

天然食品添加物及びその製剤の品質に関する調査研究
—製造に使用される化学物質，含有成分および不純物の分析—

植松 洋子

**Investigation on Components and Accompanying Chemicals
in Natural Food Additives and their Commercial Preparations**

Yoko UEMATSU

天然食品添加物及びその製剤の品質に関する調査研究

—製造に使用される化学物質，含有成分および不純物の分析—

植松 洋子*

天然食品添加物の製造に使用される有機溶媒等の化学物質の残留や，製剤化に使用される希釈溶媒や乳化剤等についての試験法確立と実態調査，食品の日持ち向上の目的で使用されるユッカ抽出物，カラシ抽出物，セイヨウワサビ抽出物，天然着色料であるクチナシ色素，甘味料カンゾウ抽出物，粗製海水塩化マグネシウム（にがり）等の機能成分や不純物の試験法の確立と実態調査，重金属等の残留実態調査等を中心に報告する。

キーワード：天然食品添加物，残留溶媒，希釈剤，乳化剤，ユッカ抽出物，カラシ抽出物，クチナシ色素，カンゾウ抽出物，粗製海水塩化マグネシウム，重金属

背 景

1. 食品衛生法による食品添加物の規制

食品の製造に使用される食品添加物はその安全性確保のために，食品衛生法により規制されている。使用できる食品添加物は厚生労働大臣によって指定されたものでなければならず（指定制，ポジティブリスト制），その品質についての規格，食品への使用量が定められ（規格・基準），さらに使用した場合には食品に表示しなければならない。

しかし，長い間，これらの規制は，化学的合成品である食品添加物（合成添加物）についてのみ適用されていた。昭和22年に食品添加物について世界に先駆けて指定制が導入された¹⁾が，これは合成添加物により多発する事故の防止が第一義的な目的であったことから，天然添加物についての規制が後回しになったのはやむを得ないことであった。しかし，その後，長い間そのままの規制が続いたことから，規制対象外である天然添加物の開発，多用をもたらすことになった。この状態は，平成元年に天然添加物についての表示義務²⁾，さらに平成7年に指定制が導入³⁾されるまで続いた。

2. 既存添加物

平成7年に天然添加物について指定制が導入された時点で，すでに市場には多くの天然添加物が流通していた。本来，食品添加物は法に基づいて安全性を確認した上で指定されるが，その時点ですでに流通している天然添加物は当然ながらこの手続きを経たものではなかった。しかし，指定制導入に伴い，安全性確認の手続きが終了するまで，これらの流通している天然添加物を禁止することは混乱を招くことが予測された。そのため，すでに流通しているものを「既存添加物」として例外扱いとし，「名簿」に記載して流通を認めた上で，改めて安全性の確認，品質規格の設定を行うこととなった。さらに，人の健康を損なう恐れがあると認められるときや，流通実態がない添加物については，名簿から「削除」されることとなった⁴⁾。当初，既存添加

物名簿に記載されていたのは489品目であった⁵⁾が，安全性の点からアカネ色素が「削除」され，さらに2次に渡る流通実態調査に基づく消除のため，平成19年9月11日現在，418品目となっている。平成22年5月18日には80品目を掲載した第3次消除予定添加物名簿が公示されており⁶⁾，添加物としての使用実態がない等の場合には消除されることになると考えられる。

3. 天然添加物の品質

一方，添加物としての安全性を保証すべき品質規格は，当初既存添加物名簿に記載された489品目のうち，11品目について設定されていたにすぎない。平成11年に58品目⁷⁾，平成19年に61品目⁸⁾について新たに規格が設定され，それぞれ第7版食品添加物公定書⁹⁾，第8版食品添加物公定書¹⁰⁾に記載され，平成22年現在，129品目（1品目について施行延期）について法律上の品質規格が設定されているが，未だに418品目のうち289品目については，食品衛生法上の品質規格が設定されていないのが現状である。規格が設定されていないということは，品質を左右する機能成分の本質や量についての規定がないということである。さらに，原材料に含まれる有害成分や，重金属等の汚染物についても懸念される。また，天然添加物には原材料である動植物や鉱物に含まれる機能成分を何らかの形で取り出したものだけでなく，細菌やカビ等の微生物の培養により産生された成分もある。このような場合，類縁の有害な微生物やそれによって産生されるカビ毒等の混入についても懸念される。

4. 天然添加物の製造と使用される化学物質

図1. に天然添加物の原料と流通している製品を示した。天然食品添加物の多くは動物や植物に含まれる機能成分を抽出等，何らかの方法で濃縮したものである（図2）。分解反応や酵素を用いた付加反応等，文字どおり化学的合成反応以外の方法で製造されたものもある。その過程では当然ながら有機溶媒等の化学物質が使用される。食品衛生法上，食品の製造には食品添加物以外の化学物質を用いてはなら

* 東京都健康安全研究センター食品化学部食品添加物研究科 169-0073 東京都新宿区百人町 3-24-1



コチニール色素の原料



ムラサキトウモロコシ色素の原料



ウコン色素の原料



アナトー色素の原料



甘味料ステビア抽出物の原料



甘味料カンゾウ抽出物の原料



市販天然着色料製品



市販天然甘味料製品

図1. 天然添加物の原材料と流通している製品

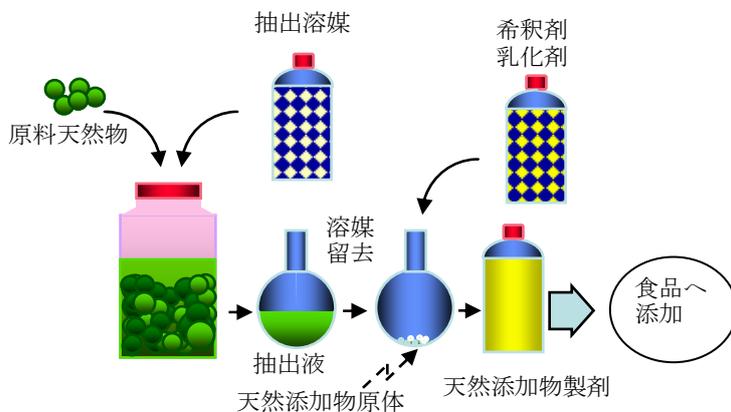


図2. 天然添加物の製造工程

ないが、食品添加物の製造に使用される化学物質については特段の制限はない。そのため、食品添加物では、使用された化学物質については製造された添加物中の残留限度として、規格に規定することにより、その安全性を担保している。しかし、天然添加物については、そもそも品質規格がほとんど設定されていなかったため、使用される化学物質の種類やその残留限度についても何の規制もなく、またその実態も不明であった。

