

## 二酸化硫黄及び亜硫酸塩類の一日摂取量について

## Daily Intake of Sulphurdioxide Sulfites in Foods

安永 恵 藤川 名伊子 衣川 佳代 西岡 千鶴

Megumi YASUNAGA Meiko FUJIKAWA Kayo KINUGAWA Chizuru NISHIOKA

## 要 旨

国民が日常の食事を介して摂取する添加物量を把握し、食品添加物を含む食品の安全性を確保するため、国立医薬品食品衛生研究所との協力研究として「食品添加物一日摂取量調査」を実施している。平成19年度は、加工食品由来の二酸化硫黄及び亜硫酸塩類の一日摂取量を調査した。亜硫酸塩類の一日摂取量は、マーケットバスケット方式による食品群別調製試料では検出されず、個別食品から見積もられた値は、0.166mg/日/人であり、両者に差が見られたが、これは試料調製時の分解や、揮散によると考えられた。摂取量は安全性に問題ないと考えられる。

キーワード：二酸化硫黄 亜硫酸塩 食品添加物 マーケットバスケット方式 一日摂取量

## I はじめに

食品の多様化や健康への志向は、食品添加物の摂取量の変化を伴う。食品添加物の摂取量の把握するため、1976年から厚生科学研究費により「食品添加物一日摂取量実態調査研究班」が組織され、マーケットバスケット方式による調査解析が行われてきた。1997年からは厚生省の委託事業として「食品添加物マーケットバスケット調査」が実施され、同様の調査解析が行われてきた。本県では調査解析班に加わり、各種食品添加物の摂取量を調査してきた。2003年には加工食品由来の二酸化硫黄及び、亜硫酸塩類の摂取量について調査が行われた。<sup>1)</sup> 2007年度から食品添加物摂取量調査喫食リストが改訂され従来の7食品群から特定保健健康食品が加わり8食品群となり調査を実施している。

本報告では、リスト改定後の二酸化硫黄及び、亜硫酸塩類の摂取量を調査し、また、添加回収を実施した際の問題点について検討し、若干の知見を得たので報告する。

## II 方法

## 1 試料

マーケットバスケット方式により、全国6機関（札幌市衛生研究所、仙台市衛生研究所、東京都健康安全研究センター、香川県環境保健研究センター、長崎市保健環境試験所、沖縄県衛生環境研究所）で、食品群別喫食リストに基づき217種類348食品を購入し、表1に示した8食品群に分け、個々の食品の規定量を採取し検体とした。なお、2~7群は等量の水を加えて均質磨砕したものを試料とした。

## 2 分析方法

食品中の二酸化硫黄及び、亜硫酸塩類の分析は、第2版「食品中の食品添加物分析法」2000により実施した<sup>2)</sup>、<sup>3)</sup>。食品群別試料1g(実試料として、第1群、第8群は2g)、個別食品については、5~20gを採取し、通気蒸留比色法及び滴定法により定量を実施した。

表1 試料群及び食品の分類

群名	大分類	主成分	喫食量
1	調味嗜好飲料	水、アルコール	511.7g
2	穀類	澱粉	107.01g
3	いも類13.1g、豆類71.1g、種実類1.9g	澱粉	86.1g
4	魚介類35.0g、肉類21.2g、卵類1.4g	蛋白質	57.6g
5	油脂類13.5g、乳類30.9g	脂肪	44.5g
6	砂糖類1.5g、菓子類16.4g	炭水化物	17.9g
7	果実類0.7g、野菜類25.5g、海藻類0.3g	繊維	26.6g
8	特定保健用食品3.9g	水	3.9g

