

# 加工食品中の銅クロロフィル及び銅クロロフィリンナトリウムの一日摂取量について

毛利 孝明・西岡 千鶴・児玉 益美  
黒田 弘之

## I 緒言

日本人が、一人一日摂取している食品添加物の種類と量を明らかにするため、昭和51年より国立衛生試験所を中心に「食品添加物一日摂取量実態調査班」が組織されて調査解析が行われている。

我々は、昭和61年より本調査研究班に参加し、昭和63年度は加工食品中の銅クロロフィル及び銅クロロフィリンナトリウムについて調査を行ったので、その結果について報告する。

## II 実験方法

### 1. 試料

昭和63年6月、マーケットバスケット方式により、全国12機関（札幌市衛研、仙台市衛研、東京都衛研、山梨県衛研、名古屋市衛研、国立衛試大阪支所、大阪市環研、香川県衛研、島根県衛研、北九州市環研、沖縄県衛研）で180種の食品を購入し、表1に示した8食品群に分け、等量の水を加えて均質磨砕したものをポリ容器に冷凍保存し分析に供した。

### 2. 分析法

銅クロロフィル及び銅クロロフィリンナトリウムについては、フレイムレス原子吸光を用いた分析法を作成した。

図1に示すように、希釈試料2gを採り、水8ml、2N HCl 0.5ml、アセトン2ml及び酢酸エチル10mlを加えて振とう器で抽出を行い、遠心分離後、酢酸エチル層をフレイムレス原子吸光分析器に注入し、あらかじめ銅含量を測定した銅クロロフィリンナトリウムを標準として定量を行った。この方法で銅が検出された検体について、試料2gを採り、0.5% NaOHを加えて弱アルカリ性とした後、同様な操作を行い、銅クロロフィルであるか銅クロロフィリンナトリウムであるかの判定を行ったが、銅クロロフィリンナトリウムについては、酸性時とアル

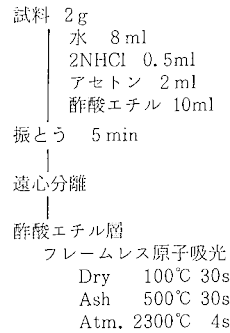


図1 銅クロロフィル及び銅クロロフィリンナトリウムの分析法

表1 試料群及び食品の分類

群名	大分類	状態	主成分	総重量
1	調味し好飲料	液体	水, アルコール	350.0 g
2	穀類	固体	澱粉	116.0 g
3	いも類, 豆類	固体	澱粉	72.5 g
	8.5 g 64.0 g			
4	魚介類, 肉類	固体	蛋白質	60.0 g
	48.5 g 11.5 g			
5	油脂類, 乳類	半固体	脂肪	60.5 g
	21.5 g 39.0 g			
6	砂糖類, 菓子類	固体	炭水化物	49.5 g
	1.0 g 48.5 g			
7	果実類, 野菜類, 海藻類	含水固体	繊維	37.5 g
	8.0 g 28.0 g 1.5 g			
8	加工食品, その他, 推定食品, 少量食品	固体	混合	26.1 g
	7.0 g 12.5 g 4.3 g 2.3 g			

B1 0.025 $\mu$ g 0.050 $\mu$ g 0.10 $\mu$ g



図2 銅標準の原子吸光チャート

表2 銅クロロフィル及び銅クロロフィリンナトリウムの添加回収率 (0.5 $\mu$ g/g添加, 酸性時)

食品群	回収率 (%)	
	銅クロロフィル	銅クロロフィリンナトリウム
1	98.7	98.2
2	93.6	84.2
3	95.6	82.5
4	95.1	82.1
5	96.6	90.5
6	96.4	83.4
7	98.4	81.1
8	96.8	82.9

n = 3

表3 銅クロロフィルの機関, 食品群別含有量 ( $\mu$ g/g Cuとして)

