハロホルム反応の反応メカニズム(2)

a) In acidic solution



b) In basic solution

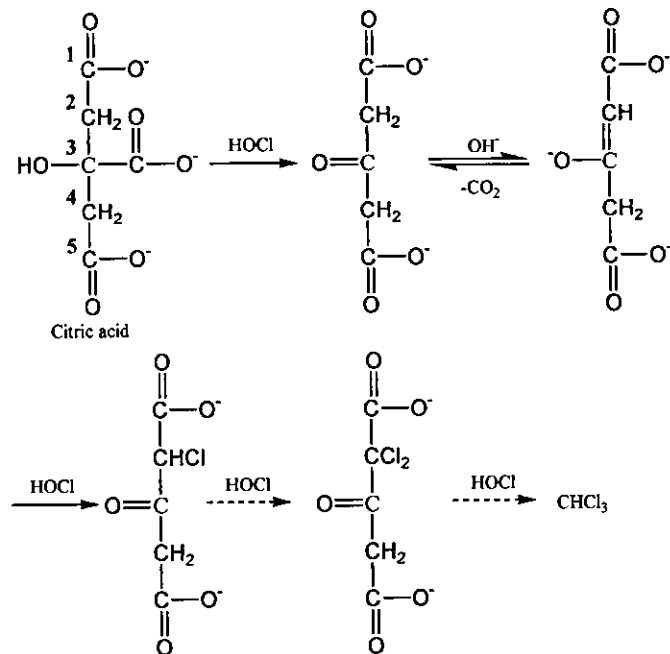


Fig. 11. 次亜塩素酸・クエン酸混液におけるクロロホルム生成メカニズムの仮説
 a) 酸性溶液中²⁹⁾, b) 塩基性溶液中

Table 1. 添加回収試験

No.	Compounds	Amount of added VOCs			
		10ng/g 平均(ng/g)* CV(%)		100ng/g 平均(ng/g) CV(%)	
1.	1,1-Dichloroethylene	10.0	0.8	101.3	0.7
2.	Dichloromethane	10.7	1.4	106.5	0.6
3.	t-1,2-Dichloroethylene	10.0	0.9	100.5	0.5
4.	c-1,2-Dichloroethylene	10.3	0.8	103.4	0.4
5.	Chloroform	10.2	0.9	102.4	0.5
6.	1,1,1-Trichloroethane	9.7	0.6	99.0	0.7
7.	Carbon Tetrachloride	9.4	1.1	97.1	1.7
8.	1,2-Dichloroethane	10.9	1.0	107.6	0.7
9.	Benzene	10.2	0.5	101.4	0.4
10.	Trichloroethylene	9.7	0.5	96.5	0.2
11.	1,2-Dichloropropane	10.6	1.2	104.3	0.5
12.	Bromodichloromethane	10.3	1.1	101.8	0.9
13.	c-1,3-Dichloropropene	9.7	2.0	95.4	1.5
14.	Toluene	9.6	0.7	94.2	0.3
15.	t-1,3-Dichloropropene	9.9	1.8	98.8	0.8
16.	1,1,2-Trichloroethane	10.7	2.0	104.5	0.7
17.	Tetrachloroethylene	8.1	2.5	83.5	1.8
18.	Dibromochloromethane	10.1	1.1	99.1	1.7
19+20.	m,p-Xylene	8.2	2.9	77.8	2.0
21.	o-Xylene	8.1	2.9	76.1	1.7
22.	Bromoform	9.5	2.0	95.1	3.3
23.	p-Dichlorobenzene	7.6	1.8	72.6	1.5

* n=5

Table 2. 次亜塩素酸処理により生成したクロロホルムの水洗浄による除去効果

Process	Chlorine only		Chlorine + Citric acid (pH 6)	
	Avg.*1	CV	Avg.	CV
Control	8.8	0.0	—	—
Chlorine treatmet	31.9	1.8	366.0	15.8
Water rinse*2	16.2	0.8	17.9	0.8

*1 n=3

*2 MilliQ 水 20ml で 3 回 30 秒洗浄

Ⅲ. 研究成果の刊行に関する一覧表

雑誌

発表者氏名	論文タイトル名	発表誌名	巻号	ページ	出版年
四方田千佳子	マーケットバスケット 方式による甘味料及び 保存料等の摂取量調査	JAFAN	24	299-310	2005

IV. 研究成果の刊行物・別刷

マーケットバスケット方式による甘味料及び保存料等の摂取量調査

四方田千佳子*

国立医薬品食品衛生研究所食品添加物部

〔第25回食品添加物技術フォーラム
平成16年12月1日、於 佐々木研究所メモリアルホール〕

はじめに

マーケットバスケット法による食品添加物の一日摂取量調査は、1981年に当時の厚生省食品化学課および国立衛生試験所大阪支所により開始され、長期間に渡る貴重なデータが蓄積されてきた¹⁾。平成14年度より、国立医薬品食品衛生研究所食品添加物部で、6つの地方衛生研究所のご協力により、新たに調査を継承することとなった。将来の食品添加物の摂取量調査のあり方を考えることを目的として調査に当たり、食品群は原則として従来の加工食品群を使用すること、食品群調製時に購入した個々の食品について、添加物使用の表示のあるものについては可能な限り個別食品中の添加物含量を測定し、食品群の分析結果と比較しながら調査を進めてきた。

