東京都民の食事からの食品添加物一日摂取量調査

（安息香酸，ソルビン酸，パラオキシ安息香酸エステル類，アスパルテーム，サッカリン及びアセスルファムカリウムについて）

貞升 友紀，前 潔，藤原 卓士，鈴木 敬子，新藤 哲也，中里 光男

Study on Daily Intake of Food Additives in Citizens of Tokyo
(Benzoic Acid, Sorbic Acid, *p*-Hydroxybenzoic Acid Esters, Aspartame, Saccharin and Acesulfame Potassium)

Yuki SADAMASU, Kiyoshi MAE, Takushi FUJIWARA, Keiko SUZUKI,
Tetsuya SHINDO and Mitsuo NAKAZATO

東京都健康安全研究センター研究年報　第60号　別刷
2009

東京健安研セ年報　*Ann. Rep. Tokyo Metr. Inst. Pub. Health*, **60**, 147-153, 2009

東京都民の食事からの食品添加物一日摂取量調査
（安息香酸，ソルビン酸，パラオキシ安息香酸エステル類，アスパルテーム，サッカリン及びアセスルファムカリウムについて）

貞升　友紀*，前　潔*，藤原　卓士*，鈴木　敬子*，新藤　哲也*，中里　光男*

「平成16年東京都民の健康・栄養状況」における「食品群別にみた食品摂取量」に基づき，各食品を14食品群に分類した後，実際の食形態に合わせて加工調理し，東京都民の食品添加物一日摂取量調査を行った．分析対象の食品添加物は，FAO/WHO合同食品添加物専門家会議で一日摂取許容量が示されている，保存料7種類（安息香酸，ソルビン酸，パラオキシ安息香酸エステル類5種～パラオキシ安息香酸エチル，*i*-プロピル，*n*-プロピル，*i*-ブチル，*n*-ブチル～），及び甘味料3種類（アスパルテーム，サッカリン，アセスルファムカリウム）とした．その結果，体重1 kg当たりの一日摂取量はそれぞれ安息香酸44.0 μg，ソルビン酸140.9 μg，アスパルテーム3.5 μg，アセスルファムカリウム0.44 μgであった．いずれもFAO/WHO合同食品添加物専門家会議で示された一日摂取許容量を下回った．なお，パラオキシ安息香酸エステル類及びサッカリンはいずれの食品群からも検出されなかった．

キーワード：食品添加物，一日摂取量，安息香酸，ソルビン酸，パラオキシ安息香酸エステル類，アスパルテーム，サッカリン，アセスルファムカリウム

は じ め に

近年，多種多様な食品が流通・販売されており，食品添加物も保存性や機能性の向上等の目的で幅広く用いられている．一方，平成20年に内閣府食品安全委員会が食品安全モニターを対象に行ったアンケートによると，回答した人の約6割が食品添加物に不安を感じている[1]．また，「保存料や着色料などの食品添加物は使用していない」ことを謳い文句に安全をイメージさせる商品も多い．このような中で，食品添加物の一日摂取量調査結果は食の安心・安全を求める多くの消費者にとって食品選択の重要な情報であるといえる．

日本人が一日に摂取する食品添加物の量は厚生労働省の調査で報告されているが，この調査では試料調製の際，調理加工を行っていないため，実際の摂取量とは異なる可能性がある[2]．また，この調査によって，食品添加物の摂取量には地域差が見られることがわかっている[3]．

そこで，著者らは，マーケットバスケット方式によって食品を購入し，各食品について実際の食形態に基づいた調理加工を行った上で試料調製を行い，保存料7種類（安息香酸，ソルビン酸，パラオキシ安息香酸エステル類（以下PHBA-Esと略す）5種）及び甘味料3種類（アスパルテーム，サッカリン，アセスルファムカリウム（以下AKと略す））について東京都民の一日摂取量を調査したので報告する．

