

食品添加物一日摂取量調査

スクラロース及びパラオキシ安息香酸エステル類について

小林千種*, 田口信夫*, 前 潔*, 中島和雄*, 山嶋裕季子*, 伊藤弘一*

Studies of Daily Intake of Food Additives - Sucralose and *p*-Hydroxybenzoic Acid Esters -

Chigusa KOBAYASHI*, Nobuo TAGUCHI*, Kiyoshi MAE*, Kazuo NAKAJIMA*, Yukiko YAMAJIMA* and Koichi ITO*

Keywords : 食品添加物 food additives, 一日摂取量 daily intake, マーケットバスケット方式 market basket method, スクラロース sucralose, パラオキシ安息香酸エステル類 *p*-hydroxybenzoic acid esters

はじめに

日本人が摂取する食品添加物の一日摂取量の調査は、厚生省の研究班によって昭和51年度から3種の調査方法を並行して実施されたことから始まり、昭和57年度からマーケットバスケット方式に一本化された調査方法となり、平成11年度まで毎年継続して実施された¹⁾。平成14年度から調査は再開され、従来のように食品群ごとに混合された調製試料の分析値から摂取量を計算する方法に加えて、新たに添加物表示のある食品を個別に分析して得られた摂取量も求め、両者を比較する調査方法に変更された²⁾。

平成14年度は甘味料8項目(サッカリン, アセスルファムK, アスパルテーム, スクラロース, キシリトール, グリチルリチン酸, ソルビトール, マンニトール), 平成15年度は保存料4項目(ソルビン酸, 安息香酸, パラオキシ安息香酸エステル類, プロピオン酸), 漂白料(亜硫酸塩), 許可合成着色料及びノルピキシニンについて調査を実施した。

当センターでは平成14年度はスクラロース, 平成15年度はパラオキシ安息香酸エステル類の分析を担当した。それらの結果について報告する。

調査方法

1. 試料の作製²⁾

1) **食品群** 食品を7つの群に分類して各群別に国民栄養調査に基づき算定された加工食品の喫食量を示したものが1981年に初めて作成された。本調査では、1991年に改定されたものを基本とし、平成12年度国民栄養調査結果並びに平成14年版食品産業統計年表に基づいて一部の食品の種類及び1日1人あたりの喫食量の改訂が行われた。それらに従って、喫食量から試料作成に必要な食品採取量を決定し、表1に示した。

2) **作製** 加工食品343食品は都内デパート, スーパー, 小売店等で平成14年度調査では平成15年1月及び平成15年度は平成15年11月に購入した。各食品は均質化後, 表1に示した採取量を正確に秤取し, 群ごとに混合した。混合した食品は, 1群はそのまま, 2~7群は同量の水を加えてブレンダー(Waring社製LBC10型)を用いてホモジナイズした。これらを100 gずつ均質になるよう混和しながらポリエチレン容器(ナルゲン製)に分注し-18℃の冷凍庫に入れて凍結させた。

3) **送付試料** 地方衛生研究所(札幌市衛生研究所, 仙台市衛生研究所, 香川県環境保健研究センター, 北九州市環境科学研究所, 沖縄県衛生環境研究所)においても同様に各地の食品販売店で購入して試料を作成し, 100 gを容器に分注し, 各群2個ずつ冷凍状態で搬送されたものを試料として用いた。

4) **個別食品** 各地で調製試料作成のため購入した食品のうち, 平成14年度はスクラロースの原材料表示のあったもの, 平成15年度はパラオキシ安息香酸エステル類(簡略名: パラオキシ安息香酸)の原材料表示のあった食品について, 未開封の食品を分析した。

2. スクラロースの分析方法

分析法は, 著者らのイオンクロマトグラフ法³⁾を基本とし, 夾雑物の除去と定量下限値を下げる目的で, 岸らの方法⁴⁾によるPSA及びアルミナNカートリッジカラムによる試料精製法を追加して行った。試験溶液の調製法は図1, IC条件は表2, ICクロマトグラムを図3に示した。

