

厚生労働科学研究費補助金

食品安全確保研究事業

食品用香料及び天然添加物の化学的安全性確保に関する研究

平成15年度 総括・分担研究報告書

平成16（2004）年4月

主任研究者

国立医薬品食品衛生研究所 食品部長

米谷 民雄

分担研究者

国立医薬品食品衛生研究所 主任研究官

佐藤 恭子

東亜大学 副学長

義平 邦利

国立医薬品食品衛生研究所 室長

山崎 壮

武庫川女子大学薬学部 教授

扇間 昌規

岡山大学薬学部 教授

斎藤 寛

国立医薬品食品衛生研究所 主任研究官

川崎 洋子

国立医薬品食品衛生研究所 室長

四方田千佳子

# 目 次

## I 総括研究報告書

食品用香料及び天然添加物の化学的安全性確保に関する研究

米谷 民雄

## II 分担研究報告書

1 食品香料の規格のあり方及び流通量調査による暴露量評価に関する研究

米谷 民雄

別冊「日本において使用流通している食品香料化合物の規格実態の調査」(日本香料工業会)

「日本における食品香料化合物の使用量実態調査」(日本香料工業会)

2 食品香料の規格定量法及び不純物に関する研究

佐藤 恭子

3 香料基原植物の含有成分及びそれらの毒性評価に関する調査・・・報告書分冊2/2

義平 邦利

4 天然添加物の規格設定及び有害試薬使用の排除のための研究

山崎 壮

別冊「既存添加物の規格化に関する調査研究」(日本食品添加物協会)

「食品添加物規格試験法の改善に関する試験検査」(日本食品添加物協会)

5 食品中の天然添加物の分析法に関する研究

扇間 昌規

6 食品香料を含む食品添加物の確認試験法としての赤外吸収スペクトルに関する研究

斎藤 寛

7 食品中の未許可添加物の分析法の開発

川崎 洋子

8 生産量統計及び行政検査結果を基にした食品添加物の摂取量の推定

四方田 千佳子

別冊「生産量統計を基にした食品添加物の摂取量の推定 その1 指定添加物品目

その2 既存添加物品目

## III 研究成果の刊行に関する一覧表

# I 総括研究報告書

●  
食品用香料及び天然添加物の化学的安全性確保に関する研究

●  
主任研究者 米谷 民雄

厚生労働科学研究費補助金（食品安全確保研究事業）

平成 15 年度総括研究報告書

食品用香料及び天然添加物の化学的安全性確保に関する研究

主任研究者 米谷民雄 国立医薬品食品衛生研究所 食品部長

研究要旨

食品用香料及び天然添加物の安全性を化学的研究により確保するために、以下の 11 項目について研究を実施した ①我が国における食品香料化合物規格の実態を知るために、平成 14 年度に実施した調査を基に、国内の食品香料化合物の規格項目や規格値などの具体的な規格内容を整理し、実態を把握した ②平成 14 年度に実施した使用量調査を基に、国内で使用されている食品香料化合物の年間使用量を整理し、我が国における使用量の実態を把握した ③第 7 版公定書の製造基準では一部の既存添加物および天然香料で使用溶媒が規定されており、6 種類の溶媒には残存限度値が設けられているか分析法は規定されていない。昨年度に標準添加法ーヘントスペースーガスクロマトグラフィーを用いた天然香料中残留溶媒の限度試験法（案）を作成したか、今年度は 11 機関においてその分析法による分析を実施した ④天然香料の規格 基準の作成には、天然香料の成分の解明が必要であるため、天然香料の抽出原料である動物 植物 微生物について、その成分を調査した また、各成分について生理活性、生物障害性、毒性等を調査した。⑤天然添加物の公的規格基準が未整備であるため、公的規格設定に向けた成分規格設定作業を推進した。業界自主規格がない品目については、成分規格設定に必要な基礎データや分析法の開発を行った。⑥第 7 版公定書で有害試薬を使用している規格試験法を排除するため、有害試薬を使用しない代替試験法を開発した。⑦酸化防止剤ヤマモモ抽出物について、主成分であるミリントリン及びミリセチンを中心に、食品からの分析法を検討した ⑧第 7 版公定書に記載されているアミノ酸のうち、L 体と DL 体ともに収載されている 4 種のアミノ酸の確認試験に、赤外吸収スペクトル (IR) を活用するため、これらアミノ酸の L 体と DL 体の IR 間の差を明らかにすることを試みた ⑨未許可着色料スタン 1 を含む油溶性フェニルアノ系色素の香辛料中からの分離分析法の策定、及び牛乳中の亜塩素酸の微量分析法を検討した ⑩生産量統計による食品添加物の摂取量調査では、第 2 回既存添加物アンケート調査の中間報告をまとめた。⑪行政検査に基づく食品添加物の摂取量調査では、食品添加物の行政検査結果集計用データベースを試動し、全国自治体のノルヒン酸分析データをエクセルファイルで収集してデータベースを作成した。

