

2017年度「食品添加物一日摂取量調査」 エチレンジアミン四酢酸カルシウム二ナトリウム及び エチレンジアミン四酢酸二ナトリウム測定結果

滝川香織 小金澤望 村越早織 畠山久史
向井 猛 山口弘行 三觜 雄

1. 緒 言

マーケットバスケット方式による「食品添加物一日摂取量調査」は、日本人が日常の食生活を通して摂取する食品添加物の量を推定するため、厚生労働省が中心となり、1982年から継続的に行われている。2017年度は全国7機関で調査を行った。

当所は調査開始時から本事業に参加し、各種の食品添加物を分析してきた。2017年度は平成22年度受託事業（厚生労働省医薬食品局食品安全部基準審査課）食品摂取頻度・摂取量調査の特別集計業務報告書（平成23年1月28日）（独立行政法人 国立健康・栄養研究所）の結果に基づいて作成した加工食品群年齢階級別の食品喫食量リストを用い一日摂取量調査を行った。当所はエチレンジアミン四酢酸カルシウム二ナトリウム及びエチレンジアミン四酢酸二ナトリウム（以下「EDTACa2Na及びEDTA2Na」という。）を担当したので、その結果を報告する。

EDTACa2Na及びEDTA2Naは酸化防止剤として、缶詰または瓶詰の清涼飲料水、その他の缶詰または瓶詰食品で使用が認められている。

2. 方 法

2-1 調査期間

試料の購入：2017年10月

試料の発送：2017年10月

試料の分析：2017年10月～2018年1月

2-2 試料の調製

参加機関及び分担項目を表1に示した。

マーケットバスケット方式により、全国6機関（札幌市、仙台市、香川県、長崎市、沖縄県、国立医薬品食品衛生研究所）で食品群別喫食量リストに基づき189食品286品目の食品を購入し、食品群別（表2）に個々の食品の喫食量に応じて混和し、試料を調製した（混合群試料）。

また、当該添加物表示がある食品は、個別に含有量を測定するため、別途必要量を購入し、担当する機関に送付した（表示群試料）。

表1 参加研究機関及び分担項目

参加機関	分担項目
札幌市衛生研究所	EDTACa2Na, EDTA2Na
仙台市衛生研究所	プロピレングリコール
広島県立総合技術研究所保健環境センター	α-トコフェロール(d1体及びd体) d-γ-トコフェロール d-δ-トコフェロール
香川県環境保健研究センター	アズキシストロピン イマザリル オルトフェニルフェノール オルトフェニルフェノールナトリウム チアベンダゾール ピリメタニル フルジオキソニル
長崎市保健環境試験所	リン酸類
沖縄県衛生環境研究所	BHT, BHA, 没食子酸プロピル
国立医薬品食品衛生研究所	試料調製のみ

表2 食品群別分類、食品数、品目数及び喫食量

成人 (20歳以上)

群番号	食品数	品目数	喫食量 (g)
第1群 調味料、嗜好飲料	41	63	706.4
第2群 穀類	27	40	120.3
第3群 いも類、豆類、種実類	28	36	127.0
第4群 魚介類、肉類、卵類	17	29	43.4
第5群 油脂類、乳類	23	37	61.9
第6群 砂糖類、菓子類	27	55	29.9
第7群 果実類、野菜類、海藻類	26	26	24.2
合計	189	286	1113.1

2-3 分析方法と測定条件

EDTACa2Na 及び EDTA2Na の前処理方法を図1、図2、図3に、測定条件を表3に示す。本分析法は EDTACa2Na 及び EDTA2Na をトリス塩酸緩衝液により抽出し、塩化鉄(III)を加えて EDTA 鉄ナトリウムとし、強陰イオン-逆相ミックスモード固相抽出カラムで精製した後、高速液体クロマトグラフにより定量し EDTACa2Na に換算する。混合群試料、表示群試料について、3併行で分析し、その平均値を結果とした。

2-4 添加回収試験及び検出下限、定量下限

当所で調製した各混合群試料に EDTACa2Na を添加して回収試験を行った。なお、本法における検出下限、定量下限は、日本工業規格(JIS)高速液体クロマトグラフィ-通則に従って得られた機器の検出限界を基に算出した。