食品群 機関名	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群
札幌	ND	ND	ND	ND	ND	0.02	ND	ND
仙台	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
東京	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
山梨	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
長野	ND	ND	ND	ND	ND	0.03	ND	ND
名古屋	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
大阪市	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
大阪国	ND	ND	ND	ND	ND	0.02	ND	ND
香川	ND	ND	ND	ND	ND	0.04	ND	ND
島根	ND	ND	ND	ND	ND	0.03	ND	ND
北九州	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
沖縄	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
平均値	ND	ND	ND	ND	ND	0.012	ND	ND

ND<0.02 $\mu$ g/g

表4 銅クロロフィルの機関, 食品群別含有量 ( $\mu$ g/g 銅クロロフィルとして)

食品群 機関名	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群
札幌	ND	ND	ND	ND	ND	4.4	ND	ND
仙台	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
東京	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
山梨	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
長野	ND	ND	ND	ND	ND	6.7	ND	ND
名古屋	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
大阪市	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
大阪国	ND	ND	ND	ND	ND	4.4	ND	ND
香川	ND	ND	ND	ND	ND	8.9	ND	ND
島根	ND	ND	ND	ND	ND	6.7	ND	ND
北九州	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
沖縄	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
平均値	ND	ND	ND	ND	ND	2.6	ND	ND

ND<4.4 $\mu$ g/g

カリ性時での分別が完全ではなく、最終的には薄層クロマトグラフィーにより確認を行った。銅標準の原子吸光チャートを図2に示す。

### 3. 添加回収実験並びに定量限界

香川1, 2, 3, 4, 5, 6, 7及び8群を用い、0.5 $\mu$ g/g (実質試料, Cuとして) 添加レベルで回収率を求め、その結果を表2に示す。銅クロロフィルで93.6~98.7%, 銅クロロフィリンナトリウムで81.1~98.2%の回収率が得られた。本法による銅クロロフィル及び銅クロロフィリンナトリウムの定量限界は、0.02 $\mu$ g/g (Cuとして) であった。

## III 結果及び考察

### 1. 銅クロロフィル

各分担研究機関の試料につき、銅クロロフィル及び銅クロロフィリンナトリウムの分析法に従って試料中の銅クロロフィル含量を求めた結果は表3及び表4に示す通

りである。その結果、試料中の銅クロロフィル含量はND~0.04 $\mu$ g/g (Cuとして), ND~8.9 $\mu$ g/g (銅クロロフィルとして)であった。検出率は5.2%であった。なお、銅から銅クロロフィルへの換算は、「食品中の食品添加物の分析法」の数値(銅クロロフィル中の銅含量0.45%)を用いて行った。

第1群については、すべての試料から銅クロロフィルが検出されなかった。

第2群については、すべての試料から銅クロロフィルが検出されなかった。

第3群については、すべての試料から銅クロロフィルが検出されなかった。

第4群については、すべての試料から銅クロロフィルが検出されなかった。

第5群については、すべての試料から銅クロロフィルが検出されなかった。

第6群については、ND~0.04 $\mu$ g/g (Cuとして), ND~8.9 $\mu$ g/g (銅クロロフィルとして)の銅クロロフィルが検出された。

第7群については、すべての試料から銅クロロフィルが検出されなかった。

第8群については、すべての試料から銅クロロフィルが検出されなかった。

以上の測定結果に基づき、各群試料の1日喫食重量から1日摂取量を算出すると表5及び表6の値が得られた。すなわち、第1群からの銅クロロフィルの摂取量は0mg, 第2群は0mg, 第3群は0mg, 第4群は0mg, 第5群は0mg, 第6群は0~0.00198mg (Cuとして), 0~0.44mg (銅クロロフィルとして), 平均0.00058mg (Cuとして), 0.13mg (銅クロロフィルとして), 第7群は0mg, 第8群は0mgであった。

銅クロロフィルは第6群(砂糖類, 菓子類)のみから

表-5 銅クロロフィルの機関, 食品群別摂取量 (mg Cuとして)