5. 製剤化に使用される化学物質

「製造」された天然食品添加物（天然食品添加物原体）は、通常、食品に添加しやすくするために希釈溶剤や乳化剤等を配合した「製剤」として流通している（図2）。つまり、食品に添加されるのは天然物そのものではなく、原体製造及び製剤化の工程を経て「製造」された「天然食品添加物製剤」である。この結果、化学的合成品の付随が避けられない。

6. 本調査研究のコンセプト

このような背景から、天然添加物およびその製剤の製造に使用される化学物質、天然添加物の品質を規定する機能成分含有量、原材料由来その他の不純物について、試験法を開発し、実態調査を行った。

天然添加物の製造に使用される化学物質

1. 有機溶媒の残留

天然添加物に含まれる機能成分を効率よく取り出すために有機溶媒が用いられることが多い。使用された有機溶媒は揮発させることにより除去されるが、それでも製品中に残留する。古くから、FAO/WHO合同食品添加物専門家会議(JECFA)^{11, 12)}や米国(code of federal regulations, cfr)¹³⁻¹⁵⁾では、着色料やスパイスオレオレジン（溶媒による抽出物）について残留限度が設定されていたことから、当初これらの添加物について調査を開始した。試験法として示されていた方法^{16, 17)}は、煩雑な上、多量の試料を必要とし、またオレオレジンや着色料原体にしか適用できない方法で、希釈剤や乳化剤その他を含有する市販品には適用できなかった。そこで、まず試験法の検討を行った。目的物質である有機溶媒は、揮発性が高いことから、揮発性成分のみを選択的に取り出すことのできるヘッドスペース法について検討した。ヘッドスペース法は、密閉された容器の中で、目的物質が気相と液相の間に一定の割合で分配するという原理に基づき、気相中の目的物質の濃度を測定することにより、液相中の濃度を算出する方法である。この分配比は、液相のマトリックスにより大きな影響を受けるため、含有量算出のための標準物質による検量線作成は、試料と同じマトリックス組成を持った液相に標準物質を添加して行う必要がある。しかし、試料マトリックスは試料毎に異なり、種類の異なる天然添加物製剤についてそれぞれにマッチした検量線を作成することは困難であった。最終的に試料に標準物質を添加して検量線を作成する標準添加法を用いることにより、この問題を解決し、種々の添加物について残

留溶媒の分析を行った。

1) 天然着色料¹⁸⁾

最初の調査は、昭和63～平成元年に入手した天然着色料製剤35試料についてのものである。この段階で、試験法の原型は確立したが、試料はいずれもエタノール等の希釈剤を含有する液状のものであり、分析対象物質をエタノールに溶解した標準溶液を添加する標準添加法を用いた。同時に気相に分配するエタノールとの分離を考慮して、GCカラムを選定した。メタノールが20試料から、アセトンが3試料から、2-プロパノールが1試料から、JECFAや米国(FDA)でこれらの着色料について設定している残留限度（それぞれ50 mg/kg, 30 mg/kg, 50 mg/kg）を超え、検出された。アナト一色素から1000 mg/kgを超えるメタノールが検出されたが、これは、製造の段階で、アナト一色素の主成分である油性のビキシンを加水分解してノルビキシンとする際に、生成したものではないかと考えられた。

2) 天然香料原料¹⁹⁾

引き続き、平成4年に入手した食品香料原料について、残留溶媒調査を行った。オレオレジン48試料及びオイル26試料中、メタノールが5試料から、アセトンが24試料から、ヘキサンが4試料から、JECFAやFDAの限度値（ヘキサンは25 mg/kg）を超えて検出された。また、発ガン性の懸念される1,2-ジクロロエタンが、ターメリックオレオレジン1試料から210 mg/kg検出された。1,2-ジクロロエタンについては、JECFAやFDAでも30 mg/kg以下という限度値が設定されており、国際的に使用自体は認められていると考えられるが、平成11年に設定された食品衛生法中の食品添加物の製造基準（後述）においては、使用が禁止された。この他に、酢酸エチルが4試料から50 mg/kgを超えて検出された。酢酸エチルについては、香料成分とも考えられ、国際的にも、また食品衛生法でも今のところ残留限度は設定されていない。

3) 食品香料製剤²⁰⁾

さらに、引き続き、食品香料製剤96試料について調査を行った。メタノール、アセトン、2-プロパノール、酢酸エチル、酢酸メチル、メチルエチルケトン、シクロヘキサン等が検出された。メタノール、2-プロパノール、酢酸エチル、酢酸メチル、メチルエチルケトンは、植物や果実の揮発性成分としても存在が知られているため、主として天然の揮発性成分と考えられる。アセトンについては、検出された香料の原料と考えられる果実の揮発性成分としての報告が見当たらないことから、抽出に使用されたもの、またシクロヘキサンは製造業者に対する調査の結果、抽出に使用されたものと考えられた。また、メタノールの中には、製剤化に使用されたエタノール中の不純物である可能性も推測された。

4) 天然着色料および酸化防止剤を中心とする再調査²¹⁾

これらの調査結果報告により、天然添加物の製造に使用される有機溶媒について食品衛生法による残留限度を設定する動きが始まった。最終的に、平成11年4月にオレオレジンや着色料等の天然添加物の製造に使用される有機溶媒に

ついでに製造基準が告示され⁷⁾、製造に使用できる有機溶媒の種類と残存限度が規定され、1年後に施行された。これらの動きを受け、平成9年から天然着色料を中心に、87試料について再調査を行った。前回の調査で高濃度のメタノールがアナトー色素から検出されたが、再調査では、12試料について調査したところ、メタノールは検出されなかった。また前回1,2-ジクロロエタンがターメリックオレオレジンから検出されたが、これと本質的に同等と考えられるターメリック（ウコン）色素10試料中1試料から8.6 mg/kgの1,2-ジクロロエタンが検出されたのみであり、いずれも製造法が改良されたと考えられた。一方、ヘキサンのクロロフィル色素から93 mg/kg、また前回調査対象としていなかったデュナリエラカロテン色素から約70 mg/kg検出された。これらは、いずれも抽出に使用されたものと推測された。なお、再調査では、ウコン色素1試料からアセトンが12 mg/kg検出され、1,2-ジクロロエタンの代わりに使用されたことが考えられた。また、アナトー色素からは、アセトンと2-プロパノールが検出されたが、これらについて、製造業者は希釈剤として使用されたプロピレングリコールをプラスチック容器中に保存中に生成したものであるとしている。