3. パラオキシ安息香酸エステル類の分析方法

食品群ごとに異なる2つの分析法を用いた。

* 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

* Tokyo Metropolitan Institute of Public Health

3-24-1, Hyakunin-cho, Shinjuku-ku, Tokyo 169-0073 Japan

表 1. 食品添加物マーケットバスケット調査の食品群別品名・喫食量・採取量

品名	製品数	喫食量(g)	採取量(g)	品名	製品数	喫食量(g)	採取量(g)
1群. 調味嗜好飲料				4群. 魚介類・肉類			
1 濃口醤油	3	13.4	120.6	77 冷凍品(魚)	1	2.2	52.8
2 薄口醤油	1	5.7	51.3	78 冷凍品(えび)	1	0.4	9.6
3 たれ類	1	0.4	3.6	79 冷凍品(いか・たこ)	1	0.5	12.0
4 ウスターソース	1	0.88	7.9	80 冷凍品(貝類)	1	0.3	7.2
5 濃厚・中濃ソース	1	1.62	14.6	81 いかくん製	3	0.2	4.8
6 トマトケチャップ	1	2.5	22.5	82 魚介漬物	3	1.7	40.8
7 日本酒	3	22.8	205.2	83 いか調味品	3	1.8	43.2
8 みりん	3	2.4	21.6	84 塩蔵品(魚介)	3	7.8	187.2
9 ビール	3	105.5	949.5	85 たらこ	3	1.0	24.0
10 果実酒	3	2.4	21.6	86 いくら・すじこ	1	0.2	4.8
11 ウィスキー	3	2.0	18.0	87 塩干類	3	5.8	139.2
12 焼酎	3	16.3	146.7	88 煮干類	3	1.9	45.6
13 雑酒(発泡酒)	3	58.0	522.0	89 素干類	3	0.9	21.6
14 コーラ	3	25.2	226.8	90 魚介缶詰	3	2.8	67.2
15 透明炭酸飲料	3	7.9	71.1	91 魚介佃煮	3	0.3	7.2
16 果汁入り炭酸飲料	3	2.7	24.3	92 魚介練製品	3	12.2	292.8
17 果汁着色炭酸飲料	3	6.3	56.7	93 魚肉ハムソーセージ	3	0.5	12.0
18 乳酸入り炭酸飲料	3	1.7	15.3	94 その他魚介加工品	3	0.4	9.6
19 炭酸水	3	0.9	8.1	95 冷凍フライ(えび)	3	0.2	4.8
20 天然果汁	3	12.4	111.6	96 ハム類	3	3.5	84.0
21 果汁飲料	3	1.3	11.7	97 ソーセージ類	3	5.5	132.0
22 果肉飲料	3	0.5	4.5	98 ベーコン	3	1.1	26.4
23 果汁入り清涼飲料	3	21.2	190.8	99 冷凍食品(ハンバーグ)	3	1.1	26.4
24 希釈飲料	3	1.0	9.0	100 冷凍食品(ミートボール)	3	0.8	19.2
25 濃厚乳酸飲料	3	5.7	51.3	101 冷凍フライ(肉)	3	1.4	33.6
26 コーヒー飲料	3	42.1	378.9	102 メンチカツ	3	0.4	9.6
27 スポーツドリンク	3	17.5	157.5	計	68	54.9	1317.6
28 トマトジュース	3	1.0	9.0	5群. 油脂類・乳類			
29 だし	3	0.4	3.6	103 バター	3	1.0	21.0
30 ふりかけ	3	0.1	0.9	104 マーガリン	3	1.5	31.5
31 食酢	3	2.5	22.5	105 植物油	3	8.9	186.9
32 カレールー	3	2.4	21.6	106 動物性油脂	1	0.2	4.2
計	86	386.7	3480.3	107 マヨネーズ	3	3.0	63.0
2群. 穀類				108 ドレッシング類	3	1.8	37.8
33 もち	1	2.3	34.5	109 乳飲料	3	26.5	556.5
34 赤飯	1	0.4	6.0	110 チーズ	3	2.7	56.7
35 かきもち	1	0.1	1.5	111 アイスクリーム	3	2.3	48.3