まず、2003年は、最近相次いで指定された甘味料について調査を行った。天然に存在しない甘味料アセスルファムカリウム (ASK)、アスパルテーム (ASP)、サッカリンナトリウム (SAC)、スクラロース (SUC)、天然にも存在することが知られているキシリトール (XYL)、グリチルリチン酸 (GLY)、ソルビトール (SOL)、マンニトール (MAN) を取り上げた。2004年は、保存料と着色料について調査を行うこととし、天然に存在しない

保存料であるソルビン酸 (SB)、パラオキシ安息香酸エステル類 (PB)、天然にも存在する保存料の亜硫酸 (SF)、安息香酸 (BA)、プロピオン酸 (PA)、着色料のノルビキシン (NB) (水溶性アナトー、アナトー色素)、食用タール色素 (FC) を取り上げた。個々の摂取量値についてはすでに厚生労働省のホームページで公表されているが、本報告ではさらに詳細なデータを示し、概説する。

1. 調査方法

(1) 加工食品群の改訂

加工食品群は1981年に初めて作成されてから、10年後の1991年に食品組成が改訂されている。その後すでに11年を経過していたため、基本的な部分はそのままに、平成12年度国民栄養調査結果²⁾並びに平成14年版食品産業統計年表³⁾に基づいて、食品採取量を改定した。1群から7群までの食品組成では、統計上無視できない食品を新たに追加した。1群では発泡酒、2群では冷凍食品 (米飯類)、3群ではその他のナッツである。改訂後の食品群は1~7群、総食品数は149、製品数が347となった (表1)。

(2) 各食品群の調製と送付

地方衛生研究所6機関において食品喫食量リス

* よもたちかこ、昭和53年3月 京都大学大学院薬学研究科修士課程製薬化学専攻修了、昭和53年4月 国立衛生試験所大阪支所薬品部入所、平成3年9月 薬品試験部第一室長、平成13年12月 国立医薬品食品衛生研究所食品添加物部第一室長、薬学博士

表1 加工食品群食品群別喫食量

	食品群	食品数	製品数	喫食量 (g)	群毎喫食量	調製時希釈
第1群	調味嗜好飲料	32	86	386.7	386.7	希釈なし
第2群	穀類	28	50	117.1	117.1	2倍希釈
第3群	いも類	5	7	18.1	89.6	2倍希釈
	豆類	7	17	70.3		
	種実類	4	4	1.2		
第4群	魚介類	20	50	41.1	54.9	2倍希釈
	肉類	7	21	13.8		
第5群	油脂類	6	16	16.4	77.1	2倍希釈
	乳類	7	21	60.7		
第6群	砂糖類	1	3	1.4	43.4	2倍希釈
	菓子類	10	34	42.0		
第7群	果実類	7	9	1.79	30.6	2倍希釈
	野菜類	10	22	26.1		
	海藻類	5	7	2.7		
	総計	149	347	799.4		

トに基づき食品を購入し、7食品群に分け、1群以外は混合するために等量の水を加え、均質磨砕したものを試料とした。容器に約100gずつ分注し、各群2本ずつを各機関に冷凍状態で送付した。また、個々の食品に調査対象添加物の表示があるものは、食品群の送付時に併せて、必要な量を形態に応じて冷凍あるいは冷蔵で各食品添加物の分析担当機関に送付した。各食品添加物の分析は国立医薬品食品衛生研究所を含む7機関で分担した。

(3) 各食品添加物の分析法

甘味料の分析法は、通知法のあるものはほぼその方法に従ったが、SUC, XYL, SOL, MANの糖類は高感度であるパルスドアンペロメトリック検出器 (PAD) を使用し、従来の摂取量調査で使用されてきた方法¹⁾に準じて分析した。各食品群での添加回収率はいずれも良好であったが、SOL, MANでは回収率が100%を越える場合もあり、何らかの妨害ピークを捉えている可能性も考えられ

た。保存料では、ほぼ通知法に従い水蒸気蒸留が行われたが、PBの2, 4, 5, 6群の分析にあたっては溶媒抽出法が使用された。NBは、岡らの方法²⁾に従い、必要に応じて、脱脂、1%NH₃・70%エタノール抽出、C18カートリッジ精製後、HPLC (454nm) で測定した。食用タール色素は、最近の摂取量調査で用いられてきた方法³⁾を一部簡略化し、HPLCで測定した。

2. 甘味料の摂取量値

2003年に調査した甘味料の、従来のマーケットバスケット方式に従って食品群を分析した結果から、食品群中の含有量に喫食量を乗じて算出した一日摂取量 (以後摂取量Aと記載する) を計算し、群別機関平均一日摂取量として表2に示した。各摂取量値は、6機関により調製された各食品群の分析値から得た摂取量の平均値を表している。さらに、食品群を調製する際に購入した食品のうち調査対象とした甘味料の表示のあった個別食品に

表2 甘味料の群別機関平均一日摂取量 (摂取量 A)

甘味料	食品群							総摂取量
	1 調味嗜好飲料	2 穀類	3 いも・豆類・種実類	4 魚介類・肉類	5 油脂類・乳類	6 砂糖類・菓子類	7 果実・野菜・海草類	
アスパルテーム	3.37	0	0	0	0.18	2.30	0	5.85 (4.03*)
アセスルファム K	0.61	0	0	0	0	0.13	0	0.74
スクラロース	0.15	0	0	0	0.06	0.09	0	0.31
サッカリンナトリウム	0	0	0	0	0	0	0.65	0.65
キシリトール	0	0	0	0	0	70.10	0	70.10
グリチルリチン酸	0.04	0	0.04	0.03	0	0.27	0.21	0.59 (0.33*)
ソルビトール	41.54	100.18	0	364.07	0	366.61	180.55	1052.95
マンニトール	42.78	0	43.70	21.42	0	14.04	45.93	167.88

