

マーケットバスケット方式による BHT, BHA, 没食子酸プロピルの摂取量調査 — 2021 年度 — *

仲眞弘樹・喜屋武千早

Studies on Daily Intake of BHT, BHA and Propyl Gallate by Market Basket Method (FY 2021)*

Hiroki NAKAMA and Chihaya KYAN

要旨: 国立医薬品食品衛生研究所及び7つの地方衛生研究所の共同研究「食品添加物の一日摂取量調査」の一環として、酸化防止剤ジブチルヒドロキシトルエン (BHT), ブチルヒドロキシアニソール (BHA), 没食子酸プロピルの調査を行った。マーケットバスケット試料を調査した結果、成人における BHT の一日摂取量は 0.0073 mg/人となった。BHA, 没食子酸プロピルは全ての試料で定量限界以下となった。

Abstract: Daily intakes of artificial antioxidants, butylated hydroxytoluene (BHT), butylated hydroxyanisole (BHA) and propyl gallate were studied as a part of the collaborative research, studies of daily intake of food additives with National Institute of Health Sciences and seven local public health institutes in fiscal year 2021. The market basket samples were analyzed. The concentrations of BHA and propyl gallate of all samples were lower than quantification limits. The daily intake of BHT on adults was estimated at 0.0073 mg/person.

Key words: 食品添加物 food additive, 酸化防止剤 antioxidant, ジブチルヒドロキシトルエン butylated hydroxytoluene, ブチルヒドロキシアニソール butylated hydroxyanisole, 没食子酸プロピル propyl gallate, マーケットバスケット方式 market basket method, 一日摂取量 daily intake

I はじめに

マーケットバスケット方式による食品添加物の一日摂取量調査は厚生省食品化学課, 国立衛生試験所大阪支所が中心となって 1981 年度から継続実施されており, 2000 年度から 2 年間の中断を経た後, 2002 年度より, 厚生労働省食品保健部基準課の事業として国立医薬品食品衛生研究所 (以下, 「国立衛研」という.) 及び6つの地方衛生研究所が参加して再開された。2006 年度に食品リストが改められ特定保健食品が追加されたが, 2010 年度に廃止され, 現行の食品リストになった。2021 年度は国立衛研と7つの地方衛生研究所が参加して行われた。

2021 年度は酸化防止剤, 防かび剤, 製造用剤, 結着剤の一日摂取量調査を実施し, 沖縄県は酸化防止剤であるジブチルヒドロキシトルエン (BHT), ブチルヒドロキシアニソール (BHA), 没食子酸プロピルを担当した。

BHT は酸化防止剤としてプラスチック等に含まれており, これまでの調査で試験に用いるプラスチック製品からの溶出と, 濃縮段階での揮発による散逸が指摘されていたが^{1,2)}, 当研究所において試験法が見直され既報に報告されている³⁾。これらをもとに BHT, BHA, 没食子酸プロピルの一日摂取量を求めたので報告する。

