

Fig.1. 揮発性有機化合物混合標準液のGC/MSクロマトグラム

1: Dichlorodifluoromethane, 2: Chloromethane, 3: Vinyl Chloride, 4: Bromomethane, 5: Chloroethane, 6: Trichlorofluoromethane, 7: 1,1-dichloroethane, 8: Methylene Chloride, 9: trans-1,2-Dichloroethane, 10: 1,1,1-Trichloroethane, 11: 2,2-Dichloropropane, 12: cis-1,2-Dichloroethane, 13: Chloroform 14: Bromochloromethane, 15: 1,1,1-Trichloroethane, 16: 1,1-Dichloropropene, 17: Carbon Tetrachloride, 18: 1,2-Dichloroethane, 19: Benzene, 20: Trichloroethene, 21: 1,2-Dichloropropane, 22: Bromodichloromethane, 23: Dibromomethane, 24: cis-1,3-Dichloropropene, 25: Toluene, 26: trans-1,3-Dichloropropene, 27: 1,1,2-Trichloropropane, 28: 1,3-Dichloropropane, 29: Tetrachloroethene, 30: Dibromochloromethane, 31: 1,2-Dibromoethane, 32: Chlorobenzene, 33: 1,1,1,2-Tetrachloroethane, 34: Ethylbenzene, 35: m-Xylene, 36: p-Xylene, 37: o-Xylene, 38: Styrene, 39: Isopropylbenzene, 40: Bromoform 41: 1,1,2,2-Tetrachloroethane, 42: 1,2,3-Trichloropropane, 43: n-Propylbenzene, 44: Bromobenzene, 45: 1,3,5-Trimethylbenzene, 46: 2-Chlorotoluene, 47: 4-Chlorotoluene, 48: tert-Butylbenzene, 49: 1,2,4-Trimethylbenzene, 50: sec-butylbenzene, 51: p-Isopropyltoluene, 52: 1,3-Dichlorobenzene, 53: 1,4-Dichlorobenzene, 54: n-Butylbenzene, 55: 1,2-Dichlorobenzene, 56: 1,2-Dibromo-3-Chloropropane, 57: 1,2,4-Trichlorobenzene, 58: Hexachlorobutadiene, 59: Naphthalene, 60: 1,2,3-Trichlorobenzene, IS.A: Fluorobenzene, IS.B: 4-Bromofluorobenzene

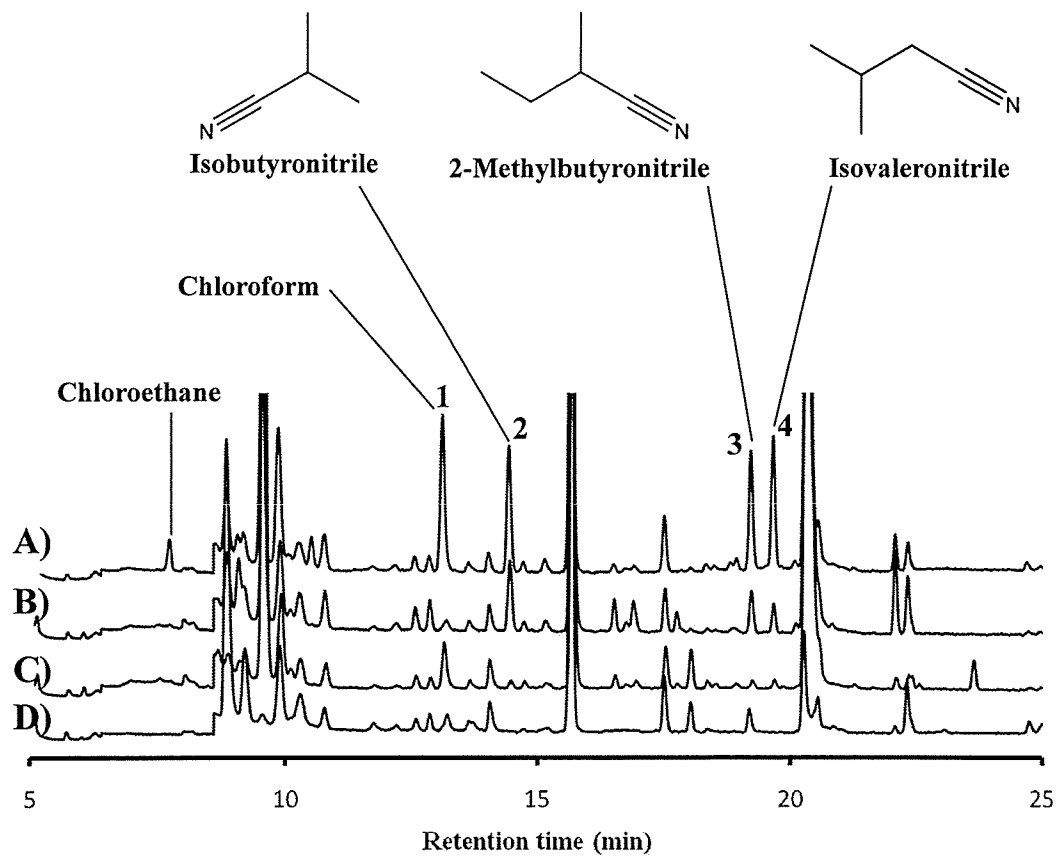


Fig. 2. 各種塩素系殺菌料により殺菌処理後のカット野菜の GC/MS クロマトグラムと比較
 A) 100 µg/g 次亜塩素酸ナトリウム (pH10.0) 殺菌処理、B) 25 µg/g 強酸性次亜塩素酸水 (pH2.3) 殺菌処理、C) 21 µg/g 微酸性次亜塩素酸水 (pH6.5) 殺菌処理、D) 未殺菌処理試料、各試料は 10°Cにて 10 分間殺菌処理を行った。