*特異的に多量の甘味料が含まれていたその他の菓子を含む一機関の値を外して平均した値。

表3 甘味料の個別食品分析値から計算した群別機関平均1日摂取量 (摂取量 B)

甘味料	食品群							総摂取量
	1 調味嗜好飲料	2 穀類	3 いも・豆類・種実類	4 魚介類・肉類	5 油脂類・乳類	6 砂糖類・菓子類	7 果実・野菜・海草類	
アスパルテーム	3.314	—	—	—	0.158	3.860	—	7.33 (4.04*)
アセスルファム K	0.652	—	—	—	0.003	0.170	—	0.83
スクラロース	0.245	—	—	—	0.045	0.095	—	0.39
サッカリンナトリウム	—	—	—	—	—	—	0.738	0.74
キシリトール	—	—	—	—	—	85.500	—	85.50
グリチルリチン酸	0.134	0.000	0.072	0.040	0.000	0.164	0.064	0.47 (0.34*)
ソルビトール	0.527	37.282	3.709	192.262	—	196.618	134.057	564.45
マンニトール	0.239	—	—	—	—	0.769	—	1.01

*特異的に多量の甘味料が含まれていたその他の菓子を含む一機関の値を外して平均した値。

つき、各甘味量の含有量を測定し、個々の食品の採取量と喫食量を乗じた群別機関平均一日摂取量 (以後摂取量 B と記載する) を表3に示した。ここで、個別食品の分析値から計算上得られる摂取量値は、計算上得られた値をそのまま示すために、計算上影響は少なくともできるだけ多くの桁数を示した。表中、個別食品がなかった部分は—を示した。

(1) アスパルテーム (ASP)

摂取量 A では、ASP の総摂取量は表2に示すように5.85mg/person で、食品群ごとで見ると、1群の調味嗜好飲料、6群砂糖・菓子類、5群油脂・乳類に多かった。食品群調製時には、甘味料表示のあった個別食品は20種が使用されていたが、その含有量測定結果では、1機関でその他の菓子として購入された甘梅中の含量が17.2mg/g と飛び

抜けて多かった。その他の食品ではスポーツドリンクの0.04mg/gからガムの2.62mg/gの範囲にあり、食品の半数がダイエット飲料で、その他、氷菓、飴、発酵乳であった。なお、ASPは他の甘味料と併用されることも多いが、単独で使用されるケースも認められた。摂取量Bでは、ASPの総摂取量は、7.33mg/personであり(表3)、摂取量Aは摂取量Bの80%となった。食品群からの分析では、食品中よりも食品添加物濃度が希釈され、複雑な食品成分で個別食品よりも分析が難しいために回収率が低下し、摂取量を少な目に評価していると思われるが、摂取量Aでも、ほぼ実態を捉えることが可能であると思われた。ここで、ASPの個別食品中の含有量が異常に高い甘梅を含む1機関の摂取量値を外して5機関の平均値から総摂取量値を計算し、表2、3の総摂取量値の後に()内に示した。表2では3割、表3では4割の減少が見られ、ほぼ同じ値となった。これは、特異な例ではあるが、数が限られたサンプリングで食品群を構成しているマーケットバスケット法では、食品の選択によっては値が大きく変動する危険性があることを示している。ただし、個別食品の分析をしなくても、甘梅を採取した1機関の6群の摂取量が異常に高いことから判断することが不可能ではない。以後、ASPの総摂取量値は、全機関平均値と5機関による平均値の両方を示すこととする。

(2) アセスルファミカリウム (ASK)

摂取量Aでは、ASKの総摂取量は0.74mg/personで、1群の調味嗜好飲料、6群砂糖・菓子類の順であった。個別食品では、14食品を測定した結果、含有量は0.01~1.18mg/gの範囲にあり、ガムでの含量が多く、その他、ダイエット飲料、飴、ドレッシングに使用されていた。なお、ASKは、他のASPやSUC、糖アルコール類、砂糖等と併用されることが多く、甘味料として単独で用いられているものは見あたらなかった。摂取量Bは、0.83mg/personであり、摂取量Aは摂取量Bの

89%であった。これも食品群の分析値からほぼ適切な摂取量が評価されていると思われる。ASKは平成12年に食品添加物として指定されており、これが初めての摂取量調査である。

(3) スクラロース (SUC)

摂取量Aでは、SUCの総摂取量は0.31mg/personであった。個別食品は表示のあった26食品の分析を実施し、含有量は3.4~308μg/gの範囲で、チューインガムと飴に多く使われているが、含量は他の甘味料に比べて桁違いに少ない。ASKと同様にその他の糖アルコール類、甘味料と併用されることも多く、甘みも強いと思われる。摂取量Bは、0.39mg/personであり、摂取量Aは摂取量Bの80%であった。スクラロースは他の合成甘味料と比較して食品中の含有量が少なく、食品群として希釈されると、定量限界以下となる食品群も認められた。調味嗜好飲料では6機関中5機関からSUCを含む食品が購入され、個別食品では検出されているにもかかわらず、食品群では、2機関の食品群で測定されたにすぎなかった。見かけ上、食品群の分析から得られた総摂取量は、個別食品から得られる総摂取量とそれほど乖離はしていない。SUCは平成11年に指定された添加物で、摂取量調査は始めて実施されたものである。

(4) サッカリンナトリウム (SAC)

