

# 既存添加物（着色料）中の有害重金属およびヒ素の含有量調査

誌名	食品衛生学雑誌
ISSN	00156426
著者名	荻本,真美 植松,洋子 鈴木,公美 樺島,順一郎 中里,光男
発行元	[日本食品衛生学会]
巻/号	50巻5号
掲載ページ	p. 256-260
発行年月	2009年10月

農林水産省 農林水産技術会議事務局筑波産学連携支援センター  
Tsukuba Business-Academia Cooperation Support Center, Agriculture, Forestry and Fisheries Research Council  
Secretariat



## 調査・資料

## 既存添加物（着色料）中の有害重金属およびヒ素の含有量調査

(平成 21 年 2 月 25 日受理)

荻本真美\* 植松洋子 鈴木公美 樺島順一郎 中里光男

## Survey of Toxic Heavy Metals and Arsenic in Existing Food Additives (Natural Colors)

Mami OGIMOTO\*, Yoko UEMATSU, Kumi SUZUKI, Junichiro KABASHIMA and Mitsuho NAKAZATO

Tokyo Metropolitan Institute of Public Health: 3-24-1 Hyakunin-cho,  
Shinjuku-ku, Tokyo 169-0073, Japan; \* Corresponding author

Pollution levels of toxic heavy metals (Pb, Cd, Hg) and arsenic in existing food additives used as food colors (40 samples of 15 kinds) were investigated. Heavy metals were detected in 8 samples; Pb in 1 sample (2.8  $\mu\text{g/g}$ ), Hg in 8 samples (0.1–3.4  $\mu\text{g/g}$ ) and arsenic in 2 samples (1.7, 2.6  $\mu\text{g/g}$ ). The Pb level in 1 sample of lac color (2.8  $\mu\text{g/g}$ ) exceeded the limit of 2  $\mu\text{g/g}$  proposed by JECFA and Hg levels in 3 samples of cacao color (1.2–3.4  $\mu\text{g/g}$ ) exceeded the limit of 1  $\mu\text{g/g}$  in the EU specification.

(Received February 25, 2009)

**Key words:** 既存添加物 existing food additive; 天然着色料 natural food color; ヒ素 arsenic; 水銀 mercury; 鉛 lead; カドミウム cadmium; 有害重金属 toxic heavy metal; 原子吸光度法 atomic absorption spectrometry; 誘導結合プラズマ発光分析法 inductively coupled plasma emission spectrometry

## 緒言

19 世紀後半に合成色素の工業生産が始まる以前から、私たちの祖先は経験や習慣に基づいて動植物成分や無機物質など有色天然物を天然着色料として利用してきた。現在でも多くの天然着色料が使用され、これらは、わが国では既存添加物に分類されている。

既存添加物<sup>1)</sup>は、平成 7 年の食品衛生法改正で、食品添加物の指定制の対象を従来の化学的合成品からいわゆる天然添加物にまで拡大する際に、長年使用されてきた天然添加物を既存添加物名簿<sup>\*1</sup>に収載し、引き続きその使用を認めたものである。平成 20 年 6 月 20 日現在、418 品目が既存添加物名簿<sup>\*1</sup>に収載されているが、規格が定められているのは、第 8 版食品添加物公定書 (8 版)<sup>2)</sup>に新たに収載された 61 品目を加えてもその約 3 割の 130 品目であり、大部分の既存添加物に関してはいまだに規格が定められていない。既存添加物は、動植物や鉱物を原材料として製造されるため、土壌などの環境に由来する有害重金属などによる汚染の可能性が考えられる。また、一般飲食物添加物は食品素材を添加物として使用するものであるが、食品衛生法上の規格はほとんど定められていない。このよう

な背景の下、著者らはこれまでも、天然着色料や酸化防止剤<sup>3), 4)</sup>、製造用剤<sup>5)</sup>などの既存添加物について重金属などの含有量調査を行ってきたが、今回は、8 版に新たに収載された既存添加物 61 品目中 9 品目を占める天然着色料に焦点をあて、有害重金属である鉛 (Pb)、カドミウム (Cd)、水銀 (Hg) およびヒ素 (As) の含有実態調査を実施した。また同時に、本調査結果と 8 版<sup>2)</sup>、FAO/WHO 合同食品添加物専門家会議 (JECFA)<sup>6)</sup> および EU 規格<sup>7)</sup>の規格値との比較も行ったので報告する。