分担研究者

長①②

米谷民雄・国立医薬品食品衛生研究所 部

佐藤 恭子 国立医薬品食品衛生研究所・

主任研究官③

義平邦利・東亜大学 副学長④

山崎 壮・国立医薬品食品衛生研究所・室長⑤⑥

扇間昌規 武庫川女子大学薬学部 教授⑦

斉藤 寛 岡山大学薬学部 教授⑧

川崎洋子・国立医薬品食品衛生研究所・主任研究官⑨

四方田千佳子・国立医薬品食品衛生研究所 室長⑩⑪

## A 研究目的

食品用香料及び天然添加物の安全性を化学的研究により確保するために、11項目の研究を実施した。

まず、食品香料化合物については、①我が国における規格の実態を知るために平成14年度に実施した調査から、国内で使用されている食品香料化合物の規格項目や規格値などの具体的な規格内容を整理し、実態を把握することとした。②平成14年度に実施した使用量調査から、国内で使用されている食品香料化合物の年間使用量を整理し、我が国における使用量の実態を把握することを目的とした。③第7版食品添加物公定書の製造基準では一部の既存添加物および天然香料について使用溶媒が規定されており、メタノール等6種類の溶媒には残存限度値が設けられているが分析法は規定されていない。そのため、昨年度、標準添加法ーヘントスペースーカスクロマトグラフィー（標準添加 IIS GC法）を用いた天然香料中残留溶媒の限度試験法（案）について検討した。今年度は、昨年度の留意点を踏まえ、11機関において、その分析法による分析を実施した。④天然

香料には規格 基準が無い、規格 基準の作成には、天然香料の成分が明らかである必要がある。そこで、天然香料の抽出原料である動物 植物 微生物の成分について調査研究を行うことにした。また、それらの各成分について生理活性、生物障害性、毒性等の有無を調査研究し、天然香料の規格 基準作成のための基礎資料を作成した。

⑤天然添加物（既存添加物）については、⑤天然添加物の公的規格基準設定が未整備であるため、公的規格基準設定に向けた既存添加物の成分規格設定作業を推進した。業界自主規格がない品目については、成分規格設定に必要な基礎データや分析法の開発を行った。⑥第7版食品添加物公定書で有害試薬を使用している規格試験法を排除するために、有害試薬を使用しない代替試験法を開発した。⑦「健康食品」関連で人気のある天然の抗酸化物質のうち、既存添加物名簿に酸化防止剤として収載されているヤマモモ抽出物を対象として、主成分であるミリントリンおよびミリセチンを中心に食品からのヤマモモ抽出物の分析法を検討した。

さらに、食品添加物一般について、⑧第7版食品添加物公定書に記載されているアミノ酸のうち、L体とDL体ともに収載されている4種のアミノ酸の確認試験に、赤外吸収スペクトル（IR）を活用するため、これらのアミノ酸のL体とDL体のIR間の差の有無を明らかにすることを試みた。⑨未許可着色料のスタンIを含む油性フェニルアソ系色素の香辛料中からの分離分析法の策定、及び牛乳中の亜塩素酸の微量分析法を検討した。⑩生産量統計による食品添加物の摂取量調査では、第2回既存添

加物アンケートの中間報告をまとめた ⑪行政検査に基づく食品添加物の摂取量調査では、食品添加物の行政検査結果集計用データベースを試動し、全国自治体のソルヒン酸分析データをエクセルファイルで収集してデータベースを作成した

## B 研究方法

①IUPAC による化学名、慣用名、通称名、俗名、商品名等多岐に亘った調査回答の名称を、一定のルールの下に整理することにより同一構造であることを確認後、規格の実態を把握することとした

②同しく、香料化合物名を一定のルールの下に整理後、各香料化合物の使用量及び推定摂取量を算出した

③クローフオレオレンンおよびノナンオレオレシンにあらかじめ対象溶媒を添加したものをモデル試料とし、11 機関において、標準添加 HS GC 法により、アセトン、メタノール、2 プロパノール、1,1,2 トリクロロエテン、シクロロメタン、ヘキサンの分析を行った。

④本年度の研究では、「ヒ」のヒキオコンから「ワ」のワレモコウまでの天然香料の、基原である植物・動物・微生物の含有成分に関して調査した。また、それらの各成分について生理活性、障害・毒性等があるかどうか調査研究をした。天然香料の属に含まれる近縁動物・植物・微生物について含有成分の調査をした。植物・動物・微生物の成分調査研究の方法としては、Dictionary of Natural Products (C. Djerassi et al. Chapman Hall 2003, 2004) を主として用いた。その他、33 の成書を補助的に用いて調査した。

⑤天然添加物（既存添加物）の成分規格設定を目標に、既存添加物の自社規格試験法の調査と自主規格案の策定を食品添加物業界に依頼した

⑥食品添加物公定書の規格試験法から有害試薬を排除するための試験法変更案が市販製品に適用できるかの検討を、食品添加物業界に依頼した。また、食品添加物「ルチン（抽出物）」のうち「ソハ全草抽出物」の成分分析法の検討を行った

