

高速液体クロマトグラフィーによる 食品中のタール色素の定量

Determination of Coal-Tar Dyes in Processed Foods
by High Performance Liquid Chromatography

長南 隆夫 堀 義宏

Takao Chonan and Yoshihiro Hori

緒 言

我が国では、食品添加物として許可されているタール色素は食品への使用量についての基準が定められていないため、食品中のタール色素の定量法および市販食品中のタール色素含量についての報告は少ない^{1~5)}。しかし、FAOとWHOの食品添加物専門委員会では、すでにタール色素の1日摂取許容量(ADI)について勧告している⁶⁾ことから、市販食品に含まれているタール色素量の実態を把握するため、食品中のタール色素の定量法の開発は食品衛生上重要なと考えられる。

タール色素の定量法としては、従来より薄層クロマトグラフィー(TLC)法¹⁾があるが、TLC法は、共存物質の影響を受けやすく、また精度および各色素間の分離が十分でないため、最近は高速液体クロマトグラフィー(HPLC)による定量法が報告されている^{2,7)}。しかし、これらの方法は、操作が煩雑であるため多数の試料を同時に分析するには難点があり、また種々の食品に対する前処理法の検討が不十分である。

今回、我々は、食品の種類別に簡便な前処理法を検討して、HPLCで迅速にタール色素を定量する方法を開発し、市販食品中のタール色素を定量したのでその結果を報告する。

実験方法

1. 試料

北海道内の食品製造所および食品販売店で入手した菓子類32試料、魚肉練り製品12試料、漬物10試料、たらこ7試料、その他10試料を用いた。

2. 試薬

緑色3号を除くタール色素(黄色4号、5号、赤色2号、

3号、102号、104号、105号、106号、青色1号、2号)は三栄化学(株)製食用色素標本を、緑色3号は東京化成(株)試薬一級品を、そのまま標準品として用いた。ポリアミドは和光純薬(株)製試薬、タカジアスターは三共(株)製、他の試薬は、試薬特級品を用いた。有機溶媒は、試薬一級品を蒸留して用いた。

ポリアミドカラム: ポリアミド1gをカラム管(1cmφ×30cm)に水で湿式充てんした。

セッパック C₁₈ カートリッジ(ウォーターズ社製): あらかじめメタノール10ml、水10ml、5%酢酸-10%水酸化n-テトラブチルアンモニウム溶液(10:1)10mlの順で洗浄を行なった。

3. 試験液の調製

(1) 菓子(さくらもち、大福もち、うぐい)

乳鉢で粉碎、均一にした試料5gを秤取し、0.1%アンモニア含有80%エタノール40mlを加えて、5分間ホモゲナイズし、吸引ろ過した。残渣に、0.1%アンモニア含有80%エタノール30mlを加え、同様の操作をさらに2回繰り返し、前後のろ液を合わせた。ろ液を減圧下で約5mlに濃縮し、10%酢酸4mlを加え、ポリアミドカラムに負荷し、水、80%メタノール各30mlで順次カラムを洗浄した後、0.5%アンモニア含有50%メタノール30mlでタール色素を溶出させた。溶出液を減圧下で濃縮し、水で5mlにメスアップし、試験液とした。

(2) さくらもち、大福もち、うぐいすもち及びすあま

さくらもち、大福もち及びうぐいすもちは、1個の全重量を秤量後、あんを除き、着色された外皮の重量を秤量した。外皮20gを秤取し、水20ml、1%タカジアスター溶液10mlを加え、37°Cで1晩放置後、エタノール120ml、アンモニア水0.5mlを加え、5分間ホモゲナイズし、吸引ろ過した。残渣に、0.1%アンモニア含有80%エタノール40

ml を加え、同様の操作をさらに 2 回繰り返し、前後のろ液を合わせた。ろ液を減圧下で約 10 ml に濃縮し、水 20 ml を用いて 100 ml のビーカーに移し、10% 酢酸 4 ml、ポリアミド 0.5 g を加え、マグネットスターラーで 10 分間攪拌後、遠心分離 (3,000 rpm, 5 分間) した。上清に、ポリアミド 0.5 g を加え、同様の操作を繰り返した。ポリアミドを合わせた後、カラム管 (1.7 cm ϕ × 30 cm) に水を用いて充てんした。以下、(1)菓子と同様の方法で精製し、試験液を調製した。