36 ビーフン	1	0.1	1.5	112 アイスミルク	3	1.5	31.5
37 食パン	3	15.0	225.0	113 ラクトアイス	3	7.8	163.8
38 その他のパン	3	15.5	232.5	114 氷菓	3	5.1	107.1
39 菓子パン	3	8.8	132.0	115 発酵乳	3	14.8	310.8
40 パン粉	1	3.7	55.5	計	37	77.1	1619.1
41 生麺	1	1.0	15.0	6群. 砂糖類・菓子類			
42 生そば	1	0.7	10.5	116 ジャム類	3	1.4	42.0
43 生中華麺	1	6.1	91.5	117 飴類	5	3.3	99.0
44 ゆで麺	1	17.0	255.0	118 せんべい類	3	4.5	135.0
45 ゆでそば	1	2.3	34.5	119 洋生菓子類	3	4.6	138.0
46 ゆで蒸し中華麺	1	6.3	94.5	120 ビスケット類	3	4.7	141.0
47 乾うどん	1	2.7	40.5	121 ようかん・その他の和生菓子	3	7.2	216.0
48 そうめん	1	2.4	36.0	122 焼菓子	3	1.5	45.0
49 乾日本そば	1	0.7	10.5	123 チューインガム	3	0.9	27.0
50 乾中華そば	1	0.2	3.0	124 チョコレート	3	4.8	144.0
51 スパゲティ・マカロニ	1	3.2	48.0	125 クラッカー・その他の菓子	5	5.6	168.0
52 即席麺	3	7.7	115.5	126 スナック菓子	3	4.9	147.0
53 コーンフレーク	1	0.1	1.5	計	37	43.4	1302.0
54 餃子	3	2.0	30.0	7群. 果実類・野菜類・海藻類			
55 しゅうまい	3	1.0	15.0	127 乾燥果実	3	0.8	28.8
56 冷凍食品(ピザ)	3	0.4	6.0	128 缶詰(みかん)	1	0.31	11.2
57 冷凍食品(中華饅頭)	3	0.3	4.5	129 缶詰(桃)	1	0.15	5.4
58 冷凍食品(その他)	3	13.0	195.0	130 缶詰(さくらんぼ)	1	0.1	3.6
59 冷凍食品(米飯類)	3	3.5	52.5	131 缶詰(パインアップル)	1	0.1	3.6
60 コーンクリームコロッケ	3	0.6	9.0	132 缶詰(みつ豆)	1	0.1	3.6
計	50	117.1	1756.5	133 缶詰(混合果実)	1	0.23	8.3
3群. いも類・豆類・種実類				134 葉さい漬物	3	6.7	241.2
61 こんにゃく	1	13.8	207.0	135 たくあん・その他	3	12.1	435.6
62 マッシュポテトフレーク	1	0.4	6.0	136 缶詰(トマト)	1	0.3	10.8
63 はるさめ	1	0.7	10.5	137 缶詰(たけのこ)	1	0.1	3.6
64 コロッケ	3	3.1	46.5	138 かんぴょう	1	0.2	7.2
65 フレンチポテト	1	0.1	1.5	139 サラダ	3	0.6	21.6
66 味噌	3	13.0	195.0	140 レトルトカレー	3	2.4	86.4
67 豆腐	3	38.6	579.0	141 その他レトルト食品・缶詰	3	3.4	122.4
68 豆腐加工品	3	7.4	111.0	142 シチュー	3	0.3	10.8
69 納豆	1	6.1	91.5	143 昆布佃煮	3	1.0	36.0
70 凍り豆腐	1	0.6	9.0	144 味付又は焼き海苔	1	0.2	7.2
71 その他の大豆製品	3	2.7	40.5	145 のり佃煮	1	1.3	46.8
72 その他の豆類製品	3	1.9	28.5	146 酢昆布	1	0.1	3.6
73 スイートアーモンド	1	0.2	3.0	147 とろろ昆布	1	0.1	3.6
74 ピーナッツバター	1	0.3	4.5	計	37	30.6	1101.3
75 バターピーナッツ	1	0.3	4.5	総計	343	799.4	
76 その他のナッツ	1	0.4	6.0				
計	28	89.6	1344.0				

