

食品衛生基準科学研究費補助金（食品安全科学研究事業）
食品添加物の試験法の向上及び摂取量に基づく安全性確保に関する研究
令和 7 年度分担研究報告書

マーケットバスケット方式による香料の摂取量調査の検討

研究分担者 久保田 浩樹 国立医薬品食品衛生研究所食品添加物部主任研究官

研究要旨 我が国の流通食品における香料摂取量の実態を明らかにするため、マーケットバスケット（MB）方式による香料の一日摂取量調査について検討を行った。全国 6 地域の MB 混合試料 1 群（嗜好飲料・調味料）、2 群（穀類）及び 3 群（いも類・豆類・種実類）に含まれるエステル系香料の含有量をダイナミックヘッドスペース（DHS）-GC/MS を用いて分析し、20 歳以上の人（成人）の喫食量をもとに推定一日摂取量を算出した。

MB 方式によるエステル系香料の 1 ～ 3 群の推定一日摂取量は、酪酸エチルが 0.49 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日、2-メチル酪酸エチルが 0.04 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日、酢酸イソアミルが 1.5 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日と推定された。

研究協力者

寺見祥子 国立医薬品食品衛生研究所

太田亜紀子 国立医薬品食品衛生研究所

品添加物を定量し、その結果に国民の平均的な各食品群の食品喫食量を乗じて摂取量を求める、マーケットバスケット（MB）方式による一日摂取量調査が実施されている¹⁻³⁾。また、同時に食品衛生基準科学研究（令和 5 年以前は厚生労働科学研究）において、食品添加物の生産量調査を基にした食品添加物摂取量の推定が行われている⁴⁻⁵⁾。

A. 研究目的

食品添加物の安全性評価において許容一日摂取量（以下 ADI、 mg/kg 体重/日）が設定された化合物については、当該食品添加物の一日摂取量が ADI 以下であれば健康への影響はないとみなされる。そのため、日常の食事を介して摂取される食品添加物の一日摂取量を推定し、ADI が設定されているものについてはその範囲内にあるかを確認することは、食の安全性を確保する上で重要なことである。我が国では食品添加物の摂取量を把握するため、市販食品を 7 つの食品群に分けて混合し、この混合試料中に含まれる食

香料については、他の食品添加物と異なり、種々の香料を微量ずつ混和した香料製剤として食品に使用されており、香料ごとの摂取量を正確に予測することが難しいことから、国際的に様々な摂取量推計法により検討が進められている。FAO/WHO 合同食品添加物専門家委員会（JECFA）では、Maximized Survey-Derived Intake（MSDI）法や Single

Portion Exposure Technique (SPET) 法を採用しており、欧州食品安全機関(EFSA)では、MSDI法やAdded Portions Exposure Technique (APET) 法を採用し、香料の評価が行われている。我が国では、食品安全委員会においてMSDI法により摂取量を推定し、香料の安全性評価が行われている。

MSDI 法は、ある地域で 1 年間に使用された香料は、その地域の 10%の人口が均等に消費したと仮定し、香料の年間生産量を人口の 10%及び補正係数で割ることにより推計される。SPET 法は、ある香料を含む食品を 1 品のみ毎日 1 食分食べると考えて想定される摂取量の推計法であり、コーデックス食品添加物一般基準 (GSFA) の食品分類を参考に JECFA が設定した食品分類のうち、ある香料を添加される可能性があるすべての食品分類を特定し、その各食品分類への香料の標準添加率をその食品分類の portion size (単一食品の標準的な 1 食分の喫食量) に掛け合わせ、その中で最も高い値を摂取量とする推計法である。APET 法は、SPET 法と同様に食品分類毎の食品喫食量と香料の添加率を用いるが、元の食品に含まれる香料の含有量も添加率に加えており、また、飲料とその他の食品の摂取量の最大値を合計する方法である。これらの摂取量推計法は、香料の生産段階における使用量又は添加率と食品の喫食量から求める推計法であり、食品製造段階で 사용되는使用量を用いて想定される最大摂取量を推計する手法として有効な手法であるが、実際に流通している食品中の香料の含有量から平均的な一日摂取量を推