## 実験方法

## 1. 試料

平成 18 年度に入手した既存添加物および一般飲食物添加物のうち着色料計 15 品目 40 試料を試料とした。試料の内訳は、8 版収載品 10 品目 {新規収載品 9 品目: クチナシ青色素 (5 試料), クチナシ黄色素 (7 試料), クチナシ赤色素 (3 試料), ムラサキイモ色素 (3 試料), ムラサキトウモロコシ色素 (2 試料), ラック色素 (2 試料), スピルリナ色素 (2 試料), トマト色素 (3 試料), アカキャベツ色素 (1 試料) および第 7 版食品添加物公定書 (7 版)<sup>8)</sup>からの収載品 1 品目: コチニール色素 (1 試料)}, 8 版<sup>2)</sup>に収載されておらず、日本食品添加物協会策定の第三版既存添加物自主規格 (自主規格)<sup>9)</sup>に収載されている 5 品目 {アナトー色素 (2 試料), カカオ色素 (5 試料), タマリンド色素 (1), コウリャン色素 (2 試料), アルカ

\* 連絡先

東京都健康安全研究センター: 〒169-0073 東京都新宿区百人町 3-24-1

\*1 厚生省生活衛生局長通知, “既存添加物名簿収載品リスト”  
平成 8 年 5 月 23 日, 衛化第 56 号 (1996)

Table 1. Heavy metals, As and residue on ignition in natural colors

Sample No	Name	Country of origin	Description	As ( $\mu\text{g/g}$ ) (as $\text{As}_2\text{O}_3$ )	Heavy metals ( $\mu\text{g/g}$ )				Total heavy metals ( $\mu\text{g/g}$ ) (as Pb)	Residue on ignition (%)
					Hg	Cd	Pb	Cu		
1	Gardenia blue (p)	Japan	Liquid	ND	ND	ND	ND	1.3	$\leq 40$	0.4
2	Gardenia blue (p)	Japan	Liquid	ND	ND	ND	ND	ND	$\leq 40$	5.6
3	Gardenia blue	China	Powder	ND	ND	ND	ND	ND	$\leq 40$	0.9
4	Gardenia blue	Japan	Powder	ND	ND	ND	ND	ND	$\leq 40$	1.9
5	Gardenia blue	China	Powder	ND	ND	ND	ND	2.5	$\leq 40$	2.0
6	Gardenia yellow (p)	Japan	Liquid	ND	ND	ND	ND	ND	$\leq 40$	0.2
7	Gardenia yellow	Japan	Powder	ND	ND	ND	ND	ND	$\leq 40$	<0.1
8	Gardenia yellow	Japan	Powder	ND	ND	ND	ND	ND	$\leq 40$	0.1
9	Gardenia yellow	China	Powder	ND	ND	ND	ND	ND	$\leq 40$	0.2
10	Gardenia yellow	Japan	Powder	ND	ND	ND	ND	ND	$\leq 40$	<0.1
11	Gardenia yellow	Japan	Powder	ND	ND	ND	ND	ND	$\leq 40$	<0.1
12	Gardenia yellow	China	Powder	ND	ND	ND	ND	ND	$\leq 40$	0.4
13	Gardenia red (p)	Japan	Powder	ND	ND	ND	ND	ND	$\leq 40$	0.7
14	Gardenia red	China	Powder	ND	ND	ND	ND	2.8	$\leq 40$	5.1
15	Gardenia red	China	Powder	ND	ND	ND	ND	ND	$\leq 40$	2.5
16	Purple potato color (p)	Japan	Liquid	ND	ND	ND	ND	ND	$\leq 40$	0.1
17	Purple potato color	China	Powder	ND	ND	ND	ND	1.1	$\leq 40$	1.9
18	Purple potato color	China	Powder	ND	ND	ND	ND	1.2	$\leq 40$	2.5
19	Purple corn color (p)	Japan	Liquid	ND	ND	ND	ND	ND	$\leq 40$	0.1
20	Purple corn color (p)	Japan	Liquid	ND	ND	ND	ND	ND	$\leq 40$	0.2
21	Lac color (p)	Japan	Powder	ND	ND	ND	ND	ND	$\leq 40$	71.9
22	Lac color	China	Powder	ND	<b>0.1</b>	ND	<b>2.8</b>	<b>31.0</b>	$\leq 40$	0.6
23	Spirulina color (p)	China	Powder	ND	ND	ND	ND	1.2	$\leq 40$	7.0
24	Spirulina color	China	Powder	ND	ND	ND	ND	1.2	$\leq 40$	9.5
25	Tomato color	China	Paste	ND	ND	ND	ND	3.8	$\leq 40$	1.0
26	Tomato color	China	Powder	ND	ND	ND	ND	3.6	$\leq 40$	0.9
27	Tomato color 6%	China	Powder	ND	ND	ND	ND	1.2	$\leq 40$	0.9
28	Red cabbage color	China	Powder	ND	ND	ND	ND	3.2	$\leq 40$	5.2
29	Cochineal color (p)	China	Powder	ND	<b>0.8</b>	ND	ND	12.0	$\leq 40$	33.8
30	Annatto color (p)	Japan	Liquid	ND	ND	ND	ND	ND	$\leq 40$	4.9
31	Annatto color	China	Powder	ND	ND	ND	ND	2.0	$\leq 40$	18.4
32	Cacao color (p)	Japan	Liquid	ND	<b>1.2</b>	ND	ND	2.7	$\leq 40$	1.0
33	Cacao color	Japan	Powder	ND	ND	ND	ND	4.3	$\leq 40$	13.8
34	Cacao color	China	Powder	<b>1.7</b>	<b>3.4</b>	ND	ND	53.0	<b>&gt;40</b>	47.8
35	Cacao color	Japan	Powder	ND	<b>1.8</b>	ND	ND	15.9	$\leq 40$	5.8
36	Cacao color	China	Powder	<b>2.6</b>	<b>0.3</b>	ND	ND	34.3	$\leq 40$	43.9
37	Tamarind color	Japan	Powder	ND	ND	ND	ND	1.3	$\leq 40$	9.7
38	Kaoliang color	China	Powder	ND	<b>0.4</b>	ND	ND	27.0	<b>&gt;40</b>	18.2
39	Kaoliang color	China	Powder	ND	<b>0.8</b>	ND	ND	44.6	<b>&gt;40</b>	20.5
40	Gromwell red	China	Paste	ND	ND	ND	ND	2.6	$\leq 40$	0.4
	Japan's Specifications and Standards for Food Additives, 8th Ed.			4.0				8.0	40	
Upper limits ( $\mu\text{g/g}$ )	Japan's Specifications and Standards for Food Additives, 7th Ed. and independent specification			4.0				10	40	
	JECFA (Food additives)						1	2		
	EU specification			3	1	1	10		40	
	(for Annatto, Cochineal and Tomato each colors)			(as arsenic)						