試薬標準液

強酸性次亜水処理試料

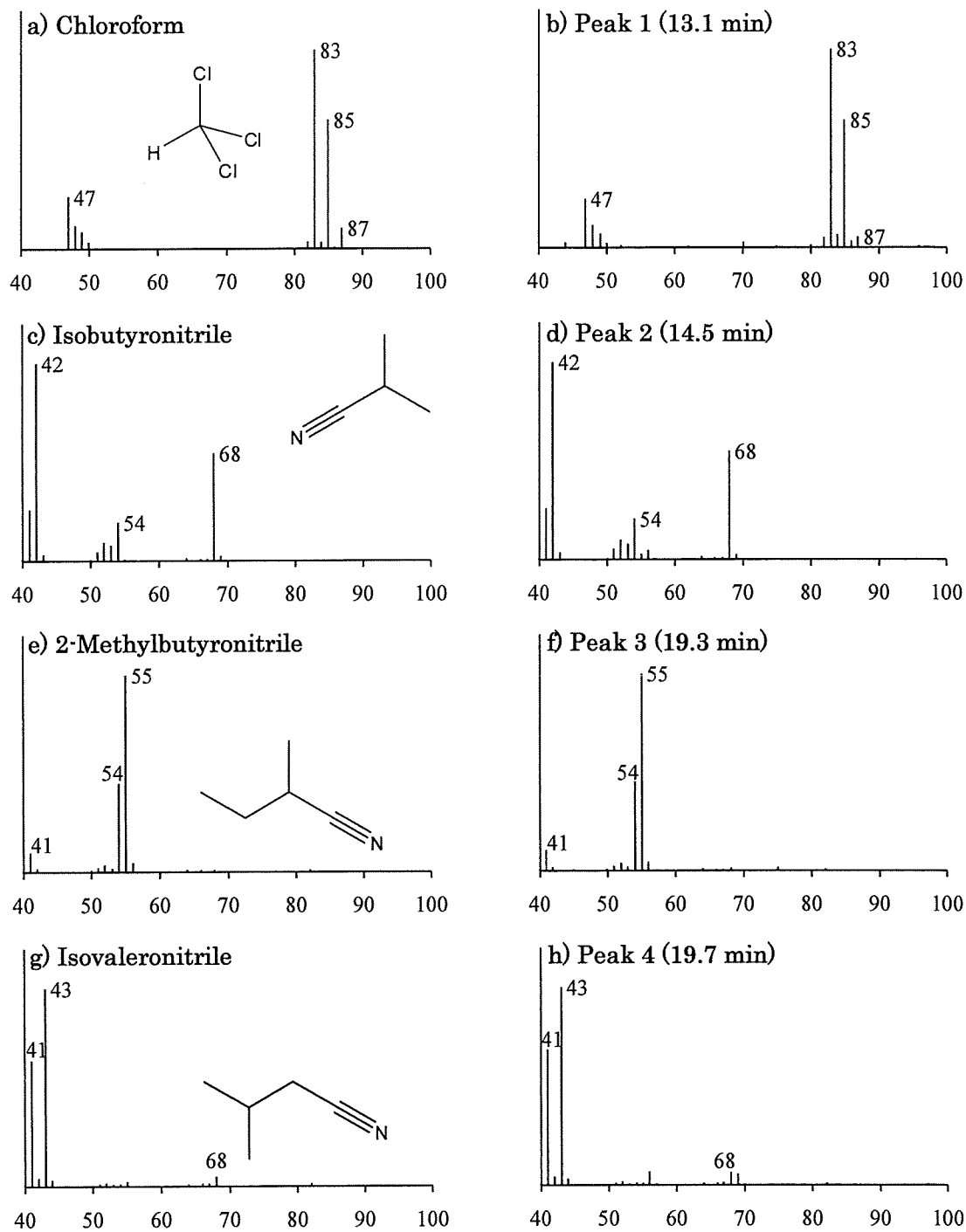


Fig. 3. 強酸性次亜塩素酸水殺菌処理されたカット野菜試験液中の未知ピークと試薬標準品のマススペクトルの比較
 a) クロホルム標準液、c) イソブチロニトリル標準液、e) 2-メチルブチロニトリル標準液、g) イソバレロニトリル標準液、b), d), f), h) 25 $\mu\text{g/g}$ 強酸性次亜塩素酸水 (pH2.3) 殺菌処理したカット野菜試験液. 各試料は 10°C にて 10 分間殺菌処理を行った。(図中のピーク番号は Fig. 2 のクロマトグラム上のピーク番号に対応する)

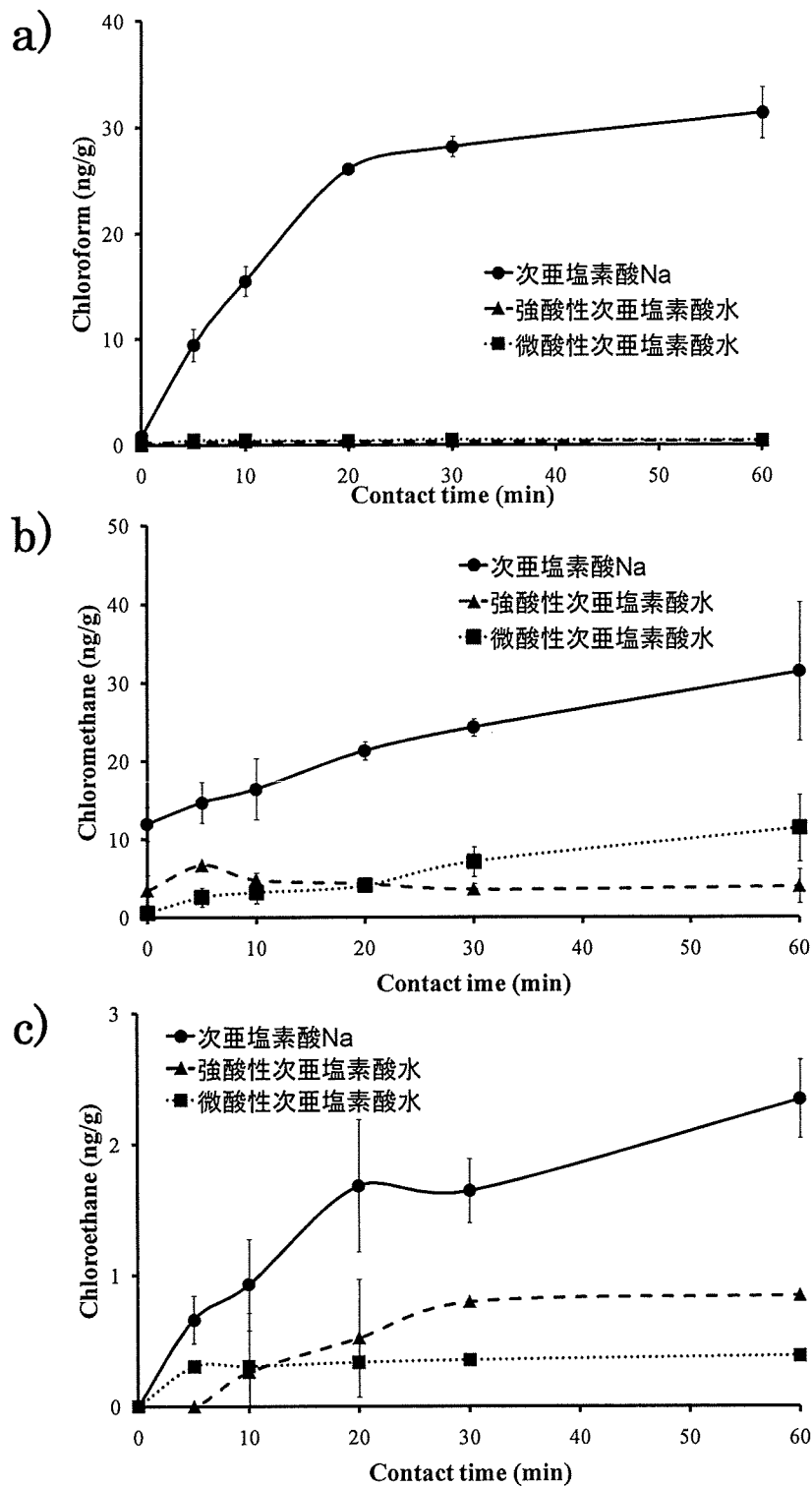


Fig. 4 カット野菜の殺菌処理による消毒副生成物量の経時変化。
 a) クロロホルム量の推移、b) クロロメタン量の推移、c) クロロエタン量の推移、
 各試料は、100 µg/g 次亜塩素酸ナトリウム (pH10.0)、25 µg/g 強酸性次亜塩素酸水 (pH2.3)
 及び 21 µg/g 微酸性次亜塩素酸水 (pH6.5) で10分間殺菌処理を行った。