すあまは、10 g を秤取し、以下、同様に操作した。

(3) 漬物および魚肉練り製品

試料 30 g に水 30 g を加え、オスターライザー (OSTER CORPORATION 社製) で均一にした試料 10 g を秤取し、以下、(1)菓子と同様に抽出、精製し、試験液を調製した。

(4) たらこ

試料 30 g に水 30 g を加え、オスターライザーで均一にした試料 10 g を秤取し、0.2% アンモニア含有 80% エタノール 40 ml を加えて、5 分間ホモゲナイズした後、遠心分離 (3,000 rpm, 5 分間) した。沈殿に、0.2% アンモニア含有 80% エタノール 40 ml を加え、同様の操作をさらに 2 回繰り返し、前後の上清を合わせた。上清に、石油エーテル 40 ml を加え、激しく振り混ぜて脱脂後、含水エタノール層を分取し、減圧下で約 10 ml に濃縮した。濃縮液に酢酸 0.5 ml と 10% 水酸化 n-テトラブチルアンモニウム溶液 0.5 ml を加え、10 ml の注射筒をセットしたセップパック C₁₈ カートリッジに注入し、色素を保持させた後、水 20 ml でカートリッジを洗浄し、0.009% アンモニア含有 50% メタノール 20 ml でタール色素を溶出させた。抽出液中の色素の一部がカートリッジに保持されずに溶出する場合は、この溶出液を前述の方法で洗浄したカートリッジに再び注入し、同様の操作を行ない、前後の溶出液を合わせた。溶出液を減圧下で濃縮し、水で 10 ml にメスアップし、試験液とした。

(5) キャンディー

乳鉢で粉碎した試料 5 g を秤取し、水 40 ml を加えて、温湯中で加温溶解させ、10% 酢酸 4 ml を加えた後、以下、(1)菓子と同様の方法で精製し、試験液を調製した。

(6) 清涼飲料水

炭酸を含む清涼飲料水は、超音波洗浄器で脱気し、またジュースは十分攪拌後、10 g を秤取し、酢酸 0.1 ml および 10% 水酸化 n-テトラブチルアンモニウム溶液 0.5 ml を加え、以下、(4)たらこと同様の方法で精製し、試験液を調製した。

(7) その他の食品

のり、でんぶおよび酢だこは、(2)漬物および魚肉練り製品と同様の方法で試験液を調製した。

鯨ベーコンは、(5)たらこと同様の方法で抽出液を作製し、

石油エーテル 40 ml を加え、激しく振り混ぜて脱脂した。含水エタノール層を分取し、減圧下で濃縮した後、水で 10 ml にメスアップし、試験液とした。

4. 検量線

定量用の標準溶液は、各タール色素 5.0 mg を水に溶解して 50 ml とし、これを 10 倍、20 倍、40 倍に希釀して検量線を作成した。定量は、ピーク面積を測定する絶対検量線法で行なった。

5. HPLC の条件

機器は、紫外波長可変検出器付日立 655 型高速液体クロマトグラフ、東洋曹達 UV-8 model II 型可視検出器、島津クロマトパック C-R3A、HEWLETT PACKARD 3390 A 型インテグレーター、カラムは Nucleosil 5 C₁₈ (4 mm I.D. × 250 mm) を用いた。色素の検出は、紫外検出器と可視検出器を接続して両波長で行ない、可視部で定量した。分析の条件は、下記のとおりである。

(1) 黄色 4 号、5 号、赤色 2 号、102 号および青色 2 号

移動相： メタノール-0.2% 酢酸アンモニウム (27:73)
流速： 0.5 ml/min
検出： 254 nm 0.16 AU
430 nm 0.01 AU (黄色 4 号)
470 nm 0.01 AU (黄色 5 号)
530 nm 0.01 AU (赤色 2 号、102 号)
600 nm 0.01 AU (青色 2 号)

注入量： 10 μ l

(2) 青色 1 号および緑色 3 号

移動相： メタノール-0.2% 酢酸アンモニウム (43:57)
流速： 0.5 ml/min
検出： 254 nm 0.16 AU, 600 nm 0.01 AU
注入量： 10 μ l