試料20g
 | 10% NaCl含有0.01 mol/L HCl 20~40 mLを加えて
 | 透析膜に充填し, 200 mLメスシリンダーに投入
 | 0.01 mol/L HClで200 mLに定容
 | 透析(24時間)
 | 透析外液 50 mL分取
 | Bond Elut ENV(1 g)に負荷
 | 水 10 mL, 0.2 mol/L NaOH 5 mL, 水 10 mLで洗浄
 | Bond Elut ENVの下にBond Elut Jr.PSA(1 g)を取付
 | メタノール 8 mLで溶出
 | 溶出液
 | 乾固
 | 水2.5 mLに定容
 | Sep-Pak plus Alumina-Nとフィルター(0.45 μm)ろ過
 | IC用試験溶液

図1. スクラロースの分析法

表2. スクラロース分析のIC条件

機器	: Dionex DX500 system
カラム	: Dionex CarboPac PA1(4.0 mm i.d.×250 mm)
ガードカラム	: Dionex CarboPac PA1(4.0 mm i.d.×50 mm)
移動相	: 0.1 mol/L NaOH・50 mmol/L CH ₃ COONa
流速	: 1.5 mL/min
検出器	: パルスドアンペロメトリック検出器 (作用電極: Au)
パルス電位	: 0.00 秒(0.05 V)→0.41 秒(0.75 V)→ 0.61 秒(-0.25 V)→1.00 秒(-0.25 V)
検出時間帯	: 0.2~0.4 秒(0.05 V)
カラム温度	: 40 °C
注入量	: 20 μL

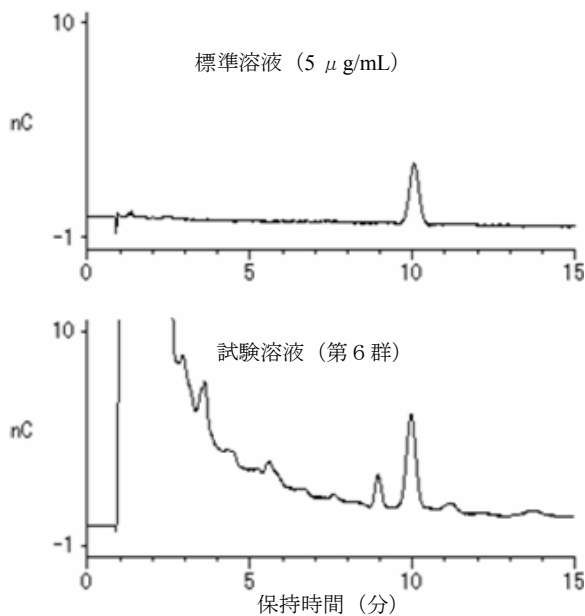


図3. スクラロースのICクロマトグラム

<p>【水蒸気蒸留法】</p> <p>試料 20 g</p> <p>15% 酒石酸 15 mL NaCl 80 g 水 150 mL シリコン樹脂 1滴</p> <p>水蒸気蒸留 水を加え500 mLに定容</p> <p>100 mL分取</p> <p>ジエチルエーテル抽出 (100 mL×3)</p> <p>エーテル層</p> <p>脱水(無水硫酸Na) 減圧濃縮 60% メタノールで 10 mL に定容</p> <p>HPLC用試験溶液</p>	<p>【溶媒抽出法】</p> <p>試料 10 g</p> <p>無水硫酸Na 50 g 抽出(CH₃CN・2-プロパノール・ エタノール(2:1:1)) 70 mL×3</p> <p>抽出液</p> <p>-20 °C 1時間 ろ過(ろ紙: 5C)</p> <p>ろ液</p> <p>減圧濃縮 60%メタノールで25 mLに定容</p> <p>HPLC用試験溶液</p>
--	---

図2. パラオキシ安息香酸エステル類の分析法

表3. パラオキシ安息香酸エステル類分析のHPLC条件

カラム	: COSMOSIL 5C18-PAG(4.6 mm i.d.×150 mm)
移動相	: メタノール・5 mmol/L クエン酸緩衝液(6:5)
流速	: 0.7 mL/min
カラム温度	: 40 °C
注入量	: 20 μL
検出器	: UV検出器 JASCO-UV1570(254 nm) PDA検出器 JASCO-MD1515

