

# 福岡市における食事からの着色料一日摂取量調査

古賀梓美・岩佐泰恵・赤木浩一

福岡市保健環境研究所保健科学課

## Study on Daily Intake of Food Colors from Meal in Fukuoka City

Azumi KOGA, Yasue IWASA and Kouichi AKAKI

Health Science Division, Fukuoka City Institute for Hygiene and the Environment

### 要約

福岡市民が食事から摂取する着色料（食用タール色素）の量を推定した。国民健康・栄養調査の福岡市民の食品摂取量を参考に、福岡市内の販売店で購入した加工食品 192 品を 8 つの食品群に分類し、群毎に粉砕・混合したものを試料とした。購入に際しては着色料の表示がある食品を優先的に購入した。群毎に着色料 12 種類の定量分析を行い、食用黄色 4 号(Y4)、食用黄色 5 号(Y5)、食用赤色 3 号(R3)、食用赤色 40 号(R40)、食用赤色 102 号(R102)、食用赤色 106 号(R106)、食用青色 1 号 (B1)、食用青色 2 号(B2)を検出した。市民の食品摂取量から算出した、市民一人あたりの着色料の一日摂取量は Y4;0.7385mg, Y5 ; 0.1028mg, R3;0.0696mg, R40;0.1198mg, R102;0.5385mg, R106;0.0103mg, B1;0.0496mg, B2;0.0015mg であり、ADI（一日許容摂取量）が設定されているものについて ADI と比較すると、0～1.39%で安全性に問題はなかった。

**Key Words** : 着色料 food color, 食用タール色素 food coal-tar dye , 加工食品 processed foods, 一日摂取量 daily intake, 一日許容摂取量 ADI

## 1 はじめに

着色料は食品に好ましい色調を与えるために幅広い食品に使用されており、化学的に合成された色素（合成色素）と天然物から抽出された色素（天然色素）に大別される。合成色素のうち、タール色素は石油から得られる芳香族炭化水素を主原料として合成され<sup>1)</sup>、日本で食品に対して使用が許可されているタール色素は 12 種類である。これらのタール色素は生鮮食品や一部の加工食品に対しての使用は認められていないが、その他の使用可能な食品に対して使用量に関する基準はないため、一般的には定性試験のみが行われている。

一方、FAO/WHO 合同食品添加物専門家会議 (JECFA) では食品添加物等の安全性評価を行い、タール色素についても一日許容摂取量 (ADI) を設定している。

日本人が食品添加物をどの程度摂取しているかを把握することは食の安全を確保するため重要であり、国立医薬品食品衛生研究所が様々な食品添加物の一日摂取量

調査を行っており、食用タール色素についても過去数回実施されている<sup>2) 3) 4)</sup>。

そこで本所でも、福岡市民の「食の安全・安心」を確保するため、市民が食事から摂取する食用タール色素(以下着色料という)についてマーケットバスケット方式を用いて<sup>2)</sup>、独自に一日摂取量調査を行ったので報告する。

## 2 試験方法

### 2.1 試料の調製

「国民健康・栄養調査結果(平成 19 年～22 年福岡市)」等を参考に、平成 23 年 11 月に福岡市内の販売店で加工食品 192 品を購入し、食品の種類によって 8 つの食品群に分類した。食品の購入の際は可能な限り着色料の表示がある商品を購入した。購入した食品を粉砕・均質化したのち、食品摂取量の比に従って採取し、群ごとに混合した。なお、同じ食品群の中で着色料の表示がある食品

表1 食品群の分類および一日摂取量

食品群	分類	食品例	購入食品数	一日摂取量(g)
1	調味嗜好飲料	しょうゆ, みそ, ウーロン茶, ジュース	37(1)	806.1
2	穀類	食パン, うどん, スパゲティ	18(0)	108.1
3	いも類, 豆類, 種実類	こんにゃく, 豆腐, ごま	15(0)	66.6
4	魚介類, 肉類, 卵類	かまぼこ, 明太子, ソーセージ, ハム	31(13)	31.3
5	油脂類, 乳類	バター, オリーブ油, アイスクリューム	23(1)	48.8
6	砂糖類, 菓子類	まんじゅう, ドロップ, ゼリー	35(8)	22.7
7	果実類, 野菜類, 海藻類	イチゴジャム, 高菜漬け, たくあん	26(12)	28.0
8	特定保健用食品	砂糖代替品, 飲料	7(0)	23.0
合計			192(35)	1134.6

( ) は着色料 (食用タール色素) 使用の表示がある食品数

とない食品は分けて調製した。2, 3, 4, 6, 7 群は試料の均質化を確保するため蒸留水を加えて混合した。各食品群の食品分類, 主な購入食品, 食品数, 一日摂取量を表1に示す。