⑦食品中のヤマモモ抽出物は、逆相系固相カラムによる前処理を行った後、UV 検出器付き HPLC を用いてクランジェント溶出による一斉分析を行った

⑧DL-と L-アラニン、DL-と L-トリプトファン、DL-と L-トレオニンおよび DL-と L-メチオニンの IR を、フーリエ変換形赤外分光光度計を用いてヘースト法で測定した

⑨色素はエタノール抽出後、HPLC で測定した。亜塩素酸では中性条件下で酢酸亜鉛と水酸化ナトリウムにより除タンパク後、HPLC 試験溶液を pH9 付近に調整し、亜塩素酸イオンとして、セミマイクロポストカラム誘導体化 HPLC により定量した

⑩生産量統計による食品添加物の摂取量調査では、既存添加物の生産量をその製造、輸入事業者を対象に、食品添加物クレートの製造、輸入量、年間純食品向け出荷量、輸出量についての第 2 回調査のアンケートを実施し、結果を集計した

⑪行政検査に基づく食品添加物の摂取量調査では、ソルヒン酸に関するデータを地方自治体より収集し、食品添加物含有量モニタリング用サーバーを始動し、今後の添加物含有量データの蓄積を目指した

## C 研究結果

①本研究の調査方法は、香料化合物の名称を整理することから始めた。即ち、IUPACによる化合物命名法を主体とし、これに香料の特殊性を加味した慣用名を併用する名称の付け方の規則をまず作成した。次いでこの規則に従い、調査回答約17,000件を1件ずつ確認する方法によって名称の統一を図り、統一された各名称グループについて規格の実態を調査した。

本調査の結果、公定書に記載されている78品目以外の約2,800品目の香料化合物は、公定書収載品のように全ての規格項目が満たされた下で使用されているのではないことが判った。一方米国では、流通上の規格としてFCCに記載されている約300品目については規格が整備されているものの、流通している香料化合物の内、約1,400余には公表されている規格が無いこと、また欧州(EU)では現在使用している香料化合物全てに対して公の規格が無いことか、過去の調査研究により分かっており、今回の調査結果は世界的に似たような状況であることを示す結果となった。

各規格項目についてみると、含量はGC法では正確な含量測定が出来ない特に不安定な化合物以外は、全てGC法が採用されていた。沸点は、GC装置が一般に普及している今日では、比重、屈折率との組み合わせで不純物を確認することか一般的であり、沸点測定は事実上行われていなかった。屈折率および比重は、GC測定で問題となる揮発性成分の影響を補う上で有用と考えられ、数多くの化合物に採用されていた。酸価は、酸類の含量試験たけて

なくアルテヒト基などを持つ酸化され易く酸を生じる物質やエステル類など酸を原料とする物質の不純物の残存量測定に有用であり、多くの化合物に採用している傾向があった。確認試験は、官能評価とGCのRTやチャートパターンによる前回使用品との同一性確認で十分であるという結果であった。

調査の結果、香料化合物の名称か化学名であり単品扱いされているか、実際の組成は混合物であるものか存在した。光学異性体、カルボン、メントールなどか例としてあげられる。構造異性体、イオノン、ノトラールや二重結合含有化合物などか例としてあげられる。天然原料留分の化学反応物、ヘチヘリル、アセテートなどか例としてあげられる。合成反応における副産物や未反応原料か混在した香料化合物、香料としての品名か同してあるか、組成比率などか異なる種々の製品か流通していた。混合アセタール(ヘキサナール、エチルイノアミルアセタール)などか例としてあげられる。「閾値が小さく、そのまま使用するには操作性が著しく悪い」などの理由から希釈品で流通している香料化合物もいくつか見受けられた。含硫化合物(パラメントール8チオール)などか例としてあげられる。

②本研究の調査でも、香料化合物の名称を整理することから始めた。即ち、IUPACによる化合物命名法を主体とし、これに香料の特殊性を加味した慣用名を併用する名称の付け方の規則をまず作成した。次いでこの規則に従い、平成12年度厚生科学研究「日本における食品香料化合物の使用実態調査」において有効回答した、日本香

材工業会会員 75 社を対象に実施した年間使用量調査の回答約 17 000 件を 1 件ずつ確認する方法により名称の統一を図り、統一された各名称グループについて使用量を集計し、更に PCTT 法により摂取量を推定した。

我が国において使用されている食品香料化合物の総品目数は 2 857、年間総使用量は 1 181 897 41kg であった。このうち 78 品目の総使用量は 76 981 92kg(65.7%)、18 類品目の総品目数は 2 779、年間総使用量は 404 915 49kg (34.3%) であった。国内で使用されていて使用量の多い上位 15 品目の合計使用量は全体の 64.5%で、そのうち 10 品目は別表第 2 収載の 78 品目に該当するものであった。類別に見ると、エステル類、脂肪族高級アルコール類で全体の半分以上を占め、次いで芳香族アルコール類、ケトン類までで全体の約 3/4 の量であった。使用量範囲別の品目数では、0.01 kg(10 g)以下のものが 514 品 (全体の 18.0%)、0.01 ~ 0.1 kg が 600 品 (21.0%)、0.1 ~ 1 kg が 639 品 (22.4%) と、1 kg 以下の 1 753 品が全体の品目数の 61.4%、100 kg 以下が約 90%を占め、使用量の比較的小さいものが極めて多数あることが明らかとなった。

