

## 2020 年度「食品添加物一日摂取量調査」 パラオキシ安息香酸エステル類測定結果

村越早織    小金澤望    滝川香織  
島山久史    扇谷陽子    石田 睦    山口 亮

### 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 年度から継続的に行われている。2020 年度は国立医薬品食品衛生研究所の他、全国 8 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。2020 年度は、平成 22 年度受託事業「食品摂取頻度・摂取量調査の特別集計業務報告書」(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の成人(20 歳以上)の食品喫食量に基づく保存料及び着色料の一日摂取量調査を行った。当所は、パラオキシ安息香酸イソブチル、パラオキシ安息香酸イソプロピル、パラオキシ安息香酸エチル、パラオキシ安息香酸ブチル及びパラオキシ安息香酸プロピル(以下「パラオキシ安息香酸エステル類」という)の分析を担当したので、その結果を報告する。

### 2. 方 法

#### 2-1 調査期間

試料の購入：2020 年 10 月

試料の発送：2020 年 11 月

試料の分析：2020 年 10 月～2020 年 12 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)で食品喫食量リストに基づき 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(以下、「混合群試料」という)。2～7 群は等量の水を加えて混和した。

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(以下、「表示群試料」という)。

表 1 参加機関及び分析項目

参加機関	分析項目
札幌市衛生研究所	パラオキシ安息香酸エステル類
仙台市衛生研究所	プロピオン酸
千葉県衛生研究所	タール色素
国立医薬品食品衛生研究所*1	ノルビキシン、ビキシン
東京都健康安全研究センター*1	β-アポ-8'-カロテノール及びカンタキサンチン
広島県立総合技術研究所保健環境センター*2	β-アポ-8'-カロテノール及びカンタキサンチン
香川県環境保健研究センター	二酸化硫黄
長崎市保健環境試験所	安息香酸、ソルビン酸、デヒドロ酢酸
沖縄県衛生環境研究所*2	ノルビキシン、ビキシン

\*1 表示群試料のみ分析

\*2 混合群試料のみ分析

表2 成人の食品群別分類、食品数、品目数及び喫食量

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 試薬

パラオキシ安息香酸イソブチル及びパラオキシ安息香酸イソプロピルは和光純薬(株)製、パラオキシ安息香酸エチル、パラオキシ安息香酸ブチル及びパラオキシ安息香酸プロピルは関東化学(株)製鹿特級を用いた。標準原液は各標準品を60vol%メタノールに200µg/mLとなるように溶解して調製した。混合標準液は、各標準原液をそれぞれ10µg/mLとなるように混合し、60vol%メタノールで希釈した。

メタノールは富士フィルム和光純薬(株)製LC/MS用、その他の試薬は富士フィルム和光純薬(株)製特級を用いた。

### 2-4 分析方法と測定条件

パラオキシ安息香酸エステル類の分析における試験法は、第2版 食品中の食品添加物分析法<sup>1)</sup>に準じ、1、2、7群については水蒸気蒸留法、3、4、5、6群については高タンパク食品及び高脂肪食品に適用する溶媒抽出法を用いて、各試料3回併行で測定を実施した。水蒸気蒸留法の操作フロー図を図1に、溶媒抽出法の操作フロー図を図2に、

装置及び分析条件を表3に示した。

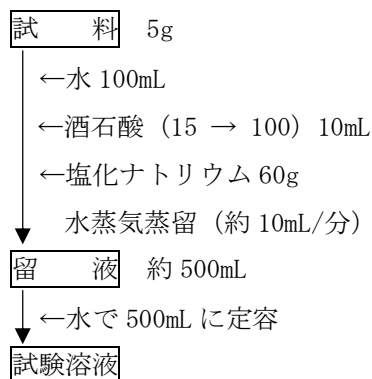


図1 パラオキシ安息香酸エステル類の分析法 (水蒸気蒸留法)

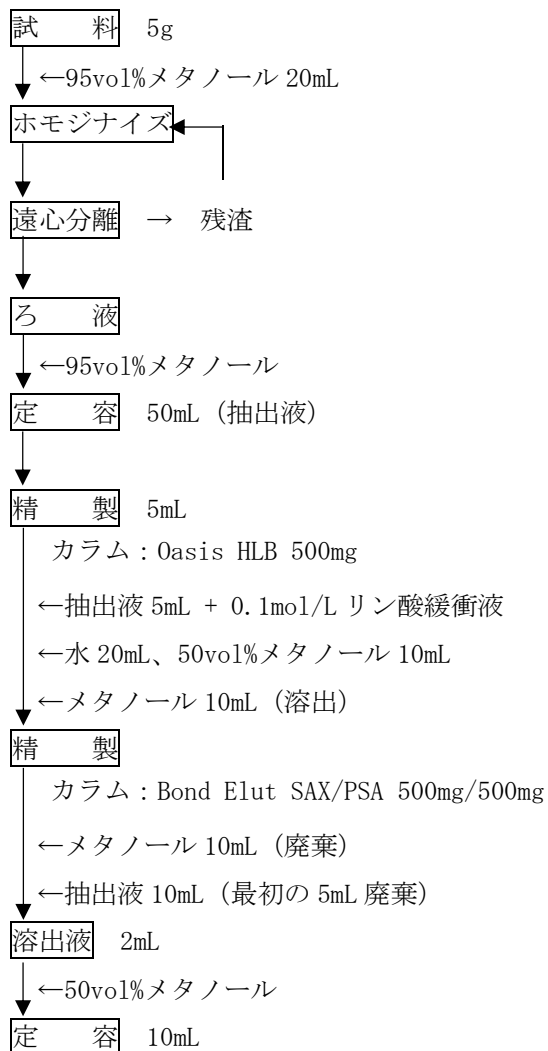


図2 パラオキシ安息香酸エステル類の分析法 (溶媒抽出法)