食品群 機関名	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	摂取量
札幌	0	0	0	0	0	0.00099	0	0	0.00099
仙台	0	0	0	0	0	0	0	0	0
東京	0	0	0	0	0	0	0	0	0
山梨	0	0	0	0	0	0	0	0	0
長野	0	0	0	0	0	0.00149	0	0	0.00149
名古屋	0	0	0	0	0	0	0	0	0
大阪市	0	0	0	0	0	0	0	0	0
大阪国	0	0	0	0	0	0.00099	0	0	0.00099
香川	0	0	0	0	0	0.00198	0	0	0.00198
島根	0	0	0	0	0	0.00149	0	0	0.00149
北九州	0	0	0	0	0	0	0	0	0
沖縄	0	0	0	0	0	0	0	0	0
平均値	0	0	0	0	0	0.00058	0	0	0.00058
中央値	0	0	0	0	0	0	0	0	0
前回値	0	0	0	0	0	0	0	0	0

表-6 銅クロロフィルの機関, 食品群別摂取量 (mg 銅クロロフィルとして)

食品群 機関名	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	摂取量
札幌	0	0	0	0	0	0.22	0	0	0.22
仙台	0	0	0	0	0	0	0	0	0
東京	0	0	0	0	0	0	0	0	0
山梨	0	0	0	0	0	0	0	0	0
長野	0	0	0	0	0	0.33	0	0	0.33
名古屋	0	0	0	0	0	0	0	0	0
大阪市	0	0	0	0	0	0	0	0	0
大阪国	0	0	0	0	0	0.22	0	0	0.22
香川	0	0	0	0	0	0.44	0	0	0.44
島根	0	0	0	0	0	0.33	0	0	0.33
北九州	0	0	0	0	0	0	0	0	0
沖縄	0	0	0	0	0	0	0	0	0
平均値	0	0	0	0	0	0.13	0	0	0.13
中央値	0	0	0	0	0	0	0	0	0
前回値	0	0	0	0	0	0	0	0	0

検出された。

1日摂取量については、香川が最も高い値を示した。

以上の結果を総括すると、各機関の銅クロロフィルの1日摂取量の平均値は0.00058mg (Cuとして)、0.13mg (銅クロロフィルとして)で、第6群の寄与率は100%であった。

## 2. 銅クロロフィリンナトリウム

各分担研究機関の試料につき、銅クロロフィル及び銅クロロフィリンナトリウムの分析法に従って試料中の銅クロロフィリンナトリウム含量を求めた結果は表7及び表8に示す通りである。その結果、試料中の銅クロロフィリンナトリウム含量はND~0.14 $\mu$ g/g (Cuとして)、ND~3.9 $\mu$ g/g (銅クロロフィリンナトリウムとして)であった。検出率は7.3%であった。なお、銅から銅クロロフィリンナトリウムへの換算は、「食品中の食品添加物の分析法」の数値(銅クロロフィリンナトリウ

ム中の銅含量3.6%)を用いて行った。

第1群については、すべての試料から銅クロロフィリンナトリウムが検出されなかった。

第2群については、すべての試料から銅クロロフィリンナトリウムが検出されなかった。

第3群については、すべての試料から銅クロロフィリンナトリウムが検出されなかった。

第4群については、すべての試料から銅クロロフィリンナトリウムが検出されなかった。

第5群については、ND~0.03 $\mu$ g/g (Cuとして)、ND~0.83 $\mu$ g/g (銅クロロフィリンナトリウムとして)の銅クロロフィリンナトリウムが検出された。ただし、銅クロロフィリンナトリウムが検出されたのは1試料のみであった。

第6群については、すべての試料から銅クロロフィリンナトリウムが検出されなかった。

表7 銅クロロフィリンナトリウムの機関、食品群別含有量 ( $\mu$ g/g Cuとして)