国内摂取量と欧米での摂取量を比較すると、国内で使用されている香料化合物で推定摂取量 10 000 µg/人/日以上は 9 品、1 000 ~ 10 000 µg/人/日は 55 品、100 ~ 1 000 µg/人/日は 108 品で、100 µg/人/日以上は 172 品 (全品目中の 6%) であった。日本、米国及び欧州における推定摂取量を比較すると、それぞれの地域で摂取量が大きく異なるものもあり、このよ

うな違いは食文化の地域的・歴史的な違いが大きく影響していると考えられた。

③各機関の各溶媒についての測定結果には幅があったか、各測定物質の分析値の併行再現性および室間再現性の評価を行ったところ、精度は許容できる範囲と考えられた。また、昨年度の試験では、ヘキサンの分析結果の室間再現性か他の溶媒に比べて劣っていたか、各機関から指摘のあった事項について留意した結果、ヘキサンの室間再現性は改善された。

④本年度の研究では、「ヒ」のヒキオコノから「ワ」のワレモコウまでの天然香料の、基原の植物・動物・微生物の含有成分に関する調査研究をした。本年度調査した 190 品目の香料の基原動植物の数は 284 種であった。このうち 209 種については成分研究がなされていたか、75 種については成分研究がなされていなかった。今回の調査で得られた物質は 3058 化合物であった。3058 化合物のうち化学物質毒性データ (RTECS) があるのは 136 物質であった。

⑤業界の既存添加物自主規格案の策定を行った。今年度は酵素やカルニウム類など 18 品目を新規検討し、第 8 版食品添加物公定書への新規収載の検討に向けて 32 品目を見直し対象とした。

⑥有害試薬を排除するための代替試験法の検討を行い、昨年度からの継続でカロテノイド系着色料 4 品目及び今年度追加で着色料 2 品目を検討した。また、ノハ植物体中のルチンを含むフラボノイドの HPLC 分析を行った。

⑦ヤマモモ抽出物 (ミリントリンおよびミリセチン) の HPLC 分析条件を検討した結果、ODS カラムを用いて、移動相にアセ

トニトリルと0.01%リン酸を用いたクラノメント溶出法により、25分以内に2成分を完全に分離定量できることが判明した。ミリントリンおよびミリセチンの紫外吸収スペクトルを測定したところ、いずれも256 nm付近に吸収極大波長を示したことから、UV検出器の検出波長は256 nmとした。前処理として、固相カラムによる方法を検討した結果、逆相系のSep Pak Plus C18 Cartridgeに負荷し溶出液にメタノール/アセトニトリル(80/20)を使用することにより、不用物質が除去できた。

⑧アラニン、トリプトファンおよびメチオニンでは、L体のIRは明らかにDL体のIRと異なっていた。とくに、C=O伸縮振動などが観測される1700-1500 cm<sup>-1</sup>領域での差が顕著であった。この差は、IRが分子の結晶状態を反映することから、DL体ではD体とL体に対となって結晶を形成していることに起因していると考えられる。従って、これら3つのアミノ酸は、IRを用いれば、L体とDL体の区別も含め、容易に確認できる。一方、トレオニンの場合、L体とDL体のIRは完全に一致し、両者の区別はできなかった。従って、トレオニンでは、IRからDL体とL体との区別はできないか、トレオニンとしては確認できる。

⑨油溶性フェニルアノ系色素の香辛料中からの分離分析法の策定、及び牛乳中の亜塩素酸の微量分析法を確立した。色素の分析法は現在問題になっているスタン1の他に、わか国を始め欧米諸国で医薬品あるいは化粧品への使用が認められているスタンIII等、食品に転用される可能性のある油溶性色素をも含めた分析法であり、今

後これらの検査に有用である。分析法をカイエンヌペーパー粉末、チリソース、パスタソース、七味唐辛子、トムヤムペースト、カレールー等に適用したところ、特に妨害は認められず、HPLCでの色素の分離も良好であった。

一方、牛乳中に生成される汚染物のひとつであるクロロホルムの原因物質となる塩素系化合物のうち、臭気もなく瓶の殺菌消毒に使いやすい亜塩素酸について、その分析法を開発し、微量分析が可能となった牛乳に由来する妨害ピークはなく、定量限界は0.2 ppmであった。また、市販品からの亜塩素酸の検出はなかった。

⑩生産統計量に基づく食品添加物の摂取量調査では、第2回目の既存添加物に対する食品添加物製造・輸入業者に対するアンケート調査を開始し、平成15年度の統計量に基づく中間報告をまとめた。