実 験 方 法

1. 試料の調製

1) 食品群の分類

平成19年5月から6月にかけて都内のスーパーマーケット及び小売店より97種類375品目の食品を購入した．試料は「平成16年東京都民の健康・栄養状況」[4]における「食品群別にみた食品摂取量」に基づき，1群：米・米加工品，2群：米以外の穀類・種実類・芋類，3群：砂糖・甘味料類・菓子類，4群：油脂類，5群：豆・豆加工品，6群：果実類，7群：緑黄色野菜類，8群：その他の野菜・茸類・海草類，9群：調味料・嗜好品，10群：魚介類，11群：肉類・卵類，12群：乳・乳製品，13群：その他の食品（カレールー，シチュールー等），及び14群：飲料水の計14食品群に分類した．

2) 作製

「平成16年東京都民の健康・栄養状況」[4]における「食品群別にみた食品摂取量」に基づき，試料作製に必要な食品摂取量を決定した．

各食品はその可食部について実際の食形態に従い，米は炊飯し，それ以外の食品はそのままで用いるか，または茹でる，焼く等の調理を行った後，食品群毎にステンレスミキサーで破砕混合，均一化して分析試料とし，分析までは－20℃で保存した．飲料水は都内の一般家庭飲料水を30分以上放水後，密封ステンレス容器に採取した．

2. 分析対象の食品添加物

FAO/WHO合同食品添加物専門家会議で一日摂取許容量（以下ADIと略す）が示されている食品添加物の中から[5]，

* 東京都健康安全研究センター食品化学部食品添加物研究科　169-0073　東京都新宿区百人町 3-24-1

保存料7種類（安息香酸，ソルビン酸，PHBA-Es5種），甘味料3種類（アスパルテーム，サッカリン，AK）を分析対象とした．

3. 分析方法

1) 保存料

(1) 安息香酸及びソルビン酸　食品衛生検査指針食品添加物編（2003）[6]に準じて操作した後，ジエチルエーテル抽出による濃縮工程を加えて試験溶液を調製した．

(2) PHBA-Es　厚生労働省通知食安監発第1207003号[7]に準拠して試験溶液を調製した．

なお，いずれも試験溶液の測定は高速液体クロマトグラフ（以下HPLCと略す）を用い，各食品群について3回繰り返し操作し，その平均をとって定量値とした．また，検出された試料については厚生労働省通知食安監発第1207003号[7]に準じた条件でガスクロマトグラフ質量分析計による定性確認を行った．試験溶液調製法をFig. 1に，またHPLC条件をTable 1に示した．

2) 甘味料

(1) アスパルテーム　1，5，10及び14群については食品衛生検査指針食品添加物編（2003）[8]に準拠して試験溶液を調製した．その他の群については著者らの方法[9]に従って試験溶液を調製した．

(2) サッカリン及びAK　厚生労働省通知食基発第58号[10]に準じて操作した後，酢酸エチル抽出による濃縮工程を加えて試験溶液を調製した．

なお，いずれも試験溶液の測定はHPLCを用い，各食品群について3回繰り返し操作し，その平均をとって定量値とした．また，検出された試料についてはフォトダイオードアレイ検出器でスペクトルパターンを標準溶液と比較し定性確認を行った．試験溶液調製法をFig. 2に，またHPLC条件をTable 2に示した．