SACの摂取量Aは0.65mg/personであった。SACと表示のあった3個の食品はすべて漬け物類で、含有量は5.8~586.0μg/gの範囲にあった。摂取量Bでの総摂取量は、0.74mg/personであり、摂取量Aは摂取量Bの88%であった。食品群からの分析では、摂取量を少な目に評価する傾向はあるが、サッカリンナトリウムの定量限界は、他の甘味料に較べて小さく、実態を捉えることが可能であった。ここで、1機関では、SACを表示した食品が無かったにも関わらずSACが検出され、GC/MSで確認された。含有量が少ないため、表示違反というより、キャリーオーバー等が考えられた。今回の調査も含め、ここ10年間の調査でSAC

は中四国、九州、沖縄地区のみから検出されており、SACの摂取は西高東低の傾向が認められた。

(5) キシリトール (XYL)

摂取量Aでの、XYLの総摂取量は70.1mg/personであった。XYL表示のあった食品は6群のみの12食品で、飴が3個、他はチューインガムで、XYLの含有量は16~465mg/gの範囲にあり、チューインガム中の含有量は製品により30倍以上異なっていた。XYL含有食品の半数はASPを併用し、同時にマルチトール、SUC、ASK等も数種同時に使用されていた。摂取量Bは、86mg/personであり、摂取量Aはこの82%であった。食品群からの分析では、やや妨害物質が見られ、ピークの切り方が難しい場合もあり、摂取量を少な目に見積もったと考えられる。

(6) グリチルリチン酸 (GLY)

摂取量AではGLYの総摂取量は、0.59mg/personで、2、5群以外のすべてから検出された。購入された食品の中には、GLY表示があるものはなかった。GLYを含むカンゾウおよびカンゾウ抽出物と表示のあった食品は63食品で、4群の水産加工食品に多く、5群以外のすべての食品群に属していた。最高含有量はASKを特異的に多く含んでいた甘梅の532mg/kgで、その他、味噌、醤油、たくあん、スナック菓子等に多く、含有量0~117.6mg/kg、平均36.4mg/kgで、表示があっても検出されなかった食品も6個あった。摂取量Bは、0.47mg/personであり、摂取量Bの方がやや少なくなった。検出限界が1群で0.5mg/kg、それ以外の食品群で1mg/kgであることを考慮すると、GLYは、食品群として希釈されてからの検出はかなり困難な添加物であると思われた。

(7) ソルビトール (SOL)

摂取量Aでは、SOLは3群と5群からは検出されず、1群も1機関の食品群からのみ検出され、総摂取量は1053mg/personと多かった。表示のあった125食品のSOL含有量は、最大162.75mg/gで、8食品からは検出されなかった。摂取量B

は、564mg/personで、摂取量Aの53.6%であった。食品群分析では、かなりの量の天然由来SOLを含んでいるためと考えられた。

(8) マンニトール (MAN)

摂取量Aでは、MANの総摂取量は167.88mg/personであった。4個の個別食品中のMAN含有量は、調味料1製品では54.98mg/gで、チューインガム3個で1.81~8.80mg/gと少なかった。摂取量Bは、1.01mg/personで、摂取量Aのわずか0.6%となり、MANの摂取量はほとんど天然由来であると考えられた。

3. 甘味料における過去の摂取量調査およびADIとの比較

8種甘味料に関するマーケットバスケット法による1997年以後の摂取量調査結果¹⁾と生産量統計を基にした摂取量⁵⁾をまとめて表4に示した。1997年、1998年度は、加工食品群による結果である。1999年は従来のマーケットバスケット法ではなく、加工食品と生鮮食品を混合した食品群で年齢別に調査が行われ、食品の採取量も異なることから比較には注意を要するが、今回はすべて成人の値を代表値として記載した。ASPは、1983年に指定されてから、他に1994年には2.20mg/personの値が得られている。2003年の調査結果では異常値を除いた()内の摂取量でもやや増加傾向にあると思われた。ASKとSUCでは、マーケットバスケット法では初めての調査であり、生産量統計からの摂取量もまだ現時点では報告されていないため、比較値がない。SACのマーケットバスケット方式による摂取量調査は1982年以来5回実施されており、ここには示さなかったが、1982年には0.906mg/person、その後ゆるやかな減少傾向を示していた。1997年度の調査は、2.88mg/person]と特異的に大きな摂取量値が得られており、その後の減少とも考え合わせると、何らかの異常値と推測される。XYLでは、1997年に添加物として指定され、1998年に加工食品群における摂取量調査が

表4 甘味料一日摂取量の過去の調査結果との比較

甘味料	マーケットバスケット方式				生産量統計を 基にした摂取 量 (1999年)
	2003年度	1997年度	1998年度	1999年成人***	
	mg/person				
アスパルテーム	5.85 (4.03*)	2.64	—	2.55	3.65
アセスルファム K	0.74	—	—	—	—
スクラロース	0.31	—	—	—	—
サッカリンナトリウム	0.65	2.88	—	0.76	3.69
キシリトール	70.10	—	115.14	9.75***	85.50
グリチルリチン酸	0.59	—	2.907	0.301	0.074
ソルビトール	1052.95	—	1309.80	895.00	1259.00
マンニトール	167.88	—	192.41	1006.00	4.69

*特異的に多量の甘味料が含まれていた菓子を含む一機関の値を外して平均した値。
**1999年度調査では食品群は加工食品と生鮮食品の両方を含み組成もかなり異なる。
***1999年度調査ではキシリトールを含有する食品の採取量が大きく異なる。