(3) 赤色 3 号、104 号、105 号および 106 号

移動相： アセトニトリル-メタノール-0.2% 酢酸アンモニウム (25:32:43)
流速： 0.5 ml/min
検出： 254 nm 0.16 AU, 530 nm 0.01 AU
注入量： 10 μ l

実験結果および考察

1. HPLC 条件の検討

担体として Nucleosil 5 C₁₈ を用いたタール色素標準品の測定波長 254 nm における HPLC のクロマトグラムを、Fig. 1 に示す。移動相として、黄色 4 号、5 号、赤色 2 号、102 号および青色 2 号は、メタノール-0.2% 酢酸アンモニウム = 27:73、青色 1 号および緑色 3 号は、メタノール-0.2% 酢酸アンモニウム = 43:57、赤色 3 号、104 号、105 号および

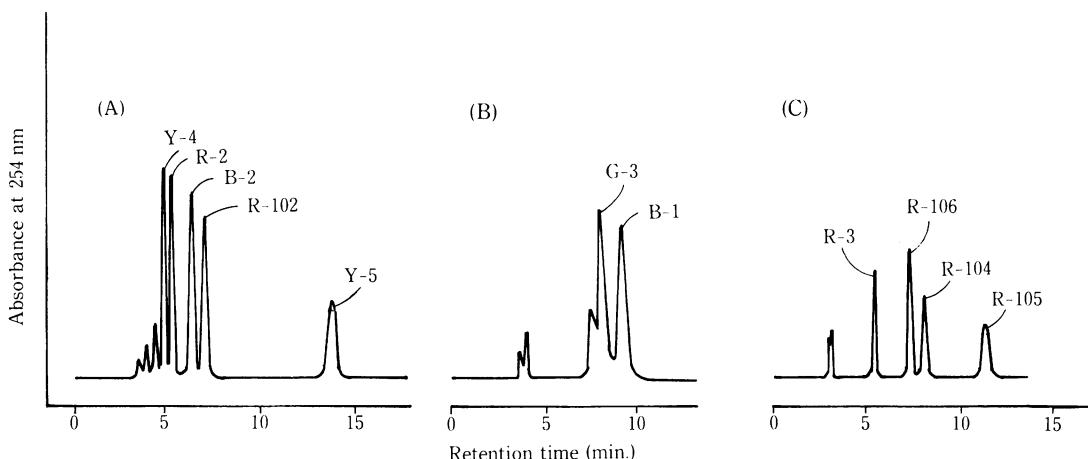


Fig. 1 High Performance Liquid Chromatograms of Coal-Tar Dyes

Condition; column: Nucleosil 5C₁₈ (4 mm I. D. × 250 mm)

mobile phase: (A) CH₃OH : 0.2% CH₃COONH₄ = 27 : 73

(B) CH₃OH : 0.2% CH₃COONH₄ = 43 : 57

(C) CH₃CN : CH₃OH : 0.2% CH₃COONH₄ = 25 : 32 : 43

flow rate: 0.5 ml/min

Dyes; Y-4: Food Yellow No. 4, R-2: Food Red No. 2, B-2: Food Blue No. 2, R-102: Food Red No. 102,

Y-5: Food Yellow No. 5, G-3: Food Green No. 3, B-1: Food Blue No. 1, R-3: Food Red No. 3,

R-106: Food Red No. 106, R-104: Food Red No. 104, R-105: Food Red No. 105

106号は、アセトニトリル-メタノール-0.2%酢酸アンモニウム=25:32:43を用いることにより、良好な分離を示した。なお、緑色3号は、ピークが2つ認められ、不純物が含まれていたが、緑色3号は現在ほとんど使用されていないため精製を行わず、市販試薬をそのまま標準品として用いた。本条件で、各タール色素の検量線は、25~100 ngの範囲で原点を通る直線となった。

また、検出限界は、それぞれ、黄色4号3 ng、黄色5号10 ng、赤色2号5 ng、赤色3号1 ng、赤色102号5 ng、赤色104号3 ng、赤色105号10 ng、赤色106号2 ng、青色1号10 ng、青色2号5 ng、緑色3号10 ngであった。