5) カンゾウ抽出物²²⁾

平成11年に入手した天然甘味料カンゾウ抽出物9試料中6試料から最高10,000 mg/kgを超えるメタノールが検出された。調査の結果、これは製造中にカンゾウ抽出物の主成分グリチルリチン酸の再結晶に用いたメタノールが残留したものであることがわかった。結果を各製造業者に伝達し、平成12年に同じブランドの製品9試料の提供を受け、再調査を行った。2試料から最高270 µg/gのメタノールが検出され、検出率、検出量共に大幅に低下したが、これは製造業者がメタノールに変えてエタノールを使用したり、乾燥を強化したりする等の措置を取ったためであると考えられた。再調査において低濃度のメタノールを分析する必要が生じたため、試験法を検討した。標準添加に用いる標準溶液は、エタノールと同時定量するため、従来用いていたエタノールに代えて水を用いて調製し、またGC条件を検討し、従来の注入量の20倍以上を注入できる大容量注入ヘッドスペース法を確立した。

平成11年、12年いずれの試料からも最高10,000 µg/gを超えるエタノールが検出された。エタノールについて残留限度は設定されていないものの、粉末状の試料について最高26,700 µg/gという残留量は、増粘多糖類中の残留エタノールについてJECFAが設定した限度値 500~10,000 µg/g^{11, 12, 23)}と比較して高いと考える。

なお、カンゾウ末からも50 µg/g以下ではあるもののメタノールが検出された。従って、低濃度のメタノールについてはもともと原材料中に含有されていたもの、あるいは加水分解によって生成したものである可能性もある。メタノール及びエタノール以外に1試料から酢酸エチルが190 mg/kg検出された。製造工程で酢酸及びエタノールが使用されることがあるため、これらの溶媒の反応により酢酸エ

チルが生成した可能性がある。

6) ステビア抽出物²⁴⁾

天然甘味料ステビア抽出物からは残留溶媒は検出されなかった。しかしステビア末1試料からは、メタノールが140 mg/kg検出された。ステビア末は、原料植物であるステビアを粉末化しただけであり、検出されたメタノールは原料植物中に元々含有されていたかあるいは、分析のために水に懸濁させた際に、含有成分の加水分解により生成したかのいずれかであると推定される。糖転移ステビアからもメタノールが80-320 mg/kg検出されたが、糖転移ステビアは、ステビアの主成分であるステビオサイドに対して酵素反応により糖を付加して得られたものであり、その過程でメタノールが生成した可能性も否定できない。

7) 健康食品素材についての調査²⁴⁾

平成7年に既存添加物名簿に収載された天然食品添加物の中には、健康食品素材として使用されるものもある。これらについては、製造基準に適合している限り製造に際し、有機溶媒を使用することができる。一方、これ以外の健康食品素材の中にも動植物等から抽出して得られるものがあるが、この場合は、「食品」扱いとなるため、製造に当たり、水やエタノール以外の有機溶媒を使用することはできない。そこで、健康食品素材であるこの両者について残留溶媒調査を行った。試料の多くが粉末であったこと、またエタノールについても調査対象としたことから、試験法を検討し、基本的には、試料を水または適当な溶媒に溶解あるいは分散させた後、分析対象溶媒をジエチレングリコールモノエチルエーテルを含むエチレングリコール溶液として添加し、標準添加法により分析することとした。増粘多糖類では、水に分散させるとゲル状になるため、エチレングリコールに分散させることも検討したが、その場合は、ゲル状にはならないものの、取り込まれている有機溶媒が液相中に溶出せず、含有量を低く見積もることになることが判明し、水に分散させることとした。分散を完全に行うため、水を添加してから一晩放置した後に測定を行った。

平成12~14年入手試料について調査を行った結果、既存添加物名簿収載品と同等の健康食品素材125試料からは、アセトン、2-プロパノール、酢酸エチル等が検出されたが、「食品」扱いの素材や市販健康食品計42試料からは抽出溶媒と考えられる有機溶媒は検出されなかった。プロポリス製品やその原料であるプロポリス抽出物からアセトンが最高140 µg/g、酢酸エチルが最高1980 µg/g検出された。プロポリス抽出物は既存添加物名簿に収載されていることから、これらの有機溶媒の使用は認められるものの、原料の固形プロポリスからは検出されていない。プロポリス抽出物はエタノール溶液の状態です2~3年熟成される。従って、検出されたアセトンや酢酸エチルは熟成中に生成したことが推測された。

8) 着色料についての最近の調査²⁴⁾

平成18年に入手した輸入天然着色料40試料について調査を行った。食品衛生法の製造基準に適合しない試料はなか

ったが、製造基準の対象となっていないカカオ色素、トマト色素等からアセトンや酢酸エチルが検出された。

2. 製造に使用された有機溶媒以外の化学物質の残留²⁵⁾

甘味料カンゾウ抽出物は、主成分のグリチルリチン酸が酸性であることから、アンモニア水で抽出されることが多い。この場合、グリチルリチン酸はアンモニウム塩として存在すると考えられる。カンゾウ末では、カリウム塩の比率が高かったが、カンゾウ抽出物では、8試料中5試料でアンモニウム塩の比率が高かった。アンモニア性窒素は最高で2.5%であった。この製品では、窒素/グリチルリチン酸のモル比が4を超えており、グリチルリチン酸と結合していないアンモニウム塩が相当量存在していることが推測された。製造に使用された化学的合成品の残留は技術的に可能な限り低減することが望ましく、アンモニウム塩やアンモニア性窒素として一定の限度値を設ける必要があるのではないかと考えられる。

天然添加物の製剤化に使用される合成食品添加物

1. 希釈剤²⁶⁻²⁸⁾

図1に示したように、食品添加物の製剤化のために、希釈剤や乳化剤が使用される。そこで、昭和63年入手の着色料製剤56試料及び平成5年入手の香料製剤98試料について希釈剤として使用される成分の含有実態について、試験法を確立して調査した。昭和63年入手の着色料製剤についての調査²⁶⁾では、エタノール、プロピレングリコール(PG)、グリセリンの3希釈剤について、この時点では、キャピラリーカラムGCを保有していなかったため、パックドカラムGCによる同時分析法を確立して行った。一方、平成5年入手の香料製剤は、希釈剤成分の近傍に香料成分のピークが多数観察されることから、キャピラリーカラムGCによる同時分析法を確立して調査を行った²⁷⁾。上記3希釈剤のほか、グリセリン脂肪酸エステル的一种であるトリアセチン、また、我が国で使用が認められていない、ジエチレングリコールモノエチルエーテル、1,3-ブチレングリコールを含む6希釈剤を対象とした。検出されたピークについては、GC/MSにより確認した。その結果、エタノールが129試料から検出され、最も使用頻度が高かった。化学的合成品としては、PGが50試料と約3分の1から検出され、使用頻度が高かった。PGの含有量は、ウコン色素やソフトフルーツ香料等で最高97%に及んだ。香料製剤ではグリセリン脂肪酸エステル的一种であるトリアセチンも12試料から最高92%検出された。