## 3 分析機器

分光光度計：(株)島津製作所 UV-2550

測定波長：580nm

## III 結果

全国6機関（札幌市衛生研究所、仙台市衛生研究所、東京都健康安全研究センター、香川県環境保健研究センター、長崎市保健環境試験所、沖縄県衛生環境研究所）における1群から8群の各食品群について、含有される二酸化硫黄濃度を測定し、含有量に一日喫食量を乗じて算出した一日摂取量を表2に示した。表3に個別食品中の二酸化硫黄含有量を、個別食品分析結果から計算上求められる各機関別食品群別二酸化硫黄含有量、及び一日摂取

量を表4, 5に示した。検出限界は, 0.2  $\mu\text{g/g}$ , 定量限界は1  $\mu\text{g/g}$  ( $\text{SO}_2$ として)である。1, 8群の検出限界及び定量限界は各々この数値の半分であった。

添加回収試験を実施したが, その結果を表6に, 又8群 特定保健食品について各機関の回収率及び構成食品を表7, 8に示した。

表3 個別食品中の二酸化硫黄含有量

食品購入機関名	食品群	食品	定量値 (単位 $\mu\text{g/g}$ )
札幌	1群	赤ワイン	64
札幌	1群	白ワイン	169
札幌	1群	白ワイン	221
札幌	3群	栗	1.74
仙台	1群	赤ワイン	16
仙台	1群	赤ワイン	76
仙台	1群	赤ワイン	132
仙台	1群	白ワイン	208
仙台	1群	白ワイン	106
仙台	1群	白ワイン	114
仙台	3群	栗	1.14
東京	1群	赤ワイン	71
東京	1群	赤ワイン	61
東京	1群	赤ワイン	69
東京	1群	白ワイン	136
東京	1群	白ワイン	128
東京	1群	白ワイン	92
香川	1群	赤ワイン	42
香川	1群	白ワイン	121
香川	1群	白ワイン	102
長崎	1群	赤ワイン	74
長崎	1群	赤ワイン	98
長崎	1群	赤ワイン	107
長崎	1群	白ワイン	119
長崎	1群	白ワイン	56
長崎	1群	白ワイン	111
長崎	3群	みそ	7.81
沖縄	1群	赤ワイン	46
沖縄	1群	赤ワイン	55
沖縄	1群	赤ワイン	49
沖縄	1群	白ワイン	98
沖縄	1群	白ワイン	159
沖縄	1群	白ワイン	100
沖縄	3群	みそ	5.66
沖縄	6群	惣菜・デザート類	ND

#### IV 考察

##### 1 二酸化硫黄含有量及び摂取量について

二酸化硫黄及び亜硫酸塩は, 食品添加物の漂白剤として多くの食品に使用されている。又食品由来の成分として生鮮食品中特に含硫化合物を多く含むニンニク, たまねぎ, 又春菊, ほうれん草, イチゴ, えび, まぐろなど多くの食品に広く含まれている。本年度8食品群の含有量測定では, すべての試料から二酸化硫黄は検出されなかった。これは二酸化硫黄及び亜硫酸塩使用記載のある

食品を含む第1, 3, 6群が, 含有量が少ないため食品群として希釈され, また, 試料調製時にホモジナイズなどの操作により二酸化硫黄の一部が酸化されて硫酸になったり, 亜硫酸ガスとして揮散したため減少し, 定量限界以下になったものと推測される。第2, 4, 5, 7, 8群については, 「二酸化硫黄及び亜硫酸塩等」使用記載のある個別食品はなかった。

前回二酸化硫黄摂取量調査(平成15年度)は食品調製リストが異なっているため(かんぴょう)など二酸化硫黄含有量の高い食品が含まれ, 食品群の含有量測定結果から算出した二酸化硫黄の機関平均一日総摂取量は0.154mg/人/日であったが<sup>1)</sup>, 今回調査では二酸化硫黄含有食品は大多数がワインであり, 試料調製時の分解, 揮散等により検出されなかった。(定量下限値以下であった。)