p: preparation, ND:  $\text{As}_2\text{O}_3 < 1.0$ ,  $\text{Hg} < 0.1$ ,  $\text{Cd} < 0.5$ ,  $\text{Pb} < 2.0$ ,  $\text{Cu} < 1.0$ , Bold: heavy metal or arsenic was detected.

**>40**:  $> 40 \mu\text{g/g}$  in total heavy metals

ネット色素 (1 試料)} である。この中には、表示から製剤であると判断された<sup>10)</sup>ものも含まれる。なお、製剤については Table 1 に preparation (p) として示した。

## 2. 試験項目

強熱残分, Pb, Cd, Hg, As, 銅 (Cu), スズ (Sn), アンチモン (Sb), 銀 (Ag), ビスマス (Bi) および総重金属量について行った。

## 3. 試薬・試液

Hg, Pb, Cd, Cu, Sn, Sb, Ag, Bi の各標準液: 関東化学 (株) 製原子吸光分析用 (各 1,000 mg/L), As 標準溶液: 和光純薬工業 (株) 製原子吸光分析用 (1,000 mg/L), *N,N*-ジエチルジチオカルバミン酸ナトリウム三水和物 (DDTC) および 4-メチル2-ペンタノン (MIBK): 和光純薬工業 (株) 製原子吸光分析用, その他の試薬はすべて試薬特級品を用いた。水は超純水製造装置 (Yamato Millipore (株) 製 AutoPure WQ500) により精製したものを使用した。

## 4. 装置

誘導結合プラズマ発光分光分析計 (ICP-AES): サーマジャーレルアッシュ社製 IRIS Advantage

原子吸光度計 (AAS): (株) 日立製作所製 Z-5300 型

水銀測定装置: 日本インスツルメンツ (株) 製マーキュリー SP-3 型

電気炉: アドバンテック東洋 (株) 製 KM-420

## 5. 試験法

強熱残分: 8 版掲載の強熱残分試験法<sup>11)</sup>により測定した。

As: 8 版のヒ素試験法装置 B 第 1 法<sup>12)</sup>により測定した。なお,  $As_2O_3$  として  $1 \mu\text{g/g}$  を超えたものについては装置 C 第 3 法<sup>12)</sup>により定量した。