合成着色料タール色素は5~100 mg/kg²⁹⁾であるのに対し、天然着色料の食品への添加濃度は100~5000 mg/kgといわれており³⁰⁾、20~50倍高くなっている。一方、平成21年の合成着色料食用タール色素の需要量は103 tであるのに対し、天然着色料は22,400 tと約200倍である³¹⁾。このように天然着色料の添加濃度や需要量が高い要因の一つが、製品が希釈剤を含有する製剤として流通しているためであり、これらの数値は、希釈剤を含んだ製品としてのものである。従って、仮に天然着色料製剤中の50%がPG等の合成食品添

加物であったとすると、10,000 tの合成食品添加物を天然着色料の希釈剤として摂取することになり、天然添加物の使用が合成添加物の使用量増加をもたらす恐れがあると考えられた。

この他、油脂的一种である中鎖トリグリセリドが、希釈剤として使用されていることが、GC/MS(CI)のスペクトル解析から、確認された²⁸⁾。

2. 乳化剤^{32, 33)}

乳化剤であるグリセリン脂肪酸エステルやシヨ糖脂肪酸エステルも特に油溶性の天然添加物を食品に添加しやすくするために使用される。これらは、炭素鎖の異なる脂肪酸が結合した混合物であるが、限られた脂肪酸種についてパックドカラムを用いた方法が報告されていたのみであった。そこで、各脂肪酸種を対象とし、GCによる定量とGC/MSによる定性試験法を確立した。グリセリン脂肪酸エステルについては、シリカゲルカラムによりクリーンアップを行った。気化しにくいことから、キャピラリーカラムへのスプリットレス注入ではGCで定量性が得られず、ワイドボアカラムを用いることにより、定量可能となった。シヨ糖脂肪酸エステルについては、試料の性質に応じてC8カラムまたは、シリカゲルカラムによりクリーンアップを行った。アセチル化後、350 °Cまで使用可能なワイドボアカラムを用い、GCで定量した。共に、GC/MS (EI及びCI) のスペクトル解析により、含有されるそれぞれの化合物を同定した。着色料製剤等について含有実態を調査したところ、最高10%程度、これらの乳化剤が検出された。乳化剤については、過去に、我が国で使用が認められていなかった乳化剤ポリソルベートがトウガラシ色素を食品に添加しやすくするために使用されたと考えられる事例があり、注意が必要であると考えられた³⁴⁾。

天然添加物中の機能成分および原材料由来の付随する成分の含有量

天然添加物は機能成分を原料動植物等から抽出して得られたものであるが、添加物製品中の機能成分含有量の分析法は必ずしも確立しておらず、また市販の天然添加物中の含有量についても不明なものが多い。機能成分含有量の測定法が未確立であることが、天然添加物の安全性を保證する食品衛生法上の品質規格設定が進まない要因の一つとなっている。そこで、食品衛生法上の品質規格が設定されていない天然添加物のいくつかについて、機能成分含有量の分析法を検討し、市販品の実態把握を試みた。また、原材料に本来的に含有されるが、添加物製品中には含有されることが好ましくない、いくつかの成分についても、試験法を確立し、実態を調査した。

1. ユッカ抽出物^{35, 36)}

ユッカ抽出物は北米から中南米の乾燥地帯に生育するリュウゼツラン科に属する常緑半低木ユッカの根茎から、熱水または含水エタノールで抽出して得られたもので、サポニンを含有している³⁷⁾。原料のユッカは現地でも食用として

³⁸⁾, またリュウマチ, 関節炎, 糖尿病, 胃腸病等の民間薬として³⁹⁾利用されてきた。ユッカ抽出物は起泡剤として食品に添加される。また, ユッカ抽出物配合製剤はサポニンが酵母に対する抗菌作用があることから, 我が国では漬け物, 菓子, 総菜類に対し, 日持ち向上剤として0.2~0.5%添加して使用される⁴⁰⁾。ここで日持ち向上剤とは, コンビニエンスストア等で販売される弁当, 総菜類等の保存性の低い食品に対して, 短期間の腐敗, 変敗防止を目的として使用される食品添加物のことである⁴¹⁾。ユッカ抽出物を始めとする日持ち向上剤の大部分には食品に対する使用基準がないため, 食品衛生法で合成保存料を添加することが認められていない食品にも添加することが認められている。

ユッカ抽出物の機能成分はステロイドサボゲニンをアグリコンとするステロイドサポニンである。医薬品のステロイド剤の原料として使用されたヘコゲニンは, 代表的なステロイドサボゲニンであるが, ユッカ抽出物に含有されるサポニンのアグリコンの本質やその含有量についても関心をもたれるところであり, 当然その品質規格も設定される必要がある。しかし, 天然食品添加物中の機能成分は単一物質でない場合が多く, 定量法確立は容易でない。

ユッカ抽出物中機能成分サポニンの定量法を確立するに当たって, 機能成分の総量を測定できる比色定量法を確立した。比色法は簡便かつ実用的で規格試験法として適当であると考えられるが, 他の含有成分がサポニン測定に影響する可能性があったため, 試験溶液調製に当たっては, 十分な精製を行い, さらに発色成分について検証を行った。また, 規格試験法として用いることができるように, 標準品は容易に入手できる市販品を用いることとした。ユッカ抽出物製剤に含まれる夾雑成分を吸着カラムを用いて除去後, 塩酸加水分解し, サボゲニンを含む画分についてアニスアルデヒド硫酸試薬によるステロイドサボゲニンに特異的な430 nm近辺の黄緑色の発色を比色定量した。この画分はTLCで同様の発色を示す3スポットを示し, GC/MSによりいずれもがステロイドサボゲニンに特徴的なベースピークm/z139を有していた。一番上の最も大きなスポットはサルササボゲニンとその25位エピマーであるスミラゲニン, 最も下のスポットはサルササボゲニンに水酸基が付加したものと及びその立体異性体, 中間の1スポットはカルボニル基を有するものと考えられた。確立した比色法を用いて市販品の分析を行ったところ, サポニンとして5.6~6.4%であった。GC (オンカラム) 定量法を確立して総サボゲニンを測定したところ, ほぼ比色法における分析値と等しく, サルササボゲニンとスミラゲニンの合計は総サボゲニンの約30%に相当した。なお, 確立した比色定量法とTLC法は, 食品衛生法上の品質規格として採用された^{8, 10)}。