食品群 機関名	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群
札幌	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.14	ND
仙台	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.04	ND
東京	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.04	ND
山梨	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.04	ND
長野	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
名古屋	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
大阪市	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
大阪国	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
香川	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.04	ND
島根	ND	ND	ND	ND	0.03	ND	0.12	ND
北九州	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
沖縄	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
平均値	ND	ND	ND	ND	0.0025	ND	0.035	ND

ND<0.02 $\mu$ g/g

表8 銅クロロフィリンナトリウムの機関、食品群別含有量 ( $\mu$ g/g 銅クロロフィリンナトリウムとして)

食品群 機関名	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群
札幌	ND	ND	ND	ND	ND	ND	3.9	ND
仙台	ND	ND	ND	ND	ND	ND	1.1	ND
東京	ND	ND	ND	ND	ND	ND	1.1	ND
山梨	ND	ND	ND	ND	ND	ND	1.1	ND
長野	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
名古屋	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
大阪市	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
大阪国	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
香川	ND	ND	ND	ND	ND	ND	1.1	ND
島根	ND	ND	ND	ND	0.83	ND	3.3	ND
北九州	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
沖縄	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
平均値	ND	ND	ND	ND	0.069	ND	0.97	ND

ND<0.56 $\mu$ g/g

第7群については、ND~0.14 $\mu$ g/g (Cuとして)、ND~3.9 $\mu$ g/g (銅クロロフィリンナトリウムとして)の銅クロロフィリンナトリウムが検出された。

第8群については、すべての試料から銅クロロフィリンナトリウムが検出されなかった。

以上の測定結果に基づき、各群試料の1日喫食重量から1日摂取量を算出すると表9及び表10の値が得られた。すなわち、第1群からの銅クロロフィリンナトリウムの摂取量は0mg、第2群は0mg、第3群は0mg、第4群は0mg、第5群は0~0.00182mg (Cuとして)、0~0.050mg (銅クロロフィリンナトリウムとして)、平均0.00015mg (Cuとして)、0.004mg (銅クロロフィリンナトリウムとして)、第6群は0mg、第7群は0~0.00525mg (Cuとして)、0~0.146mg (銅クロロフィリンナトリウムとして)、平均0.00131mg (Cuとして)、0.036mg (銅クロロフィリンナトリウムとして)、第8群は0mgであった。

摂取量は各群の平均値でみると第7群(果実類、野菜類、海藻類)が最も高く、ついで第5群(油脂類、乳類)の順となる。

一日摂取量については、島根が最も高い値を示した。

以上の結果を総括すると、各機関の銅クロロフィリンナトリウムの1日摂取量の平均値は0.00146mg (Cuとして)、0.040mg (銅クロロフィリンナトリウムとして)で、第7群の寄与率は90%であった。

## IV 結 論

食品添加物の1日摂取量に関する研究については、本年度は食品中に常在成分として含まれない添加物としての銅クロロフィル及び銅クロロフィリンナトリウムにつき、加工食品を用いて調製した試料の調査を行った。調査に用いた試料は、12分担研究機関において調製した食品の混合物、第1~8群の計96試料である。銅クロロ

表-9 銅クロロフィリンナトリウムの機関、食品群別摂取量 (mg Cuとして)

機関名	食品群	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	摂取量
札幌	幌	0	0	0	0	0	0	0.00525	0	0.00525
仙台	台	0	0	0	0	0	0	0.00150	0	0.00150
東京	京	0	0	0	0	0	0	0.00150	0	0.00150
山梨	梨	0	0	0	0	0	0	0.00150	0	0.00150
長野	野	0	0	0	0	0	0	0	0	0
名古屋	屋	0	0	0	0	0	0	0	0	0
大阪市	市	0	0	0	0	0	0	0	0	0
大阪国	国	0	0	0	0	0	0	0	0	0
大香	川	0	0	0	0	0	0	0.00150	0	0.00150
島根	根	0	0	0	0	0.00182	0	0.00450	0	0.00632
北九州	州	0	0	0	0	0	0	0	0	0
沖縄	縄	0	0	0	0	0	0	0	0	0
平均値		0	0	0	0	0.00015	0	0.00131	0	0.00146
中央値		0	0	0	0	0	0	0.00075	0	0.00075
前回値		0	0	0	0	0	0	0	0	0