計した情報は少ない。

流通する食品中の香料含量から摂取量を明らかとするため、これまでに食品衛生基準科学研究 (令和 5 年以前は厚生労働科学研究) における分担研究として、MB 方式による香料の摂取量推計の検討を、関東圏 (東京都又は川崎市) で購入した食品試料を用いて行ってきた。今回、より広く調査を行うため、全国 6 地域において購入した食品試料から調製された MB 混合試料についてダイナミックヘッドスペース (DHS) -GC/MS を用いて香料含量の分析を行い、20 歳以上の人 (以後、成人とする) の食品の喫食量における各種香料の一日摂取量の推計を行った。対象香料としては、エステル系香料の中で国内における使用量が多い香料に着目し調査を実施した。

B. 研究方法

1) 調査食品

調査食品は、国立医薬品食品衛生研究所及び衛生研究所 5 機関 (札幌市衛生研究所、仙台市衛生研究所、香川県環境保健研究センター、長崎市保健環境試験所、沖縄県衛生環境研究所) が、食品摂取頻度・摂取量調査 令和 2 年度 調査報告書」(東京大学大学院医学系研究科社会予防疫学分野 佐々木敏教授、令和 3 年 3 月) を再解析して得られた食品添加物摂取量推計用年齢層別喫食量リスト (令和 7 年度調査用リスト) を用いて、7 食品群 195 食品をそれぞれの地域の小売店において購入したものをを用いた。ただし、一日喫食量が多く、食品添加物の使用頻度の高い食品については、

一つの食品に対し異なる企業の 2~3 製品を購入することとし、実際には機関ごとに 288 製品を購入したものを用いた。

2) MB 方式調査用加工食品群試料 (MB 混合試料)

各機関において、それぞれ購入した食品を、令和 7 年度調査用リストに従い、1~7 群に分類し、成人の一日喫食量を基に採取し、1 群はそのまま、2~7 群は等量の水を加え、それぞれ均質磨砕した。これを MB 混合試料として本研究に用いた。この試料はポリエチレン容器に分注し、-20℃以下の冷凍庫にて冷凍状態で保存した。分析前に室温状態にて解凍し、実験に使用した。なお、本年度は、7つの食品群のうち、1 群 (嗜好飲料・調味料)、2 群 (穀類)、3 群 (いも類・豆類・種実類) について検討を実施し、残る 4 群から 7 群については、次年度以降引き続き検討をおこなう計画である。

3) 試薬

酪酸エチル (ethyl butyrate、052-00663) は和光純薬の試薬特級を用いた。酢酸イソアミル (isoamyl acetate、A0033)、2-メチル酪酸エチル (ethyl DL-2-methylbutyrate、M0757) は東京化成の特級 (>98%) を用いた。酪酸-4, 4, 4- d_3 エチル (ethyl butyrate-4, 4, 4- d_3 、D-6224、EB- d_3 と略す)、酢酸- d_3 3-メチルブチル (3-methylbutyl acetate- d_3 、D-7231、MA- d_3 と略す) は、CDN Isotope社の試薬を用いた。塩化ナトリウムは和光純薬工業 (株) 製の水質試験用、その他は試薬特級を用いた。

4) 香料混合標準原液の調製

酢酸イソアミル、2-メチル酪酸エチル、

酪酸エチル各 0.10 g を少量のメタノールを入れた別々の 100 mL のメスフラスコに採取し、メタノールを加えて全量を 100 mL に定容し、香料標準原液とした (濃度 1 mg/mL)。各香料標準原液 10 mL を正確に採取し、少量のメタノールを入れた 100 mL のメスフラスコに合わせ入れ、メタノールを加えて全量を 100 mL に定容し、香料混合標準原液とした (濃度 100 μ g/mL)。香料混合標準原液は冷蔵庫にて保管した。