2. カラシ抽出物及びセイヨウワサビ抽出物⁴²⁾

カラシ抽出物及びセイヨウワサビ抽出物は共に, 抗菌作用を有するため食品の日持ち向上剤として使用されている⁴³⁻⁴⁶⁾。主成分はイソチオシアナート類及び関連化合物とされているが, 含有量や他の含有成分については明らかでない。

そこで, 分析条件を開発し, GC 及びGC/MSで分析した。最も多く含有されていたのはアリルイソチオシアナート (AITC) で, 含有量はカラシ抽出物で97.6%, セイヨウワサビ抽出物で85.4%, その他のイソチオシアナート (ITC) 類はカラシ抽出物で2種類, セイヨウワサビ抽出物で9種類を同定することができた。ITC類の合計はそれぞれ98.5%, 95.4%であった。カラシ抽出物中からAITCの分解物アリルシアニドが0.6%, またセイヨウワサビ抽出物中からはアリルシアニドが1.7%, フェニルエチルシアニドが0.1%, アリルスルフィド類が計0.46%検出された。さらにAITCの分解物として毒物に指定されているアリルアミン (AA) が含有されている可能性が考えられた。AAは極性が高く, ITC類の試験法では分析できないことから, 誘導体化して分析する試験法を検討して, 含有量を分析した。含有量はカラシ抽出物で 8 mg/kg, セイヨウワサビ抽出物で67 mg/kgであった。AAは水溶液中でAITCから生成する^{47, 48)}。食品に添加された場合, AITCからAAが生成する可能性が懸念される。本来, ワサビやカラシ, セイヨウワサビ中のAITCは安定な配糖体の形で存在し, 食品に用いる直前にすりおろすことにより酵素ミロシナーゼが作用してAITCが遊離する⁴⁹⁻⁵¹⁾。多くの天然添加物と同様, カラシ抽出物やセイヨウワサビ抽出物は天然物であるカラシやセイヨウワサビそのものではなく, 水蒸気蒸留によりAITCその他の遊離揮発性成分を得て製造されたものであり, これが食品添加物として使用される。その結果, 天然に存在する場合に比較してはるかに不安定な化合物となり, 使用に当たっては, 毒物であるAAの生成を可能な限り防止する条件で使用する必要があると考える。

3. カンゾウ抽出物²⁵⁾

平成12年度に入手した甘味料カンゾウ抽出物8製品について, 含有成分その他の特性について調査した。3製品は水に溶けやすかったが5製品は溶けにくく, 主成分であるグリチルリチン酸含有量は, 10.9~77.4%, 強熱残分(硫酸灰分)は0.3~12.4%, 水溶液のpHは4.1~6.8と様々な品質特性を有する製品が流通していることがわかった。塩組成についても調査したところ, 水に溶けやすい3製品は, ナトリウム, カリウムが多く含まれていたことからグリチルリチン酸は水に溶けやすいナトリウム塩やカリウム塩として存在していると考えられた。一方, 水に溶けにくい5製品ではナトリウム, カリウムが少なく, グリチルリチン酸が水に溶けにくい有離酸として存在していると考えられた。ナトリウムやカリウムが少ないがアンモニウム塩の多い1製品は加温することにより水に溶解し, 水に溶けやすい3アンモニウム塩として存在していると考えられた。既述のように, この製品については, グリチルリチン酸と結合していないアンモニウム塩の存在が推測される。

4. 粗製海水塩化マグネシウム⁵²⁾

豆腐の製造に使用される, いわゆる天然にがり, は, 天然添加物「粗製海水塩化マグネシウム」である。食品衛生法上の規格が設定されていない上, 多種類の製品が流通して

いたことから、その品質実態を調査した。粗製海水塩化マグネシウムの主成分は塩化マグネシウムとされているが、平成16年度に入手した15製品について、マグネシウム含有量は、0.4~5.4%と幅が見られた。平成19年3月30日に告示された食品衛生法上の品質規格では、塩化マグネシウムとして12.0~30% (マグネシウムとして3.06~7.66%) となっており、6製品がこの規格の範囲を下回った。一方、にがりには塩の副産物であることから、塩化ナトリウムを十分析出分離しないうちににがりを採取した場合、ナトリウム量がマグネシウム量を上回ることがある。平成19年3月30日告示規格では、ナトリウム量について4.0%以下としていたが、5試料でこれを上回った。7試料では、ナトリウム量がマグネシウム量を上回った。また、硫酸塩についても、規格案が硫酸バリウムを生成させてその沈殿による濁度を標準品によるものと肉眼で比較するのに対し、本調査では、イオンクロマトグラフ法により、硫酸イオン濃度を測定したという試験法上の違いはあるものの、4試料で規格限度値の4.8%を超えた。なお、粗製海水塩化マグネシウムの品質規格は平成19年3月30日に告示され、20年3月31日までが経過措置期間であったが、市販品について規格案に適合しない製品が多い等の理由で、経過措置期間が延長された。その間、規格について見直しが行われ、平成21年6月24日の薬事・食品衛生審議会食品衛生分科会添加物部会において、規格改正案が提案された。この改正案では、マグネシウムとして2.0~8.5%、ナトリウムとして6.5%以下、硫酸塩6.5%以下となっており、本調査の結果をこの規格に当てはめると、適合しないのは、マグネシウムで2製品、ナトリウムで2製品、硫酸塩で1製品となる。その後市販品について調査され、平成22年6月23日の薬事・食品衛生審議会食品衛生分科会添加物部会において最終規格案が取りまとめられた。平成23年2月23日現在、規格は告示されていない。

粗製海水塩化マグネシウムやカンゾウ抽出物に限らず、天然添加物は、原材料や製法により、幅広い品質の製品が流通している。品質規格は、このような幅広い製品を網羅するものとなっているが、本来、製法ごとに、想定される残留物等の限度を設定することが、品質を管理する上では重要である。また、製品からある程度品質特性が推測できるよう、主成分含有量その他についての情報が得られることが望ましいと考える。

5. ヒメマツタケ抽出物および市販アガリクス製品⁵³⁾

健康食品として販売されているアガリクス製品の原材料であるヒメマツタケ抽出物は天然添加物として既存添加物リストに記載されている。主成分はベータグルカンとされているが、品質規格も設定されておらず、ベータグルカンの含有量も不明である。そこで、ベータグルカンを特異的に検出する試薬及び、ベータグルカンが食物繊維の一種であることから、食物繊維測定法の両法を用いて、ヒメマツタケ抽出物および市販アガリクス製品中のベータグルカン量の測定を試みた。その結果、両法の測定値間には相関が認められ、また、市販アガリクス製品中のベータグルカン