1982年以降の推移<sup>4), 5)</sup>を表9に示した。調査年度により大きく異なり, 調査食品により摂取量が左右されていると考えられる。

表9 二酸化硫黄一日摂取量の推移

調査年度	二酸化硫黄摂取量(mg/g)
1982~1986	0.073
1995~1996	0.088
1998~1999	0.057
2003	0.165
2007	0

##### 2 個別食品の二酸化硫黄含有量及び摂取量について

「二酸化硫黄及び亜硫酸塩等」使用記載のある個別食品は, 総計35検体(第1, 3, 6群)であった。1群30検体, 3群4検体, 6群1検体であった。

二酸化硫黄含有量は, 1.1~221  $\mu\text{g/g}$ の範囲にあった。

第1群の個別食品は「ワイン」のみで, 二酸化硫黄含有量は16~221  $\mu\text{g/g}$  第3群においては「みそ」5.7, 7.8  $\mu\text{g/g}$ , 「栗甘露煮」1.1, 1.7  $\mu\text{g/g}$ を含有していた。第6群 惣菜・デザート類「栗入りぜんざい」については検出されなかった。

今回, 調査対象個別食品は大多数がワインであり, 他の食品に含まれる二酸化硫黄は数種類の食品に限定され, 含有量も低いものが多かった。ワインの一日摂取量は1群総摂取量 511.7g に対し2.21gのため, 個別食品含量が高くても食品群としての摂取量が低いと考えられた。

「二酸化硫黄及び亜硫酸塩等」使用記載があったが, 検出されなかったのは, 第6群の「栗入りぜんざい」のみであった。

表2 各機関別・群別二酸化硫黄1日摂取量

単位: (mg/人/日)

機関名	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・海藻類	8 特定保健用食品	
札幌	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
仙台	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
東京	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
香川	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
長崎	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
沖縄	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
平均値	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00

表4 個別食品分析結果から計算上求められる機関別・食品群別二酸化硫黄含有量

単位: ( $\mu$ g/g)

機関名	食品群							
	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	8 特定保健用食品
札幌	0.228	0.000	0.004	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
仙台	0.408	0.000	0.002	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
東京	0.354	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
香川	0.136	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
長崎	0.405	0.000	0.390	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
沖縄	0.302	0.000	0.283	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
平均値	0.305	0.000	0.113	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000

n=3

表5 個別食品分析結果から計算上求められる機関別・食品群別二酸化硫黄一日摂取量

単位: (mg/人/日)

機関名	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・海藻類	8 特定保健用食品	
札幌	0.117	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.117
仙台	0.209	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.209
東京	0.181	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.181
香川	0.070	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.070
長崎	0.207	0.000	0.034	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.241
沖縄	0.155	0.000	0.024	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.179
平均値	0.156	0.000	0.010	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.166

表6 食品群別 添加回収結果

	食品群別								
	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	8 特定保健用食品(1g)	8 特定保健用食品(2g)
回収率(%)	88.4	76.6	86.2	69.6	79.1	82.9	78.6	54.0	67.2
	89.3	77.5	84.4	74.3	80.4	82.8	76.7	58.4	68.1
	87.1	79.3	82.9	68.9	82.7	87.5	77.8	56.5	66.5
平均(%)	88.3	77.8	84.5	70.9	80.7	84.4	77.7	56.3	67.2

表7 8群(特定保健用食品)買上機関別添加回収率(%)

添加量20  $\mu$ g/1検体 n=3

試料採取量 (実質g)	買上機関別						
	札幌	仙台	東京	香川	長崎	沖縄	平均
2g	82.3	52.9	75.5	56.3	45.6	82.2	65.8