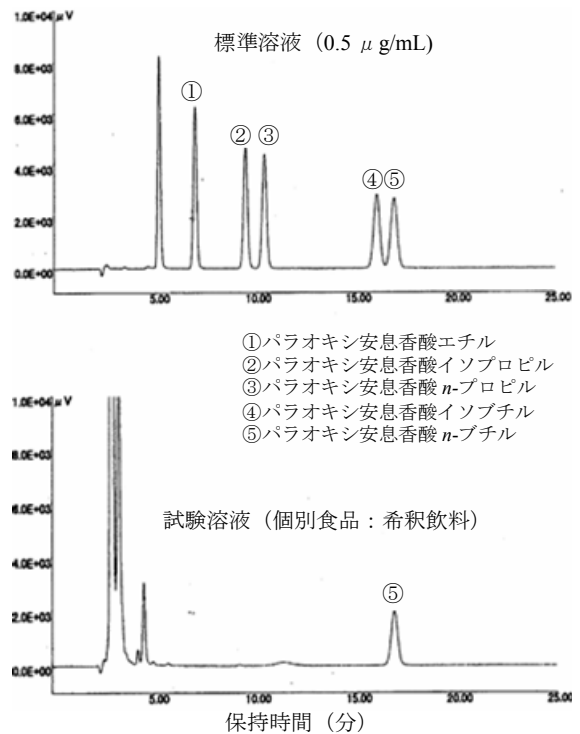


図4. パラオキシ安息香酸エステル類のHPLCクロマトグラム

表4. スクラロース及びパラオキシ安息香酸エステル類の添加回収率, 検出下限, 定量下限

添加物名	添加量 ($\mu\text{g/g}$)	回収率 (%) n=3							検出下限 ($\mu\text{g/g}$)	定量下限 ($\mu\text{g/g}$)
		1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群		
スクラロース	10.0	82.2	79.5	77.5	88.3	93.1	84.5	87.1	0.4	2.0
パラオキシ安息香酸エステル類										
エチル	注2	75.4	103.2	81.4	101.9	97.5	90.9	88.0	0.005	0.025
イソプロピル	注2	92.1	97.6	90.5	92.5	90.0	92.4	94.5	0.013	0.063
n-プロピル	注2	87.9	103.3	82.9	107.7	86.8	86.2	91.6	0.015	0.075
イソブチル	注2	90.8	85.7	81.3	81.2	72.8	75.5	92.3	0.018	0.088
n-ブチル	注2	93.3	86.9	76.2	79.9	70.5	74.6	93.1	0.020	0.100

注1: パラオキシ安息香酸エステル類の分析は, 1, 3, 7群は水蒸気蒸留法で, 2, 4, 5, 6群は溶媒抽出法で行った.

注2: 1, 3, 7群は25.0 $\mu\text{g/g}$, 2, 4, 5, 6群は5.0 $\mu\text{g/g}$.

1) 水蒸気蒸留法 (1, 3, 7群) 食品衛生検査指針⁵⁾に準じ, さらに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) 溶媒抽出法 (2, 4, 5, 6群) 河野らの方法⁵⁾に準じて試験溶液を調製した.

なお, 両法とも試験溶液の測定は HPLC を用いて行い, 定量値は UV 検出器によるピーク面積から求め, 定性的なスペクトルパターンの確認はフォトダイオードアレイ検出器で行った. 試験溶液の調製法は図 2, HPLC 条件は表 3, HPLC クロマトグラムを図 4 に示した.

4. 分析法の検出下限値及び定量下限値の求め方

試料の検出下限・定量下限は, JIS の HPLC 通則法⁷⁾に従って得られた分析機器の検出下限を基に算出した.

5. 添加回収実験

平成 14 年度に当センターで調製した各群の試料にスクラロースを試料中に 10 $\mu\text{g/g}$ となるように添加した. パラオキシ安息香酸エステル類については, 平成 15 年度に当センターで調製した各群の試料にパラオキシ安息香酸エチル, イソプロピル, n-プロピル, イソブチル, n-ブチルの各エステルをそれぞれ, 試料中濃度として水蒸気蒸留法の場合は 25 $\mu\text{g/g}$, 溶媒抽出法では 5 $\mu\text{g/g}$ となるように添加した. いずれの年度の調査でも各食品群を 3 回繰り返して測定し, その平均値を回収率とした. なお, 添加前の試料も同時に測定し, 分析対象物質の保持時間の位置にピークがないことを確認した.

結果及び考察

1. 分析法の検討

1) スクラロース 著者らのイオンクロマトグラフ法³⁾に従って調製試料を分析したところ夾雑物の影響で分析不能であった. そこで PSA 及びアルミナ N の 2 種類のカートリッジカラムを用いた試料精製法を追加したところ夾雑物を除去することができた. 本法に従って回収実験を行ったところ, 回収率は 77.5~93.1 % であり, 定量限界は 2.0 $\mu\text{g/g}$ であった (表 4).