## 2.2 試薬等

標準品: 食用赤色2号 (アマランス, R2)

食用赤色3号 (エリスロシン, R3)

食用赤色40号 (アルラレッドAC, R40)

食用赤色102号 (ニューコクシン, R102)

食用赤色104号 (フロキシリン, R104)

食用赤色105号 (ローズベンガル, R105)

食用赤色106号 (アシッドレッド, R106)

食用黄色4号 (タートラジン, Y4)

食用黄色5号 (サンセットイエローFCF, Y5)

食用青色1号 (ブリリアントブルーFCF, B1)

食用青色2号 (インジゴカルミン, B2)

食用緑色3号 (ファストグリーンFCF, G3)

全て東京化成工業(株)製を用いた。

標準原液: 標準品を80%メタノールで溶解して, 10,000 $\mu$ g/mLに調製した。

移動相用 5mM TBAP (pH5.0) : 0.4mol/L 水酸化テトラ-n-ブチルアンモニウム (TBAOH, 関東化学(株)製) 13mLに蒸留水 800mLを加え, リン酸で pH5.0 に調製後, 1,000mLに定容した。

5mM TBA-Br, 50mM TBA-Br: 臭化テトラ-n-ブチルアンモニウム (TBA-Br, 関東化学(株)製) を蒸留水に溶解した。

固相抽出カートリッジ: Waters社製 Sep-Pak Vac tC18 (1g/6cc) をあらかじめメタノール 10mL, 5mM TBA-Br10mLでコンディショニングして用いた。

その他試薬: 全て特級試薬を用いた。

## 2.3 装置および測定条件

装置は高速液体クロマトグラフ (Agilent社製 1100シ

リーズ)を用いた。測定条件を表2に示す。

表2 測定条件

カラム	Inertsil ODS-2 (GL Science社製) 2.1mm $\times$ 150mm
移動相	A:5mM TBAP(pH5.0) B:アセトニトリル B:35%(0min) $\rightarrow$ 38%(5min) $\rightarrow$ 80%(30min)
グラジ	40 $^{\circ}$ C
エント	0.2ml/min
カラム	450nm(黄系), 520nm(赤系), 620nm
温度	(青系)
流速	4 $\mu$ L
測定	
波長	
注入量	

## 2.4 試験溶液の調製

鈴木らの報告<sup>5)</sup>を参考に試験溶液の調製を行った。試料 5gを量りとり, 5mM TBA-Br2mL, 2%アンモニア水 4mL, エタノール 20mLを加えて10分間振とうし, 遠心分離(10,000rpm, 15min, 5 $^{\circ}$ C)して上清を採取した。残渣にさらに2%アンモニア水 2mL, エタノール 10mLを加えて同様に操作し, 上清をあわせた(抽出液)。5群以外は抽出液を約4~5mLに減圧濃縮した。得られた濃縮液に50mM TBA-Brを1mL加え, 固相抽出カートリッジに負荷し, 5mM TBA-Br 10mLで洗浄した後, 80%メタノール 10mLで溶出した。カートリッジに色素が残っている場合は溶出液をさらに5~10mL追加して溶出し, 全量

が 10mL となるよう減圧濃縮した。5 群は抽出液をヘキササンで脱脂し、約 4~5mL に減圧濃縮し、遠心分離(10,000rpm, 5min, 5°C)して上清を採取した。残渣に 70% エタノールを加えてさらに遠心分離を行い、上清を 2~3mL に減圧濃縮して先ほどの上清とあわせ、50mM TBA-Br を 1mL 加えて固相抽出カートリッジに負荷し、以降同様に操作した。

### 3 結果および考察

#### 3.1 分析法の検討

##### 3.1.1 試験溶液の調製

食品衛生検査指針<sup>6)</sup> および衛生試験法<sup>1)</sup> では試験溶液の調製方法はアンモニア・エタノール溶液で色素を抽出したのち、ポリアミドカラムによる精製を行っており、本所でも日常試験ではこれに基づいて定性検査を行っている。しかし、この方法で添加回収試験を行ったところ良好な回収率が得られなかった。そこで、食事からの着色料一日摂取量を行っている鈴木らの報告<sup>5)</sup>を参考に試験溶液を調製したが、5 群はキサントン系色素の R3, R104, R105 について十分な回収率が得られなかった。5 群は油脂を多く含む食品であることや、試料抽出液を濃縮する際に濁りが生じていたことなどが原因と推察された。そこでまず抽出液を脱脂して以降の操作を同様に行ったが回収率は改善されなかった。