⑪行政検査に基づく食品添加物の摂取量調査では、各自治体より収集したノルヒン酸測定データを解析し、一日摂取量として27 mgの値を得た。

## D 考察

①今回の調査結果によれば、わか国における香料化合物の規格は、官能評価の他に、含量、比重、屈折率および酸価が一般的な規格項目として採用されていたか、食品添加物公定書収載品や国際的な規格であるJECFAおよびFCC規格が採用している規格項目などと比較して、沸点、溶解性、確認試験のデータがほとんど無い点が異なっていた。今回得た結果から、ホンティフリスト化時には、以下の3項目が規格項目として現実的であると考えられる。(1)化学

式と分子量、(2)確認試験、(3)GC 法による最低含量（純度） その場合には、現在 78 品目についてはフル規格が設定されており、それが食品添加物公定書に記載されていることとどのように調和をはかるかが課題となる

②本調査により、我が国において使用されている食品香料化合物の総品目数は 2 857、年間総使用量は 1 181 897 41 kg、このうち 78 品目の総使用量は 776 981 92 kg、18 類品目の総品目数は 2 779、年間総使用量は 404 915 49 kg になることが明らかとなった 使用されている香料化合物の内訳を見ると、我が国の香料化合物総使用量の 65.7%を 78 品目が占め、品目数が多い 18 類品目は約 34.3%しか占めていなかった 使用量範囲と品目数との関係を考察することにより、使用量の比較的少ないものか極めて多数あることが明らかとなった このことから、「微量で多成分である」と言われる食品香料の特徴が、我が国の使用実態においても実証された

③食品添加物公定書の製造基準において一部の天然香料や既存添加物に残留限度値が設定されている溶媒の限度試験法として、標準添加 HS GC 法を提供できるものと考えられた

④基原植物等て、成分研究がなされていない品目も多かった

⑤天然添加物（既存添加物）は公的規格基準が未設定である品目が多くを占める これまでに策定した業界自主規格のうち、約 60 品目を第 8 版食品添加物公定書への新規掲載の検討対象にして専門家による内容の妥当性評価を現在進めている 業界自主規格もない品目がまた残っており、成

分規格設定推進のために、本研究成果が期待されている

⑥有害試薬を排除するための代替試験法案は、今後、さらに専門家による妥当性評価を行った上で、第 8 版食品添加物公定書への掲載を予定している。

⑦ミリントリンおよびミリセチンの回収率がよい、再現性のある分析法を開発した

⑧アラニン、トリプトファン、メチオニンでは、IR を用いれば、L 体と DL 体の区別も含め、容易に確認できる トレオニンの場合、L 体と DL 体の IR は完全に一致し、両者の区別はできなかったが、DL-と L-トレオニンの IR が一致したのは、L 体のみと D 体のみとからなる微結晶の等量混合物を生成するためと判断した

⑨色素については香辛料成分に由来する妨害は認められず、各色素の分離も良好であった 亜塩素酸は中性条件での除タンパクにより、カゼインを効率良く除去することかでき、また、HPLC 用試験溶液を pH9 付近に調整することにより、二酸化塩素の生成を極力抑制することか可能であった

⑩適当な分析手段の確立されていないものが多い既存添加物では、この種の調査は摂取量推定に重要な役割を果たすものである

⑪データベースの始動により、食品分類の不具合、摂取量推定へ向けての食品分類にふさわしい食品摂取量データ作成の重要性が明らかとなった

## E 結 論

①ボンティフリスト化時には、(1) 化学

式と分子量、(2) 確認試験、(3) 最低含量か、最も合理的で実現性のある規格と考えられた。現在 78 品目についてはフル規格か設定されており、また、約 70 品目の新規指定要請があるため、今後の規格設定の方針を急ぎ決定する必要がある

日本香料工業会は、米国における FCC 規格(参考規格)同様の業界としての自主規格を整備し、積極的に情報公開していくことを今後の課題としたいと報告している

②今回の使用量実態調査では、多数の食品香料会社の協力により 17 000 件を超える回答を得た。調査結果では使用量において若干疑問を生ずる回答があったため、それらについては再調査し、データの精度向上に努めた。本調査においては 60 社以上の食品香料製造会社が有効回答し、96.2% という報告率を示しているように、国内での香料化合物の実態調査として非常に信頼度の高い詳細な結果が得られた。今回の調査結果は、少量で多品目の香料化合物を対象にして国際的な整合性を有するポジティブリストを作成する際に、JECFA が実施している特別な安全性評価方式の採用を考慮する必要があることを示唆している

③標準添加 HS GC 法の精度は許容できる範囲にあり、天然香料中の残留溶媒試験に適用可能と考えられた

④今回の調査で、天然香料の規格・基準作成のための基礎資料が作成できた

⑤既存添加物の自主規格案の策定を行った

⑥食品添加物公定書の規格試験法から有害試薬を排除するための代替試験法の検討を行った。また、ソハ全草抽出物(ノ

ハ由末ルチン抽出物)の成分分析法を検討した。

⑦食品からのヤマモモ抽出物の分析法を開発した

⑧4 種のアミノ酸の確認試験に、IR を活用することかてきると考えられた

⑨色素の分析法は回収率 70%以上、検出限界は 5 ppm であった。本法は簡便かつ迅速な分析法であり、ルーチン分析に最適であると考えられた。亜塩素酸の分析では 0.2 ppm の添加回収率は 86.6%(n=5 CV% 2.7)であり、精度の良い微量分析法が確立された