Hg: 金アマルガム原子吸光度法<sup>13)</sup>を用いた。

Pb, Cd, Cu, Sn, Sb, Ag, Bi: 8 版の鉛試験法<sup>14)</sup>および重金属試験法<sup>15)</sup>に準じ, 以下の方法で分析を行った。すなわち, 100 mL 容量の磁製ルツボに試料約 2 g を精密に量り, 硫酸 2 mL を加えて潤し, 徐々に加熱して硫酸の蒸気がほとんど発生しなくなった後, 電気炉に入れ  $550^\circ\text{C}$  で一晚加熱して灰化した。なおこの時点でまだ炭化した部分が残っている場合は, 水で潤し, あるいは少量の硫酸を加え, さらに  $550^\circ\text{C}$  で一晚加熱し, 完全に灰化した。灰分に塩酸 2 mL を加え, ホットプレート上で蒸発乾固した。これを, 強熱残分 21% 未満の試料については硝酸溶液 (1→100) 50 mL に溶解し,  $0.45 \mu\text{m}$  のフィルターでろ過したものを試験溶液とし, ICP-AES により分析した。

強熱残分 21% 以上の試料の場合, Pb, Cd については硝酸溶液 (1→100) 10 mL に溶解した後, 食品衛生法, 清涼飲料水の成分規格—鉛およびカドミウムの試験法<sup>16)</sup>, すなわち, キレート溶媒抽出法に準じ, DDTC-MIBK で抽出し, MIBK 層 8 mL を試験溶液とし, AAS により測定した。Cu, Sn, Sb, Ag, Bi については, 硝酸溶液 (1→100) で 50 倍希釈して ICP-AES により測定した。

総重金属量: 8 版の重金属試験法第 2 法<sup>15)</sup>に従い, 硫化

物沈殿法 (Pb として算出) により測定した。なお, 試験溶液が澄明でない場合は, 酢酸酸性にした後<sup>17)</sup>, ろ過したものをを用いた。

## 結果および考察

### 1. 個別重金属 (Pb, Cd) 試験法の検討

Pb および Cd の測定法として, 8 版の鉛試験法に準じて試料を硫酸灰化し, 残渣を希硝酸溶液に溶解することにより試験溶液を調製し, ICP-AES で定量するという方法を検討した。この方法における Pb の定量下限値は試験溶液中の濃度で  $0.08 \mu\text{g/mL}$  であり, 得られた測定値を JECFA の Pb の規格値である  $2 \mu\text{g/g}$ <sup>6)</sup> と比較可能にするためには, 試料の希釈倍率を 25 倍以下にする必要があった。そこで, この値を希釈倍率に設定して測定を実施したところ, 硫酸灰化した際の残渣量が高い試料では良好な測定ができないという問題があり, 上述の方法の適用が困難であった。ICP-AES 分析では, 試験溶液中の塩濃度が高いと物理干渉や分光干渉による分析誤差を生じる<sup>18)</sup>などさまざまな問題が生じることから, この原因は試料中に含まれる塩分であると考えた。そこで, 試験溶液中の塩濃度に対する ICP-AES の適用限界を調べるため, 硫酸灰化後の残量である強熱残分を測定したところ, その数値が約 20%, 試験溶液中の塩濃度に換算して 0.8% 程度であれば, 問題なく測定が可能であることが判明した。以上の結果より, 今回の試料に関しては強熱残分を測定し, その値が 21% 未満の試料には上述の方法を, 21% 以上の試料については, キレート溶媒抽出-AAS 法をそれぞれ適用して測定を実施することとした。

乾式硫酸灰化/ICP-AES と乾式硫酸灰化/キレート溶媒抽出-AAS のそれぞれの方法で添加回収試験を行ったところ, 回収率は ICP-AES で Pb は 70~81%, Cd は 86~93%, AAS で Pb は 76~110%, Cd は 73~104% と, いずれも良好な結果を得た (Table 2)。なお定量下限は, ICP-AES で Pb は  $2 \mu\text{g/g}$ , Cd は  $0.5 \mu\text{g/g}$ , AAS で Pb は  $1 \mu\text{g/g}$ , Cd は  $0.1 \mu\text{g/g}$  であり, Pb および Cd については, JECFA の規格値を適用しての評価が可能であった。