5) 検量線用標準液の調製

EB- d_3 及び MA- d_3 0.05 g を少量のメタノールを入れた別々の 50 mL のメスフラスコに採取し、メタノールを加えて全量を 50 mL に定容した (濃度 1 mg/mL)。この溶液各 10 mL を正確に採取し、少量のメタノールを入れた 100 mL のメスフラスコ 100 mL に合わせ入れ、メタノールを加えて全量 100 mL に定容し、内部標準原液とした (濃度 100 μ g/mL)。内部標準原液は冷蔵庫にて保管した。

6) 検量線用標準液の調製

6 本の少量のメタノールを入れた 10 mL のメスフラスコに、香料標準原液 0.1、0.2、0.5、1、2.5 又は 5 mL をそれぞれ正確に加え、メタノールを加えてそれぞれ正確に 10 mL とし、検量線用標準原液とした。20 mL のヘッドスペースバイアルに塩化ナトリウム 1 g 及び水 2 mL を採り、次いでマイクロシリンジを使用して検量線用標準原液を 10 μ L 注入し、直ちにテフロンライナー/シリコンセプタムを装着したスクリュウキャップで密封し、検量線用標準溶液とした。

7) 器具及び装置

DHS システムとして DANI 製の DHS/P&T サンプルングシステム Master DHS を用いた。GC/MS は島津製作所製の GCMS-QP2020NX を用いた。

バイアルはジーエルサイエンス製のヘッドスペースバイアル (20 mL、テフロンライナー／シリコンセプタムを装着したスクリュウキャップ付) を用いた。なお、バイアルは 105℃ で 3 時間加熱後、放冷し分析に使用した。

8) DHS-GC/MS 測定条件

DHS 条件: カラム温度 60℃、ドライステップ トラップ温度 10℃、インジェクションステップ トラップ温度 250℃、バルブ及びトランスファーライン温度 260℃、インキュベーション時間 20 分、ストリッピング時間 10 分、ドライステップ時間 4 分

GC/MS 条件: カラム: Stabilwax (60 m × 0.32 mm I.D. 膜厚 0.5 μm)、カラム温度: 40℃ (1 min) → 5℃/min → 230℃ (1 min)、注入口温度: 200℃、インターフェース温度: 230℃、イオン源温度: 200℃、イオン化法: EI、イオン化電圧: 70 eV、測定モード: SIM 測定質量数: 酢酸イソアミル m/z 87、2-メチル酪酸エチル m/z 88、酪酸エチル m/z 116、EB- d_3 m/z 119、MA- d_3 m/z 90。スキャン 測定質量数: m/z 45 ~ m/z 200。

9) DHS-GC/MS 用試験溶液の調製

MB 混合試料 (1 群 1.0 g、2~7 群 2.0 g: それぞれ元の食品試料 1 群 1.0 g、2~7 群 1.0 g 相当) を 20 mL のヘッドスペースバイアルに量り採り、塩化ナトリウム 1 g 及び水 2 mL を加え、次いでマイクロシリンジを使用して内部標準溶液

を 10 μL 注入し、直ちにキャップで密封した後、ボルテックスミキサーでバイアル中の試料を良く攪拌し、DHS-GC/MS 用試験溶液とした。

(倫理面への配慮)

本研究は、倫理面にかかわる事項はない。

C. 研究結果及び考察

1) 分析条件の検討

エステル系香料の中で国内において使用量が多い酪酸エチル、2-メチル酪酸エチル及び酢酸イソアミルを対象に DHS-GC/MS を用いた分析法の検討を行った。検討対象とした香料化合物の構造式を表 1 に示した。各香料を混合した検量線用標準液を GC/MS により分析した時のクロマトグラムを図 1、スキャンモードにおける各香料のマススペクトルを図 2 に示した。カラムとして Stabilwax を用い GC/MS で分析したところ、酪酸エチルが 8.3 分、2-メチル酪酸エチルが 8.7 分、酢酸イソアミルが 10.5 分に検出された。

各化合物について検量線の直線性を確認したところ、酪酸エチル、2-メチル酪酸エチルは、5~250 ng/mL、酢酸イソアミルは 10~250 ng/mL の範囲で概ね良い直線性 ($R^2=0.997$ 以上) を示した。MB 混合試料中における定量限界 ($S/N=10$) は、MB 混合試料中の含量換算として、酪酸エチル及び 2-メチル酪酸エチルは、1 群 0.01 μg/g (元の食品試料相当 0.01 μg/g)、2~3 群 0.005 μg/g (元の食品試料相当 0.01 μg/g)、酢酸イソアミルは、1 群 0.02 μg/g (元の食品試料相当 0.02 μg/g)、2~3 群 0.01 μg/g (元の食品試料相当 0.02 μg/g) であった。