は、製品により大きな差があることが判明した。

6. 増粘安定剤⁵⁴⁻⁵⁶⁾

増粘安定剤については、平成6年、平成10年および平成13年に調査を行った。平成6年調査⁵⁴⁾時は、食品衛生法上の品質規格が設定されていなかったため、日本食品添加物協会の自主規格⁵⁷⁾、JECFA規格⁵⁸⁾、米国の規格⁵⁹⁾を参考にして分析した。その結果、市販品の中には、これらの規格に適合しない製品が多く認められた。平成10年調査⁵⁵⁾は、食品衛生法品質規格案が示された中で、市販品がこの規格案に適合しているかどうかを調査したものである。規格案に適合しない製品はなかったが、試験法について、より詳細な記載が求められるものがあった。さらに、サイリウムシードガムについて平成13年に調査した⁵⁶⁾ところ、自主規格に適合しない製品が認められた。サイリウムシードガムは、粉碎または抽出により製造される⁶⁰⁾とされているが、自主規格は粉碎品のみを対象としていたためであり、平成19年に設定された食品衛生法の規格^{8,10)}では、抽出品もカバーするように規格が設定された。なお、サイリウムシードガムについては含有するたん白質に起因すると考えられるアレルギーが報告されており、調査時0.2~0.8%のたん白質が検出された。平成19年の食品衛生法改正⁸⁾ (第8版食品添加物公定書¹⁰⁾) ではたん白質として2.0%以下の規格が設定された。

7. 着色料^{56,61)}

着色料については、平成13年⁵⁶⁾および平成18年⁶¹⁾に調査を行った。平成13年調査で、ムラサキトウモロコシ色素およびムラサキイモ色素製剤に色素含量が表示されていたが、製品の水分を測定したところ、表示量は水分含量も含んだ重量であると考えられた。これらの色素は原材料から水で抽出されるため、色素原体が相当量の水分を含んだものであり、それがそのまま色素量として製品に表示されたものと考えられる。抽出溶媒量により、色素含量そのものは異なることから、食品衛生法の規格では、添加物製剤に含まれる色素原体について、10%吸光度である色価を表示することになっており、原体中の色素含量の多寡を知ることができるようになってきている。平成18年調査でも、色価が表示されていない製品が多かった。

また、平成18年調査時、コチニール色素からたん白質が検出された。これは賦型剤を含む製剤であったため、窒素として測定されたものがコチニール色素中のたん白質かどうかは不明であるが、賦型剤として窒素を含有する成分を使用する例は考えにくく、検出された窒素はコチニール色素中のたん白質由来である可能性が高い。コチニール色素はエンジムシから抽出して得られるもので、残存するたん白質がアレルゲンと考えられることから、第8版においてたんぱく質として2.2%以下の規格値が設定された。平成18年調査は、第8版案が提示された段階で行ったものであるが、規格値の8倍の18.1%のたんぱく質が検出された。コチニール色素含量は50%と表示されており、コチニール色素原体中には36%と規格値の16倍のたんぱく質が含まれているこ

となる。コチニール色素の原料であるエンジムシ中には48%のたんぱく質が含まれており、その3/4が製品に移行したことになる。最近では、たんぱく質量を低減したコチニール色素製品も販売されているが、今後注意していく必要がある項目の一つである。

8. クチナシ色素製剤中のゲニポシド^{61, 62)}

クチナシ黄、青、赤色素製剤中の瀉下作用を有する不純物ゲニポシドの含有量を昭和63年、平成8年および平成18年の3回にわたり調査した。クチナシ黄色素中のゲニポシドは昭和63年調査では、調査した16試料すべてから0.02~17.6%、平均3.0%検出された。平成8年調査では、調査した6試料すべてから検出されたが、0.03~1.3%、平均0.28%と減少していた。平成18年調査では、7試料で、0.005~0.68%と、さらに減少していた。クチナシ青及び赤色素については、ゲニポシドは昭和63年には調査した1試料から0.08%検出されたが、平成8年の調査では調査した3試料すべてから検出されなかった。ゲニポシド等のイリド化合物は一部の食品で緑変現象を起こすこともあり、製品から除去されるようになったと考えられる。なお、ゲニポシドの限度値「色価50に換算して0.5%以下」は、最初の調査から20年を経た平成19年の食品衛生法改正^{8, 10)}により初めて食品衛生法上規定された。平成18年調査では、すべての試料で、この限度値以下であった。

その他の不純物

1. 天然添加物中の重金属類⁶³⁻⁶⁶⁾

天然添加物は動植物や鉱物を原料として製造されるため、土壌由来等の重金属による汚染が懸念された。そこで、数次に渡り調査を行った。鉛についてJECFAでは、食品添加物一般について2 mg/kgを限度値として提案している⁶⁷⁾。着色料について、平成9年、平成11年、12~13年及び平成18年に調査を行ったが、平成18年調査で、40試料中1試料(2.8 mg/kg)が、この値を超えた。1 mg/kgを超えたものは、平成9年調査で57試料中1試料(1.4 mg/kg)、平成11年調査で12試料中4試料(最高1.8 mg/kg)、平成18年調査で、1試料であった。着色料以外では、11~12年調査でプロポリス1試料から2 mg/kg検出された。ヒ素については、食品衛生法では通常4 mg/kgの限度値、JECFAでは一般的な限度値の提案はなされていない。着色料について平成9年調査で1試料、平成18年調査で2試料が1 mg/kgを超え、また、平成12~13年調査でヒメマツタケ抽出物について2試料で1 mg/kgを超えた。カドミウムについては、JECFAでは、食品添加物一般について1 mg/kgを限度値として提案している⁶⁵⁾がこの値を超えたものはなかった。水銀は、EUで着色料等について1 mg/kgの限度値が設定されている⁶⁸⁾が、平成18年調査で着色料について3試料が1 mg/kgを超えた。

3. カビ毒^{56, 61, 69)}

カビ毒として、ベニコウジ色素についてシトリニン(色価50に換算して0.2 mg/kg以下)^{7, 9)}、ムラサキトウモロコシ色素についてフモニシン(色価30に換算して0.3 mg/kg以

下)^{8, 10)}の限度が設定されている。平成9年入手のベニコウジ色素11試料⁶⁹⁾、平成13年⁵⁶⁾および18年⁶¹⁾入手のムラサキトウモロコシ色素各2試料(いずれも規格設定前の製品)について、それぞれ調査したところ、限度値以下であった。

4. 臭素⁷⁰⁾

キチン、レイシ抽出物、ラカンカ抽出物、サイリウムシードガム、キダチアロエ抽出物、また健康食品素材であるコンドロイチン硫酸ナトリウム等から100 mg/kgを超える臭素が検出された。このうち、レイシ抽出物については、製造工程でくん蒸処理が行われていたことが判明した。抽出によって除去されず、抽出物中に残留したものと考えられた。これ以外の試料については確認できなかったが、原材料についてくん蒸処理、あるいは土壌をくん蒸したものが植物体へ移行した等の原因が考えられた。