2. 抽出条件の検討

現在、我が国で食品添加物として許可されている11種のタール色素は、酸性色素であるため、抽出溶媒にアンモニアを加えるとタール色素の抽出率は高まる。しかし、アンモニアに非常に不安定な色素も報告されている¹⁴ため、抽出溶媒に加えるアンモニアの量は必要最少限にすることが望ましい。

そこで、抽出溶媒として80%エタノールと0.1%アンモニア含有80%エタノールを用いて、菓子中のタール色素の抽出を3回行って比較したところ、80%エタノールではタール色素を完全に抽出することができなかったが、0.1%アンモニア含有80%エタノールではタール色素を完全に抽出でき、抽出溶媒のアンモニア濃度は0.1%で良いことがわかつた。

た。なお、漬物および魚肉練り製品についても、菓子と同じ抽出溶媒で良好な結果が得られた。

しかし、たらこおよびさくらもちなどのもち菓子中のタール色素は、0.1%アンモニア含有80%エタノールで抽出を3回繰り返しても完全には抽出されなかった。そのため、抽出溶媒のアンモニア濃度を0.2%に上げ、タール色素の溶解性を高めて同様の操作を行ったところ、たらこ中のタール色素は完全に抽出された。しかし、もち菓子では、抽出溶媒のアンモニア濃度が0.1%のときと同様に抽出は不十分であった。この結果は、タール色素がもち米に強く染着しているため、溶媒抽出法だけでは定量的な抽出が困難であることを示唆している。そこで、澱粉分解能の強いタカジアスターを用いて、もち米中の澱粉を分解した後、0.1%アンモニア含有80%エタノールで抽出したところ、タール色素は抽出され、溶媒抽出前のタカジアスター処理が有効であることが判明した。

以上の結果から、菓子、漬物および魚肉練り製品の抽出溶媒には、0.1%アンモニア含有80%エタノール、たらこには、0.2%アンモニア含有80%エタノール、もち菓子には、タカジアスター処理後0.1%アンモニア含有80%エタノールを用い、抽出は3回行うこととした。

3. 精製法の検討

(1) 菓子、漬物および魚肉練り製品抽出液の精製

抽出液には、ショ糖、タンパク質、食塩などの食品成分

が大量に含まれているため、HPLC でタール色素を分析する場合には、これらを除くことが必要である。食品成分とタール色素を分離する方法としては、羊毛染色法⁸⁾、イオン交換液による液一液分配法¹⁾、ポリアミド法⁹⁾などが報告されている。羊毛染色法と液一液分配法には、アルカリ性での加熱によるタール色素の分解¹⁰⁾や操作の煩雑さなどの問題点がある。一方、ポリアミド法は検討されたタール色素の数が少ない⁹⁾ものの操作法は比較的簡易であるため、我々は、ポリアミドカラムによる精製を試み、ポリアミド量、負荷、洗浄および溶出方法について検討した。

タール色素を添加した菓子抽出液を酢酸で酸性にして、水で湿式充てんしたポリアミドカラムに負荷したところ、タール色素はポリアミドに吸着された。このときのポリアミドの量は 1 g で十分であった。次いで、水、80%メタノール各 30 ml で順次カラムを洗浄したところ、大部分の爽雜物を取り除くことができた。タール色素の溶出には、溶出液として 0.5%アンモニア含有 50%メタノールを用いたところ、全色素とも 20 ml で完全に溶出された。また、漬物および魚肉練り製品抽出液についても、同様の方法で良好な結果が得られた。以上の結果から、菓子、漬物および魚肉練り製品抽出液の精製は、ポリアミドカラムで行なうこととした。

(2) もち菓子抽出液の精製

酵素剤で処理したさくらもち、大福もちなどのもち菓子抽出液は、もち米の分解物を大量に含むため、これをポリアミドカラムに負荷するとカラムは目詰まりをおこし、以後の操作は困難であった。そこで、抽出液中のタール色素をバッチ法でポリアミドに吸着させた後、ポリアミドをカラム管に移し、以下、菓子と同様の操作を行った。