<低脂肪食品 1、7群>

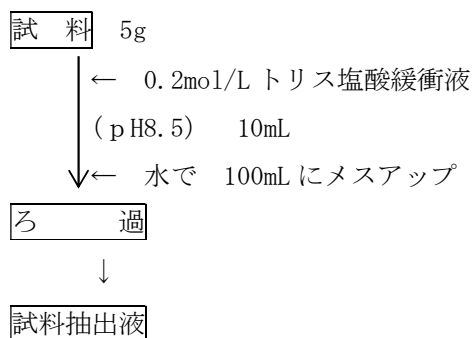


図1 低脂肪食品における抽出液の作成

<高脂肪食品 2、3、4、5、6群>

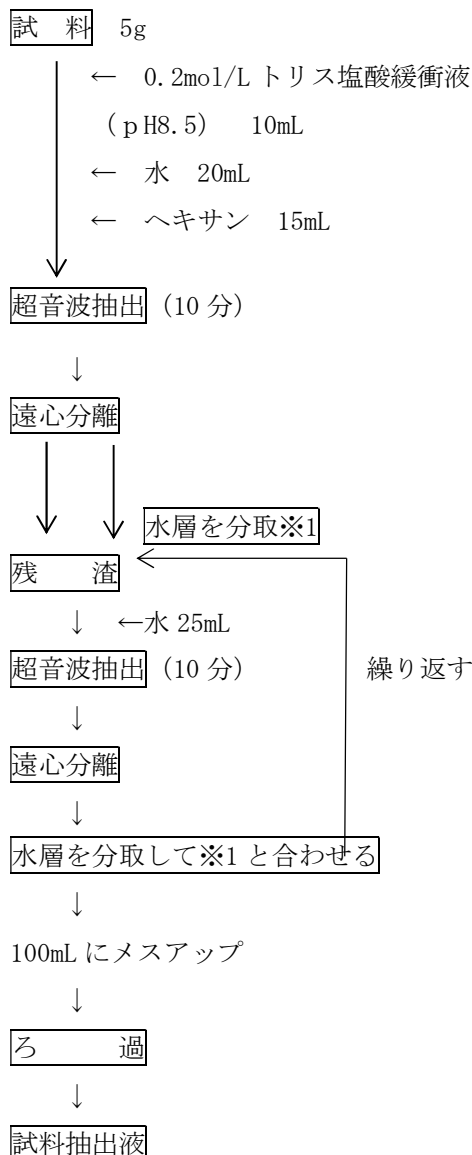


図2 高脂肪食品における抽出液の作成

<試験溶液の調整> 共通

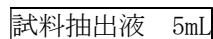




図3 抽出液の精製

表3 装置及び分析条件

HPLC 条件
装置：Waters 社製 Acquity Arc
カラム：Inertsil ODS-3V 4.6×150mm, 5μm
移動相：メタノール・水・0.2mol/L リン酸緩衝液 (pH4.0) (6 : 39 : 5)
流速：1.0mL/分
カラム温度：40℃
注入量：20μL
PDA 検出器条件
装置：2998 PDA Detector
測定波長：190nm-400nm
検出波長：255nm

3. 結 果

3-1 添加回収試験及び検出下限、定量下限

EDTA 鉄ナトリウムの標準溶液（1μg/mL）を測定したクロマトグラムを図4に、標準品を添加した混合群試料（当所調製、5群）のクロマトグラムを図5に、添加回収試験の測定結果及び検出下限、定量下限をそれぞれ表4に示す。回収率は70.5～103.1%と良好だった。