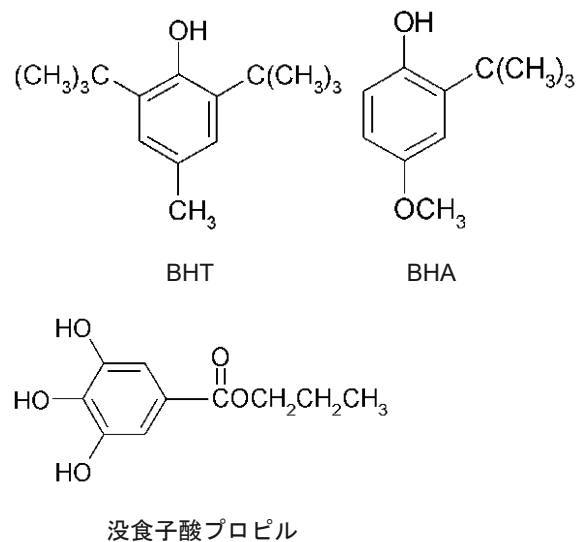


図 1. BHT, BHA, 没食子酸プロピルの構造式。

II 方法

1. 参加機関

国立衛研, 札幌市衛生研究所, 仙台市衛生研究所, 東京都建康安全研究センター, 広島県立総合技術研究所保

*本研究は「食品等試験検査費 (厚生労働省) 食品添加物一日摂取量調査等研究」によって実施した。

健康環境センター，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

2. 試料

混合群別試料の調製は，独立行政法人国立健康・栄養研究所のデータに基づき，国立衛研が作成した成人における食品分別リストを元に行った．使用した食品数は189，製品の総数は286で，これを表1に示した7つの食品群に分類した．各群の食品は，東京都健康安全研究センターと広島県立総合技術研究所保健環境センターを除く6機関が地元で購入し，それぞれの食品の規定量を採取して1群はそのまま，2～7群は同量の水を加えて，ミキサーで食品群ごとに混合均一化した後，プラスチック容器に小分けし，-20℃で保存した．また，試料購入の際，表示に調査対象項目がある製品については，混合用試料とは別に購入して個別試料とし，それぞれ担当機関に送付した．なお，個別試料の中に，BHT，BHA，没食子酸プロピルの表示がある製品はなかった．

表1. 食品群の分類とその数.

食品群	食品数	品目数
1群 調味嗜好飲料	41	63
2群 穀類	27	40
3群 いも類	7	13
豆類	16	18
種実類	5	5
4群 魚介類	12	18
肉類	4	8
卵類	1	3
5群 油脂類	9	11
乳類	14	26
6群 砂糖類	4	4
菓子類	23	51
7群 果実類	3	3
野菜類	20	20
海藻類	3	3
総計	189	286

3. 試薬

標準品として，関東化学(株)製のBHT標準品，BHA標準品，没食子酸プロピル標準品を用いた．C18カートリッジカラムはWaters製SepPak Vac 3 cc (500 mg)を用いた．試薬は既報³⁾に従い，アセトニトリル，メタノール，蒸留水については高速液体クロマトグラフ用を，

エタノール，2-プロパノール，無水硫酸ナトリウムについては残留農薬測定用を用いた．

4. 前処理

既報³⁾に従い前処理を行った．処理法を図2に示す．

5. 測定条件

定量は，没食子酸プロピルについてはHPLC/PDA(ダイオードアレイ検出器)を，BHT及びBHAについてはGC/MSを用いた．HPLC，GC/MSの分析条件を表2及び表3に，標準液のクロマトグラムを図3に示した．

6. 定量限界

本分析法による定量限界を日本工業規格(JIS)高速液体クロマトグラフィー通則に従い，標準溶液の繰り返し測定により求めたところ，BHTは0.003 µg/g，BHAは0.006 µg/gとなった(3群及び7群はその2倍の濃度)．没食子酸プロピルは1群，2群及び4群で0.23 µg/g，3群及び7群で0.28 µg/g，5群及び6群で0.14 µg/gとなった．

III 結果

1. 添加回収試験

各混合群試料にBHT及びBHAをそれぞれ1 µg/g，没食子酸プロピルを10 µg/gになるように添加し，他試料と同様に前処理を行い分析した(n=3)．各々の添加回収試験結果を表4にまとめた．BHTの1群～7群の添加回収率は74.2%～88.2%，没食子酸プロピルは87.6%～110.3%で概ね良好な結果であった．

一方，BHAの添加回収率は1群～6群で76.8%～106.9%と良好な結果であったが，7群では55.0%と低い回収率となった．7群試料について，固相抽出カラムによる精製操作の間に，添加したBHAの2割以上が失われることを確認した．このことから，BHAの一部が7群試料中の成分の影響によって固相カラム内で損失，または，保持されたままの状態となり，これらが低回収率の原因となった可能性がある．

なお，測定対象添加物である酸化防止剤は，食品に添加するとそれ自身が酸化され，添加液をなじませる時間を置くと添加回収率が低くなることから，今回は添加液を添加後，すぐに混合して抽出作業を始めた．

2. 食品群別含有量及び一日摂取量

BHTは2～7群の混合群試料から微量検出された．各

試料 5.0 g (2~7 群試料は希釈後)