表5 甘味料の一日許容摂取量との比較

甘味料	一日摂取量 (mg/person)	ADI (mg/kg body weight)	一日許容摂取量 (mg/50kg)	摂取量/許容量 (%)
アスパルテーム	5.85	40	2000	0.29
アセスルファム K	0.74	15	750	0.10
スクラロース	0.31	15	750	0.04
サッカリンナトリウム	0.65	5	250	0.26
キシリトール	70.10	特定せず		
グリチルリチン酸	0.59	—		
ソルビトール	1052.95	特定せず		
マンニトール	167.88	特定せず		

実施され、115.1mg/personの摂取量が得られている。2003年の摂取量の方がやや小さくなったが、他の甘味料の指定による影響とも考えられた。1999年のXYLの摂取量は、他の2回の値とも、1999年の生産量統計をもとにした摂取量とも大きく異なっている。1999年の摂取量調査では、ガムや飴の採取量が極端に少ないが、それだけではこの減少は説明できなかった。GLYでは、生産量統計はGLYとしての量を基にしているので比較はできないが、マーケットバスケット法の値の変動

は、測定の困難さによる可能性が考えられる。SOLでは、摂取量の年次推移はあまり認められない。MANでは、1998年度の値と2003年の値はほぼ同程度で妥当と思われた。MANは天然含有量が大半であるために、生産量統計からの値はとて小さくなっている。

甘味料のADIと摂取量値を比較し、表5に示した。ADIの設定されているASP, ASK, SUC, SACでは、許容量に対する摂取量値は0.04~0.29%であり、摂取量は問題にならないほど少ないことが

明らかとなった。XYL, SOL, MAN では ADI は特定されておらず, GLY は評価されていない。

4. 各保存料と着色料の摂取量値

2004年に調査した各食品添加物の, 摂取量 A を表 6 に, 摂取量 B を表 7 に示した。ここで, 個別食品の分析値から計算上得られる摂取量値は, できるだけ多くの桁数を示した。

(1) ソルビン酸 (SB)

摂取量 A での, SB の総摂取量は 13.56mg/person であった。なお, SB の機関別の総摂取量は香

川, 北九州, 沖縄において 15.8~23.5mg, 札幌, 仙台, 東京において 2.8~10.2mg と, 西高東低であった。SB の表示のあった, いかくん製, 魚介佃煮, 魚介漬物, ソーセージ, 漬物類及び昆布佃煮の個別食品 68 個中 66 個から SB が検出され, 食品中含有量は 0.020~1.231mg/g の範囲にあった。摂取量 B では 12.23mg/person であり, 摂取量 A の 90.2% であった。食品群からの分析でも, ほほ摂取量を評価可能であった。

表 6 各食品添加物の群別機関平均一日摂取量 (摂取量 A)

食品添加物	食 品 群							総摂取量 mg/person
	1 調味嗜好飲料	2 穀類	3 いも・豆類・種実類	4 魚介類・肉類	5 油脂類・乳類	6 砂糖類・菓子類	7 果実・野菜・海藻類	
ソルビン酸	0	0.459	0	7.736	0	0.781	4.580	13.555
パラオキシ安息香酸エチル	0	0	0	0	0	0	0	0
パラオキシ安息香酸プロピル	0	0	0	0	0	0	0	0
パラオキシ安息香酸イソプロピル	0	0	0	0	0	0	0	0
パラオキシ安息香酸ブチル	0	0	0	0	0	0	0	0
パラオキシ安息香酸イソブチル	0	0	0	0	0	0	0	0
亜硫酸	0	0	0	0	0	0	0.154	0.154
安息香酸	2.844	0.062	0.135	0.033	0.440	0.047	0.026	3.588
プロピオン酸	0.789	1.828	0.058	0.042	0.149	0.170	0.036	3.073
ノルビキシン (水溶性ア ナトー, アナトー色素)	0	0	0	0.0066	0	0.0095	0	0.0161
食用赤色 2 号	0.0056	0	0	0	0	0	0	0.0056
食用赤色 3 号	0	0	0	0.0098	0	0	0	0.0098
食用赤色 40 号	0.0073	0	0	0	0	0	0	0.0073
食用赤色 102 号	0	0	0	0.0382	0	0	0.0202	0.0584
食用赤色 104 号	0	0	0	0	0	0.0009	0.0136	0.0145
食用赤色 105 号	0	0	0	0	0	0	0	0
食用赤色 106 号	0	0	0	0.0083	0	0	0.0029	0.0112
食用黄色 4 号	0	0.0053	0.0116	0.0057	0.0015	0.0012	0.4441	0.4694
食用黄色 5 号	0	0	0	0.0216	0.0025	0	0.0424	0.0665
食用緑色 3 号	0	0	0	0	0	0	0	0
食用青色 1 号	0.0024	0.0005	0.0017	0	0.0014	0.0005	0.0097	0.0162
食用青色 2 号	0	0	0	0	0	0	0	0

(2) パラオキシ安息香酸エステル類 (PB)

PB (パラオキシ安息香酸エチル, パラオキシ安息香酸イソプロピル, パラオキシ安息香酸 n-プロピル, パラオキシ安息香酸イソブチル, パラオキシ安息香酸 n-ブチル) の食品群中の含有量測定では, PB は検出されなかった。従って, 総摂取量は 0 mg/person であった。PB 表示のあった食品は希釈飲料 1 品目のみで, パラオキシ安息香酸 n-ブチルを 17.68µg/g 検出した。摂取量 B ではパラオキシ安息香酸 n-ブチルのみが 0.001mg/person であった。ここで, パラオキシ安息香酸ブチルが 1 品