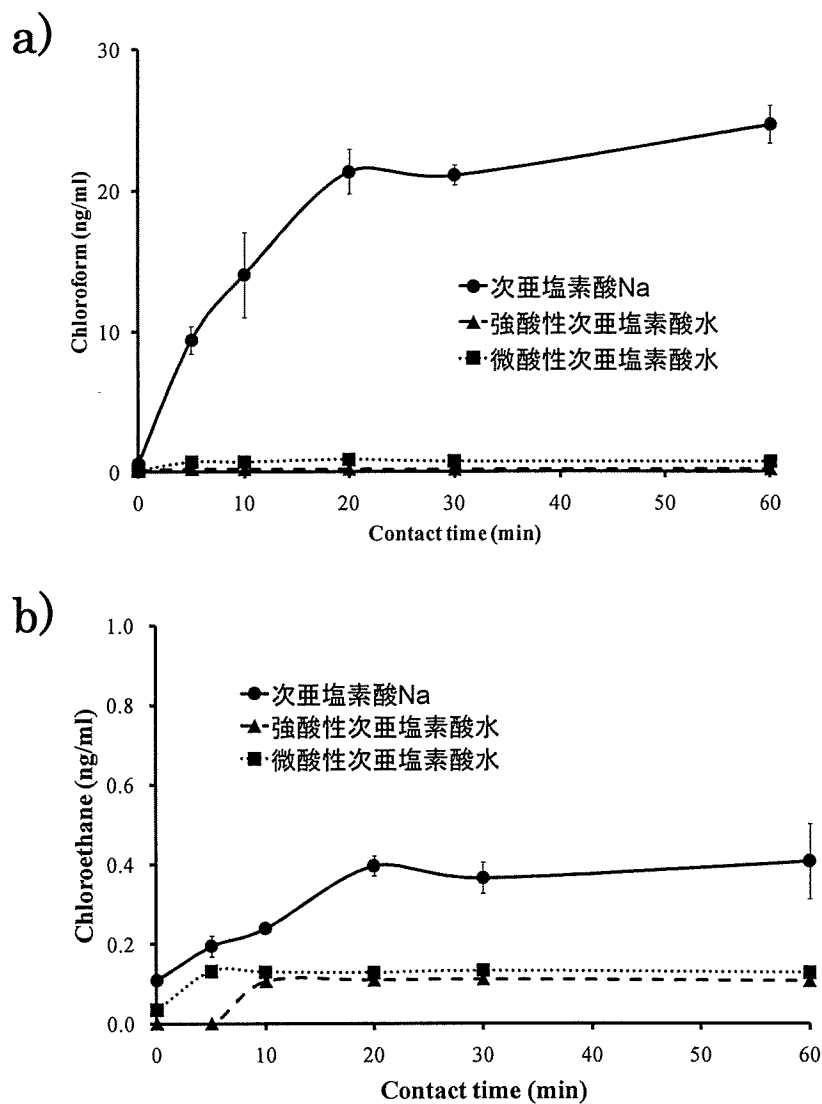


Fig. 5 カット野菜の殺菌処理による浸漬液中の消毒副生成物量の経時変化.

a) クロロホルム量の推移、b) クロロエタン量の推移

各試料は、100 $\mu\text{g/g}$ 次亜塩素酸ナトリウム (pH10.0), 25 $\mu\text{g/g}$ 強酸性次亜塩素酸水 (pH2.3) 及び 21 $\mu\text{g/g}$ 微酸性次亜塩素酸水 (pH6.5) で10分間殺菌処理を行った。

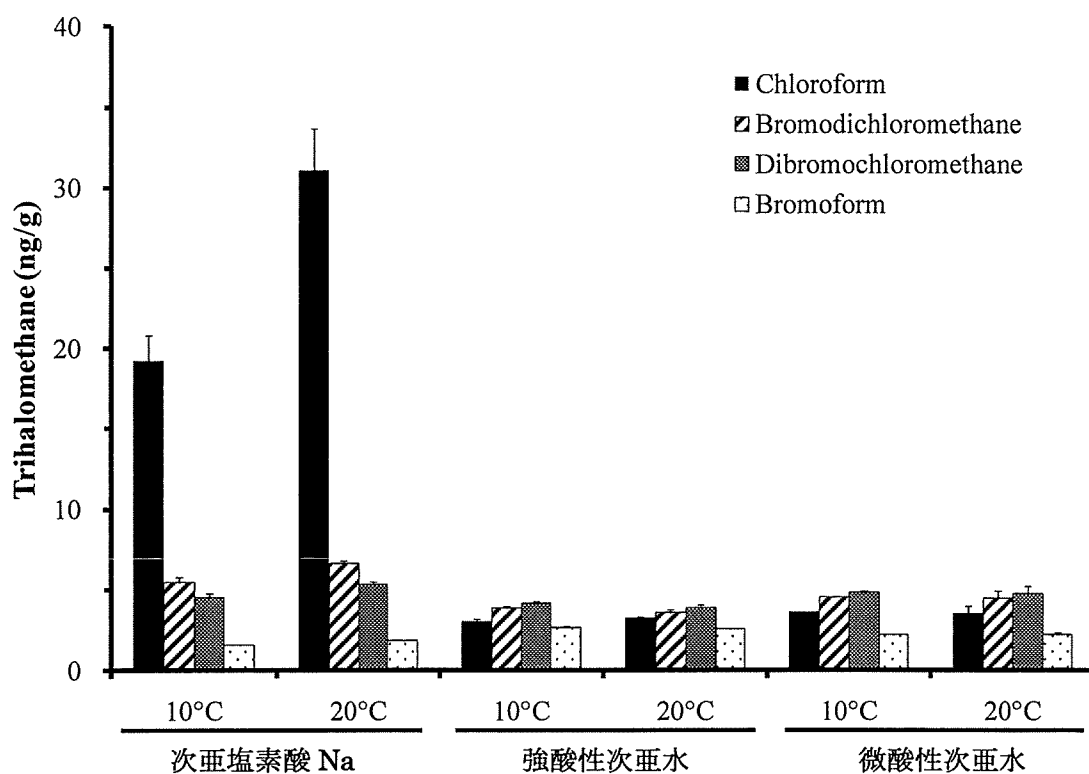


Fig. 6. 殺菌液の温度によるカット野菜中のトリハロメタン量の比較
 次亜塩素酸ナトリウム (100 $\mu\text{g/g}$, pH10) 及び強酸性次亜塩素酸水 (25 $\mu\text{g/g}$, pH2.3)、微酸性次亜塩素酸水 (21 g/g , pH6.5) でカット野菜を 10 分間殺菌処理した