まとめ

これまで、20年以上にわたり、天然添加物の製造に使用された有機溶媒等の化学物質の残留、品質を規定する主成分含有量、基原動植物由来の不純物や汚染物等について、試験法を開発し、実態調査を行ってきた。本稿は、これらをまとめたものである。本総説で報告した一連の調査研究を開始した当時は、天然食品添加物についての法的な規制はほとんど存在しなかった。一連の調査研究結果を報告してきたことが、天然食品添加物への指定制の導入や、規格の設定等の法規制の確立に寄与したものと考える。製品中の主成分の特定や有害成分の限度を規定する規格は、天然添加物に起因するリスクの低減化を目指したものである。製造に使用された有機溶媒等の化学物質については、製造工程をコントロールすることにより、含有量を一定量以下にすることが可能であり、規格によってそれが達成されたかどうかを確認できる。また、機能成分の含有量や、原材料に本来的に含まれる好ましくない成分についても規格の設定により、あるレベル以下の製品を排除することができる。しかしながら、規格で規定できることには限界がある。抽出され、製造された天然添加物からは、基原動植物の特定は困難である。また通常製造に使用しない化学物質、例えば、トウガラシ色素の色調を強化するために食品への添加が認められていない有害なSudan色素を添加したり、たんぱく質含量を多く見せかけるためにメラミンを添加したりする等の意図的な添加の「発見」を規格に期待するのには無理がある。すでに、Sudan色素等については試験法を確立し⁷¹⁾、メラミンについても規格項目に追加して試験を行えば、違法な添加は確認できる。しかし、これらの添加を疑って、その項目の試験を行わない限り、その含有を知ることはできない。天然添加物の安全性確保のためには、規格と共にその添加物がどのように製造されているかの情報、トレーサビリティが重要となる。

この間報告した結果の中には、カンゾウ抽出物からメタノールが10,000 mg/kgを超えて検出された例²²⁾等、基準値が設定されていないのみならず、製造企業すら認識していな

かった事例もある。行政に属する機関として、法に照らした検査を行うのはもちろんであるが、法規制が行われていない分野について、積極的に調査・研究を行い、食に起因する危害を未然に防止するのも大切な役割と考える。本調査研究の多くは、当センターの先行調査の一環として行われたものである。検体の収集等に当たり、現広域監視部に多大な協力を頂いたことに、改めて深謝申し上げる。また、本調査研究は、多くの先輩方の業績の蓄積の上に立って行うことができたものである。ここに改めて感謝申し上げる。

文 献

- 1) 昭和22年12月24日法律第233号, 1947.
- 2) 平成元年11月28日厚生省令第48号, 1989.
- 3) 平成7年5月24日法律第101号, 1995.
- 4) 平成15年5月30日法律第55号, 2003.
- 5) 平成8年4月16日厚生省告示第120号, 1996.
- 6) 厚生労働省医薬食品局食品安全全部長通知“消除予定添加物名簿の公示及び訂正の申出手続きについて”平成22年5月18日食安発0518第1号, 2010.
- 7) 平成11年4月6日厚生省告示第116号, 1999.
- 8) 平成19年3月30日厚生労働省告示第73号, 2007.
- 9) 厚生省: 第7版食品添加物公定書, 1999.
- 10) 厚生労働省: 第8版食品添加物公定書, 2007.
- 11) Joint FAO/WHO Expert Committee of Food Additives: *FAO JECFA Monographs 1, Combined Compendium of food additive specifications Volume 3*, 3-7, 2006, Food and Agriculture Organization of the United Nations, Rome.
- 12) Joint FAO/WHO Expert Committee of Food Additives: *FAO JECFA Monographs 1, Combined Compendium of food additive specifications Volume 3*, 579-582, 2006, Food and Agriculture Organization of the United Nations, Rome.
- 13) code of federal regulations (cfr), Title 21, Part 73 Listing of color additives exempt from certification, Subpart A Foods, USA.
- 14) code of federal regulations (cfr), Part 172 Food additives permitted for direct addition to food for human consumption, § 172.510 Natural flavoring substances and natural substances used in conjunction with flavors, USA.
- 15) code of federal regulations (cfr), Part 173 Secondary direct food additives permitted in food for human consumption, Subpart C Solvents, lubricants, release agents and related substances, USA.
- 16) Joint FAO/WHO Expert Committee of Food Additives: *Food and Nutrition Papers 5 Rev.1, Guide to Specifications*, 1983, Food and Agriculture Organization of the United Nations, Rome.
- 17) Committee on Food Chemicals Codex, Food and Nutrition Board Commission on Life Sciences National Research Council: *First supplement to the third edition, Food Chemicals Codex*, 528-9, 1983, National Academy Press, Washington D.C.
- 18) 植松洋子, 広門雅子, 平田恵子, 他: 食衛誌, **34**(3), 232-238, 1993.
- 19) 植松洋子, 鳩岡友紀, 平田恵子, 他: 食衛誌, **35**(6), 645-651, 1994.
- 20) 植松洋子, 貞升友紀, 平田恵子, 他: 食衛誌, **38**(2), 97-104, 1997.
- 21) Uematsu, Y., Hirata, K., Suzuki, K., *et.al.*: *Food Addit. Contam.*, **19**(4), 335-342, 2002.
- 22) Uematsu, Y., Suzuki, K., Iida, K., *et.al.*: *J. Food Hyg. Soc. Japan*, **43**(5), 295-300, 2002.
- 23) Joint FAO/WHO Expert Committee of Food Additives: *FAO JECFA Monographs 1, Combined Compendium of food additive specifications Volume 3*, 589-593, 2006, Food and Agriculture Organization of the United Nations, Rome.
- 24) Uematsu, Y., Ogimoto, M., Suzuki, K., *et.al.*: *J. Food Hyg. Soc. Japan*, **49**(5), 366-375, 2008.
- 25) 飯田憲司, 植松洋子, 鈴木公美, 他: 食衛誌, **48**(4), 112-117, 2007.
- 26) 植松洋子, 広門雅子, 平田恵子, 他: 東京衛研年報, **40**, 183-186, 1989.
- 27) 植松洋子, 貞升友紀, 平田恵子, 他: 食衛誌, **38**(6), 452-459, 1997.
- 28) 植松洋子, 貞升友紀, 平田恵子, 他: 食衛誌, **38**(3), 140-144, 1997.
- 29) 食品添加物公定書注解編集委員会編: 第三版食品添加物公定書注解, 421, 1974, 金原出版株式会社, 1974, 東京.
- 30) 谷村顕雄, 片山脩, 遠藤英美, 他編: 天然着色料ハンドブック, 587-591, 1979, 株式会社光琳, 東京.
- 31) 食品化学新聞, 第2321号, 2010, 1, 14.
- 32) 植松洋子, 広門雅子, 平田恵子, 他: 食衛誌, **38**(4), 248-258, 1997.
- 33) Uematsu, Y., Hirata, K., Suzuki, K., *et.al.*: *J. AOAC INT.*, **84** (2), 498-506, 2001.
- 34) 田村行弘, 井部明弘, 橋本秀樹, 他: 東京衛研年報, **38**, 209-215, 1987.
- 35) Uematsu, Y., Hirata, K., Saito, K., *et.al.*: *J. AOAC INT.*, **83**(6), 1451-1454, 2000.
- 36) Uematsu, Y., Hirata, K., Suzuki, K., *et.al.*: *J. Food Hyg. Soc. Japan*, **45**(3), 141-145, 2004.
- 37) 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, 547, 1999, 日本食品添加物協会, 東京.
- 38) Kindscher, -K.: *Edible wild plants of the Prairie*, 224, 1983, Univ. Press of Kansas, Kansas.
- 39) Bingham, R., Bellow, A.B., and Bellow, J. G.: *J. Appl. Nutr.*, **17**, 45-51, 1975.
- 40) 丸善製薬(株): 月刊フードケミカル, **1996** (8), 84-85, 1996.