2) 添加回収試験

1 群 MB 混合試料 1.0 g (元の食品試料 1.0 g 相当) に 0.25 $\mu\text{g/g}$ 、2 及び 3 群 MB 混合試料 2.0 g (元の食品試料 1.0 g 相当) に 0.25 $\mu\text{g/g}$ となるように香料混合標準原液を添加し、添加回収試験を実施した(表 2)。

同位体を用いた内部標準法を採用することで、酪酸エチル 94.1~115%、2-メチル酪酸エチル 70.4~101%、酢酸イソアミル 91.9~117%の概ね良い回収率が得られた。そこで、本試験法を用いて MB 混合試料に含まれるエステル系香料の含有量の調査を行った。

3) MB 方式による一日摂取量の推計

MB 混合試料中の酪酸エチル、2-メチル酪酸エチル、酢酸イソアミル含有量 ($\mu\text{g/g}$ 元の食品試料換算含有量として) を、それぞれ表 3、表 4、表 5 に示した。また、成人の喫食量に基づく MB 方式の酪酸エチル、2-メチル酪酸エチル、酢酸イソアミル推定一日摂取量を、それぞれ表 6、表 7、表 8 に示した。

酪酸エチルは、調査した全機関で 1 群の MB 混合試料より定量限界以上検出された。各機関の 1 群からの推定一日摂取量は、0.20 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日~1.2 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日であり、平均推定一日摂取量は 0.45 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日であった(表 6)。2 群は一部の機関のみから定量限界以上検出され、機関別推定一日摂取量は、0 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日~0.10 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日であり、平均推定一日摂取量は 0.04 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日であった。3 群は、全ての機関において定量限界未満であり、推定一日摂取量は 0 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日であった。

2-メチル酪酸エチルは、1 群は一部の機関のみから定量限界以上検出され、機関別推定一日摂取量は、0 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日~0.26 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日、平均推定一日摂取量は 0.04 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日であり(表 7)、2 群及び 3 群は定量限界未満であり、推定一日摂取量は 0 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日であった。

酢酸イソアミルは、全機関の 1 群 MB 混合試料より定量限界以上検出された。各機関の 1 群からの推定一日摂取量は、0.91 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日~1.8 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日であり、平均推定一日摂取量は 1.5 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日であった(表 8)。3 群は一部の機関のみから定量限界以上検出され、機関別推定一日摂取量は、0 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日~0.06 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日であり、平均推定一日摂取量は 0.02 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日であった(表 3)。2 群は、全ての機関において定量限界未満であり、推定一日摂取量は 0 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日であった。

これらエステル香料は、果物や、ワインに天然由来の成分として含まれているとともに、フルーツ様の香料として、果汁飲料などの飲料に使用されている⁶⁻⁷⁾。このため、検出された香料は、今回算定された MB 方式による推定一日摂取量は食品原材料由来成分と添加香料の合計量と考えられた。

酢酸エチル及び酢酸イソアミルの 1 群混合試料について、機関間の推定一日摂取量を比較した場合、最小値と最大値の幅が酪酸エチルで約 2 倍、酢酸イソアミルで約 6 倍の開きがみられた。この要因として各機関で購入された食品の種類や数が異なるため、推定一日摂取量に影響

したことなどが考えられるが、今回調査だけでは、明確な原因を解明するに至らなかった。今後、MB 混合試料とあわせて、購入した食品試料の中で当該香料の含有が推定される個別食品をターゲットに分析することで、摂取量に寄与する食品の推定が可能となり、原因の究明につながると考えられ、将来の検討課題として残された。