表8 買上機関別8群 (特定保健用食品) 品目内訳

食品	製品名	買上機関別					
		札幌	仙台	東京	香川	長崎	沖縄
飲料	茶A	○	○				○
	茶B	○					
	茶C			○			
	茶D					○	○
	茶E	○	○				
	コーヒーA		○				
	コーヒーB					○	
	乳酸菌飲料A			○			○
	乳酸菌飲料B			○			
	粉末飲料A				○		
	粉末飲料B				○		
	粉末飲料C				○	○	
	砂糖代 替品	A	○	○	○	○	
B						○	
菓子等	ガムA	○	○	○	○	○	○
	ガムB	○					
	ガムC		○				
	シリアルA						○
	シリアルB	○					○
	ヌードル			○			
	タブレットA		○	○	○	○	
	タブレットb				○	○	
添加回収結果 (%) SO <sub>2</sub> 20 μg 添加/試料		82.3	52.9	75.5	56.3	45.6	82.2

個別食品分析値から見積られる一日摂取量は、0.166 mg/人/日で、第1群(0.156mg/人/日)と第3群 (0.010mg/人/日) の両群からであり、第1群では「ワイン」、第3群では、ほとんど「みそ」に由来するものであった。

二酸化硫黄の個別食品分析値から見積られる一日総摂取量は、一日摂取許容量 (ADI : 0.7mg/kg, 体重 50kg では 35mg/人/日) の 0.47 % で、安全性に問題のない量であった。

### 3 添加回収について

本方法により 1 から 8 の各食品群に試料 1g (1 群は 2g) に 20 μg/g (実質試料としては 1 群, 8 群については 10 μg/g) 添加し回収率を求めた。回収率は 56.3~88.3% で 8 群を除きおおむね良好な結果であった。回収率の悪い第 8 群について試料を 1g に半減し、添加回収を行ったところ 67.2% の回収率が得られた。第 8 群特定保健食品は摂取量調査用リストの見直しで平成 18 年度から加わった食品群である。1 から 7 群については前回の添加回収率と大きな差は見られなかったが、8 群については初めて回収率を求めたこととなる。通常添加回収は自機関の調製試

料で実施するが、回収率が極端に低い原因を検討した。各機関の 8 群に添加し実施したところ表 8 に示したように高い機関と低い機関と 30% 以上の差が見られた。そこで各機関の構成食品を比較した。回収率の高い札幌、沖縄の構成食品はよく似ていた。又回収率が低い香川、長崎の構成食品もよく似ており、食品群の構成品目が少ない場合選択した食品により大きく回収率が異なった。食品によっては開封後時間の経過とともに回収率が低下するものもあり、二酸化硫黄は摂取量調査にあまり適さない項目と考えられる。

本報告は国立医薬品食品衛生研究所食品添加物部との協力研究平成 19 年度食品添加物摂取量調査にかかる試験方法を中心にまとめたものである。

## V まとめ

食品添加物一日摂取量調査において、本年度、香川県は、二酸化硫黄の調査を実施した。

二酸化硫黄は、1~8 の食品群別試料からは検出されなかった。個別食品からは 1.1~221 μg/g の範囲で検出された。個別食品分析値から見積られた 1 日摂取量は、0.166mg/人/日で、測定値と理論値にはかなり差が見られた。

個別食品分析値から見積られた値と一日摂取許容量を比較しても、安全性に問題のない摂取量であった。

二酸化硫黄の調査においては、試料調製時に減少することなどから、マーケットバスケット方式による分析だけでは実態を捉えるのが難しく、個別食品の分析等、他の手法もあわせ考慮する必要がある。

## 文献

- 1) 山下みよ子, 森香織, 西岡千鶴: 加工食品由来の亜硫酸の一日摂取量について, 香川環保研所報, 3, 121~127, (2004)
- 2) 厚生省生活衛生局食品化学課: 第 2 版 「食品中の食品添加物分析法」 71-77 (2000)
- 3) 厚生労働省監修: 食品衛生検査指針 食品添加物編, 100-109, (社) 日本食品衛生協会 (2003)
- 4) 食品添加物研究会: 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, 20-25, 日本食品添加物協会 (2001)
- 5) 食品添加物研究会: あなたが食べている食品添加物 (本編) 113-114 (2001)