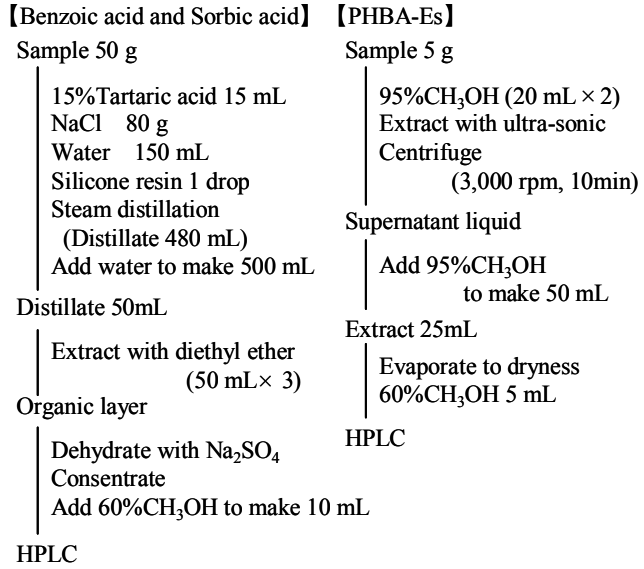

Fig. 1. Analytical Methods for Preservatives

Table 1. HPLC Conditions of Preservatives

	Benzoic acid and Sorbic acid
Column	COSMOSIL $5C_{18}$-AR-II (4.6 mm i.d.× 150 mm)
Mobile phase	CH_3OH-CH_3CN-5 mmol/L citrate buffer (1 : 2 : 7)
Flow rate	0.7 mL/min
Column temp.	40°C
Injection volume	20 µL
Detector	UV JASCO-UV1570 (230 nm)

	PHBA-Es
Column	COSMOSIL $5C_{18}$-AR-II (4.6 mm i.d.× 150 mm)
Mobile phase	CH_3OH-5 mmol/L citrate buffer (6 : 4)
Flow rate	0.7 mL/min
Column temp.	40°C
Injection volume	20 µL
Detector	UV JASCO-UV1570 (254 nm)