強熱残分の測定結果を Table 1 に示したが, 10% を超えるものが 8 試料, そのうち 30% を超えるものが 4 試料あった。このように強熱残分が高い原因の一つとして, これら製剤にはカンゾウ抽出物<sup>19)</sup>等原料由来の成分以外にも, カカオ色素<sup>20)</sup>等抽出や中和等の目的で使用された薬剤やコチニール色素<sup>21)</sup>等色調安定等の目的で使用された添加剤など, 製造段階で混入または添加されるさまざまな化学物質が含まれていることが考えられる。したがって, 強熱残分が高い試料の重金属等の汚染については, 原料のみでなく, 製造に使用された化学物質や副剤からの由来にも考慮する必要があると思われた。

### 2. 重金属およびヒ素の分析結果

#### 1) Pb

AAS での定量下限値は  $1 \mu\text{g/g}$  であったが, ICP-AES

Table 2. Recoveries of Pb and Cd

Sample number	Method/ equipment	Element	Number of trials	Added amount ( $\mu\text{g/g}$ )	Recovery (%, mean)	RSD (%)
24	Ashing/ICP-AES	Pb	3	2	71	5.4
				10	81	8.3
Cd		3	0.5	86	1.1	
			2.5	92	1.1	
33		Pb	3	2	70	0.1
				10	72	0.4
Cd	3	0.5	87	0.0		
		2.5	93	0.0		
38	Ashing/ DDTC-MIBK ext. /AAS	Pb	3	2	75	9.8
				10	73	1.0
Cd		3	0.5	87	1.4	
			2.5	89	0.4	
21		Pb	3	1	78	6.8
				5	110	2.9
Cd	3	0.1	73	6.4		
		0.5	100	0.0		
29	Pb	3	1	80	5.4	
			5	92	0.8	
Cd	3	0.1	88	1.1		
		0.5	94	0.5		
34	Pb	3	1	76	2.7	
			5	81	3.1	
Cd	3	0.1	96	3.2		
		0.5	104	6.5		

での下限値に合わせ、 $2 \mu\text{g/g}$ 以上を「検出」とした。8版<sup>2)</sup>新規収載品9品目28試料は、規格値である「Pbとして $8.0 \mu\text{g/g}$ 以下」、また、7版<sup>8)</sup>からの収載品であるコチニール色素および自主規格<sup>9)</sup>に従った6品目はそれぞれの規格値である「Pbとして $10 \mu\text{g/g}$ 以下」に適合していた (Table 1)。しかし、このうちNo. 22のラック色素1試料からはPbが $2.8 \mu\text{g/g}$ 検出され、JECFAで食品添加物一般に提案されている「Pbについては $2 \mu\text{g/g}$ 以下」<sup>6)</sup>を超えていた。

## 2) Cd

AASでのCdの定量下限値は $0.1 \mu\text{g/g}$ であったが、ICP-AESでの下限値に合わせて $0.5 \mu\text{g/g}$ 以上を「検出」とした。わが国ではCdの規格値は設定されていないが、JECFA<sup>6)</sup>では食品添加物一般に、EU規格<sup>7)</sup>ではアナー色素、コチニール色素、トマト色素に「Cdについては $1 \mu\text{g/g}$ 以下」と設定されている。今回、分析した全試料について、いずれも定量下限( $0.5 \mu\text{g/g}$ )以下であった (Table 1)。

## 3) As

Asの定量下限値は $1 \mu\text{g/g}$ であったので、それ以上を「検出」とした。8版<sup>2)</sup>および自主規格<sup>9)</sup>のAsの規格値は「 $\text{As}_2\text{O}_3$ として $4.0 \mu\text{g/g}$ 以下」、EU規格<sup>7)</sup>の規格値ではAsとして $3 \mu\text{g/g}$  ( $\text{As}_2\text{O}_3$ に換算すると $3.96 \mu\text{g/g}$ )以下

と規定されている。今回試験対象とした15品目のうち、カカオ色素からのみ、No. 34の試料で $1.7 \mu\text{g/g}$ 、No. 36で $2.6 \mu\text{g/g}$ のAs ( $\text{As}_2\text{O}_3$ )が検出された (Table 1)が、いずれの規格値にも適合していた。