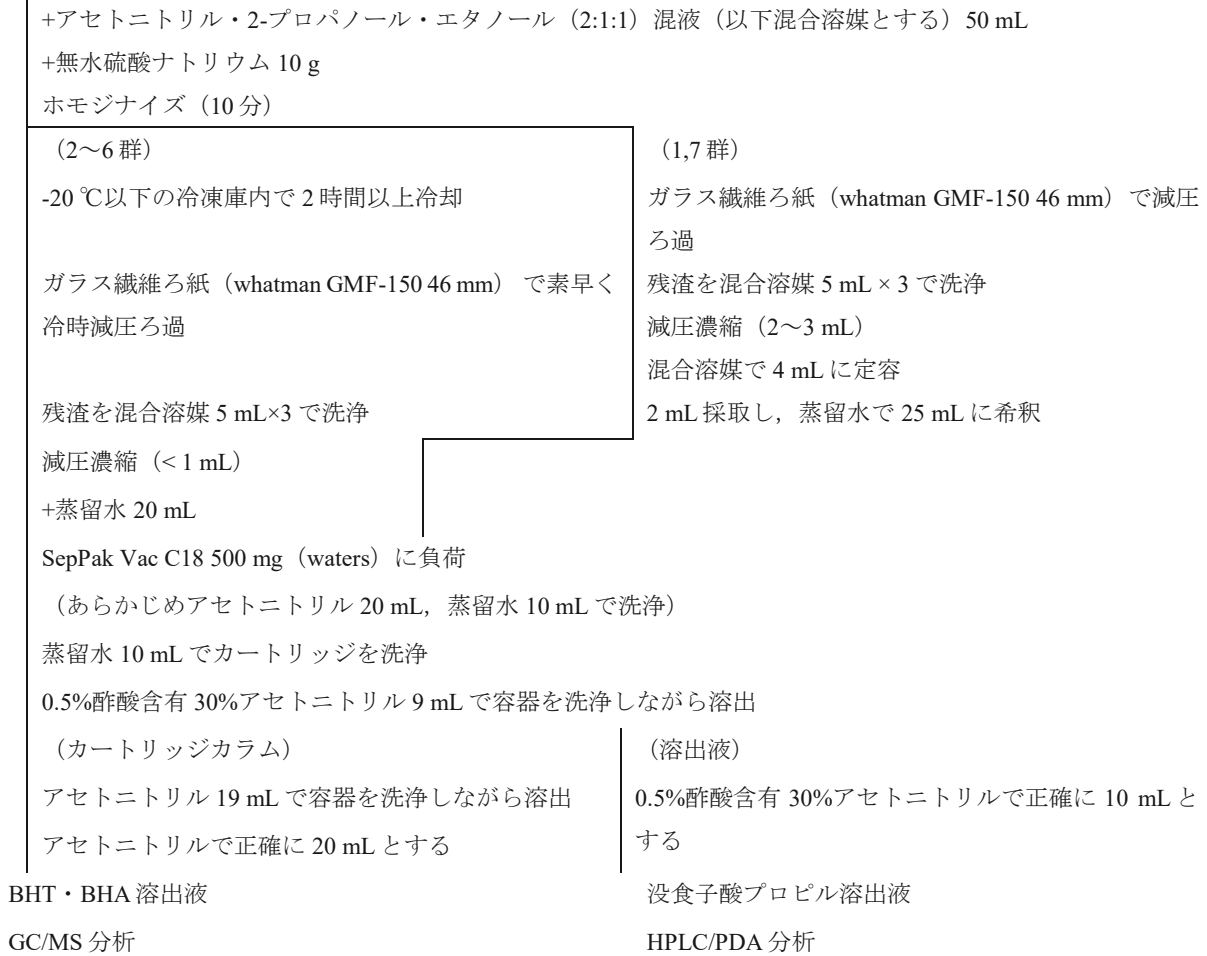


図 2. BHT, BHA, 没食子酸プロピル分析フローチャート.

表 2. HPLC 測定条件.

機種: SHIMADZU NexeraX2 series
PDA 検出器: SPD-M30A
カラム: Inertsil ODS-2 (5 μm, 4.6 × 150 mm)
移動層: A 液: 5%酢酸
B 液: アセトニトリル・メタノール混液 (1 : 1)
A 液・B 液混液 (7 : 3)
流速: 1.0 mL/分 温度: 40 °C
測定波長: 280 nm, 310 nm
注入量: 20 μL

表 3. GC/MS 測定条件.