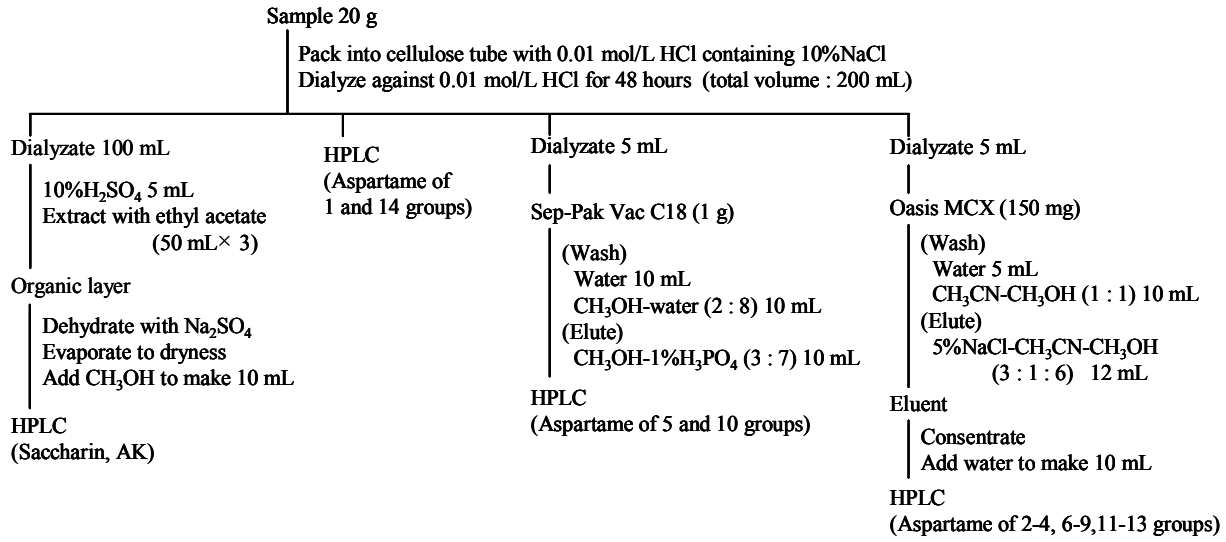

Fig. 2. Analytical Methods for Sweeteners

Table 2. HPLC Conditions of Sweeteners

	Saccharin and AK	Aspartame
Column	COSMOSIL 5NH_2-MS (4.6 mm i.d.× 250 mm)	COSMOSIL 5C_{18}-PAQ (4.6 mm i.d.× 150 mm)
Mobile phase	CH_3OH-1%H_3PO_4 (6 : 4)	CH_3OH-20 mmol/L phosphate buffer (1 : 3)
Flow rate	1 mL/min	1 mL/min
Column temp.	40°C	40°C
Injection volume	20 µL	20 µL
Detector	PDA Agilent-G1315C (230 nm)	UV Shimadzu-LC10ATvp (210 nm)

4. 分析法の定量下限値

試料の定量下限値はJISのHPLC通則法[11]に従って得られた分析機器の定量下限を基に算出した（Table 3）.

5. 添加回収試験

各食品群の試料に安息香酸及びソルビン酸はそれぞれ試料あたり25 µg/g，PHBA-Es5種は50 µg/g，サッカリン及びAKは100 µg/g，アスパルテームは30 µg/gとなるように標準溶液を添加した．各食品群について3回繰り返して測定し，その平均値を回収率とした（Table 3）.

結 果 及 び 考 察

1. 分析法の検討

1) 保存料

食品衛生検査指針[6]に収載されている水蒸気蒸留法では，高脂肪・高タンパク質食品でPHBA-Esの回収率が低くなることが知られている[12]．一方，厚生労働省通知食安監発第1207003号に記載されている溶媒抽出法は，パラオキシ安息香酸メチルの分析法であるがPHBA-Esにも適用できる[7].

そこで，本調査にあたっては，水蒸気蒸留法と溶媒抽出法の二法について各食品群との適応性を検討した．その結果，安息香酸及びソルビン酸については，溶媒抽出法では妨害ピークが多く分析が困難であったのに対し，水蒸気蒸留法では妨害ピークが少なく回収率も良好であることから，水蒸気蒸留法で分析することとした．また，PHBA-Esについては，溶媒抽出法でも特に問題となる妨害ピークは認められず回収率も良好であったため，溶媒抽出法で分析することとした.

2) 甘味料

サッカリン及びAKの透析条件については，良好な回収率を得るため，透析時間を48時間に統一した.

アスパルテームについては，操作を簡便化するため，サッカリン及びAKの分析で得られた透析抽出液を用いることとした．１及び14群については透析抽出液をそのままHPLCに注入しても妨害ピークの影響を受けずに良好な回収率が得られたが，その他の群については妨害ピークが多く分析が困難であった．そこで，固相抽出カートリッジによる精製法を検討した．食品衛生検査指針ではSep-Pak C 18カートリッジによる精製法が用いられているが[8]，この精製法は食品中のきょう雑成分除去効果が高い一方で，回収率がやや低くなることが知られている[9]．そこで，Oasis MCXカートリッジによる精製法[9]を検討したところ，ほとんどの食品群で良好な回収率が得られたことから，Oasis MCXカートリッジを用いることとした．しかし，5及び10群では妨害ピークの影響が大きく分析ができなかったため，Sep-Pak C18カートリッジによる精製を行って分析することとした.