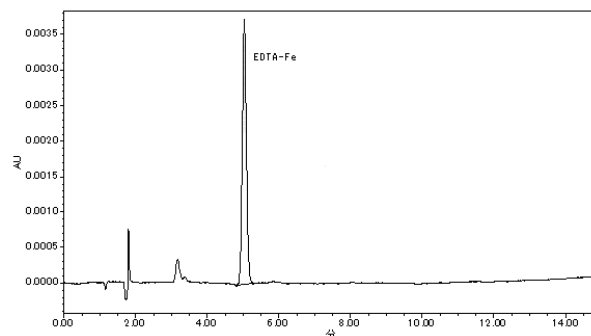


図4 標準溶液（1μg/mL）におけるクロマトグラム

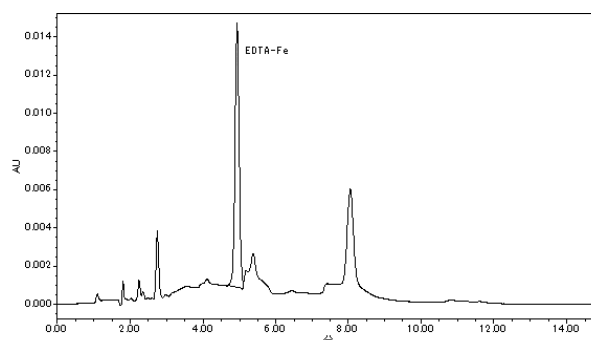


図5 標準品を添加した混合群試料（当所調製、5群）のクロマトグラム

3-2 測定結果

EDTACa2Na 及び EDTA2Na は全ての混合群試料から検出されなかった。（表5）

表示群試料は該当する食品が無かったため、試料調製及び測定を行っていない。

4. 考 察

マーケットバスケット法による食品中の EDTACa2Na 及び EDTA2Na 一日総摂取量は、成人（20歳以上）当たり 0mg/人/日であった。

このことから日本人の食生活において、EDTACa2Na 及び EDTA2Na はほとんど摂取していないと推察される。

表 4 食品群別の添加回収率、検出下限及び定量下限 (EDTACa2Na)

食品群	第 1 群	第 2 群	第 3 群	第 4 群	第 5 群	第 6 群	第 7 群
	調味嗜好飲料	穀類	いも類 豆類 種実類	魚介類 肉類 卵類	油脂類 乳類	砂糖類 菓子類	果実類 野菜類 海藻類
検出下限 ($\mu\text{g/g}$)	2	4	4	4	4	4	4
定量下限 ($\mu\text{g/g}$)	10	20	20	20	20	20	20
添加量 ($\mu\text{g/g}$)	50	100	100	100	100	100	100
回収率 (%)	75.1	97.3	75.7	101.5	83.3	74.7	76.1
	73.3	91.6	73.6	96.8	78.0	73.3	74.1
平均値 (%)	70.5	89.3	73.3	103.1	77.6	72.9	73.5
	73.0	92.7	74.2	100.5	79.6	73.6	74.6

※検出下限、定量下限の求め方

検出下限：JIS HPLC 通則法に従い、S/N 比 10 程度の濃度の標準溶液を 6 回繰り返し測定し、測定値の標準偏差に 4.03 を掛け、濃度に換算した値とする。

定量下限：検出下限の 5 倍

表 5 混合群の期間別・食品群別 EDTACa2Na 一日摂取量 (20 歳以上)

単位：mg/人/日

機関名	食品群							総摂取量
	第 1 群	第 2 群	第 3 群	第 4 群	第 5 群	第 6 群	第 7 群	
	調味嗜好飲料	穀類	いも類 豆類 種実類	魚介類 肉類 卵類	油脂類 乳類	砂糖類 菓子類	果実類 野菜類 海藻類	
札幌市	0	0	0	0	0	0	0	0
仙台市	0	0	0	0	0	0	0	0
東京都	0	0	0	0	0	0	0	0
香川県	0	0	0	0	0	0	0	0
長崎市	0	0	0	0	0	0	0	0
沖縄県	0	0	0	0	0	0	0	0
平均値	0	0	0	0	0	0	0	0

5. 参考文献

- 1) 厚生労働省；第二版「食品中の食品添加物分析法」，日本食品衛生協会，31-36，2000
- 2) 厚生労働省監修；食品衛生検査指針 食品添加物編2003，日本食品衛生協会，38-45，2003
- 3) 日本薬学会編；衛生試験法・注解，348-350，2015，金原出版（株）
- 4) 寺田久屋，田村征男：食品中EDTAの分析法について，名古屋市衛生研究所事業年報，**14**，63，2005
- 5) 関戸晴子，田中由紀子，岸弘子：食品中のエチレンジアミン四酢酸およびその塩類の分析法について，神奈川県衛生研究所研究報告，**46**，27-31，2016