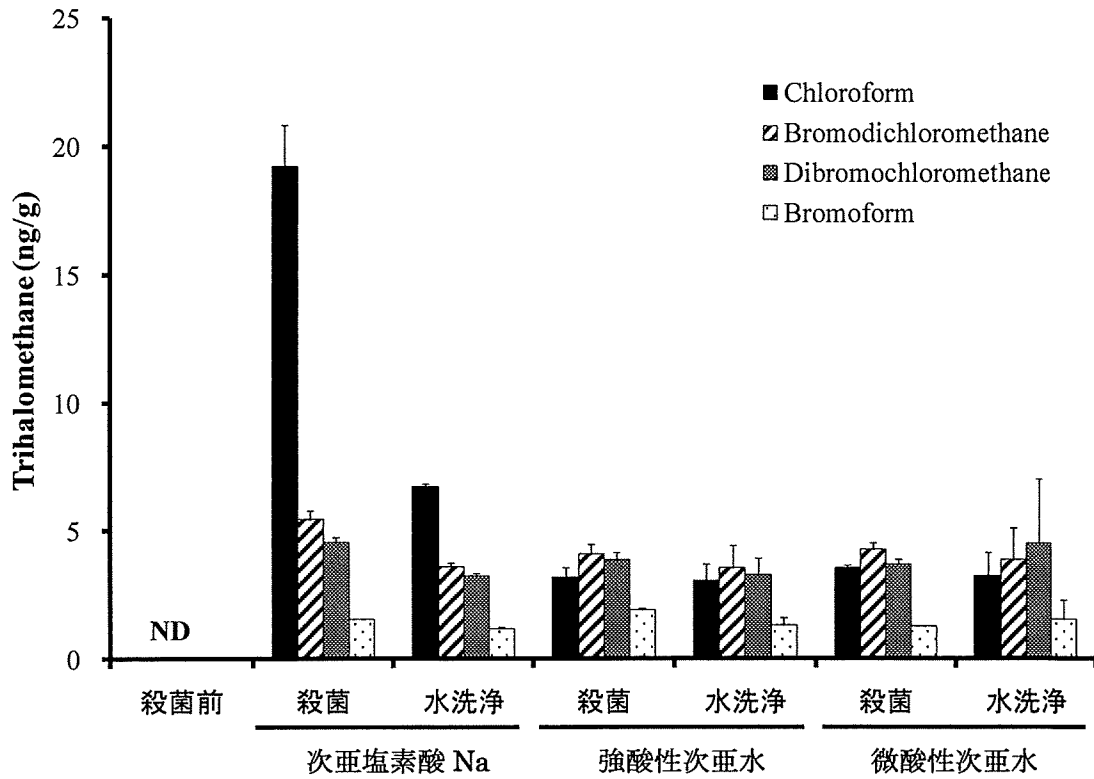


Fig. 7. カット野菜の殺菌・流水洗浄処理後のトリハロメタン残存量の殺菌料による比較

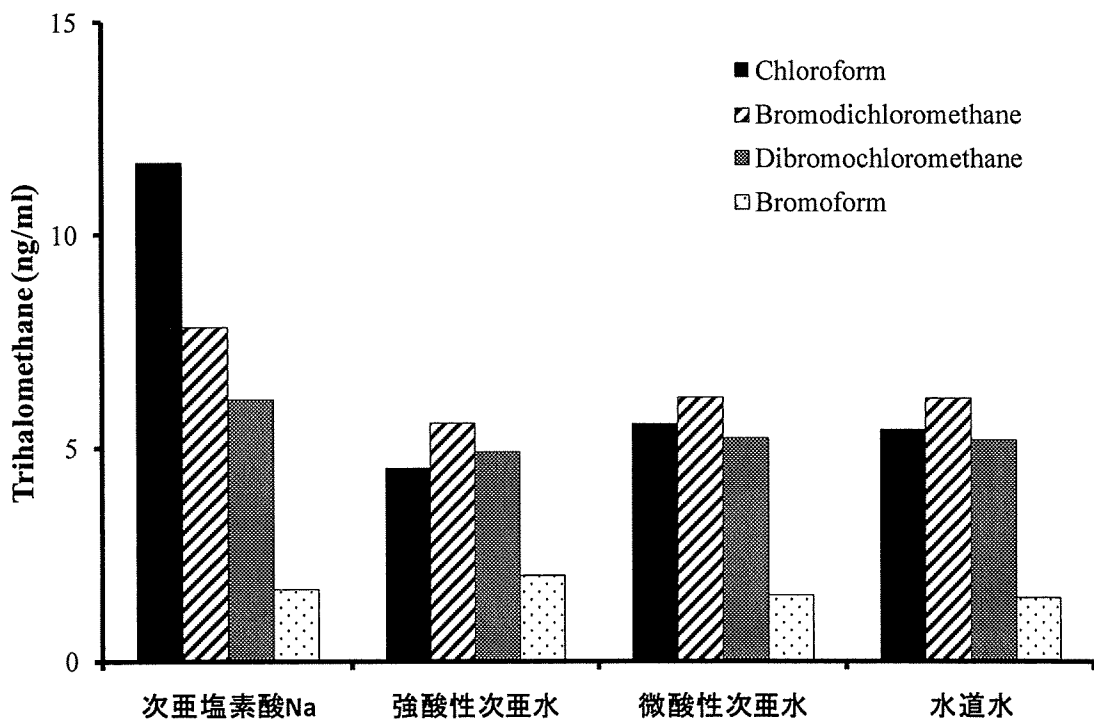


Fig. 8. 各種殺菌液及び水道水中に含まれるトリハロメタン量の比較

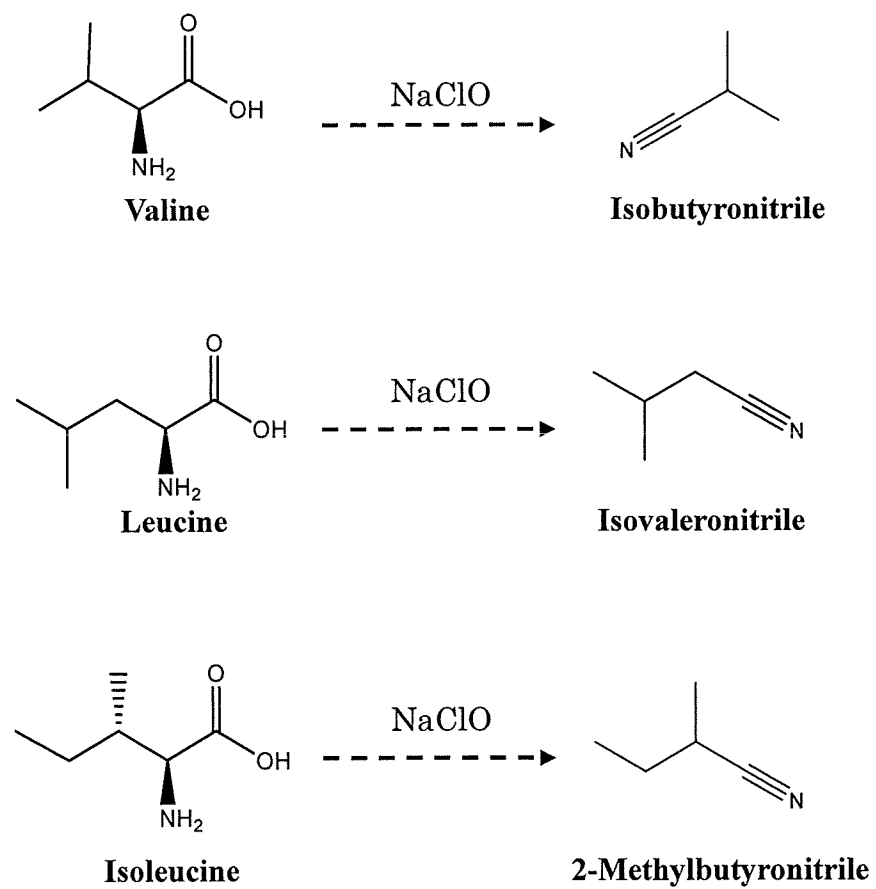


Fig. 9. 各アミノ酸の塩素処理により生成するニトリル化合物

Table 1. 添加回収試験

No.	Compounds	Amount of added VOCs			
		5 ng/g		50 ng/g	
		Avg. (%)	C.V. (%)	Avg. (%)	C.V. (%)
1.	Dichlorodifluoromethane	121.4	9.8	126.0	8.6
2.	Chloromethane	-	-	113.9	9.9
3.	Vinyl chloride	86.0	9.3	113.9	9.9
4.	Bromomethane	140.8	12.6	120.7	10.6
5.	Chloroethane	78.9	14.5	102.1	13.0
6.	Trichlorofluoromethane	103.1	4.8	109.4	4.2
7.	1,1-dichloroethene	112.8	2.4	112.9	1.1
8.	Methylene Chloride	91.0	5.1	84.8	2.0
9.	trans-1,2-Dichloroethene	107.4	1.5	105.2	0.7
10.	1,1-Dichloroethane	104.7	0.9	101.3	1.0
11.	2,2-Dichloropropane	100.8	3.0	101.6	1.6
12.	cis-1,2-Dichloroethene	98.6	2.8	95.6	1.6
13.	Chloroform	92.1	3.0	90.6	2.4
14.	Bromochloromethane	90.7	6.1	84.8	4.0
15.	1,1,1-Trichloroethane	104.6	2.8	105.6	1.3
16.	1,1-Dichloropropene	102.6	3.2	104.6	2.1
17.	Carbon Tetrachloride	94.2	5.7	96.8	4.0
18.	1,2-Dichloroethane	90.2	5.9	86.0	3.7
19.	Benzene	93.6	1.0	92.3	0.7
20.	Trichloroethene	101.2	2.6	102.1	0.5
21.	1,2-Dichloropropane	95.7	3.2	93.8	2.1
22.	Bromodichloromethane	85.3	5.2	82.2	3.1
23.	Dibromomethane	86.9	6.7	81.2	4.3
24.	cis-1,3-Dichloropropene	66.7	6.8	53.3	4.9
25.	Toluene	89.5	2.0	94.2	0.5
26.	trans-1,3-Dichloropropene,	76.8	7.5	74.0	3.7
27.	1,1,2-Trichloropropane	78.2	8.2	77.1	4.3
28.	1,3-Dichloropropane	78.0	7.8	76.1	3.8
29.	Tetrachloroethene	86.6	8.6	90.8	2.7
30.	Dibromochloromethane	79.3	7.0	77.2	3.9
31.	1,2-Dibromoethane	112.7	7.0	106.7	2.8
32.	Chlorobenzene	115.5	1.7	115.0	1.2
33.	1,1,1,2-Tetrachloroethane	120.0	6.8	121.5	3.1
34.	Ethylbenzene	108.4	1.4	110.1	1.2
35+36.	m,p-Xylene	107.4	6.6	108.5	3.6
37.	o-Xylene	103.1	4.1	104.3	2.0
38.	Styrene	99.7	1.6	98.3	0.5
39.	Isopropylbenzene	99.1	11.5	98.9	5.1
40.	Bromoform	101.2	6.4	98.7	3.5
41.	1,1,2,2,-Tetrachloroethane	95.5	8.5	92.4	4.2
42.	1,2,3-Trichloropropane	97.2	8.1	93.1	3.7
43.	n-Propylbenzene	95.7	13.2	93.1	5.6
44.	Bromobenzene	96.7	0.8	96.4	0.7
45.	1,3,5-Trimethylbenzene	75.1	13.3	76.6	4.5
46.	Chlorotoluene	86.1	7.5	86.7	2.7
47.	4-Chlorotoluene	82.2	5.6	81.0	2.6
48.	tert-Butylbenzene	85.3	15.9	80.5	6.8
49.	1,2,4-Trimethylbenzene	68.2	10.0	67.6	3.7
50.	sec-butylbenzene	77.5	19.7	71.8	9.2
51.	p-Isopropyltoluene	74.5	17.8	67.6	7.5
52.	1,3-Dichlorobenzene	73.6	3.8	72.3	1.5
53.	1,4-Dichlorobenzene	101.9	7.5	77.0	0.7
54.	n-Butylbenzene	67.9	19.9	56.4	9.8
55.	1,2-Dichlorobenzene	69.0	1.2	65.5	2.2