⑩生産量統計は食品中含有量の測定が困難な既存添加物では、有力な摂取量推定手段であり、継続的な調査が必要である

⑪行政検査のテントルデータ蓄積が可能となり、食品添加物含有量を大規模に把握可能とした。

## F 健康危機管理情報

香料化合物に起因する重篤な健康障害は、我が国においてもまた世界的にも未だかつて起こっていない。

消費者に引き続き健康危害のない安全な香料化合物を提供し、また自主規格を整備していく上で、本研究で得られた結果は大変有用なものと考えられる

## G 研究発表

### 1 論文発表

- 1) 米谷民雄 食品用香料および天然添加物の安全性 食品衛生研究 53(4) 24-29 (2003)
- 2) 佐藤恭子、米谷民雄 クチナシ赤色素およびクチナシ青色素のメタノール

の分析 食品衛生学雑誌 44 73-76

(2003)

## 2 学会発表

- 1)川村 洋 食品用香料化合物の安全性  
評価と国際的整合性 日本薬学会第  
124 年会 ミニシンポジウム「国際化時  
代における食に関わる化学物質と安全  
性」(オーカナイサー 米谷民雄、安藤  
正典) 要旨集 1 p 201 (2004)

## H 知的所有権の取得状況

なし

## II 分担研究報告書

- 1 食品香料の規格のあり方及び流通量調査による  
暴露量評価に関する研究

●  
  
分担研究者 米谷 民雄

厚生労働科学研究費補助金（食品安全確保研究事業）

平成15年度分担研究報告書

食品香料の規格のあり方及び流通量調査による暴露量評価に関する研究

分担研究者 米谷民雄 国立医薬品食品衛生研究所 食品部長

研究要旨

1) 我が国における食品香料化合物の規格の実態を知るために、前年度実施した調査を基に、国内で使用されている食品香料化合物の規格項目や規格値など、具体的な規格内容を整理した。調査の結果、公定書に記載されている78品以外の約2800品目の香料化合物については、公定書収載品のように全ての規格項目が満たされた上で使用されているのではなく、米国やEUなどと似たような状況であることを示す結果であった。

2) 平成14年に実施した使用量調査から、国内で使用されている食品香料化合物の年間使用量を整理し、我が国における使用量の実態を把握することを目的とした。その結果、我が国で使用されている食品香料化合物の総品目数は2857、年間総使用量は118189741kgであった。このうち78品目の総使用量は77698192kg(65.7%)、18類品目の総品目数は2779、年間総使用量は40491549kg(34.3%)であった。使用量範囲と品目数の関係から、使用量の比較的少ないものが極めて多数あることが明らかとなった。このことから、「微量で多成分である」と言われる食品香料の特徴が、わが国の使用実態においても実証されたことになる。

協力研究者

新村嘉也 日本香料工業会

[業務委託]

(1) 食品香料化合物の規格調査

(報告書 日本において使用流通している食品香料化合物の規格実態の調査)

(2) 食品香料化合物の使用実態調査

(報告書 日本における食品香料化合物の使用量実態調査)

A 研究目的

米国では2002年までにFEMAGRAS物質として1,200強の食品香料化合物が評価され、欧州ではEUの決定により、1999年登録の

約2,700品目の食品香料化合物を2004年までに安全性評価し、ポジティブリスト化する作業が行われている。また、JECFAにおいては食品香料化合物の安全性評価が2002年までに1,150品目に達し、米国およびEUがその評価方法と結果を共有していることから、わが国の規制においても、国際的整合化が早急に必要となっている。

それに対応するため、1) わが国で使用・流通している食品香料化合物の規格の実態調査、及び、2) わが国における食品香料化合物の使用量の実態調査、を行った。

A-1 わが国で使用・流通している食品香料化合物の規格の実態調査

我が国における規格の実態を知るために、平成14年度に実施した調査から、国内で使用されている食品香料化合物の規格項目や規格値など具体的な規格内容を整理し、実態を把握することとした

#### A-2 わか国における食品香料化合物の使用量の実態調査

平成14年度に実施した使用量調査を基に、国内で使用されている食品香料化合物の年間使用量を整理し、我が国における使用量の実態を把握することを目的とした

### B 研究方法

#### B-1 わか国で使用・流通している食品香料化合物の規格の実態調査

IUPAC（国際純正および応用化学連合）による化学名、慣用名、通称名、俗名、商品名等、多岐にわたった調査回答の名称を、一定のルールの下に整理することにより同一構造であることを確認し、規格の実態を把握することとした