目含まれていた 1 群では, 計算上の食品群中の含有量は 0.015µg/g となり, パラオキシ安息香酸ブチルの検出限界 0.020µg/g よりも小さい。従って, マーケットバスケット方式では摂取量値として表れない。

(3) 亜硫酸 (SF)

摂取量 A では, SF の総摂取量は 0.154mg/person で, 7 群のみから検出され, 検出されなかった 1 機関の食品購入リストでは, かんぴょうは無添加かんぴょうであった。個別食品中の SF 含有量の測定では, 「亜硫酸塩等」の表示のある果実酒, 甘

表 7 各食品添加物の個別食品分析値から計算した群別機関平均 1 日摂取量 (摂取量 B)

食品添加物	食 品 群							総摂取量 mg/person
	1 調味嗜好飲料	2 穀類	3 いも・豆類・種実類	4 魚介類・肉類	5 油脂類・乳類	6 砂糖類・菓子類	7 果実・野菜・海藻類	
ソルビン酸	0	0.364	0	6.942	0	0.696	4.226	12.228
パラオキシ安息香酸エチル	0	0	0	0	0	0	0	0
パラオキシ安息香酸プロピル	0	0	0	0	0	0	0	0
パラオキシ安息香酸イソプロピル	0	0	0	0	0	0	0	0
パラオキシ安息香酸ブチル	0.001	0	0	0	0	0	0	0.001
パラオキシ安息香酸イソブチル	0	0	0	0	0	0	0	0
亜硫酸	0.223	0	0	0.001	0	0.018	0.281	0.523
安息香酸	2.719	0	0	0	0	0	0	2.331
プロピオン酸	0	1.204	0	0	0	0	0	1.204
ノルピキシシ (水溶性ア ナトー, アナトー色素)	0.00023	0.00035	0.00003	0.01439	0.00569	0.00756	0.00006	0.02830
食用赤色 2 号	0.00630	0	0	0	0	0	0	0.00630
食用赤色 3 号	0	0	0	0.00591	0	0.00006	0.000002	0.00597
食用赤色 40 号	0.00991	0	0	0	0	0	0	0.00991
食用赤色 102 号	0	0.00005	0	0.04128	0	0.00018	0.02746	0.06897
食用赤色 104 号	0	0	0	0	0	0.00033	0.01480	0.01513
食用赤色 105 号	0	0	0	0	0	0	0	0
食用赤色 106 号	0	0	0	0.00989	0	0	0.00484	0.01472
食用黄色 4 号	0.00064	0.00590	0.00729	0.00722	0.00238	0.00049	0.40513	0.42906
食用黄色 5 号	0	0	0	0.02226	0.00357	0.00005	0.04073	0.06661
食用緑色 3 号	0	0	0	0	0	0	0	0
食用青色 1 号	0.00334	0.00109	0.00238	0	0.00271	0.00022	0.00750	0.01724
食用青色 2 号	0	0	0	0	0	0	0	0

納豆、乾燥果実、かんぴょう等28製品中25製品から亜硫酸を検出し、含有量は4.8~2265.2 $\mu\text{g/g}$ であった。個別食品の分析からは、食品群の分析で検出された7群以外に、1群、4群、6群から明らかに定量限界以上の濃度で測定され、食品群における分析と大きく異なる結果が得られた。摂取量Bは0.523mg/personであり、摂取量Aの3.4倍となった。SFは、分解や揮散しやすいと報告されており、食品群の調製時に大きく減少する可能性が示された。7群で検出されたかんぴょう由来のSFは、調理により大部分が分解する事が知られ、他方、ワイン中のSFはそのまま摂取されることを考慮すると、SFの摂取量調査では、マーケットバスケット法は適切な方法とは言えない。

(4) 安息香酸 (BA)

摂取量Aでは、BAの総摂取量は3.588mg/personで、全機関殆どの群から検出された。

個別食品中でBA表示のあった食品は1群のみであり、コーラ、果汁着色飲料、果汁飲料、透明炭酸飲料などの24製品全てから検出された。食品中のBA含有量は0.11~0.32mg/gで、摂取量Bは2.719mg/personとなり、摂取量Aの75.8%であった。1群のみの摂取量で比較すると、摂取量Bは、摂取量Aの95.6%とほぼ一致する値が得られており、食品群の分析から得られた摂取量の20%程度が天然由来のBAであると考えられた。BAの天然由来としては、牛乳中の馬尿酸の微生物分解、植物中のBA配糖体、着香料のベンツアルデヒドの分解による生成等が考えられる。BAでは、マーケットバスケット法によりほぼ妥当な摂取量値を測定できると考えられた。

(5) プロピオン酸 (PA)

PAと表示のある個別食品は、食パン2製品とその他のパンの2製品で、すべて南部の1機関で購入されたものであった。食品中のPA含有量は0.29~0.36g/kgの範囲にあった。PAは全群から摂取されているが、パンを含む2群からの摂取が多かった。摂取量Aは3.073mg/personであった

が、摂取量Bは1.204mg/personで、摂取量Aの39.2%に相当した。表示のあるパンを含む1機関の2群摂取量値を比較すると、摂取量Aは摂取量Bの81.3%となり、マーケットバスケット法による評価は可能と思われた。全体としては、プロピオン酸は植物界ではエステルとして精油などに広く分布し、種々の微生物の代謝産物として発酵食品等にも含まれている等、天然に存在するPAの影響が大きい。食品群の分析結果から、PA表示パンを含んでいた1機関の平均値を除外すると摂取量Aは2.263mg/personとなり、これがほぼ天然由来の摂取量に相当すると思われた。