(3) たらこ抽出液の精製

ポリアミドカラムを、たらこ抽出液の精製に使用したところ、タール色素はポリアミドに強く吸着し、溶出液を種々検討したが、定量的な精製は困難であった。

そこで、Puttemans らが報告¹¹⁾した逆相系の担体を用い

るペアードイオン法を参考にし、セップパック C₁₈ を用いる精製法について検討した。条件の検討は、黄色系および赤色系のタール色素を添加したらこを用いて行った。タール色素を、0.2%アンモニア含有 80%エタノールで抽出し、減圧下でエタノールとアンモニアを留去後、酢酸とカウンターイオンとして水酸化 n-テトラブチルアンモニウムを加えて、セップパック C₁₈ カートリッジに注入し、タール色素をカートリッジに保持させ、ついで、カートリッジを水で洗浄した。保持されたタール色素は、メタノールー水(90:10) 系およびメタノールー水-酢酸(90:10:1) 系の溶液では、完全に溶出させることができなかったので、メタノールー水-アンモニア系について検討した。0.009%アンモニア含有 50%メタノールを用いた場合には、たらこへの使用頻度の高い黄色 4 号、5 号、赤色 3 号および 102 号は完全に溶出できたが、極性の低い赤色 105 号は、この条件では完全には溶出せず、完全に溶出させるためには、0.009%アンモニア含有メタノールを用いる必要があった。しかし、この条件下では、同時に多くの爽雜物も溶出するため、これを試験液とすると HPLC カラムの寿命を縮めること、また、赤色 105 号をたらこから検出した報告がない^{3,4)}ことなどから、溶出液としては、0.009%アンモニア含有 50%メタノールを用いることとした。この方法において、セップパック C₁₈ カートリッジは、少なくとも 5 回までは再使用が可能であった。

4. 添加回収率

タール色素を、菓子、漬物、魚肉練り製品、さくらもちおよびたらこに、それぞれ、50, 100, 50, 0.5, 10 μg/g 添加して、本法による回収率を求め、結果を Table 1 に示した。

たらこに添加した赤色 105 号を除いて、良好な回収率が得られた。

5. 市販食品中のタール色素含量

本法を用いて市販食品中のタール色素含量を調査した結果

Table 1 Recoveries of Coal-Tar Dyes Added to Processed Foods

Foods	Added (μg/g)	Recoveries ^{a)} (%)											
		Food Yellow No. 4	Food Yellow No. 5	Food Red No. 2	Food Red No. 3	Food Red No. 102	Food Red No. 104	Food Red No. 105	Food Red No. 106	Food Blue No. 1	Food Blue No. 2	Food Green No. 3	
		Confectioneries	50	96.4	96.6	96.0	101.0	98.2	92.9	94.5	98.4	96.3	93.1
Pickles	100	101.5	97.3	94.9	100.3	99.4	93.9	99.4	97.4	97.4	97.5	95.1	99.6
Fish paste products	50	92.1	98.1	97.4	99.1	96.6	93.2	94.1	99.7	99.7	97.0	90.6	98.0
Sakura-mochi	0.5				93.5	88.5	89.2	89.0	91.8	100.3			
Salted pollack roe	10	83.4	100.1	86.2	95.2	99.3	78.6	53.2	99.3				

a) Values are averages of triplicate data

果を Table 2 に示した。

菓子から検出されたタール色素は、黄色4号、赤色106号など7種で、干菓子からは黄色4号が100 μg/g以上検出された試料もあったが、和生菓子およびさくらもちでは、検出量(各色素の和)が低く、それぞれ、10、1 μg/g以下が多かった。

漬物から検出されたタール色素は、黄色4号、黄色5号など4種で、たくあん漬からは、黄色4号が76.6～124.0 μg/gの範囲で検出されたが、大根みそ漬からは、黄色4号の他に黄色5号および赤色102号が検出され、検出量(各色素の和)も204.1～356.8 μg/gと、たくあん漬に比べ高かった。