56.	1,2-Dibromo-3-Chloropropane	80.4	8.2	73.4	7.3
57.	1,2,4-Trichlorobenzene	35.7	4.4	31.9	4.1
58.	Hexachlorobutadiene	44.6	28.7	29.5	17.6
59.	Naphthalene	41.8	6.8	34.6	4.6
60.	1,2,3-Trichlorobenzene	32.0	5.4	26.1	4.8

* n=5

Table 2. 殺菌料原体中のトリハロメタン濃度(超純水による調製液)

Compounds		次亜塩素酸Na	強酸性 次亜塩素酸水	微酸性 次亜塩素酸水	超純水
有効塩素濃度 (mg/kg as Cl ₂)		101	21.7	22.4	-
pH		10.0	2.3	3.3	-
Chloroform	(ng/ml)	0.3	0.2	0.1	ND*
Bromodichloromethane	(ng/ml)	0.3	0.2	ND	ND
Dibromochloromethane	(ng/ml)	0.4	0.3	ND	ND
Bromoform	(ng/ml)	0.4	0.3	ND	ND

* ND<0.1 ng/ml

Table 3. 殺菌料原体中のトリハロメタン濃度(水道水による調製液)

Compounds		次亜塩素酸Na	強酸性 次亜塩素酸水	微酸性 次亜塩素酸水	水道水
有効塩素濃度 (mg/kg as Cl ₂)		100	25.2	21.1	-
pH		10.2	2.3	6.5	-
Chloroform	(ng/ml)	11.7	4.5	5.6	5.4
Bromodichloromethane	(ng/ml)	7.8	5.6	6.2	6.2
Dibromochloromethane	(ng/ml)	6.1	4.9	5.2	5.2
Bromoform	(ng/ml)	1.7	2.0	1.5	1.5

食品添加物が動物消化管細胞機能へ及ぼす影響に関する研究
ーソルビン酸の哺乳動物細胞内情報伝達系に及ぼす影響及び
細胞内ソルビン酸の定量法の検討ー

研究分担者 扇間昌規 武庫川女子大学薬学部教授

研究要旨

食品添加物・保存料のソルビン酸（SA）は、殺菌作用ではなく、微生物の発育阻止作用で機能している。SA のユニークな化学構造から、食品成分や他の化学物質との相互作用も推測された。食品とともに人に摂取された SA が、消化管上皮細胞にどのような影響を及ぼすかという疑問を解くために、まず、哺乳動物の培養細胞をもちいて、細胞の形態学的観察、生化学的観察を実施することにした。当研究室で長く研究対象としてきたマウス・マストサイトーマ P-815 細胞（P-815）をモデルとして使用して SA の添加培養により影響を調べたところ、ここでもやはり SA は、P-815 を死滅させることなく、独自の細胞周期を遅延させることを見いだした。今回 SA が細胞質内に移行し、細胞内情報伝達系の要である Ca^{2+} の濃度を変化させていることを明らかにした。また、LC/MS/MS による細胞質内に存在する SA の微量定量法を確立した。

研究協力者

岡田安代 武庫川女子大学薬学部
堀山志朱代 武庫川女子大学薬学部

加する P-815 細胞を前年度と同一条件で培養し、SA の存在下および非存在下での P-815 細胞の細胞質の動態を比較測定した。また細胞質内 SA の LCMS/MS 分析の最適条件を検討した。

A. 研究目的

昨年度、P-815 の *in vitro* 培養系に添加した SA が細胞を殺すことなく細胞周期を遅延させることを明らかにしたので、今年度は、その作用機構の解析を目的とした。同時に P-815 細胞内に存在する SA の微量定量法の確立を目指した。

2. P-815 細胞質内 pH の測定

蛍光性 pH 指示薬 BCECF-AM を用い、蛍光強度分析器（細胞内イオン測定器 CAF-110）で 500/450nm の 2 波長励起、測定波長 540nm で測定し、各励起波長の Ratio 値(540/450)を評価した。予め pH vs 蛍光強度の検量線を作成し、SA 添加培養後の P-815 細胞の細胞質の蛍光強度を測定し pH を算出した。

B. 研究方法

1. 概略

フィッシャー培地中にて約 48 時間で倍

3. 細胞質内 Ca²⁺濃度測定

同様に蛍光強度分析器（細胞内イオン測定器 CAF-110）で測定した。Ca²⁺感受性蛍光色素 Fura-2-AM を用い、340/380nm の 2 波長励起、測定波長 500nm で測定し、各励起波長の Ratio 値(340/380)を評価した。

4. 細胞内 SA の LC/MS/MS 定量

超音波処理した後の細胞質分画に SA を添加し LC/MS/MS 測定が可能であることを下記の手順で確認した。

- P-815 cells (5x10⁶ cells)
- Centrifuge (2,000 rpm, 5 min, 4 °C)
- wash with 10 mL of PBS (-)
- Centrifuge (2,000 rpm, 5 min, 4 °C)
- Cell pellet
- Add 0.15 mL of H₂O
- Sonic on ice (1 min)
- Centrifuge (46,000 rpm, 30 min, 4 °C)
- Upper layer
- Pass through 0.45 μm filter
- Add SA solution
- Test solution for LC/MS/MS

種々の細胞質成分による狭雑ピークの中から SA 由来のクロマトグラムが同定できたので、その後の SA 添加培養した P-815 細胞ペレットから細胞質内 SA の定量が可能となった。