## 2-5 添加回収試験及び検出限界、定量限界

各群の混合群試料の1つに対し、1群は50 $\mu\text{g/g}$ 、2~7群は100 $\mu\text{g/g}$ となるように混合標準液を添加し、3併行で添加回収試験を行った。なお、本法における検出限界は、日本産業規格 JIS K 0124:2011 高速液体クロマトグラフィー通則に従い、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した。定量限界は、検出限界の5倍とした。

表3 装置及び分析条件

HPLC 条件	
装置	: Waters 社製 Acquity Arc
カラム	: Tskgel ODS-80TSQA 4.6 $\times$ 150mm, 5 $\mu\text{m}$
移動相	: メタノール・水・0.2mol/L リン酸緩衝液 (pH4.0) (12:7:1)
流速	: 1.0mL/min
カラム温度	: 40 $^{\circ}\text{C}$
注入量	: 20 $\mu\text{L}$
PDA 検出器条件	
装置	: 2998 PDA Detector
測定波長	: 190nm-400nm
検出波長	: 260nm

表4 パラオキシ安息香酸エチルの食品群別の添加回収率、検出限界及び定量限界

	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 ( $\mu\text{g/g}$ )	0.423	0.845	0.845	0.845	0.845	0.845	0.845
定量下限 ( $\mu\text{g/g}$ )	2.11	4.23	4.23	4.23	4.23	4.23	4.23
回収率 (%)	72.7	70.2	90.8	91.3	86.7	86.7	84.8

## 3. 結果

### 3-1 添加回収試験及び検出限界、定量限界

パラオキシ安息香酸エステル類の混合標準液 (1 $\mu\text{g/mL}$ ) を測定したクロマトグラムを図3に、添加回収試験の測定結果及び検出限界、定量限界をそれぞれ表4~表8に示す。

回収率は70.2~96.1%と良好であった。

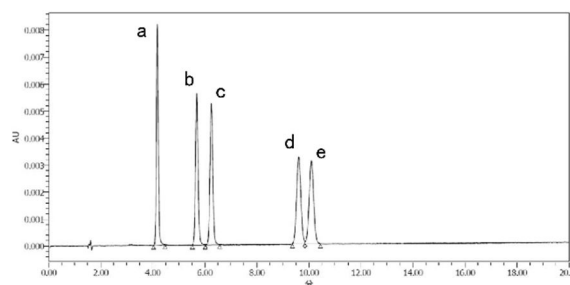


図3 混合標準液 (1 $\mu\text{g/mL}$ ) におけるクロマトグラム

a: パラオキシ安息香酸エチル、b: パラオキシ安息香酸イソプロピル、c: パラオキシ安息香酸プロピル、d: パラオキシ安息香酸イソブチル、e: パラオキシ安息香酸ブチル

### 3-2 測定結果

本調査ではパラオキシ安息香酸エステル類の表示がある食品がなく、表示群試料に該当する食品がなかったため、混合群試料のみを分析した。その結果、いずれの混合群試料においても、パラオキシ安息香酸エステル類は定量限界未満であった。

表5 パラオキシ安息香酸イソプロピルの食品群別の添加回収率、検出限界及び定量限界

	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 (µg/g)	0.593	1.19	1.19	1.19	1.19	1.19	1.19
定量下限 (µg/g)	2.97	5.93	5.93	5.93	5.93	5.93	5.93
回収率(%)	96.1	94.5	91.9	91.4	87.1	86.2	96.0

表6 パラオキシ安息香酸プロピルの食品群別の添加回収率、検出限界及び定量限界

	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 (µg/g)	0.510	1.02	1.02	1.02	1.02	1.02	1.02
定量下限 (µg/g)	2.55	5.10	5.10	5.10	5.10	5.10	5.10
回収率(%)	91.3	86.3	91.3	92.1	87.1	86.4	93.9

表7 パラオキシ安息香酸イソブチルの食品群別の添加回収率、検出限界及び定量限界

	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 (µg/g)	0.471	0.942	0.942	0.942	0.942	0.942	0.942
定量下限 (µg/g)	2.36	4.71	4.71	4.71	4.71	4.71	4.71
回収率(%)	89.6	87.3	89.5	92.0	83.6	85.7	91.1

表8 パラオキシ安息香酸ブチルの食品群別の添加回収率、検出限界及び定量限界

	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 (µg/g)	0.556	1.11	1.11	1.11	1.11	1.11	1.11
定量下限 (µg/g)	2.78	5.56	5.56	5.56	5.56	5.56	5.56
回収率(%)	90.0	83.4	91.1	92.2	85.2	86.1	91.5

#### 4. 結 語

混合群試料の測定結果より成人（20 歳以上）1 人当たりの各パラオキシ安息香酸エステル類の一日摂取量を算出したところ、0 mg/人/日であった。

このことから、保存料として、しょう油、酢、清涼飲料水等に使用が認められているパラオキシ安息香酸エステル類は、日本人の食生活において、ほとんど摂取されていないと考えられる。

#### 5. 文 献

- 1) 「食品中の食品添加物分析法」の改正について(令和元年 6 月 28 日付け 薬生食基発 0628 第 1 号、薬生食監発 0628 第 1 号 厚生労働省医薬・生活衛生局食品基準審査課長、厚生労働省医薬・生活衛生局食品監視安全課長通知により改正)