## 4) Hg

8版公定書規格<sup>2)</sup>、JECFA<sup>6)</sup>では、Hgの規格値は設定されていない。装置の定量下限は $0.01 \mu\text{g/g}$ であったが、EU規格<sup>7)</sup>が「 $1 \mu\text{g/g}$ 以下」であったため、その1/10にあたる $0.1 \mu\text{g/g}$ 以上を「検出」とした。今回、8試料から $0.1 \sim 3.4 \mu\text{g/g}$ のHgが検出された (Table 1)。このうち、カカオ色素では、4試料から $0.3 \sim 3.4 \mu\text{g/g}$ 検出され、うち3試料 (No. 32, 34, 35)では、EU規格<sup>7)</sup>の「 $1 \mu\text{g/g}$ 以下」を超えていた。カカオ豆の産地であるアフリカやブラジルには金鉱山があり、金の精製にHgが使われているため<sup>19)</sup>、土壌からの汚染という原因が推測される。それ以外では、コチニール色素から $0.8 \mu\text{g/g}$ 、コウリヤン色素2試料から $0.4$ および $0.8 \mu\text{g/g}$ 、ラック色素から $0.1 \mu\text{g/g}$  (Table 1) 検出された。

## 5) 総重金属量

総重金属量は8版重金属試験法第2法に準ずる硫化物沈殿法<sup>15)</sup>により分析を行ったが、浮遊物が多く、比色が困難なため、ろ過をする必要があった。なお、ろ過は酢酸酸性とした後<sup>17)</sup>に行った。

今回試験対象とした40試料のうち、No. 34のカカオ色素、No. 38および39のコウリャン色素(いずれも公定書未収載品)の3試料は、8版<sup>2)</sup>および自主規格<sup>3)</sup>に規定されている「Pbとして40 µg/g以下」を超えていた(Table 1)。しかしながら、これらの試料で、Pbはいずれも定量下限以下であった。重金属試験法では、不溶性硫化物の沈殿を肉眼で観察する沈殿法が用いられており、Pb以外にもAs, Hg, Cu, Sn, Sb, Ag, Biなどが同様の沈殿を生成する。これらの元素を個別に測定したところ、3試料(No. 34, 38, 39)のいずれも27.0から53.0 µg/gとCuが高く、その他の金属は10 µg/g以下の濃度レベルであったことから、沈殿は主として硫化銅によるものと考えられた(Table 1)。

### まとめ

調査の結果、15品目40試料中4品目8試料から何らかの有害元素が検出された(Table 1)。その内訳は、Asが2試料、Hgが8試料、Pbが1試料であった。EUやJECFAの規格と比較したところ、カカオ色素3試料のHgとラック色素1試料のPbがEUやJECFAで設定されている基準を超えていた。カカオ色素は自主規格のみで第8版公定書に規格が収載されていない品目である。また、ラック色素については、8版に規格が設定されているが、今回の試料は8版施行以前に製造されたものであった。わが国ではHgの規格値は設定されておらず、Pbについても、現在の規格値はJECFA規格の2 µg/gを大幅に上回っているが、規格の設定されていない2品目について重金属の汚染度が高かったこと、規格が設定されている品目についてはすべてEUやJECFAの規格に適合していたことから、公的な規格基準設定により、品質の向上が図られる可能性が示唆された。