(6) ノルピキシシ (NB)

我が国では、水溶性アナトーやアナトー色素の主成分は、ほとんどがNBであるとされている。食品群分析では、NBは、2機関の4群、1機関の6群からのみ検出され、その他は定量下限値以下で、NBの摂取量Aは、総摂取量として0.016mg/personであった。食品の分析では、アナトー色素の表示のあった、ふりかけ、アイスマルク、ラクトアイスなどの38製品中36製品、カロチノイド色素の表示のあった35製品中8製品から0.2 $\mu\text{g/g}$ ~77 $\mu\text{g/g}$ のNBを検出した。摂取量Bでは、総摂取量は0.028mg/personであり、摂取量Aは摂取量Bの56.9%であった。食品群からの分析では、個別食品による分析よりも摂取量を少な目に評価する傾向があり、分析中にHPLCピークの経時的変化が見られるなどの複雑な要因も重なって、マーケットバスケット法ではNBの適切な摂取量の評価は難しいと思われた。

(7) 食用タール色素 (FC)

FCの食品群の分析では、赤色2号、赤色3号、赤色40号、赤色102号、赤色104号、赤色106号、黄色4号、黄色5号、青色1号の9種類が検出され、赤色105号、緑色3号、青色2号は検出されなかった。以後、検出されなかったものは表に示さなかった。摂取量Aでは、赤色2号の0.0056mg/personから黄色4号の0.4694mg/personの範囲にあっ

た。赤色106号は1機関を除く全機関から、赤色102号、赤色104号、黄色4号、黄色5号、青色1号は全機関から検出され、4群、7群の割合が大きかった。FCの表示があった食品は、たらこ、魚肉ハムソーセージ、たくあんその他の73製品で、全てからFCを0.04~340 μ g/g検出した。ただし、複数色素の記載のあった1食品では、青色2号を検出しなかった。摂取量Aは0.0056~0.4694mg/personであり、摂取量Bは0.0060~0.4287mg/personで、摂取量Aの74~164%（赤色3号以外では74~

109%）であった。いずれの色素も両摂取量は同程度の値となり、FCの摂取量は、マーケットバスケット方式でほぼ評価可能と思われた。ただし、赤色3号は含有量も少なく測定誤差が大きかったものと思われた。

5. 保存料、色素における過去の摂取量調査およびADIとの比較

1997年以降のマーケットバスケット法による摂取量調査結果¹⁾と1999年度の生産量統計をもとに

表8 各食品添加物の一日摂取量と過去の調査結果との比較

食品添加物	マーケットバスケット方式				生産量統計を基にした摂取量 (1999年)
	2003年度	1997年度	1998年度	1999年成人*	
ソルビン酸	13.6	19.6	—	17.9	28.8
パラオキシ安息香酸エチル	0	0	—	0.076	0.24
パラオキシ安息香酸プロピル	0	0	—	0	
パラオキシ安息香酸イソプロピル	0	0.04	—	0	
パラオキシ安息香酸ブチル	0	0.19	—	0.18	
パラオキシ安息香酸イソブチル	0	0.03	—	0	
亜硫酸	0.15	—	0.06	0	0
安息香酸	3.59	—	1.53	0.84	1.73
プロピオン酸	3.07	—	3.30	2.3	2.82
ノルピキシシ (水溶性アナトール, アナトール色素)	0.016	0.144	—	0	0.04
食用赤色2号	0.006	0.002	—	0.002	0.04
食用赤色3号	0.010	0.010	—	0	0.10
食用赤色40号	0.007	0.002	—	0.006	0.02
食用赤色102号	0.058	0.044	—	0	0.50
食用赤色104号	0.015	0.020	—	0	0.04
食用赤色105号	0	0	—	0	0.01
食用赤色106号	0.011	0.004	—	0.001	0.10
食用黄色4号	0.469	0.549	—	0	0.61
食用黄色5号	0.067	0.050	—	0	0.38
食用緑色3号	0	0	—	0	0
食用青色1号	0.016	0.014	—	0	0.12
食用青色2号	0	0	—	0	0.02

*1999年度の調査では、食品群は加工食品と生鮮食品の両方を含み、組成もかなり異なる。

表9 各食品添加物の一日許容摂取量との比較

食品添加物	一日摂取量 (mg/person)	ADI (mg/kg body weight)	一日許容摂取量 (mg/50kg)	摂取量/許容量 (%)
ソルビン酸	13.55	25 (ソルビン酸として)	1250	1.08
亜硫酸	0.15	0.7 (亜硫酸化合物 Group ADI)	35	0.44
安息香酸	3.59	5 (安息香酸 Group ADI)	250	1.44
プロピオン酸	3.07	制限しない		
ノルピキシシ	0.02	0.065 (ピキシシとして)	3.25	0.50
食用赤色2号	0.01	0.5	25	0.02
食用赤色3号	0.01	0.1	5	0.20
食用赤色40号	0.01	7	350	0.00
食用赤色102号	0.06	4	200	0.03
食用赤色104号	0.01	—		
食用赤色106号	0.01	—		
食用黄色4号	0.47	7.5	375	0.13
食用黄色5号	0.07	2.5	125	0.05
食用青色1号	0.02	12.5	625	0.00