本年度は、7つの食品群のうち、1群（嗜好飲料・調味料）、2群（穀類）、3群（いも類・豆類・種実類）について調査を実施し、1～3群に含まれる酪酸エチル、2-メチル酪酸エチル、酢酸イソアミルの推定一日摂取量を明らかとした。残る4群から7群については、次年度以降引き続き調査を行い、MB方式における、これら香料の推定一日摂取量を明らかとする計画である。また、JECFAで許容一日摂取量（ADI）が定められている酪酸エチル及び酢酸イソアミルについては、成人におけるADI（mg/kg 体重/日）に対する推定一日摂取量（mg/kg 体重/日）の割合（対ADI比）を求め、流通食品側からの当該香料の摂取量について今後調査を進めていく。

D. 結論

国内流通食品における香料の摂取量の実態を明らかにするため、MB方式によるエステル系香料の一日摂取量調査の検討を全国6地域のMB混合試料1群～3群の試料を用いて調査を行った。エステル系香料として酪酸エチル、2-メチル酪酸エチル及び酢酸イソアミルについて、DHS-GC/MS法を用いて分析を行った。

MB混合試料1群～3群の各エステル系香料の推定一日摂取量は、酪酸エチルが0.49 μ g/kg 体重/日、2-メチル酪酸エチルが0.04 μ g/kg 体重/日、酢酸イソアミルが1.5 μ g/kg 体重/日と推定された。

E. 参考文献

- 1) 四方田千佳子：マーケットバスケット方式による甘味料及び保存料等の摂取量調査，JAFAN，2005，24，299-310
- 2) 河崎裕美他：食品化学学会誌，2011，18，150-162
- 3) 久保田浩樹他：食品化学学会誌，2017，24，94-104
- 4) 令和3年度厚生労働科学研究報告書「食品添加物の安全性確保に資する研究」（2022）
- 5) 令和元年度厚生労働科学研究報告書「食品添加物の安全性確保に資する研究」（2020）
- 6) Stofberg J, Grundschober F: Perf. Flav., 12, 27-56 (1987)
- 7) J. J. Rodríguez-Bencomo et. al.: J. Chromato. A, 963, 213-223 (2002)

F. 研究発表

1. 論文発表
なし
2. 学会発表
 - 1) 久保田浩樹、寺見祥子、太田亜紀子、建部千絵、多田敦子、杉本直樹：マーケットバスケット方式による加工食品中のイソチオシアネート系香