#### B-2 わか国における食品香料化合物の使用量の実態調査

上と同様に、多岐にわたった調査回答の香料化合物名を一定のルールの下に整理し、各香料化合物の使用量及び推定摂取量を算出した

### C 研究結果

詳細な結果については、別添の各資料を参照のこと。ここでは、概略について説明する

#### C-1 わか国で使用・流通している食品香料化合物の規格の実態調査

本研究の調査は、香料化合物の名称を整理することから始めた。すなわち、IUPAC

による化合物命名法を主とし、これに香料の特殊性を加味した慣用名を併用する名称の付け方の規則をまず作成した。次いでこの規則に従い、調査回答約17,000件を1件ずつ確認する方法によって名称の統一を図り、統一された各名称グループについて規格を整理した

本調査の結果、公定書に記載されている78品目以外の約2,800品目の香料化合物は、公定書収載品のように全ての規格項目が満たされた上で使用されているのではないことが明らかとなった。一方米国では、流通上の規格がFCCに記載されている約300品目については規格が整備されているものの、流通している香料化合物のうち約1,400余には公表されている規格がなかった。またEUでは、現在使用している香料化合物全てに対して公の規格は無いことが過去の調査研究により分かっており、今回の調査結果は世界的に似たような状況であることを示す結果であった

#### 1) 各規格項目について

##### (1) 含量

GC法では正確な含量測定が出来ない類に不安定な化合物以外については、全てGC法が採用されていた

##### (2) 沸点

GC装置が一般に普及している今日では、比重、屈折率との組み合わせで不純物を確認することが普通であり、沸点測定法は事実上行われていなかった。

##### (3) 屈折率および比重

屈折率及び比重については、GC測定で問題となる揮発性成分の影響を補う上で有用と考えられ、数多くの化合物に採用されていた。

#### (4) 酸価

酸類の含量試験だけでなく、アルテヒト基などを持つ酸化され易く酸を生じる物質やエステル類など酸を原料とする物質の不純物の残存量測定に有用であり、多くの化合物で採用している傾向があった

#### (5) 確認試験

官能評価と GC 法による含量測定及び GC の RT やチャートパターンによる前回使用品との同一性確認で十分であるという結果であった。

#### 2) 流通している単品扱いの混合物について

調査の結果、香料化合物の名称が化学名であり単品扱いされているか、実際の組成は混合物であるものか存在した。

(1) 光学異性体 カルボン、メントールなどか例としてあげられる

(2) 構造異性体 イオノン、ントラールや二重結合含有化合物などか例としてあげられる

(3) 天然原料留分の化学反応物 ヘチヘリル アセテートなどか例としてあげられる

(4) 合成反応における副産物や未反応原料が混在した香料化合物

香料としての品名が同じであるか、組成比率など異なる種々の製品が流通していた。混合アセタール (ヘキサナール エチルイノアミル アセタール) などか例としてあげられる

(5) 「閾値が小さく、そのまま使用するには操作性が著しく悪い」などの理由から希釈品で流通している香料化合物もいくつか見受けられた。含硫化合物 (パラメンタン 8 チオール) などか例としてあげられる

#### C-2 わか国における食品香料化合物の使用量の実態調査

本研究の調査も、香料化合物の名称を整理することから始めた。すなわち、香料化合物を IUPAC による化合物命名法を主体とし、これに香料の特殊性を加味した慣用名を併用する名称の付け方の規則をまず作成した。次いでこの規則に従い、平成 12 年度厚生科学研究「日本における食品香料化合物の使用実態調査」において有効回答した、日本香料工業会会員 75 社を対象に実施した年間使用量調査の回答約 17 000 件を 1 件ずつ確認する方法により名称の統一を図り、統一された各名称グループについて使用量を集計し、さらに PCTT 法により摂取量を推定した。

#### 1 日本で使用されている食品香料化合物の品目数と年間使用量

我が国において使用されている食品香料化合物の総品目数は 2 857、年間総使用量は 1 181 897 41 kg であった。このうち 78 品目の総使用量は 776 981 92 kg(65.7%)、18 類品目の総品目数は 2 779、年間総使用量は 404 915 49 kg (34.3%) になることが明らかとなった。

#### (1) 使用量の多い食品香料化合物とそれらの占有率

国内で使用されている使用量の多い上位 15 品目の合計使用量は全体の 64.5%で、そのうち 10 品目は別表第 2 の 78 品目に該当するものであった。

#### (2) 類別に見た使用量

エステル類、脂肪族高級アルコール類で全体の半分以上を占め、次いで芳香族アルコール類、ケトン類までで全体の約 3/4 の量となっていた。

### (3) 使用量範囲別の品目数

0.01 kg(10 g)以下のものが514品(全体の18.0%)、0.01~0.1 kgが600品(21.0%)、0.1~1 kgが639品(22.4%)と、1 kg以下の1753品が全体の品目数の61.4%、100 kg以下が約90%を占め、使用量の比較的少ないものが極めて多数あることが明らかとなった。

## 2 国内摂取量と欧米での摂取量との比較

(1) 国内で使用されている香料化合物の推定摂取量

10,000 µg/人/日以上は9品目、1,000~10,000 µg/人/日は55品目、100~1,000 µg/人/日は108品目で、計100 µg/人/日以上は172品目(全品目中の6%)であった。