表5. スクラロースの個別食品定量結果

機関名	食品群	食品名	定量値 ($\mu\text{g/g}$)	
札幌	1群	スポーツドリンク	26	
		スポーツドリンク	22	
		果汁入清涼飲料	35	
		果汁入清涼飲料	21	
	6群	乳酸入り炭酸飲料	24	
		ガム	118	
		スナック菓子	36	
	仙台	1群	透明炭酸飲料	32
			乳酸入り炭酸飲料	23
		6群	その他の菓子	116
飴類			36	
飴類			29	
香川	1群	スポーツドリンク	58	
		スポーツドリンク	26	
		透明炭酸飲料	34	
		乳酸入り炭酸飲料	26	
北九州	1群	スポーツドリンク	25	
		乳酸入り炭酸飲料	3.4	
沖縄	1群	スポーツドリンク	26	
		果汁入清涼飲料	18	
	5群	果肉飲料	34	
		発酵乳	55	
6群	ガム	244		

表6. パラオキシ安息香酸n-ブチルの個別食品定量結果

機関名	食品群	食品名	定量値 ($\mu\text{g/g}$)
仙台	1群	希釈飲料	17.68

2) パラオキシ安息香酸エステル類 食品衛生検査指針⁵⁾

に掲載された水蒸気蒸留によるパラオキシ安息香酸エステル類の分析法は, 食品の性状やエステルの違いにより回収率に差のあることが知られている⁶⁾. そこで, 本調査にあたっては, 水蒸気蒸留法と溶媒抽出法⁶⁾の二つの分析法に対し各食品群との適応性について検討した. その結果, 水蒸気蒸留法では, 1, 3, 7群について調査実施に十分な回収率が得られたので, 夾雑物の影響が少ない本法で分析すること

FAO/WHO合同食品添加物専門家会議 (JECFA) が定めたスクラロースの一日摂取許容量 (ADI) 15 mg/kg/dayから計算した成人 (体重50 kgとした場合) の一日あたりの許容摂取量は750 mgであり, 本調査から得られたスクラロース摂取量の成人一日許容摂取量に占める割合は0.04 %であった。

2) **パラオキシ安息香酸エステル類** 各機関が作製した調製試料を分析した結果, パラオキシ安息香酸エステル類はすべての試料から検出されなかった。

パラオキシ安息香酸エステル類添加表示のあった個別食品は, 1群の希釈飲料の1品目のみであり, この食品からパラオキシ安息香酸*n*-ブチルが検出された (表6)。この検出値を基に, 調製試料中に含有されるパラオキシ安息香酸*n*-ブチルの相当量を計算により求めてみると, 試料の定量限界よりも小さな値となり, 調製試料の分析結果とほぼ一致していた (表9, 10)。パラオキシ安息香酸*n*-ブチルのADIは, JECFAにより評価が延期されているため, 今回の結果からはADIを指標とした安全性を評価することができなかった。前回の1997年におけるパラオキシ安息香酸エステル類の一日摂取量調査結果¹⁾は, イソプロピルエステルが0.037 mg/day, イソブチルエステルが0.026 mg/day, *n*-ブチルエステルが0.186 mg/dayであり, 今回の調査はそれよりも大幅に摂取量が低下したことが認められた。

結 論

今回の調査結果から, 通常の食事で摂取するスクラロースの量では, 安全性に問題はないと考えられる。パラオキシ安息香酸エステル類の調査において, 調製試料からは検出されなかった。

(本調査は平成14年度及び15年度厚生科学研究補助金, 食品添加物安全性評価等の試験検査 (食品添加物一日摂取量調査) に関する研究の一環として行った。)

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— (総合版, 本編・資料編), 2001, 日本食品添加物協会, 東京。
- 2) 四方田千佳子: JAFAN, **24**, 299-310, 2005。
- 3) 小林千種, 中里光男, 山嶋裕季子, 他: 食衛誌, **42**, 139-143, 2001。
- 4) 岸 弘子, 川名清子: 食衛誌, **42**, 133-138, 2001。
- 5) 厚生労働省監修: 食品衛生検査指針・食品添加物編2003, 21-25, 2003, 日本食品衛生協会, 東京。
- 6) 河野美幸, 中里光男, 小林千種, 他: 東京衛研年報, **51**, 80-84, 2000。
- 7) 日本規格協会: 高速液体クロマトグラフィー通則 JIS K0124, 1983年制定・1994年改訂。