料の一日摂取量調査．第 62 回全国衛生化学技術協議会年会（2024. 11. 6-7）
（群馬）

G. 知的財産権の出願・登録状況

なし

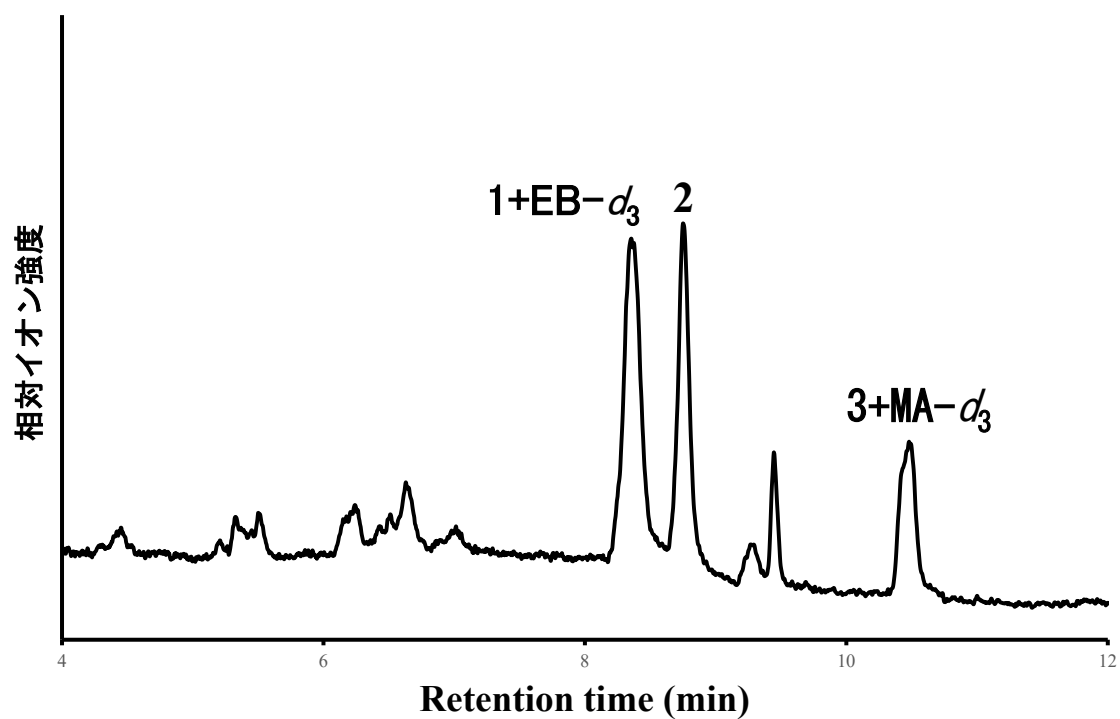
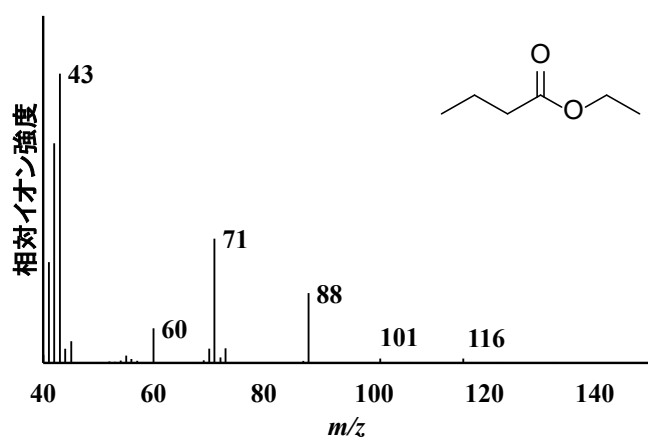
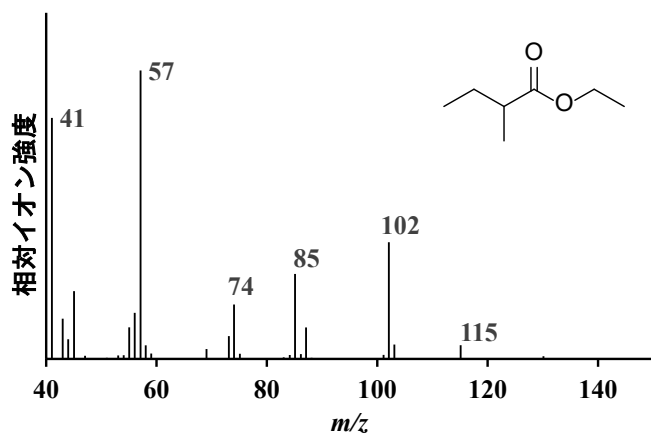


図 1. 検量線用標準溶液 (各 100 ng/mL) の GC/MS クロマトグラム
 1: 酪酸エチル、2: 2-メチル酪酸エチル、3: 酢酸イソアミル、
 EB- d_3 : 酪酸-4, 4, 4- d_3 エチル、MA- d_3 : 酢酸- d_3 3-メチルブチル
 (検出: m/z 45 ~ m/z 200)