した摂取量推定結果⁹⁾を2004年の結果と合わせて表8に示した。

過去のマーケットバスケット方式によるSBの総摂取量は1997年度19.6mg, 1999年度17.9mgであり, 今回の調査ではさらに低下した。パラオキシ安息香酸類の総摂取量では, 1997年度は, パラオキシ安息香酸イソプロピルで0.037mg, パラオキシ安息香酸ブチルで0.186mg, パラオキシ安息香酸イソブチル0.026mgであり, 1999年度では, パラオキシ安息香酸エチル0.076mg, パラオキシ安息香酸ブチルで0.177mgの摂取量値が得られていたが, 2003年は摂取量値が0となり, 使用量の減少が大きいと思われた。SFでは, 1998年に0.06mg, 1999年には0mgであったが, 今回は0.15mgとやや大きな摂取量値が得られた。マーケットバスケット法では, SFの摂取量への寄与食品はかんびょう以外には考えにくい, 1999年度調査ではかんびょうの採取量は今回の調査の倍となっており, 原因は定かでない。NBは, 1997年度調査では今回の10倍の摂取量値が得られており, 本年度は改良分析法を用いた影響も考えられる。NB

の生産量統計では水溶性アナトーに関する調査結果を示したもので, 水溶性アナトー中のピキシシ含量が少ないことを考慮すると, 生産量からの摂取量は随分大きな値を与えていると思われる。FCでは1997年度の結果と2003年度の結果はほぼ一致しているが, 1999年の調査はかなり小さな摂取量となっている。1999年度調査の食品群が異なることを考慮してもその差は大きい。FCの生産量統計からの摂取量はマーケットバスケット法による結果と近いものもあるが, 全体的に大きな値を与え, 使用量がそのまま食品へ含有されず, 廃棄量も含むこととなるためかも知れない。

今回の食品群の分析に基づく摂取量と, それぞれのADIとの比較を表9に示した。NBのADIは評価されていないが, ピキシシより毒性が低いと言われていることを考慮すると, NBの摂取量はピキシシのADIよりも遙かに低く, 問題はないと判断できる。その他の食品添加物でADIが設定されているものでは, いずれもADIから計算される一日摂取許容量の0~1.44%であり, 今回調査した添加物では, 安全性の懸念はないと考えられ

る。

6. まとめ

ASPからXYLまでの5種では、通常のマーケットバスケット法の食品群分析から得られた摂取量は、個別食品の分析値から得られた摂取量の80～90%となり、マーケットバスケットでの評価がほぼ可能であると思われた。ただし、SUCでは含有量が少ないことから、食品群からの分析は困難な場合もあり、注意が必要であると思われた。SOLの摂取量の約半分は、表示のあった個別食品からの摂取であることから、かなりの割合が添加物のSOL由来であるが、MANでは、ほとんどが天然由来の摂取量であると思われた。

天然に存在しない6種の保存料では、SBは年々摂取量が減少傾向にあり、マーケットバスケット法ではキャリーオーバー等のためか若干高め値となるが、ほぼ評価可能であると判断された。PBは食品への使用がほとんど無く、調査結果の妥当性が判断できなかった。天然由来が考えられる3種の保存料のうち、BAはその20%程度、PAはかなりの割合が食品由来であると思われたが、食品に添加された添加物量は食品群でもほぼ検出可能と思われた。SFは食品群とすると、かんぴょうのように安定に存在するものしか検出されず、個別食品の分析による方法が適当と結論された。着色料では、ほぼマーケットバスケット法でも摂取量の評価は可能と思われた。NBは分析が困難で、解決されるべき問題が多く、マーケットバスケット法による評価は現時点では適切でない。

以上の2003年度、2004年度の調査結果より、長年調査が継続されてきたマーケットバスケット方式は、かなりの食品添加物で有効な方法であることが確認された。ここ数年、国民栄養調査が詳細に実施されるようになり、我が国の食品の摂取状況がより正確に把握できるような体勢が整ってきた

ことを考慮すると、新しい食品群へと衣替えをし、再出発を試みる時期と思われる。この際には、マーケットバスケット方式が必ずしも有効でない添加物では、個別食品の分析を併用するなどの多様性を持たせることが望ましいと思われる。

謝辞

本調査は、地方衛生研究所6機関の多大なご尽力により達成されたものであり、ここに心より感謝するものである。ご協力頂いた機関と、分析担当項目は以下の通りである。札幌市衛生研究所(ソルビトール、マンニトール、ソルビン酸)、仙台市衛生研究所(アセスルフアムカリウム、プロピオン酸)、東京都健康安全研究センター(パラオキシ安息香酸エステル類、スクラロース)、香川県環境保健研究センター(サッカリンナトリウム、亜硫酸)、北九州市環境科学研究所(アスパルテム、安息香酸) 沖縄県衛生環境研究所(グリチルリチン酸、アナトー色素)、なお、国立医薬品食品衛生研究所では、キシリトール、食用タール色素を分析分担した。

参考文献

- 1) 食品添加物研究会編、「あなたが食べている食品添加物、食品添加物一日摂取量の実態と傾向」、日本食品添加物協会、平成13年
- 2) 健康・栄養情報研究会、「国民栄養の現状、平成12年度厚生労働省国民栄養調査結果」、第一出版、平成14年
- 3) 「平成14年度版、食品産業統計年報」食品産業センター、平成14年
- 4) 岡尚男、伊藤裕子、後藤智美、松本浩：食化誌、3、155～157 (2004)
- 5) 藤井正美、福江紀彦他、生産量統計をもとにした食品添加物の摂取量推定、平成13年度厚生科学研究報告、平成14年