### 文 献

- Hiruta, K. *Gekkan Food Chemical*, 8, 19-22 (2003).
- 日本食品添加物協会編 “第8版食品添加物公定書”, 東京, 日本食品添加物協会, 2007.
- Yasuno, T., Hagiwara, T., Kabashima, J. *et al.* Contents of heavy metals and arsenic in natural food additives (2\*). *Tokyo Eiken Nenpo (Ann. Rep. Tokyo Metr. Res. Lab. P. H.)*, 53, 161-164 (2002).
- Yasuno, T., Hagiwara, T., Saito, K. Contents of heavy metals and arsenic in natural food additives. *Tokyo Eiken Nenpo (Ann. Rep. Tokyo Metr. Res. Lab. P. H.)*, 51, 193-196 (2000).
- Ogimoto, M., Uematsu, Y., Suzuki, K. *et al.* Survey on the quality of commercial nigari (crude magnesium chloride [sea water]). *Shokuhin Eiseigaku Zasshi (J. Food Hyg. Soc. Japan)*, 47, 296-301 (2006).
- Evaluation of certain food additives and contaminants (Fifty-third report of the Joint FAO/WHO Expert Committee on Food Additives). WHO Technical Report Series, No. 896, 2000, p. 11-12. (ISBN 92-4-120896-1)
- COMMISSION DIRECTIVE 95/45/EC of 26 July 1995. Laying down specific purity criteria concerning colors for use in foodstuffs.
- 日本食品添加物協会編 “第7版食品添加物公定書” 東京, 日本食品添加物協会, 1999.
- 日本食品添加物協会自主規格専門委員会編 “第三版既存添加物自主規格”, 東京, 日本食品添加物協会, 2002.
- Suzuki, K., Uematsu, Y., Kabashima, J. *et al.* Survey on quality of existing food additives—Food Colors—. *Tokyo Kenko Anzen Kenkyu Centa Kenkyu Nenpo (Ann. Rep. Tokyo Metr. Inst. P. H.)*, 58, 169-177 (2007).
- “第8版食品添加物公定書” 東京, 日本食品添加物協会, 2007, p. 14.
- “第8版食品添加物公定書” 東京, 日本食品添加物協会, 2007, p. 65-68.
- 日本薬学会編 “衛生試験法・注解 2005” 東京, 金原出版, 2005, p. 406-407.
- “第8版食品添加物公定書” 東京, 日本食品添加物協会, 2007, p. 46-47.
- “第8版食品添加物公定書” 東京, 日本食品添加物協会, 2007, p. 22-24.
- 食品衛生研究会編 “平成18年度版食品衛生小六法” 東京, 新日本法規出版, 2006, p. 549-550.
- “第15改正日本薬局方解説書” 東京, 廣川書店, 2006, B 29-B34.
- 原口紘丞 “ICP 発光分析の基礎と応用”. 東京, 講談社サイエンティフィック, 2001, p. 128-129. (ISBN 4-06-139677-3)
- Iida, K., Uematsu, Y., Suzuki, K., *et al.* Properties of commercial licorice extracts used as a food additive. *Shokuhin Eiseigaku Zasshi (J. Food Hyg. Soc. Jpn.)*, 48, 112-117 (2007).
- 日本食品添加物協会技術委員会編 “既存添加物名簿収載品目リスト注解書” 東京, 日本食品添加物協会, 1999, p. 131.
- 日本食品添加物協会技術委員会編 “既存添加物名簿収載品目リスト注解書” 東京, 日本食品添加物協会, 1999, p. 254.
- Taylor, H., Appleton, J. D., Lister, R., Smith B., Chitamwebwa, D., Mkumbo, O., Machiwa, J. F., Tesha, A. L., Beihoff, C. Environmental assessment of mercury contamination from the Rwamagasa artisanal gold mining centre, Geita District, Tanzania. *Sci. Total Environ.*, 343(1-3), 111-133 (2005).

GC/MS/MSを用いた加工食品中の残留農薬一斉分析法の検討(ノート)

北川陽子\* 起橋雅浩 高取 聡 岡本 葉  
福井直樹 村田 弘 住本建夫 尾花裕孝  
食衛誌 50(5), 243~252 (2009)

GC/MS/MSを用いた加工食品中の残留農薬一斉分析法の検討を行った。試料に添加した農薬を酢酸エチルで抽出し、アセトニトリル/ヘキサン分配により脱脂を行った。さらにグラファイトカーボンブラック/PSA 積層カラムにて精製を行い、GC/MS/MSにより測定を行った。258 農薬について、5 種類の加工食品(餃子、レトルトカレー、フライドポテト、鶏唐揚げ、白身魚フライ)を対象に添加回収試験(添加濃度 0.02 および 0.1  $\mu\text{g/g}$ )を行った。2 濃度の添加回収試験において、両濃度で良好な結果(平均回収率 70~120%, 相対標準偏差 20% 以下)を示した農薬数は 258 農薬中 184 農薬であった。GC/MS/MS においては、試料由来の妨害成分の影響を受けにくく、低濃度においても精度の高い定量が可能であった。以上のことから、本分析方法は加工食品中の残留農薬を分析するうえで有用な方法であると考えられた。

\* 大阪府立公衆衛生研究所

健康危機対応を目的とした食品中有害重金属等の迅速分析法の検討(ノート)

野村千枝\* 尾花裕孝 織田 肇  
食衛誌 50(5), 253~255 (2009)