5. 細胞質内 SA の LC/MS/MS 定量条件

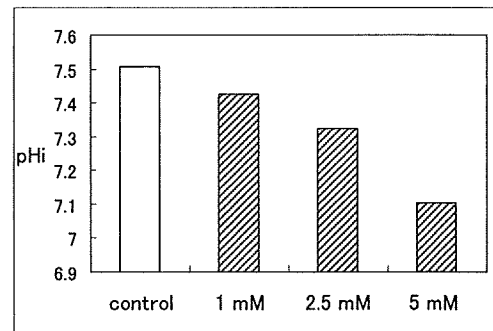
column : TSKgel ODS-100V (4.6mm i.d. × 150mm)
eluent : CH₃CN-H₂O (40:60)
flow rate : 0.4mL/min
ionization : ESI(negative mode)
detector : MRM (Q1 : [M-H] m/z111, Q3 : m/z67)
MS/MS : Waters Quattro Premiere

C. 研究結果

1. SA による P-815 細胞内 pH 変動

P-815 細胞の SA 無添加時の細胞質内 pH (pHi) は 7.47~7.54 であった。SA 添加 20 分後の pHi 変化は、1mM で 7.39~7.46、2.5mM では 7.28~7.37、そして 5mM では 7.01~7.20 となり、持続的な減少が認められた(Fig.1)。

Fig.1

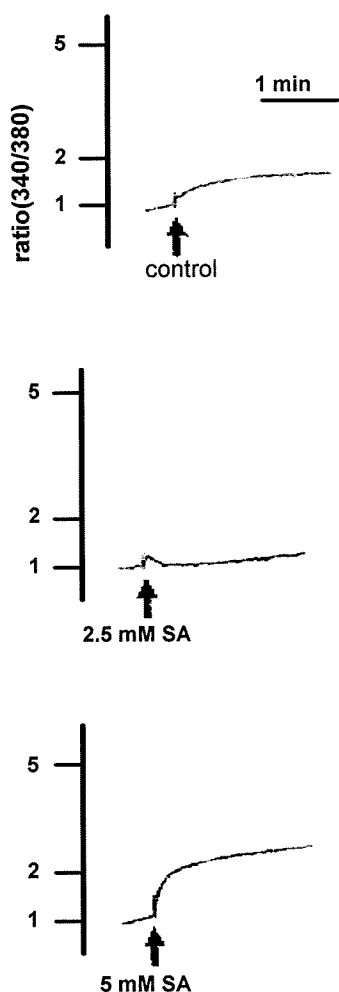


このように、SA は濃度依存的に pHi を減少させた。

2. 細胞内 Ca²⁺イオンへの影響

Fura-2-AM は細胞内で加水分解され Fura-2 となる。このものは Ca²⁺と結合するとブルーシフトし、Ca²⁺濃度の上昇とともにその蛍光強度は増す。SA 無添加、添加濃度を 2.5mM, 5mM で測定すると Fig.2 のように、SA 濃度に依存して細胞内 Ca²⁺濃度の上昇が確認できた。

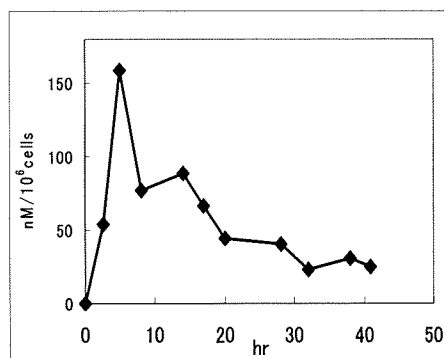
Fig.2



3. P-815 細胞内の SA 濃度測定

LC/MS/MS により、一定時間 SA 添加培養後の P-815 細胞ペレットを超音波破碎・遠心上清の細胞質画分の SA の定量を行った。Fig. 3 のように細胞内に取り込まれた SA 濃度は 7 時間後にピークとなり、その後時間とともに減少していくことが分かった。各時間における培地中の SA 濃度は変わらないことから、細胞内で代謝、分解されるのではなく、細胞外へ排出されていることが示唆される。

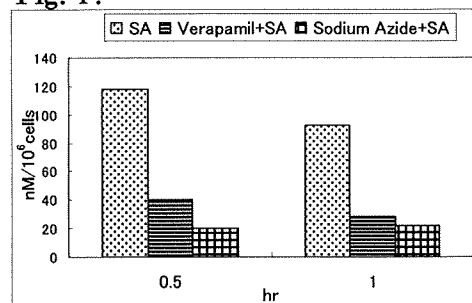
Fig.3



4. SA 取り込み阻害実験

上で示した P-815 細胞への SA の取り込みが、代表的な膜輸送阻害剤でどのようになるであろうか。P 糖タンパクの基質である Verapamil 及び Na^+, K^+ -ATPase 阻害剤である Sodium azide の影響を検討した。Fig. 4 のように、Verapamil および Sodium azide のどちらの存在下においても SA の細胞内取り込みは抑制された。

Fig. 4.



D. 考察

以上のような結果より、P-815 細胞の培地中に添加した SA が、既知のあるいは未知の細胞膜輸送系を介して細胞質中に移行し、濃度依存的に細胞質の pH を低下させる。そのとき一方では細胞質内 Ca^{2+} 濃度を上昇させている。また細胞質内に移行した SA は、その後時間とともに、減少していくことが分かった。これは SA 取り込みが

特定のチャンネル阻害剤で抑制されることと
考え合わせると、P-糖タンパク質による
細胞質内異物排除が関係しているかもしれ
ない。

E. 結論

これまでの研究成果と総合すると SA は
その分子型の脂溶性と、P-815 細胞膜に存
在していると思われるいくつかの膜輸送機
構により細胞質内に取り込まれ、細胞質内
pH を低下させ、この変動が要因となりセ
カンドメッセンジャーである Ca^{2+} 濃度を
上昇させることで、細胞質内情報伝達系へ
の影響を及ぼし、細胞周期を遅延化し、再
び細胞外へ排出されている。この排出機構
は腫瘍系細胞である P-815 に固有のものな
のか、他の正常細胞にも等しく備わった異

物排除を目的とする機構であるかは非常に
興味深い。そのこともあって、SA は細胞
を殺さず、生育を抑制しているだけ、食品
添加物として静菌作用の機構に関係してい
るのかもしれない。

F. 研究発表

1. Horiyama, S., Honda, C., Suwa, K.,
Okada, Y., Semma, M., Ichikawa, A.,
Takayama, M. Negative and positive
ion mode LC/MS/MS for simple,
sensitive analysis of sorbic acid Chem.
Pharm. Bull., 58(1), 106-109 (2010)

G. 知的財産権の出願・登録状況

なし

研究成果の刊行に関する一覧表

雑誌

発表者氏名	論文タイトル名	発表誌名	巻号	ページ	出版年
高野靖	生産量統計を基にした食品添加物摂取量推定に関する研究	JAFAN	29(1)	28-60	2009
Tatebe, C., Kawasaki, H., Kubota, H., Sato, K., Tanamoto, K., Kawamura, Y.	Analysis of residual solvent in thickeners by headspace gas chromatography using a standard addition method	Japanese Journal of Food Chemistry and Safety	16(2)	78-83	2009
Horiyama, S., Honda, C., Suwa, K., Okada, Y., Semma, M., Ichikawa, A., Takayama, M.	Negative and positive ion mode LC/MS/MS for simple, sensitive analysis of sorbic acid	Chem. Pharm. Bull.	58(1)	106-109	2010