(2) 日本、米国及び欧州における推定摂取量の比較

推定摂取量を品目別に見ると、それぞれの地域で摂取量が大きく異なるものがあり、このような違いは、食文化の地域的、歴史的な違いが大きく影響していると考えられた。

## D 考察

D-1 わか国で使用・流通している食品香料化合物の規格の実態調査

今回の調査結果によれば、日本における香料化合物の規格は官能評価の他に、含量、比重、屈折率および酸価が一般的な規格項目として採用されていた。食品添加物公定書収載品や国際的な規格であるJECFAおよびFCC規格が採用している規格項目などと比較して、沸点、溶解性、確認試験のデータがほとんど無い点が異なっていた。今回得た結果からも、ボンティフリスト化

時には、以下の3項目が規格項目として現実的であると考えられた。(1)化学式と分子量、(2)確認試験、(3)GCによる最低含量(純度)である。その場合には、現在78品目についてはフル規格が設定されており、それが食品添加物公定書に収載されていることと、どのように調和をはかるかが課題となる。

D-2 わか国における食品香料化合物の使用量の実態調査

本調査により、我が国で使用されている食品香料化合物の総品目数は2,857、年間総使用量は1,181,897.41 kg、このうち78品目の総使用量は776,981.92 kg、18類品目の総品目数は2,779、年間総使用量は404,915.49 kgになることが明らかとなった。使用されている香料化合物の内訳を見ると、我が国の香料化合物総使用量の65.7%を78品目が占め、品目数が多い18類品目は約34.3%しか占めていなかった。使用量範囲と品目数の関係を検討することにより、使用量の比較的少ないものが極めて多数あることが明らかとなった。このことから、「微量で多成分である」と言われる食品香料の特徴が、わか国の使用実態においても実証されたことになる。

## E 結論

E-1 わか国で使用・流通している食品香料化合物の規格の実態調査

米国でのボンティフリストや欧州での香料化合物全品のボンティフリスト化を背景として、約2,700品目の香料化合物に対する規格のあり方について、(1)化学式と分子量、(2)確認試験、(3)最低含量、が最も合理的で実現性のある規格であると考

られた。現在 78 品目についてはフル規格が設定されており、また、約 70 品目の新規指定要請があるため、今後の規格設走の方針を急ぎ決定する必要があるか、今後新たに指定される香料化合物の規格についても、香料化合物であることを考慮した規格にすることか現実的と考えられる。

なお、調査を担当した日本香料工業会では、米国における FCC 規格（参考規格）同様の、業界としての自主規格を整備し、積極的に情報公開していくことを今後の研究課題としたいと考えている。

#### E-2 わか国における食品香料化合物の使用量の実態調査

今回の使用量実態調査では、多数の食品香料会社の協力により 17 000 件を超える回答が得られた。調査結果では使用量において若干疑問を生ずる回答があったため、それらについては再調査し、データの精度向上に努めた。本調査においては 60 社以上の食品香料製造会社が有効回答し、96.2%という報告率が示すように、国内での香料化合物の実態調査として非常に信頼度の高い結果が得られた。

今回の調査結果は、少量で多品目の香料化合物を対象にして国際的な整合性を有するボンティフリストを作成する際に、JECFA が実施しているような特別な安全性評価方式の採用を考慮する必要があることを示唆している。

#### F 健康危機管理情報

香料化合物に起因する重篤な健康障害は、我が国においても世界的にも未だ起こっていない。本研究で得られた結果は、香料化合物の安全性を担保するための自主規格を

整備していく上で、今後大変有用になるものと考えられる。

#### G 研究発表

##### 1 論文発表

- 1) 米谷民雄 食品用香料および天然添加物の安全性 食品衛生研究 53(4) 24-29 (2003)
- 2) 米谷民雄 食品添加物をめぐる最近の状況について 乳業技術 53 23-31 (2003)
- 3) 米谷民雄 食品添加物行政の動き Health Sciences 19(1) 80-81 (2003)
- 4) 米谷民雄 食品添加物の新しい分析法と最近の話題 ケミカル エンジンヤリ 48 760-764 (2003)

##### 2 学会発表

- 1) 川村 伴 食品用香料化合物の安全性評価と国際的整合性 日本菓学会第 124 年会のミニシンポジウム「国際化時代における食に関わる化学物質と安全性」(オーガナイザー 米谷民雄、安藤正典) での発表要旨集 1 p.201 (2004)

#### H 知的財産権の出願・登録状況

なし

別 紙

平成 1 5 年度

食品用香料及び天然添加物の  
化学的安全性確保に関する研究

(日本において使用流通している食品香料化合物の規格実態の調査)

機 関 名	日本香料工業会
研究者氏名	新 村 嘉 也

平成15年度

● 日本において使用流通している食品香料化合物の  
規格実態の調査

●  
  
平成16年3月

機 関 名 日本香料工業会

研究者氏名 新 村 嘉 也