中毒時における食品中重金属の迅速分析法について検討を行った。食品試料に硫酸を加えホモジナイズ抽出後希釈し、誘導結合プラズマ発光分光分析法(ICP-AES)を用いて測定した。12 食品について 10 元素(ヒ素、カドミウム、クロム、水銀、マンガン、鉛、アンチモン、セレン、スズ、タリウム)の添加回収試験を行った結果、セレンを除く 9 元素について平均回収率は 71~107%, 相対標準偏差は 1~13%であった。試料の秤量から 10 元素の分析値を得るまでの時間は約 2 時間であり、既存の分析法に比べ操作時間が大幅に短縮された。本分析法は簡便で多様な食品にも対応可能であり、中毒発生時の迅速分析法として利用可能であると考えられた。

\* 大阪府立公衆衛生研究所

既存添加物(着色料)中の有害重金属およびヒ素の含有量調査(調査・資料)

荻本真美\* 植松洋子 鈴木公美  
樺島順一郎 中里光男  
食衛誌 50(5), 256~260 (2009)

着色を目的とした既存添加物中の有害重金属である鉛、カドミウム、水銀およびヒ素の汚染実態を調査したところ、15 品目 40 試料中 8 試料から何らかの有害元素が検出された。その内訳は、鉛が 1 試料(2.8  $\mu\text{g/g}$ )、水銀が 8 試料(0.1~3.4  $\mu\text{g/g}$ )、ヒ素が 2 試料(1.7, 2.6  $\mu\text{g/g}$ )であった。EU や JECFA の規格と比較したところ、ラック色素 1 試料から JECFA で食品添加物一般の提案値である 2  $\mu\text{g/g}$  を超える 2.8  $\mu\text{g/g}$  の鉛が、カカオ色素 3 試料から EU の規格値である 1  $\mu\text{g/g}$  を超える 1.2~3.4  $\mu\text{g/g}$  の水銀が検出された。

\* 東京都健康安全研究センター

輸入果実加工品中の残留農薬実態(1994年4月~2006年3月)(調査・資料)

小林麻紀\* 大塚健治 田村康宏 富澤早苗  
酒井奈穂子 上條恭子 影山百合子  
高野伊知郎 永山敏廣  
食衛誌 50(5), 261~269 (2009)

1994 年 4 月から 2006 年 3 月にかけて東京都内で市販されていた輸入果実加工品 600 検体について農薬の残留調査を行った。その結果、75 検体から 30 種類の有機リン系農薬、有機塩素系農薬、ピレスロイド系農薬およびカルバメート系農薬、有機窒素系農薬およびその他の農薬が痕跡値(0.01 ppm 未満)~0.37 ppm の範囲で検出された。農薬が検出された果実加工品は、果実を乾燥した乾燥果実や搾汁したジュース、また、農薬の検出頻度の高い果皮や全果を原材料に使用しているものであった。農薬を検出した果実加工品について、食品群別平均摂取量から算出したそれら農薬の推定摂取量をおのおの ADI と比較したところ、各 ADI 値の 0.1 未満~3.9%であった。このことから通常の喫食状況で特に問題はないと考えられた。

\* 東京都健康安全研究センター

ハコフグ類の喫食による食中毒の実態と同魚類の毒性調査(調査・資料)

谷山茂人† 相良剛史 西尾幸郎 黒木亮一  
浅川 学 野口玉雄 山崎脩平  
高谷智裕 荒川 修  
食衛誌 50(5), 270~277 (2009)

1990 年~2008 年に、長崎県、宮崎県、三重県および鹿児島県でハコフグ類の喫食による食中毒が 9 件発生し、13 名が中毒、うち 1 名が死亡した。このうち 2 件の原因魚種は、中毒検体の形態からハコフグ *Ostracion immaculatus* と断定された。患者は共通して横紋筋融解症を呈するなど、本中毒の症状や発症/回復/致死時間はアオブダイ中毒に酷似していた。一方、西日本沿岸で採取したハコフグ 129 個体とウミスズメ *Lactoria diaphana* 18 個体につき、マウス試験で毒性を調べたところ、いずれも約 4 割の個体が急性もしくは遅延性の致死活性(0.5~2.0 MU/g)を示した。有毒個体の出現率は、両種ともに肝臓を除く内臓で最も高く、次いで筋肉、肝臓の順であった。

† 長崎大学大学院生産科学研究科