Table 3. Recoveries of 10 Kinds of Food Additives Spiked to Samples

Food group No. and food groups	Benzoic acid	Sorbic acid	PHBA-Es ethyl	PHBA-Es *i*-propyl	PHBA-Es *n*-propyl	PHBA-Es *i*-butyl	PHBA-Es *n*-butyl	Aspartame	Saccharin	AK
Spiked level (µg/g)	25	25	50	50	50	50	50	30	100	100
1 Rice and rice products	96.7	95.8	90.6	89.8	89.7	91.3	90.2	100	93.1	94.5
2 Cereals, nuts and potatoes	96.7	95.8	91.1	90.2	89.8	89.8	88.5	99.5	94.9	96.4
3 Sugar and confectinery	90.8	95.7	90.0	89.4	89.3	90.1	88.8	101	90.2	92.5
4 Fat and oils	72.5	90.2	87.9	85.7	84.4	79.7	77.9	98.2	97.6	99.4
5 Beans	90.5	93.3	92.6	86.9	86.4	88.1	86.2	87.5	91.6	94.3
6 Fruits	100	98.0	93.2	91.8	91.7	93.9	92.6	91.8	94.0	91.9
7 Colored vegetables	98.1	96.9	92.8	90.0	94.2	90.7	89.4	99.1	93.0	94.2
8 Vegetables, mushrooms and seaweeds	99.7	97.3	89.7	88.6	88.4	90.4	88.9	97.7	92.6	92.5
9 Spices and preference beverages	100	98.7	97.1	96.6	96.5	97.6	96.2	99.4	96.3	94.8
10 Fish, seafoods and fish products	87.8	81.7	92.6	90.4	90.0	89.8	88.3	95.0	89.9	92.2
11 Meat, eggs and meat products	87.8	92.5	76.1	74.3	73.9	74.1	72.9	92.2	86.2	91.0
12 Milk and milk products	96.4	92.7	95.2	94.3	94.2	94.6	93.2	93.4	94.2	95.2
13 Other foods (curry sauce *etc*)	91.9	105.2	84.5	87.3	92.8	86.8	86.1	95.0	96.9	99.7
14 Drinking water	99.0	93.2	87.6	87.2	88.4	88.0	87.0	98.8	96.5	92.6
Limit of quantification (µg/g)	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	2.5	0.25	0.25

(%, n=3)

Table 4. Daily 10 Kinds of Food Additive Intakes in 14 Food Groups of Total Diet Study Samples

(μg/g, n=3)

Food group No. and food groups	Benzoic acid	Sorbic acid	PHBA-Es					Aspartame	Saccharin	AK
			ethyl	*i*-propyl	*n*-propyl	*i*-butyl	*n*-butyl			
1 Rice and rice products										
2 Cereals, nuts and potatoes		132.7								
3 Sugar and confectinery	63.9							177.1		
4 Fat and oils	2.0									22.06
5 Beans	163.0									
6 Fruits										
7 Colored vegetables										
8 Vegetables, mushrooms and seaweeds		3386.8								
9 Spices and preference beverages	66.6									
10 Fish, seafoods and fish products										
11 Meat, eggs and meat products		3526.2								
12 Milk and milk products	1867.2									
13 Other foods (curry sauce *etc*)	37.5									
14 Drinking water										
Sum of the estimated daily intake (mg/day)	2.2	7.045	0	0	0	0	0	0.1771	0	0.02206
(A) Daily intake / body weight (mg/50kg bw/day)	0.044	0.14	0	0	0	0	0	0.0035	0	0.00044
(B) ADI(mg/50kg bw/day): JECFA	5	25	10	*	*	*	*	40	5	15
(A)/(B)×100 (%)	0.88	0.56	0					0.0088	0	0.0029

*withdraw (FAO/WHO put off the evaluation for preservative.)

2. 摂取量調査

1) 保存料

3～5，9，12及び13群から安息香酸が，また2，8及び11群からソルビン酸が検出された（Table 4）．

試料に使用した食品の表示を確認してみると安息香酸が添加された食品はなかったが，発酵乳製品や香辛料等様々な食品から天然由来の安息香酸が検出されることが知られている[13]．また，安息香酸が添加された醤油を使用した加工品からはキャリーオーバーとして検出されることも多く，今回検出した安息香酸も天然由来か，またはキャリーオーバーによるものと推測された．成人体重1 kg当たりの安息香酸一日総摂取量は0.044 mgでADI 5 mgに対して0.88%と低い数値であった．なお，平成19年度に厚生労働省が行った調査によると東京における安息香酸の一日総摂取量は1.580 mg/day[14]で成人体重1 kg当たりに換算すると0.0316 mg/dayとなり，今回の結果と比較して大きな差はみられなかった．