一方、濃縮の際に生じた濁りは固相抽出カートリッジの詰まりの原因となっていたため、遠心分離したところ、残渣は赤~赤紫に着色していた。この残渣は水には不溶であったが、70%エタノールでは大部分が溶解した。この 70%エタノール溶液を再び遠心分離(10,000rpm, 5min, 5°C)して上清を濃縮し、固相抽出カートリッジで精製したところ、キサントン系色素の R3, R104, R105 が検出された。よってこれらのキサントン系色素は濃縮の際に不純物と共に析出し、固相に保持されず回収率低下の原因となっていることが考えられた。そこで 5 群についてはまず抽出液をヘキササンで脱脂して濃縮を行い、遠心分離して上清を分取した。さらに着色している残渣を 70% エタノールで溶解、遠心分離して上清を濃縮したのち、先の上清とあわせて固相抽出カートリッジに負荷し、以下の操作を同様に行ったところ、回収率の向上が見られた。

##### 3.1.2 LC 条件および定量下限

本所では通常、食品衛生検査指針<sup>6)</sup>に記載されている

酢酸アンモニウム溶液とアセトニトリルを用いたグラジエント分析を行っているが、本法は最終試料溶液が 80% メタノール溶液であることから、イオンペア試薬を用いた高らの報告<sup>3)</sup> や鈴木らの報告<sup>5)</sup> を参考に 12 種類を高感度で分離よく検出できる条件を検討した。標準溶液において S/N $\geq$ 10 である濃度 0.025 $\mu$ g/mL (R3, B1, G3), 0.05 $\mu$ g/mL (R2, R102, R102, R105, R106, Y4), 0.1 $\mu$ g/mL (B2, R40, Y5)  $\mu$ g/mL を試料溶液の定量下限とした。この定量下限は試料中で換算すると 0.05~0.2 $\mu$ g/g に相当する。また、0.025~5 $\mu$ g/mL の範囲で各標準液濃度とピーク面積との相関係数は 0.999 以上であり良好な直線性を示した。

#### 3.2 添加回収試験

着色料の表示がない混合試料に対し、10 $\mu$ g/g となるように標準品を添加した回収試験(n=3)を行い、回収率を求めた。結果を表 3 に示す。B2 以外の 11 種類の着色料の回収率は 78.8~102.5%の範囲で良好であった。B2 は紫外線や熱によって分解しやすいことなどが知られており<sup>1)</sup>、抽出や精製過程等で一部分解してしまったものと思われるが、全群で 60%以上が回収出来ていること、B2 の表示があった 6 群の回収率は 75.7%であることから、本調査においては問題ないと考えられる。

#### 3.3 測定結果および摂取量調査結果

混合試料の測定結果のうち、着色料が検出された食品群を表 4 に示す。いずれも着色料の表示がある食品群からのみ検出されており、検出された着色料は R3, R40, R102, R106, Y4, Y5, B1, B2 の 8 種類であった。また、検出された着色料は全て表示に記載されているものであった。

測定結果および食品摂取量から算出した着色料の一日摂取量を表 5 に示す。摂取量が最も多い着色料は Y4 で、その大半は 7 群からの摂取であった。7 群はたくあんや高菜漬けなどの食品に Y4 の表示があり、これらを個別に測定したところ高濃度の Y4 が検出された。次に摂取量の多い着色料は R102 で、同じく 7 群からの摂取が大半を占め、梅干やしょうがなどの食品に R102 の表示があった。また、食品群別に見て着色料の総摂取量が多い群は 7 群、6 群、4 群の順であり、着色料の表示がある食品は漬物や菓子類、食肉製品、魚介類加工品などであった。

ADI が設定されているものについて ADI から算出した一人あたりの一日許容摂取量 (体重 50kg と仮定した場

合)との比較を行った結果を表6に示す。R3の摂取量はさほど多くないが、ADIが低いためにADI比が最も高く、1.39%であった。R3は4群、6群からの摂取が多く、4群は辛子明太子、かまぼこ、ウインナー、ハム、6群はチョコレートにR3の表示があった。その他の着色料は

購入したことが原因と考えられ、無作為に食品を購入した場合の摂取量はさらに少ないものと思われる。一方、摂取量の多い着色料、摂取される着色料の種類、着色料の摂取源となる食品群等の傾向は類似していた。

表3 添加回収試験結果

(n=3)

食品群	R2	R3	R40	R102	R104	R105	R106	Y4	Y5	B1	B2	G3
1	95.1	96.6	96.3	90.5	96.0	95.7	96.3	97.5	95.6	94.1	60.4	95.2
2	88.4	91.6	96.7	84.9	93.4	86.4	97.3	84.1	94.9	96.3	66.6	92.9
3	97.7	97.6	98.4	96.8	97.3	92.9	98.4	97.8	97.9	98.0	69.8	97.4
4	94.1	90.8	98.3	94.6	91.4	83.7	93.1	97.2	97.9	97.5	70.8	96.9
5	97.5	87.1	98.9	97.4	86.7	78.8	95.9	98.7	98.6	97.9	86.9	97.1
6	93.9	96.3	97.9	94.4	94.9	89.6	90.7	93.8	96.6	97.1	75.7	95.9
7	95.1	96.4	97.3	93.9	93.4	92.8	92.2	93.1	97.4	95.9	66.7	95.4
8	102.2	102.2	102.5	100.4	101.4	96.5	102.2	102.3	101.9	100.9	88.0	101.4