生産量統計を基にした 食品添加物摂取量推定に関する研究

生産量統計を基にした食品添加物の摂取量の推定研究グループ
グループ員・研究業務委任受託者 高野 靖

1. はじめに

この報告は、厚生労働科学研究費(食品の安心・安全確保推進研究事業)「国際的動向を踏まえた食品添加物の規格、基準の向上に関する研究」の分担研究「食品添加物の規格基準の向上と摂取量推定に関する調査研究」(分担研究者：国立医薬品食品衛生研究所食品添加物部第一室 佐藤恭子室長)の中で、「生産統計を基にした食品添加物の摂取量の推定」に関する研究として、平成17, 18, 19年度を通じて行われた調査研究のまとめとして、平成20年3月に提出された報告書の抜粋であって、平成16年4月から平成17年3月までの1年間に、製造あるいは輸入された指定添加物の量から、国民一人当たり一日の摂取量を推定したものである。

本調査研究は昭和60年(1985年)に第1回の報告を行って以来ほぼ3年毎に1回継続的に実施されてきたものであって、その第8回調査研究のまとめである。

昭和50年当時は食品添加物の使用に関する一般の人々の不安が強く、食品添加物の使用の実態、国民の摂取量の実態を明らかにする事が強く望まれていた。そこで厚生省(現厚生労働省)は昭和54年から食品添加物の一日摂取量調査を実施し、色々な調査方法を検討した結果、市場から食品を購入しその中に含まれる食品添加物を分析して食

品添加物の一日摂取量を推定するいわゆるマーケットバスケット方式による方法と、国内の食品添加物製造業者及び輸入業者にたいするアンケート調査を基に食品添加物の一日摂取量を推定するいわゆる生産流通調査方式による方法が並行して継続的に行われてきた。

ここで報告される後者の生産流通調査方式による調査には企業の理解と協力が不可欠であり、1,000社に及ぶ食品添加物関連事業者を会員としている日本食品添加物協会が厚生労働省の調査研究の一端を担うという形で実施されてきた。このような行政の指導と業界の協力による統計調査が継続的に行われるのは世界にも例のない貴重なものであり、我が国の食品添加物の安全性確保、リスク管理状況の把握、規格基準の設定、消費者への啓発等の基礎資料としても大きな役割を果たしてきた。

本調査研究は3年を1サイクルとして行われ、初年度は食品添加物の生産・輸入・販売業者に取扱量についてのアンケート用紙の配布と回収に当たられる。アンケート用紙を配布する業者の選定は厚生労働省が全国保健所の協力の下に作成している「食品添加物製造(輸入)業者名簿」に基づいて過去の調査結果を加味して行われる。なお、事業者へ送付したアンケート調査票には、集計した調査結果を公表する予定である旨を明記した。

2年度は回収されたアンケート結果を点検し記載に間違いはないか、食品以外の用途に使われているものがそのまま記載されていることがないか等の記載の不備を調べ、必要な場合は再調査を行い集計精度の向上を図る。また本調査は行政が行っている統計法に基づく指定統計ではなく厚生労働省の調査研究費によって行われているものであり、アンケートの回答に強制力を伴っていない。従って回答のない企業に対しては再調査等の対応を要することとなる。

最終年度（3年度）は整備された再集計データに基づき業界各分野に詳しい専門家からなる調査研究班の集中的作業によって品目ごとに純食品向け査定量を定める。すなわちアンケートの結果を集計して得られた純食品向け出荷量を基に、貿易統計などにより明らかになる添加物の動き、業界紙の見積もり出荷数値、食品産業関係の加工食品生産統計値など各種統計上の照合を行い、また医薬品・化粧品・プラスチック添加剤等食品以外に転用されたり、食品添加物グレード品が新たに食品添加物合成原料に使われたりしている可能性や、輸入加工食品に伴って国民の口に入る添加物の可能性推定を調査考察しながら純食品向け査定量を決定する。

さらに食品添加物が食品加工に提供された後の人の口に入るか否かの点検、すなわち食品廃棄損失、食品加工時の損失、食品流通、保存時の損失なども考察した上で摂取量を定める。この摂取量を人口で割ることによってこの調査研究が目的としている一人一日摂取量が算定されるのである。

本報告書ではこのようにして得られた食品添加物品目ごとの一人一日摂取量をADIとも対比して一覧表として掲げている。本報告が食品添加物業界の方々、食品添加物の研究に従事して居られる方々に参考になれば幸いである。

最後に、本調査研究グループのリーダーとして終始ご指導いただいた元神戸学院大学教授 藤井正美氏に厚く感謝を申し上げたい。

また本調査研究にご協力いただいた企業、企業関係者の皆様方にも深くお礼を申し上げる次第である。

2. 調査方法

本食品添加物生産・流通調査は、日本国内の食品添加物製造事業者・輸入販売事業者に調査表を送付し食品添加物原体（食品添加物の文字が表示されていて出荷されるもの及び自家消費されたもの：食品添加物グレードの用語とほぼ同じ）の種類・生産・販売・使用についての量的調査である。

本調査では、指定添加物（食品衛生法施行規則別表第1に掲げられている添加物）について平成16年度の生産・販売・使用を対象に調査を行った。

この指定添加物を対象とした調査は昭和59年度第1回報告（昭和60年3月末）を行って以来、第2回を除き毎年3年毎に行われ継続、今回は第8回目の調査結果である。

1. 平成17年度調査

- (1) 調査法 アンケート方式（資料I：送付調査資料一式）
- (2) 調査対象年度 平成16年度あるいは平成16年を含む近々の1年間
- (3) 調査対象 指定添加物370品目
- (4) 調査内容
 - ① 業務の形態
 - ② 製造又は輸入した品目名
 - ③ 食品添加物としての出荷量及び自家消費量
 - ④ 食品添加物原料としての使用状況
 - ⑤ 食品用としての使用量
 - ⑥ 輸出力
 - ⑦ 食品以外への使用分野
- (5) 調査対象製造所

原則として、平成12年に厚生省生活衛生局食品化学課が調査を実施し作成した「食品添加物製造

（輸入）業者名簿」（平成12年1月現在）を使用し、指定添加物の製造または輸入の営業の申請を行っている業者の全製造所、および平成11年度の第4回調査、追調査で追加された業者をベースにし、7回目までの調査結果等の情報を加味して調査対象を拡大した。

複数の事業所を有するところは本社でまとめて報告してもらった。

1-2. 平成18年度調査（17年度調査の追調査）

追加調査とは調査報告未到着の企業への再発送、報告は届いたが例年の報告に比して確認を要する内容である場合の問い合わせ、新たに加わっ

た、あるいは判明した食品添加物事業所、あるいはその他の集計上理解困難な場合の記述（電話等による確認方式）が主なものである。

(1)調査法 (2)調査対象年度 (3)調査対象 (4)調査内容は平成17年度と同一とするが、近々の1年間のデータでも差し支えないとしている。

(5)調査対象製造所は、
○17年度未回答のうち、明らかに該当しないものを除いた279社
○回答を検討した結果新たに追加すべきとされた8社
計287社を対象とした。

2. 調査表回収結果

表2-2 調査票回収結果

(1) 回収結果

	第7回			第8回		
	14年度	15年度	合計	17年度	18年度	合計
発 送	500	137	508	1059	287	1079
回 収	369	69	438	743	128	868
回収率(%)	73.8	48.9	86.2	70.2	44.6	80.4

(2) 回収率の比較(%)

	第2回 (昭和62年対象)	第3回 (平成元年対象)	第4回 (平成4年対象)	第5回 (平成7年対象)
回収率(%)	62.7	89.3	90.8	90.4
	第6回 (平成10年対象)	第7回 (平成13年対象)	第8回 (平成16年対象)	
回収率(%)	89.0	86.2	80.4	

第1次調査（17年度）では70.2%、18年度実施された追調査により、最終的には80.4%となった。過去の平均回収率よりはやや低いが、これは調査対象を拡大したためであり依然高水準であり、絶対数（868）は前回のほぼ2倍であった。