機種: Agilent 7890B GC/5977A MSD
カラム: HP-5MS (30 m × 0.25 mm, 膜厚 0.25 μm)
注入口温度: 250 °C 検出器温度: 250 °C
カラム温度: 100 °C-25 °C/分-250 °C (15分)
キャリアガス: He 0.9 mL/分
試料注入法: パルスドスプリットレス 注入量: 2 μL
モード: SIM 定量イオン m/z = 205(BHT) m/z = 165(BHA)
定性イオン m/z = 206, 220(BHT) m/z = 180,
137(BHA)

混合群の BHT 含有量を表 5 に示す. 含有量は 4 群 (魚介類・肉類・卵類) が最も高く, 次いで 6 群 (砂糖類・菓子類) が高い値を示した. 1 群 (調味嗜好飲料) はすべての機関で定量限界未満となった.

BHA, 没食子酸プロピルはいずれの混合群試料も定量限界未満となった.

混合群試料の含有量から成人の BHT の一日摂取量を算出し, 表 6 にまとめた. BHT の成人の一日総摂取量平均値は 0.0073 mg/人/日となった. BHT 摂取量で最も寄与率の高い食品群は 4 群であり, 全体の 61% を占めた.

BHA, 没食子酸プロピルはいずれの混合群試料も定量限界未満であったため, それぞれ 0 mg/人/日としている.

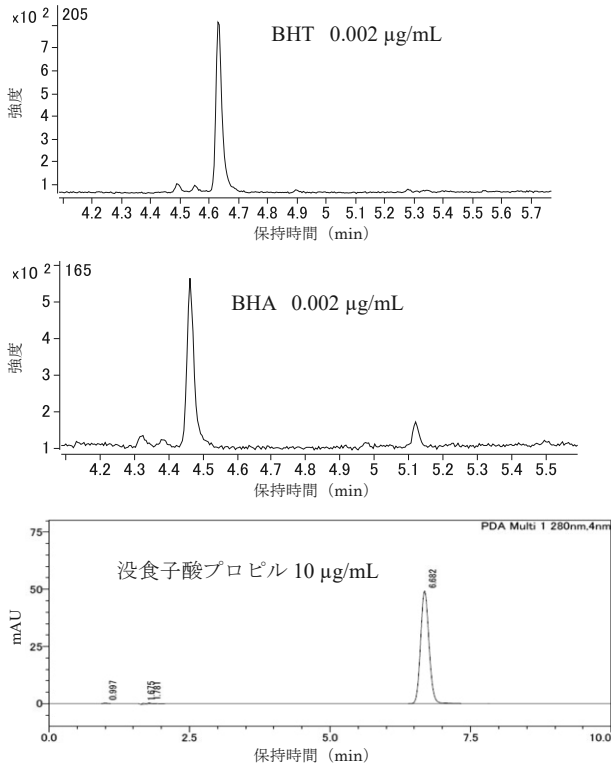


図 3. BHT, BHA 標準品 (0.002 µg/mL) の GC/MS クロマトグラム (上, 中) 及び没食子酸プロピル標準品 (10 µg/mL) の HPLC/PDA クロマトグラム (下).

表 4. BHT, BHA, 没食子酸プロピルの添加回収試験の結果 (n = 3) . 単位: %

添加物 名称	食品群						
	1群	2群	3群	4群	5群	6群	7群
BHT	77.5	74.2	88.2	87.5	77.9	82.8	78.7
BHA	83.7	76.8	106.9	86.1	96.9	87.2	55.0
没食子酸 プロピル	91.5	96.7	110.3	95.9	87.6	99.9	96.9

IV 考察

1. 成人における摂取量の推移

成人における BHT, BHA, 没食子酸プロピルの一日摂取量の推移を表 7 に示す²⁻⁷⁾. BHT, BHA については測定感度の影響が大きいため, 測定機器が GC/MS に変わった 1994 年度以降の結果について示した.