ソルビン酸については，2，8及び11群の試料に使用した食品に使用表示があることを確認した．成人体重1 kg当たりのソルビン酸一日総摂取量は0.1409 mgでADI 25 mgに対して0.56%と低い数値であった．なお，平成19年度に厚生労働省が行った調査によると東京におけるソルビン酸の一日総摂取量は0.70 mg/day[15]で成人体重1 kg当たりに換算すると0.014 mg/dayとなり，この結果と比較すると今回は値が高かった．この原因として，今回8群の試料に使用した漬け物のうちソルビン酸の使用表示のあるものが3種類あったのに対し国の調査では1種類のみであったこと，今回11群の試料でソルビン酸が検出されたのに対し国の調査では検出されなかったことなどが影響しているものと考えられた．

PHBA-Esについてはいずれの食品群からも検出されなかった．なお，平成14年度に厚生労働省が行った調査でも東京ではPHBA-Esが検出されなかった[16]．

2) 甘味料

3群からアスパルテーム，4群からAKが検出された．いずれも検出された食品群に使用した食品に使用表示があることを確認した．成人体重1 kg当たりのアスパルテーム一日総摂取量は0.0035 mg，AK一日総摂取量は0.00044 mgで各ADI 40 mg，15 mgに対して0.01%未満とかなり低い数値であった．なお，平成14年度に厚生労働省が行った調査によると日本人のアスパルテーム及びAKの一日総摂取量はそれぞれ4.03, 0.74 mg/day[3]で成人体重1 kg当たりに換算すると0.0806，0.0148 mg/dayとなり，この結果と比較すると今回は値が低かった．アスパルテームやAKは様々な食品に使用されているが，食品の種類によって含有量が大きく異なる[9,17]ことから，試料に使用した食品の種類が結果に影響したものと考えられる．

サッカリンについてはいずれの食品群からも検出されなかった．なお，平成18年度に厚生労働省が行った調査でも東京ではサッカリンが検出されなかった[18]．

ま と め

「平成16年東京都民の健康・栄養状況」における「食品群別にみた食品摂取量」に基づき，各食品を14食品群に分類した後，実際の食形態に合わせて加工調理し東京都民の食品添加物一日摂取量調査を行った．調査対象の安息香酸，ソルビン酸，PHBA-Es5種，アスパルテーム，サッカリン及びAKについて分析し，体重1 kg当たりの一日総摂取量を算出したところ，安息香酸を0.044 mg/bw/day，ソルビン酸を0.14 mg/bw/day，アスパルテームを0.0035 mg/bw/day，AKを0.00044 mg/bw/day検出したが，いずれもADIと比較してかなり低い値であった．