なお、回収率100%が望ましいところであるが、本調査対象は市場シェアとくに国内産から輸入へ

の移行等変動が激しく、これを注意深く見守り調査対象を上げる必要がある。量的影響を与える事業所には更なる繰り返し調査も行っており、かかる点から、指定統計並の統計値が得られる90%程度の回収率を目指して継続して努力する必要がある。

3. 調査表集計上での問題点

本調査も8回を重ねて調査票への記入の間違いは減少しているが、不注意で単位を間違っているもの、調査票Ⅱの品名欄に複数の品名を書いているもの、企業番号のないもの等が散見された。電話連絡等で出来るかぎり修正を行った。

3. 調査結果のまとめ方、査定及び総括表

3年間を要する本調査の8回目、平成17、18年度の一日摂取量査定等の一括調査結果(データ)を表3-1(用途別)と表3-2(添加物名アイウエオ順)に一括する。これらは指定添加物につき、その製造・輸入業者名簿によりアンケートを発送し膨大な項目数の数値を処理し、点検し、再度アンケート等を行ない、生産流通量を整理したのち、約1年かけて食品添加物別1日摂取量を求めるための作業を進めた結果である。最終作業が統計法による各種指定統計で行われる工業統計と異なる。食品添加物の統計処理目的は何がどれ位生産流通しているかではない。厚生労働大臣の指定する食品衛生法の各添加物は当該物質の資料により安全性を評価し、ADIに基づく十分な安全許容範囲で、さらに必要あれば使用基準による使用方法規制を加えて添加物が指定されている。また指定された物は医薬品の如く製造者ごとに品目の承認を要することなく、製造業の許可のみで生産し、販売し、かつ使用も出来る開放型の生産・使用物質となる。食生活が自由であり、国民の志向によって徐々に変化してゆくとき、当初の使用基準の背景となった当該添加物の国民1人あたり1日摂取量とADIの相関による安全性が常に維持されているかどうかは行政としては把握体制が必要である。

本調査は昭和57年に始められた。以降一貫して原則として手法はそのまま継続され、専らこの内容の充実をはかりながら引き継がれてきている。

(1) アンケート申告生数値の取扱い

アンケートは食品添加物グレード(出荷時、食

品衛生法の規程による食品添加物〇〇の表示をした製品)として生産し、あるいは輸入して出荷した量とその輸入量および輸出货量。さらに製造または輸入した量の内医薬用、化粧品用等食品用以外に販売した数量を除き、食品用として前年販売した量を「純食品向け出荷量」としてアンケートの中に記すようお願いされている。食添グレードあるいは純食品向け出荷量の積算値は、当該品目の製造販売業者の担当や業界誌記者は勘として大体を把握している。本調査研究班もこうした面の熟達者によって構成されており、その根拠を勘のみではなく、アンケート集計結果に基づいて行っているのであるが、逆に報告値に拘束される。報告のあるなし、数値ミスなどがまず勘案されなければならないが、さらに、整理された積算が大きな間違いのないものであるか、業界誌あるいは班員の市場見積りとの整合性の検討がどうしても必要である。3年間を要する作業の因でもある。エラーがあると数字的バランスがくずれて来るので慣れた者が眺めると割り合い容易にチェック出来る。報告企業名から最後まで報告の来なかった会社も解るし、他に輸入貿易会社の存在も想定されてもくる。こうした再確認の作業は主として2年目に行われている。

(2) 純食品向け査定量

一方において、指定添加物はどういう食品にどれ位の率と量で使われているか、変化がある程度食品動向から予測できる。そのため、最終集計値の見積もり(総括表の純食品向け査定量)時には最新の食品産業統計等から加工食品生産変動なども勘案して、アンケートにおける申告集計とを勘案しながら年間国内供給量を全員で討議し査定を進めている。この作業がもっとも専門性を要する部分である。従前から研究班で解りにくいものに無機薬品工業会の生産物があつた。工業用、局方用、食添グレード、試薬など製造元は一括生産し、近年同一品質物が色々な規格に適合してしまうところから、出荷の際要請による表示包装物に入れ

られ出荷されている。通例、製造と出荷販売の間に卸業があり、アンケートの製造業者は用途先を必ずしも把握していない。本調査でも、前回に引き続き無機薬品工業会の調査結果を参考に食品・食品添加物業界の動向を加えて処理している。

以上は一つの解決例であるが、全般的に食品添加物は食品添加物用以外の用途をもっているのが通例である。医薬品、医薬品添加剤、化粧品、飼料添加物はもとより、近年の化学物質に対する世の中の安全性への関心は食品添加物が使われているとの説明にもなり、プラスチック添加剤、家庭用衛生用品成分、農薬等、意外な例に食添グレード塩化カルシウムが融氷剤として冬季都市の傾斜道路におかれているのを見る。アンケートでは念のため「純食品向け出荷量」を設問し、かつ、食品グレードの食品外用途量記入欄も付しているが、不明申告も多く、多くは査定作業の対象である。一般的ながら輸入商社の場合は純食品用途等に関心が薄い例が多い。このような場合、使用食品生産量から逆算方式で辿ってゆくが定量的とは称し難い。査定値を有効数字2～3桁で示している理由でもある。

この食添グレードのアンケート集計で定量材料にもっとも注意されるのが、生産され、出荷された食添グレードたる製品純度の高いを原材料として新しい添加物が合成されるケースで、調査しないと二重積算となる。かつてのリン酸がいい例でリン製造所から食添グレードリン酸が売られ、リン酸化合物メーカーが購入して各種リン酸塩を合成している。需要によってナトリウム塩がカリウム塩に再度変えられる場合もある。その他クエン酸、水酸化ナトリウム、安息香酸、アスコルビン酸等々同一系品目群にはすべて注意と確認が要求されている。

(3) 摂取量 (T) と 1 日平均摂取量

表3-1, 3-2には「摂取量 (T)」の欄がある。食品に添加物が使用されるのは加工食品と郊外レストランチェーンで一括調理される半調理食品な

ど量的に大きい。当然、製造中の損失、流通時の廃棄、飲食店と家庭での期限切れ廃棄と食べ残しが主要なものと考えられる。本調査を研究班では人の口に入らない食添量を原則として第1回目10%。第2回, 15%, 第3回以降20%と見積って $\times 0.8$ をもって実際に人の口に入っている摂取分量と思考して来たが、第6回報告書以降そのよってきたる所以を検討しこれを記し(第5章)、廃棄(損失)率20%を継続することとした。

単純な摂取(査定)量は純食品向け査定量の0.8掛として算出されているが、本報告書では輸入食品を勘案しなければならない対象添加物があり、的確な食品別統計が乏しいので正確性は到底期しがたいが、第6章のような論拠から、見積り計算して逆にプラスしてあるので必ずしも $\times 0.8$ と一致しないものが増えている(各論参照)。

複雑な見積りの添加物も多い。たとえばトウフ凝固用添加物が何種類もあり、凝固排液に出るもの、おからまたはトウフに残留するもの、また充填トウフの場合ほか凝固剤情報は全国豆腐工業会資料によっている。めん類の添加物の場合にはゆでた煮汁への逸出量が要求される。膨脹剤は化合物分解があり、酸・アルカリ中和の場合は元の添加物はない。澱粉の糖化の場合をシュウ酸で進め、水酸化カルシウムを加えてシュウ酸カルシウム沈殿濾去のケースでは人の摂取量は零と見積られる。他でもシュウ酸は二酸化炭酸と水になることもある。これらは各種実験結果がある場合は参考となるが、ないときは科学技術庁の栄養成分表を用い、大豆とオカラのカルシウムと豆腐のカルシウムから塩化カルシウムの残存量を計算する方法をとっている。

摂取量 (T) までの数値は特殊な見積り計算をした場合は、いちいち記録にも残せないので積算値で示している場合もあるが、原則として有効数字2桁とし、内容によって1桁まとめ3桁表示も採用している。これは年間食生活供給添加物量から1人1日平均摂取量を求める計算は今回であれ