

高速液体クロマトグラフィーによる食品中のサッカリン、ソルビン酸、安息香酸、デヒドロ酢酸及び5種類のパラオキシ安息香酸エステル類の定量

宮本 文夫, 佐伯 政信

Determination of Saccharin, Sorbic Acid, Benzoic Acid, Dehydroacetic Acid and Five Esters of P-Hydroxybenzoic Acid in Foods by High-Performance Liquid Chromatography

Fumio MIYAMOTO and Masanobu SAEKI

I はじめに

サッカリン (SA) は甘味料として、ソルビン酸 (SOA)、安息香酸 (BA)、デヒドロ酢酸 (DHA) 及びパラオキシ安息香酸エステル類 (PHBA-Es) は保存料として種々の食品に使用が許可されている。行政検査において、これらの検査の占める割合は非常に大きいことから、簡便迅速かつ精度の良い分析法の開発が望まれている。

従来、上記の食品添加物の検査には紫外外部吸収スペクトル¹⁻³⁾やガスクロマトグラフィー^{1, 4, 5)}が用いられているが、SAが誘導体化を必要とするため操作が煩雑であり、また保存料と同時に分析することは困難である。近年、高速液体クロマトグラフィー (HPLC) の普及に伴い、甘味料や保存料のHPLC分析法⁶⁻¹⁵⁾が報告されているが、上記の9種の食品添加物全てについての分析例¹⁵⁾はほとんどなく、日常分析法として十分確立されているとはいえない。

今回、著者らは日常分析に適する甘味料及び保存料9種のHPLC分析法について検討し、若干の知見を得たので報告する。

II 実験方法

1. 試料

合成甘味料及び合成保存料の添加表示のない市販食品17種類 (農産加工品4種、水産加工品4種、畜産加工品4種、油脂及び調味料4種、嗜好飲料1種) を用いた。

2. 試薬及び試液

SA, SOA, BA, DHA, パラオキシ安息香酸エ

チル (PHBA-Et), パラオキシ安息香酸イソプロピル (PHBA-iso-Pr), パラオキシ安息香酸プロピル (PHBA-n-Pr), パラオキシ安息香酸イソブチル (PHBA-iso-Bu), パラオキシ安息香酸ブチル (PHBA-n-Bu): 東京化成工業(株)製, 特級

標準溶液: SA, SOA, BA, DHA, POBA-Es類の各100mgを精秤し, 50mlのメタノールでそれぞれ溶解した後水を加えて100mlとした。これを50%メタノールで用時希釈して標準溶液を作成した。

クエン酸緩衝液pH4.0: クエン酸 (1水和物) 7gとクエン酸ナトリウム (2水和物) 6gを水に溶解し1Lとし, これを水で10倍希釈して用いた (5mM)。

塩化セチルトリメチルアンモニウム (CTA): 東京化成工業(株)製, 特級

Sep-pak C₁₈ カートリッジ: ウォーターズ社製Sep-pak C₁₈ カートリッジをメタノール20ml, 水20ml及び5mM CTA溶液5mlで順次洗浄して用いた。

その他の試薬はいずれも試薬特級を用いた。

3. 装置

高速液体クロマトグラフ: 島津製作所製LC-3A

検出器: 島津製作所製紫外外部検出器SPD-2A

4. HPLC条件

カラム: Inertsil ODS-2, 4.6mmφ×150mm (ガスクロ工業製)

SA, SOA, BA, DHA用移動相, 検出波長及び感度: メタノール-クエン酸緩衝液 (25:75), 230nm, 0.04AUF S

PHBA-Es用移動相, 検出波長及び感度: メタノール-クエン酸緩衝液 (55:45), 254nm, 0.08AUF S
カラム温度: 40°C

流量: 0.8ml/min

注入量：20 μ l

5. 前処理方法の検討

次の3種の前処理方法について各食品添加物の添加回収率及び食品由来の妨害ピークの有無を検討した。

1) エーテル抽出法：試料10gを採取し、0.1Mホウ酸ナトリウム溶液20mlと水40mlを加え、5分間ホモジナイズした。これに2%リン酸10mlを加え、水で全量100mlとした後、遠心分離して上澄液を分取し、No.5 Aのろ紙でろ過した。ろ液20mlをとり、これに10%硫酸を加えてpH1以下とし、エチルエーテル50mlで2回振とう抽出した。エーテル層を合わせ、0.1%硫酸20mlで軽く洗浄した後、2%炭酸水素ナトリウム溶液20mlで2回振とう抽出し、水層を合わせてこれをA液とし、エーテル層をB液とした。