また，PHBA-Es及びサッカリンについては今回の調製試料からは検出されなかった．

以上の結果から，今回分析対象とした食品添加物を通常の食事で摂取する場合においては安全性に問題はないと考えられる．

（本調査は東京都福祉保健局化学物質保健対策分科会で行った「平成19年度　食事由来の化学物質摂取量推計調査」の一環として行った．）

文 献

1) 内閣府食品安全委員会：食品安全モニター課題報告「食品の安全性に関する意識等について（平成20年6月実施）」，http://www.fsc.go.jp/monitor/2006moni-kadaihoukoku-shousai.pdf
（2009年8月4日現在，なお本URLは変更または抹消の可能性がある．）
2) 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－総合版，2001，日本食品添加物協会，東京．
3) 四方田千佳子：JAFAN，**24**(6), 299-310, 2005，日本食品添加物協会，東京．
4) 東京都福祉保健局保健政策部健康推進課：平成16年東京都民の健康・栄養状況，http://www.fukushihoken.metro.tokyo.jp/kenkou/kenko_zukuri/ei_syo/tomineiyou/files/tomineiyoujyoukyou16.pdf
（2009年8月4日現在，なお本URLは変更または抹消の可能性がある．）
5) 谷村顕雄，棚元憲一監修：第8版食品添加物公定書解説書，2007，廣川書店，東京．
6) 厚生労働省監修：食品衛生検査指針食品添加物編，12-18, 2003，日本食品衛生協会，東京．
7) 厚生労働省医薬食品局食品安全部監視安全課長通知“食品中のパラオキシ安息香酸メチルの分析法について”平成17年12月7日食安監発第1207003号（2005）．
8) 厚生労働省監修：食品衛生検査指針食品添加物編，216-220, 2003，日本食品衛生協会，東京．

9) 貞升友紀, 前潔, 鈴木敬子, 他 : 日食化誌, **15**(1), 32-36, 2008.
10) 厚生労働省医薬局食品保健部基準課長通知“食品中のアセスルファムカリウム分析法について”平成13年12月28日食基発第58号（2001）.
11) 日本規格協会：高速液体クロマトグラフフィー通則 JIS K0124, 1983年制定・1994年改訂.
12) 日本薬学会編：衛生試験法・注解2005，303, 2005, 金原出版，東京.
13) 柴田正，辻澄子：食品衛生研究，**47**(7), 37-46, 1997, 日本食品衛生協会，東京.
14) 長崎市福祉保健部：平成20年度長崎市の保健行政, http://www1.city.nagasaki.nagasaki.jp/kenko/hokengyousei/5shou.pdf
（2009年8月4日現在，なお本URLは変更または抹消の可能性がある．）
15) 酒井昌昭, 浦嶋幸雄, 宮下妙子, 他 : 札幌市衛研年報, **35**, 85-89, 2008.
16) 小林千種，田口信夫，前潔，他：東京健安研セ年報，**56**, 169-174, 2005.
17) 森谷昌幸，山田信之，梶直貴，他：仙台市衛生研究所報，**32**, 133-135, 2003.
18) 藤川名伊子，安永恵，西岡千鶴：香川県環境保健研究センター所報，**6**, 118-123, 2007.

Study on Daily Intake of Food Additives in Citizens of Tokyo
(Benzoic Acid, Sorbic Acid, *p*-Hydroxybenzoic Acid Esters, Aspartame, Saccharin and Acesulfame Potassium)

Yuki SADAMASU*, Kiyoshi MAE*, Takushi FUJIWARA*, Keiko SUZUKI*,
Tetsuya SHINDO* and Mitsuo NAKAZATO*

The study on daily food additive intakes in citizens of Tokyo was performed. Every food sample purchased in Tokyo was classified into 14 groups based on "The Daily Intake of Food Group" in *The Health and Nutrition Conditions in Citizens of Tokyo 2004*. These food samples were subsequently cooked. The food additives for analysis, the acceptable daily intake (ADI) of which are recommended by FAO/WHO Joint Expert Committee on Food Additives, were as follows: 7 kinds of preservatives [benzoic acid, sorbic acid, *p*-hydroxybenzoic acid esters (ethyl, *i*-propyl, *n*-propyl, *i*-butyl, *n*-butyl)] and 3 kinds of sweeteners (aspartame, saccharin, acesulfame potassium).

As the result, the daily intake of benzoic acid , sorbic acid, aspartame and acesulfame potassium were 44.0, 140.9, 3.5 and 0.44 μg/kg bw/day, respectively, all of which are below the corresponding ADI. No *p*-hydroxybenzoic acid esters or saccharin were detected.

Keywords: food additive, daily intake, benzoic acid, sorbic acid, *p*-hydroxybenzoic acid ester, aspartame, saccharin, acesulfame potassium

* Tokyo Metropolitan Institute of Public Health
3-24-1, Hyakunin-cho, Shinjuku-ku, Tokyo 169-0073 Japan