Table 2 Analytical Results of Coal-Tar Dyes in Processed Foods

Foods	Contents of coal-tar dyes (μg/g)							
	Food Yellow No. 4	Food Yellow No. 5	Food Red No. 3	Food Red No. 102	Food Red No. 104	Food Red No. 105	Food Red No. 106	Food Blue No. 1
Confectioneries								
Nerikiri	No. 1		5.8		0.7	2.2		
	No. 2	94.5						
Gyuhī		3.2				0.2		
Yokan		7.6						1.1
Japanese-style confectioneries	No. 1	10.2						2.4
(Undried and semi-dried)	No. 2		1.9				0.7	
	No. 3	2.4					0.5	
	No. 4						0.4	
	No. 5		3.5					
	No. 6		2.2				0.9	
	No. 7				1.1			
Sakura-mochi	No. 1			0.31			0.10	
	No. 2		0.04				0.10	
	No. 3		0.25				0.06	
	No. 4		0.02	0.29			0.14	
	No. 5			2.51				
	No. 6		0.33					
	No. 7		0.49				0.17	
	No. 8						0.17	
	No. 9						0.07	
	No. 10		0.14				0.21	
Daifuku-mochi	No. 1						0.06	
	No. 2						0.10	
Uguisu-mochi		20.0						3.5
Suama	No. 1		0.3				0.2	
	No. 2		1.7				0.5	
Foreign-style confectioneries		2.8						
Dry-confectioneries	No. 1	146.0						12.5
	No. 2	104.0						12.5
	No. 3						11.9	
	No. 4		8.7				3.1	
	No. 5	5.0						12.9

		Contents of coal-tar dyes ($\mu\text{g/g}$)							
		Food Yellow No. 4	Food Yellow No. 5	Food Red No. 3	Food Red No. 102	Food Red No. 104	Food Red No. 105	Food Red No. 106	Food Blue No. 1
Pickles									
Pickled radish (Takuan-zuke)	No. 1	95.5							
	No. 2	76.6							
	No. 3	124.0							
	No. 4	90.6							
	No. 5	91.6							
	No. 6	115.0							
Radish soaked in miso (Miso-zuke)	No. 1	165.0	32.4		6.7				
	No. 2	221.0	125.0		10.8				
Pickled eggplant (Nasu-zuke)									65.7
Pickled cucumber (Kyuri-zuke)		25.5							
Processed sea food									
Fish paste products (Naruto)	No. 1			15.5				5.6	0.2
	No. 2	1.0		37.5			0.2	10.5	1.9
	No. 3	1.4		57.2				12.0	2.3
	No. 4			30.0			0.5	2.9	
	No. 5	0.7		44.1			2.1	8.1	1.3
	No. 6			109.0			4.6		
Fish paste products (Kamaboko)	No. 1			12.5				3.5	
	No. 2			25.6					
	No. 3			65.3					
	No. 4							10.8	
	No. 5			7.9			0.4	0.3	
	No. 6	37.1							
Salted pollack roe (Tarako)	No. 1	7.5		0.8	5.1				
	No. 2	1.8			7.9				
	No. 3				2.1				
	No. 4	22.5			26.2				
	No. 5		10.1		11.7				
	No. 6	7.3	6.0		12.2				
	No. 7	1.3	17.3		13.1				
Whale bacon						332.0			
Pickled octopus (Sudako)	No. 1					29.1			
	No. 2				525.0				
Denbu							20.0		
Seasoned purple laver		320.0						60.8	
Candies	No. 1				28.2				
	No. 2	25.6							
Beverages	No. 1				78.6				
	No. 2	26.0							
	No. 3	9.2	22.0						

Food Red No.2, Food Blue No.2 and Food Green No.3 were not detected in all samples.

水産加工品から検出されたタール色素は、赤色3号、赤色106号など8種で、魚肉練り製品に使用されるタール色素は、赤色3号を主体とする混合色素が多く、検出量（各色素の和）は、8.6～113.6 μg/gと大きな幅が認められた。また、たらこに使用されるタール色素も、赤色102号を主体とする混合色素が多く、検出量（各色素の和）は、2.1～48.7 μg/gであった。

今回の調査により、比較的多数の試料を分析した漬物、魚肉練り製品、たらこ、和生菓子およびさくらもちについては、使用される色素の種類および量を把握することができた。なお、現在我が国では、食品添加物として11種類のタール色素が許可されているが、本調査に用いた試料からは、赤色2号、青色2号および緑色3号は検出されなかつた。