BHT の摂取量は前回の 2017 年度調査と比較して若干低い数値となった. 2008 年度以降の調査では, BHT が添加物として表示された個別食品はなく, 2004 年度は表示された個別食品があるものの, 個別食品からの摂取量が混合群試料から求めたものと比較して極めて低いことが判明している. BHT は食品添加物として使用される

ほか, 石油製品やプラスチック等の安定剤として用いられていることから, 試料から検出された BHT の由来は, ①食品容器・包装等からの溶出, ②加工助剤やキャリアオーバーとして食品中に残存, ③添加物として使用しているにも関わらず表示がされていない (表示違反) などが考えられる. BHA の摂取量に関しては, 4 群試料の一つが異常に高い含有量を示した 2004 年度を除き, 低水準で移行しており, 今回も 0 mg となった. 2004 年度から測定を始めた没食子酸プロピルも前回に引き続き摂取量 0 mg となった.

2. 年齢層別一日摂取量

BHT の一日摂取量の計算上求められる年代別比較を表 8 に示す. なお, 各年代の喫食量は独立行政法人国立健康・栄養研究所のデータに基づき, 国立衛研が作成したリスト (表 9) を用いて算出した.

BHT の結果について, 今回の結果から計算した年代別の一日摂取量では, 1-6 歳の摂取量が最も低く, 他の年代では差が見られなかった. 1-6 歳の摂取量が低いのは, BHT の含有量が最も多い第 4 群, その次に多い第 2 群の群別喫食量が, 他の年代と比べて少ないためである.

BHA, 没食子酸プロピルについては, いずれの混合群試料も定量限界未満であったため, すべて 0 mg/人/日となった.

3. 一日摂取許容量 (ADI) との比較

今回の調査で得られた一日摂取量を, 一日摂取許容量と比較した. JECFA の一日許容摂取量⁸⁾は, 体重 1 kg あたりの ADI (mg/kg 体重/日) であるため, 日本の成人の平均体重を 58.6 kg とし, 大人一人あたり (mg/人/日) に換算し, 比較した.

BHT の ADI は 0.3 mg/kg 体重/日, BHA の ADI は 0.5 mg/kg 体重/日, 没食子酸プロピルの ADI は 1.4 mg/kg 体重/日であり, 成人の平均体重 58.6 kg に対する一日許容摂取量はそれぞれ約 18 mg, 29 mg, 82 mg となる. 本調査で求めた成人における BHT の一日摂取量 0.0073 mg は, ADI のおよそ 0.04% で, ADI と比較して十分に低く, また BHA と没食子酸プロピルでは 0 mg であることから, いずれも人の健康に影響を及ぼす量ではないと言える.

V まとめ

マーケットバスケット調査により酸化防止剤である BHT, BHA, 没食子酸プロピルの一日摂取量を調査した. BHT は 2-7 群の混合群試料から検出され, 成人の一日

表 5. 食品群別の BHT 含有量.

単位：μg/g

機関	食品群						
	1 群 調味 嗜好飲料	2 群 穀類	3 群 いも類・ 豆類・ 種実類	4 群 魚介類・ 肉類・ 卵類	5 群 油脂類・ 乳類	6 群 砂糖類・ 菓子類	7 群 果実類・ 野菜類・ 海藻類
A	ND*	0.008	ND	0.004	0.005	0.017	ND
B	ND	0.005	ND	0.412	0.006	0.017	ND
C	ND	0.003	0.007	0.062	0.008	0.120	ND
D	ND	0.005	0.008	0.051	0.010	0.014	ND
E	ND	0.005	0.009	0.020	0.007	0.022	0.009
F	ND	0.010	ND	0.067	0.006	0.045	ND
平均値	0	0.006	0.004	0.103	0.007	0.039	0.002

*NDは定量限界値（1,2,4,5,6群 0.003 μg/g, 3,7群 0.007 μg/g）未満を示す。また、平均値を算出する際には、ND=0として計算上扱った。

表 6. 成人における食品群別 BHT 一日摂取量.