表4 着色料の検出結果(μg/g)

(n=3)

食品群※	R2	R3	R40	R102	R104	R105	R106	Y4	Y5	B1	B2	G3
1	N.D	N.D	N.D	N.D	N.D	N.D	N.D	5.96	N.D	0.60	N.D	N.D
4	N.D	1.24	N.D	3.22	N.D	N.D	0.32	N.D	N.D	0.11	N.D	N.D
5	N.D	N.D	N.D	N.D	N.D	N.D	N.D	4.28	N.D	0.73	N.D	N.D
6	N.D	5.27	19.34	N.D	N.D	N.D	0.19	9.14	16.60	6.36	0.24	N.D
7	N.D	0.12	N.D	23.94	N.D	N.D	0	34.02	N.D	0.10	N.D	N.D

※表中の食品群は着色料使用の表示がある食品のみを混合したもの

N.D;定量下限未満

表5 食品群別着色料一日摂取量(mg/人/日)

食品群	R2	R3	R40	R102	R104	R105	R106	Y4	Y5	B1	B2	G3
1	-	-	-	-	-	-	-	0.0339	-	0.0034	-	-
2	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
3	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
4	-	0.0347	-	0.0906	-	-	0.0091	-	-	0.0030	-	-
5	-	-	-	-	-	-	-	0.0115	-	0.0019	-	-
6	-	0.0326	0.1198	-	-	-	0.0012	0.0567	0.1028	0.0394	0.0015	-
7	-	0.0022	-	0.4479	-	-	-	0.6365	-	0.0018	-	-
8	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
合計	-	0.0696	0.1198	0.5385	-	-	0.0103	0.7385	0.1028	0.0496	0.0015	-

表6 一日摂取量とADIの比較

	R2	R3	R40	R102	R104	R105	R106	Y4	Y5	B1	B2	G3
一日摂取量(mg/人/日)	-	0.0696	0.1198	0.5385	-	-	0.0103	0.7385	0.1028	0.0496	0.0015	-
ADI(mg/kg体重/日)	0.5	0.1	7	4	※ <sup>2)</sup>	※	※	7.5	2.5	12.5	5	25
ADI×50	25	5	350	200				375	125	625	250	1250
ADI比(%) <sup>注1)</sup>	0.00	1.39	0.03	0.27				0.20	0.08	0.01	0.00	0.00

注1)一日摂取量/(ADI×50)×100

注2)ADIが設定されていない

いずれもADI比0.3%未満と低かった。着色料の表示がある食品を優先的に購入した場合でも、ADI比が0~1.39%であったことから、安全性に問題ないことが確認できた。

これらの結果を国立医薬品食品衛生研究所らの調査結果<sup>4)</sup>と比較すると、摂取量は高い値であった。これは食品の購入の際に着色料使用の表示のあるものを優先的に

## 4 まとめ

福岡市民が食事から摂取する着色料の量について、マーケットバスケット方式を用いて独自に調査を行った。市民一人あたりが一日に摂取する着色料はY4;0.7385mg, Y5;0.1028mg, R3;0.0696mg, R40;0.1198mg,

R102;0.5385mg , R106;0.0103mg , B1;0.0496mg , B2;0.0015mg であり, ADI (一日許容摂取量) が設定されているものについて ADI と比較すると, 0~1.39%で安全性に問題はなかった.

### 文献

- 1)日本薬学会編：衛生試験法・注解 2010, 373~380
- 2)伊藤誉志男：日本人の食品添加物の一日摂取量調査研究 マーケットバスケット方式, *Foods & Food Ingredients Journal of Japan*, Vol.212, No10, 2007 別刷
- 3)高智美, 他：日本人の食用タール色素の一日摂取量調査研究, *日本食品化学学会誌*, Vol.2(1), 64~67, 1995

- 4)河崎裕美, 他：マーケットバスケット方式による食品添加物の一日摂取量の推定 (2006-2008 年度), *日本食品化学学会誌*, Vol.18(3), 150~162, 2011
- 5)鈴木敬子, 他：東京都民の食事からの食品添加物一日摂取量調査 (着色料), *東京都健康安全研究センター研究年報*, 第 61 号, 233~238, 2010
- 6)厚生労働省監修：食品衛生検査指針 (食品添加物編), 169~177, (社) 日本食品衛生検査協会, 2003