1) 酪酸エチル



2) 2-メチル酪酸エチル



3) 酢酸イソアミル

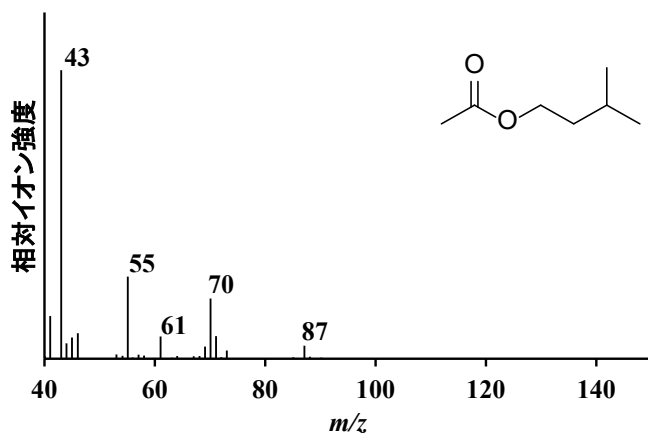


図2. 測定対象香料のマススペクトル

表 1. 検討対象候補としたエステル系香料

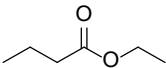
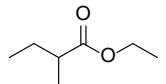
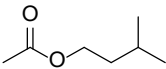
品目名	CAS No	類	構造式	JECFA評価 ADI (mg/kg体重/日)
酪酸エチル	105-54-4	個別指定品目		0-15
2-メチル酪酸エチル	7452-79-1	エステル類		No safety concern
酢酸イソアミル	123-92-2	個別指定品目		0-3

表 2 マーケットバスケット混合試料におけるエステル系香料の添加回収試験

No.	化合物名	回収率 平均値(%)		
		1群 嗜好飲料 ・調味料	2群 穀類	3群 いも類・豆類 ・種実類
1	酪酸エチル	115	94.1	98.4
2	2-メチル酪酸エチル	101	82.0	70.4
3	酢酸イソアミル	117	91.9	93.9

(n=5)

表 3. マーケットバスケット混合試料中の酪酸エチル含有量

単位: $\mu\text{g/g}$

食品群	含有量			
	最小値	～	最大値	平均値
1群 嗜好飲料・調味料	0.01	～	0.08	0.03
2群 穀類	ND	～	0.04	0.02
3群 いも類・豆類・種実類		ND		0

ND: 定量限界 (0.01 $\mu\text{g/g}$, 元の食品試料含有量として)

(n=3)

表 4. マーケットバスケット混合試料中の 2-メチル酪酸エチル含有量

単位: $\mu\text{g/g}$

食品群	含有量			
	最小値	～	最大値	平均値
1群 嗜好飲料・調味料	ND	～	0.02	0.003
2群 穀類		ND		0
3群 いも類・豆類・種実類		ND		0

ND: 定量限界 (0.01 $\mu\text{g/g}$, 元の食品試料含有量として)

(n=3)

表 5. マーケットバスケット混合試料中の酢酸イソアミル含有量

単位: $\mu\text{g/g}$

食品群	含有量			
	最小値	～	最大値	平均値
1群 嗜好飲料・調味料	0.06	～	0.12	0.10
2群 穀類		ND		0
3群 いも類・豆類・種実類	ND	～	0.04	0.02

ND: 定量限界 (0.02 $\mu\text{g/g}$, 元の食品試料含有量として)

(n=3)

表 6 食品群別 酪酸エチル 推定一日摂取量（20 歳以上）

単位: µg/kg体重/日

食品群	推定一日摂取量*			
	平均値	最小値	～	最大値
1群 嗜好飲料・調味料	0.45	0.20	～	1.2
2群 穀類	0.04	0	～	0.10
3群 いも類・豆類・種実類	0			
1～3群からの合計摂取量	0.49	0.20	～	1.3

* 測定の結果、含量が定量限界未満の場合は0とした。

表 7 食品群別 2-メチル酪酸エチル 推定一日摂取量（20 歳以上）

単位: µg/kg体重/日

食品群	推定一日摂取量*			
	平均値	最小値	～	最大値
1群 嗜好飲料・調味料	0.04	0	～	0.26
2群 穀類	0			
3群 いも類・豆類・種実類	0			
1～3群からの合計摂取量	0.04	0	～	0.26

* 測定の結果、含量が定量限界未満の場合は0とした。

表 8 食品群別 酢酸イソアミル 推定一日摂取量（20 歳以上）

単位: µg/kg体重/日

食品群	推定一日摂取量*			
	平均値	最小値	～	最大値
1群 嗜好飲料・調味料	1.5	0.91	～	1.8
2群 穀類	0			
3群 いも類・豆類・種実類	0.02	0	～	0.06
1～3群からの合計摂取量	1.5	0.91	～	1.8

* 測定の結果、含量が定量限界未満の場合は0とした。