単位：mg/人/日

機関	食品群							総摂取量
	1 群 調味 嗜好飲料	2 群 穀類	3 群 いも類・ 豆類・ 種実類	4 群 魚介類・ 肉類・ 卵類	5 群 油脂類・ 乳類	6 群 砂糖類・ 菓子類	7 群 果実類・ 野菜類・ 海藻類	
A	0	0.00095	0	0.00016	0.00030	0.00051	0	0.00192
B	0	0.00056	0	0.01788	0.00036	0.00050	0	0.01929
C	0	0.00040	0.00084	0.00268	0.00052	0.00359	0	0.00802
D	0	0.00054	0.00098	0.00219	0.00062	0.00043	0	0.00477
E	0	0.00056	0.00109	0.00089	0.00045	0.00065	0.00023	0.00386
F	0	0.00116	0	0.00289	0.00040	0.00136	0	0.00581
平均値	0	0.00070	0.00049	0.00445	0.00044	0.00117	0.00004	0.00728

表 7. 成人における BHT, BHA, 没食子酸プロピルの一日摂取量の推移.

単位：mg/人/日

添加物名称	1994	1997	2004	2008	2013	2017	2021
BHT	0.066	0.013	0.051(0.001)* ¹	0.0077	0.0074	0.0093	0.0073
BHA	0.002	0	0.058(0.002)	0	0	0	0
没食子酸 プロピル	—* ²	—	0	0	0	0	0

*¹かっこ内は個別食品からの摂取量を示す。 *²「—」は参照するデータがないことを示す。

表 8. BHT の一日摂取量の年代別比較.

単位：mg/人/日

全員	年代			
	1-6 歳	7-14 歳	15-16 歳	20 歳以上
0.0072	0.0054	0.0071	0.0074	0.0073

表9. 年代別における食品群別喫食量.

単位：g/日

食品群	全員	年代			
		1-6歳	7-14歳	15-19歳	20歳以上
1群	662.5	337.8	461.3	572.8	706.4
2群	120.6	84.8	134.0	129.8	120.3
3群	120.3	66.5	98.1	98.2	127.0
4群	41.9	25.8	35.6	41.3	43.4
5群	65.7	74.4	89.3	76.8	61.9
6群	31.6	38.2	41.0	36.4	29.9
7群	22.0	8.0	14.3	13.2	24.2

独立行政法人国立健康・栄養研究所のデータに基づき、国立衛研が作成したもの。

摂取量は0.0073 mg/人/日で、ADIと比較して十分に低い値であった。また、1歳以上の国民の一日摂取量は0.0072 mg/人/日と推定された。なお、今回採取された食品の中にBHTの表示のある食品は存在しなかった。

また、BHA、没食子酸プロピルについても表示のある食品は存在せず、いずれの混合群試料も定量限界未満であった。

7) 泉水由美子・高嶺朝典 (2018) マーケットバスケット方式によるBHT, BHA, 没食子酸プロピルの摂取量調査-2017年度-。沖縄県衛生環境研究所報, 52: 69-74.

8) 指定添加物(規則別表一)のJECFAによる安全性評価。日本食品化学研究振興財団ホームページ (<http://www.fcr.or.jp/tenka/secure/jecfa.html>)。2022年7月アクセス。

VI 参考文献

- 1) 厚生省生活環境局食品化学課 (1994) 平成3年度及び平成4年度食品添加物の一日摂取量調査に関する研究。324pp.
- 2) 古謝あゆ子・玉那覇康二 (2005) マーケットバスケット方式によるBHT, BHA, 没食子酸プロピルの摂取量調査。沖縄県衛生環境研究所報, 39: 121-127.
- 3) 古謝あゆ子・大城直雅・佐久川さつき・玉城宏幸 (2009) マーケットバスケット方式によるBHT, BHA, 没食子酸プロピルの摂取量調査-2008年度-。沖縄県衛生環境研究所報, 43: 119-124.
- 4) 食品添加物研究会編 (2001) 第3章各論I (マーケットバスケット調査対象食品添加物の摂取量)。あなたが食べている食品添加物, 日本食品添加物協会, 28-29.
- 5) 伊藤誉志男 (2007) 日本人の食品添加物の一日摂取量調査研究 マーケットバスケット方式 (25年間のまとめ)。Foods & food ingredients journal of Japan, Vol. 212, No.10, 2007: 815-839.
- 6) 仲間幸俊・古謝あゆ子・國仲奈津子・真保栄陽子 (2014) マーケットバスケット方式によるBHT, BHA, 没食子酸プロピルの摂取量調査-2013年度-。沖縄県衛生環境研究所報, 48: 78-82.