- 41) 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, 44-45, 1999, 日本食品添加物協会, 東京.
- 42) 植松洋子, 平田恵子, 鈴木公美, 他: 食衛誌, **43**(1), 10-17, 2002.
- 43) Sekiyama, Y., Mizukami, Y., Takada, A., et.al.: *J. Antibact. Antifung. Agents*, **24**, 171-178, 1996.
- 44) 田近 悟: フードケミカル, **1998** (9), 65-68, 1998.
- 45) 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, 151, 1999, 日本食品添加物協会, 東京.
- 46) 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, 314, 1999, 日本食品添加物協会, 東京.
- 47) Pecháček, R., Velisek, J., and Hrabcová, H.: *J. Agric. Food Chem.*, **45**, 4584-4588, 1997.
- 48) Chung-Wen, C. and Chi-Tang, H.: *J. Agric. Food Chem.*, **46**, 220-223, 1998.
- 49) 小嶋 操, 浜田 浩, 山下 美由紀: 日本食品工業学会誌, **29** (4), 232-237, 1982.
- 50) 芦沢正和, 梶浦一郎, 平 宏和, 竹内昌昭, 他: 食品図鑑, 344-345, 1995, 女子栄養大学出版部, 東京.
- 51) 社団法人日本食品工業学会編: 新版・食品工業総合事典, 280, 1993, 株式会社光琳, 東京.
- 52) 荻本真美, 植松洋子, 樺島順一郎, 他: 食衛誌, **47**(6), 296-301, 2006.
- 53) 鈴木公美, 植松洋子, 平田恵子, 他: 東京衛研年報, **53**, 165-168, 2002.
- 54) 貞升友紀, 広門雅子, 植松洋子, 他: 東京衛研年報, **47**, 182-188, 1996.
- 55) 植松洋子, 平田恵子, 鈴木公美, 他: 東京衛研年報, **52**, 176-179, 2001.
- 56) 鈴木公美, 平田恵子, 植松洋子, 他: 東京衛研年報, **53**, 169-172, 2002.
- 57) 日本食品添加物協会編: 第2版化学的合成品以外の食品添加物自主規格, 179-199, 1993, 日本食品添加物協会, 東京.
- 58) Joint FAO/WHO Expert Committee of Food Additives: *FAO JECFA Monographs 1, Combined Compendium of food additive specifications*, 2006, Food and Agriculture Organization of the United Nations, Rome.
- 59) Committee on Food Chemicals Codex, Food and Nutrition Board Commission on Life Sciences National Research Council: *First supplement to the third edition, Food Chemicals Codex*, 1983, National Academy Press, Washington D.C.
- 60) 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, 267, 1999, 日本食品添加物協会, 東京.
- 61) 鈴木公美, 植松洋子, 樺島順一郎, 他: 東京健安七報, **58**, 169-177, 2007.
- 62) 植松洋子, 平田恵子, 広門雅子, 他: 食衛誌, **39**(1), 46-50, 1998.
- 63) 安野哲子, 伊藤弘一, 萩原輝彦, 他: 東京衛研年報, **49**, 162-167, 1998.
- 64) 安野哲子, 萩原輝彦, 齊藤和夫: 東京衛研年報, **51**, 193-196, 2000.
- 65) 安野哲子, 萩原輝彦, 樺島順一郎, 他: 東京衛研年報, **53**, 161-164, 2002.
- 66) 荻本真美, 植松洋子, 鈴木公美, 他: 食衛誌, **50**(5), 256-260, 2009.
- 67) 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, p11-12. (ISBN 92-4-120896-1)
- 68) COMMISSION DIRECTIVE 95/45/EC of 26 July 1995. Laying down specific purity criteria concerning colors for use in foodstuffs.
- 69) 鈴木公美, 平田恵子, 荻本真美, 他: 東京健安七報, **60**, 119-123, 2009.
- 70) 飯田憲司, 平田恵子, 植松洋子, 他: 東京健安七報, **54**, 174-178, 2003.
- 71) Uematsu, Y., Ogimoto M., Kabashima, J., et.al. : *J. AOAC INT.*, **90** (2), 437-445, 2007.

Investigation on Components and Accompanying Chemicals in Natural Food Additives and their Commercial Preparations

Yoko UEMATSU*

Components and accompanying chemicals in natural food additives and their commercial preparations were investigated. Analyzed substances included: (1). Chemicals and residual organic solvents used in the manufacturing process, carrier solvents and emulsifiers in commercial food additive preparation; (2). Functional components and accompanied impurities including heavy metals in various food additives; yucca extract, mustard extract, horse radish extract, gardenia yellow, licorice extract, crude magnesium chloride of sea water origin, and other food additives. Methods for the analysis of above substances were developed prior to the survey.

Keywords: natural food additive, residual solvent, carrier solvent, emulsifier, Yucca extract, mustard extract, horse radish extract, gardenia yellow, licorice extract, crude magnesium chloride of sea water origin, heavy metal

* Tokyo Metropolitan Institute of Public Health
3-24-1, Hyakunin-cho, Shinjuku-ku, Tokyo 169-0073 Japan