次に、検出された各タール色素含量の分布をみると、種々の食品に使用される黄色4号は0.7～320.0 μg/gの広い濃度範囲で検出され、漬物、干菓子などからは、100 μg/g前後で検出されることが多かった。赤色102号の検出量は、菓子およびたらこからは30 μg/g以下と低かったが、525 μg/g検出された酢だこおよび78.6 μg/g検出された清涼飲料水もあった。FAOとWHOの勧告した赤色102号の暫定ADI値は0.125 mg/kgと低く、この値を体重60 kgの人へ換算すると、7.5 mgとなり、上記酢だこ15 g、清涼飲料水100 ml中に含まれる色素量に相当する。我が国では、食品へのタール色素の使用量についての基準が設定されていないため、幼児でも摂取の機会の多い清涼飲料水などにもADI値の低いタール色素が高濃度で使用されており、今後は食品への使用量についての基準の設定が必要と考えられる。

他にタール色素の検出量の高かったものとしては、赤色3号が109 μg/g検出された魚肉練り製品および赤色104号が332 μg/g検出された鯨ベーコンがあるが、大部分の食品は50 μg/g以下の検出量であった。

結 語

1. 食品（もち菓子以外の菓子、漬物、魚肉練り製品およびたらこ）中のタール色素を、アンモニア含有含水エタノールで抽出し、ポリアミドカラムまたはセッパックC₁₈カートリッジで精製後、高速液体クロマトグラフィーで定量する方法を開発した。

2. さくらもち中のタール色素は、通常の溶媒抽出法では、完全に抽出されないため、酵素剤を用い、もち米中の澱粉を分解した後、抽出し、ポリアミドバッチ法でタール色素を吸着させ、精製した。

3. 本法で市販食品23種71試料中のタール色素を定量したこと、大部分は50 μg/g以下であった。しかし、干菓子、

漬物、水産加工品では100 μg/g以上のタール色素を含むものがあり、今後、使用量についての基準の設定が必要と考えられる。

4. 本法は、簡便、迅速であり、検討した11種のタール色素の検出限界は1～10 ngであり、回収率はたらこに添加した一部の色素を除き、83%以上と良好であったことから、実用的な定量法と考える。

本研究を行うにあたり、試料の入手に御協力いただいた北海道衛生部食品衛生課および道内各保健所の関係各位に厚く感謝の意を表します。

文 献

- 1) 西島基弘他：食衛誌，18，463(1977)
- 2) 伊藤誓志男他：分化，32，47(1983)
- 3) 伊藤誓志男他：分化，32，T5(1983)
- 4) 椎名治他：食品衛生研究，28，242(1978)
- 5) 赤城幾代他：道衛研所報，29，116(1979)
- 6) WHO: Food Additive Series, 8, 7 (1975)
- 7) Boley N. P. et al: Analyst, 105, 589 (1980)
- 8) 日本薬学会編：衛生試験法・注解，351，金原出版，東京(1980)
- 9) Davidek, J.: Z. Lebensm.-Unters. Forsch., 132, 285 (1967)
- 10) 竹下隆三：衛生化学，16，293(1970)
- 11) Puttemans, M. L. et al: J. A. O. A. C., 64, 1 (1981)

英 文 要 約

A method was proposed for the extraction, clean-up and quantitative determination of coal-tar dyes in processed foods. Dyes in confectioneries, pickles, fish paste products and salted pollack roe were extracted with aqueous ethanol containing ammonia. For sakura-mochi, dyes remained in the samples even on repeated the extraction, however, satisfactory results were obtained by digesting the samples with takadiastase prior to the extraction. After clean-up by polyamide column or Sep-pak C₁₈ cartridge, the dyes in the extracts were determined by high performance liquid chromatography.

The detection limits of dyes were 1～10 ng. The recoveries of dyes added to confectioneries, pickles, fish paste products, sakura-mochi and salted pollack roe were more than 83% except Food Red No. 104 and No. 105 added to salted pollack roe.

The dyes contents in most of processed foods were

less than 50 $\mu\text{g/g}$, while the contents in some dry-confectioneries, pickles and processed sea foods were more than 100 $\mu\text{g/g}$.