表-10 銅クロロフィリンナトリウムの機関、食品群別摂取量 (mg 銅クロロフィリンナトリウムとして)

機関名	食品群	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群	8群	摂取量
札幌	幌	0	0	0	0	0	0	0.146	0	0.146
仙台	台	0	0	0	0	0	0	0.041	0	0.041
東京	京	0	0	0	0	0	0	0.041	0	0.041
山梨	梨	0	0	0	0	0	0	0.041	0	0.041
長野	野	0	0	0	0	0	0	0	0	0
名古屋	屋	0	0	0	0	0	0	0	0	0
大阪市	市	0	0	0	0	0	0	0	0	0
大阪国	国	0	0	0	0	0	0	0	0	0
大香	川	0	0	0	0	0	0	0.041	0	0.041
島根	根	0	0	0	0	0.050	0	0.124	0	0.174
北九州	州	0	0	0	0	0	0	0	0	0
沖縄	縄	0	0	0	0	0	0	0	0	0
平均値		0	0	0	0	0.004	0	0.036	0	0.040
中央値		0	0	0	0	0	0	0.021	0	0.021
前回値		0	0	0	0	0	0	0	0	0

フィル及び銅クロロフィルリンナトリウムの分析法は、原子吸光分析法によった。

試料中の銅クロロフィル含量は、ND $\sim$ 0.04 $\mu$ g/g (Cuとして)、ND $\sim$ 8.9 $\mu$ g/g (銅クロロフィルとして)で、5.2%の試料から銅クロロフィルが検出された。銅クロロフィルの1日摂取量は0 $\sim$ 0.00198mg (Cuとして)、0 $\sim$ 0.44mg (銅クロロフィルとして)で、平均0.00058mg (Cuとして)、0 $\sim$ 0.13mg (銅クロロフィルとして)であった。

試料中の銅クロロフィルリンナトリウム含量は、ND $\sim$ 0.14 $\mu$ g/g (Cuとして)、ND $\sim$ 3.9 $\mu$ g/g (銅クロロフィルリンナトリウムとして)で、7.3%の試料から銅クロロフィルリンナトリウムが検出された。銅クロロフィルリンナトリウムの一日摂取量は0 $\sim$ 0.00632mg (Cuとして)、0 $\sim$ 0.174mg (銅クロロフィルリンナトリウムとして)で、平均0.00146mg (Cuとして)、0.040mg (銅クロロフィルリンナトリウムとして)であった。

貴重な調査試料を提供していただいた大内格之(札幌

市衛生研究所)、三島靖子(仙台市衛生研究所)、西島基弘(東京都衛生研究所)、深澤喜延(山梨県衛生研究所)、林弘道(長野県衛生研究所)、坂部美雄(名古屋市衛生研究所)、伊藤誉志男(国立衛生試験所大阪支所)、佐々木清司(大阪市環境科学研究所)、後藤宗彦(島根県衛生公害研究所)、一色賢司(北九州市環境衛生研究所)、大城善昇(沖縄県公害衛生研究所)の諸氏に感謝します。

## 文 献

- 1) 厚生省生活衛生局食品化学課編：食品添加物の1日摂取量に関する研究(昭和59年度)
- 2) 厚生省環境衛生局食品化学課編：食品中の食品添加物分析法，講談社サイエンティフィック
- 3) 牛山博文，西島基弘，安田和男，上村尚，田端節子，二島太一郎：食品中の銅クロロフィル及び銅クロロフィルリン分析法，食品衛生学雑誌，27，417 $\sim$ 420(1986)