A液は10%硫酸を加えてpH1以下とし、エチルエーテル50mlで2回振とう抽出し、エーテル層を合わせた。次にエーテルを無水硫酸ナトリウムで脱水した後、40℃以下で減圧下で濃縮した。残渣を50%メタノール20mlに溶解し、これをSA、SOA、BA及びDHA用試験溶液とした。

B液は無水硫酸ナトリウムで脱水した後、40℃以下で減圧下で濃縮した。残渣を50%メタノール20mlに溶解し、これをPHBA-Es用試験溶液とした。

2) Sep-pak C₁₈ 処理法：試料10gを採取し、エーテル抽出法と同様に操作して水で全量を100mlとした後、遠心分離して上澄液を分取し、No.5 Aのろ紙でろ過した。ろ液10mlをとり、これに2N塩酸2ml及び5mMCTA溶液0.5mlを加え、Sep-pak C₁₈カートリッジに負荷した(流速2ml/min)。次に水10mlでカートリッジを洗浄した後、メタノール10mlで溶出し、溶出液を試験溶液とした。

3) 水蒸気蒸留法：試料12.5gを採取し、20%酒石酸20ml、塩化ナトリウム60g及び水100mlを加えた。試料をこげつかせない程度に蒸留フラスコを強く加熱しながら毎分約10mlの留出速度で水蒸気蒸留し、留液500mlをとり、これを試験溶液とした。

なお、つくだ煮等の高蛋白食品及びマーガリン等の高脂肪食品については試料20gに50%メタノールを加えてホモジナイズした後、50%メタノールで全量を200mlとした。遠心分離後、上澄液125mlを分取し、これに20%酒石酸20ml及び塩化ナトリウム60gを加え、水蒸気蒸留した。

III 結果及び考察

1. HPLC測定条件の検討

甘味料や保存料の多成分の測定には同時分析を目的としてグラジェント法^{11,10}あるいはイオンペアー法^{6,8,9,12,15}が用いられていることが多い。しかし、グラジェント法は分離カラムの再平衡化に時間がかかり、再現性も得にくい等の欠点がある。また、イオンペアー法はカラムの安定化に時間がかかり、カラムも劣化しやすい等の欠点がある。そこで、今回はグラジェントやカウンターイオンを使用しない測定条件を検討した。

分離カラムとしてInertsil ODS-2とFinepak SIL C₁₈を、移動相としてメタノールクエン酸緩衝液¹⁰系を用いて検討したところ、両カラムともこの系の移動相で9種の食品添加物全てを溶出させることができた。しかし、Finepak SIL C₁₈はいずれの食品添加物もピークがややブロードで、特にDHAはピークが著しくテーリングし、十分な検出感度が得られなかった。これに対し、Inertsil ODS-2はいずれの食品添加物もピークがシャープで、良好な検出感度が得られたことから、以下にこれについて検討を加えた。

9種の食品添加物を短時間で全て溶出できる移動相を調べたところ、メタノールクエン酸緩衝液(1:1)を用いた時、35分間で全成分が溶出できた。しかし、この移動相ではSA、SOA、BA及びDHAが早く溶出し、保持時間が近接しているため、これらの相互分離が困難であった。またPHBA-Es類については保持時間の長いPHBA-iso-BuとPHBA-n-Buの検出感度が低くなる欠点が見られた。

そこで、SA、SOA、BA及びDHAとPHBA-Es類を分けて2種の移動相で別々に測定することとした。SA、SOA、BA及びDHAについてはメタノールクエン酸緩衝液(25:75)を用いた時、各成分の相互分離が良好で、25分以内に全て溶出した。また、PHBA-Es類についてはメタノールクエン酸緩衝液(55:45)を用いた時、各成分の相互分離が良好で、20分以内に全て溶出した。検出波長はSA、SOA、BA及びDHAについてはこれらが同じような感度が得られる230nmとし、PHBA-Es類については極大吸収波長がいずれも254nm付近にあるため254nmとした。

本測定条件における各食品添加物の標準品のクロマトグラムをFig. 1に示した。

2. 他の甘味料及び保存料の共存の影響

甘味料及び保存料で紫外部検出器で検出される可能性のあるグリチルリチン酸、アスパルテーム、ズルチン、

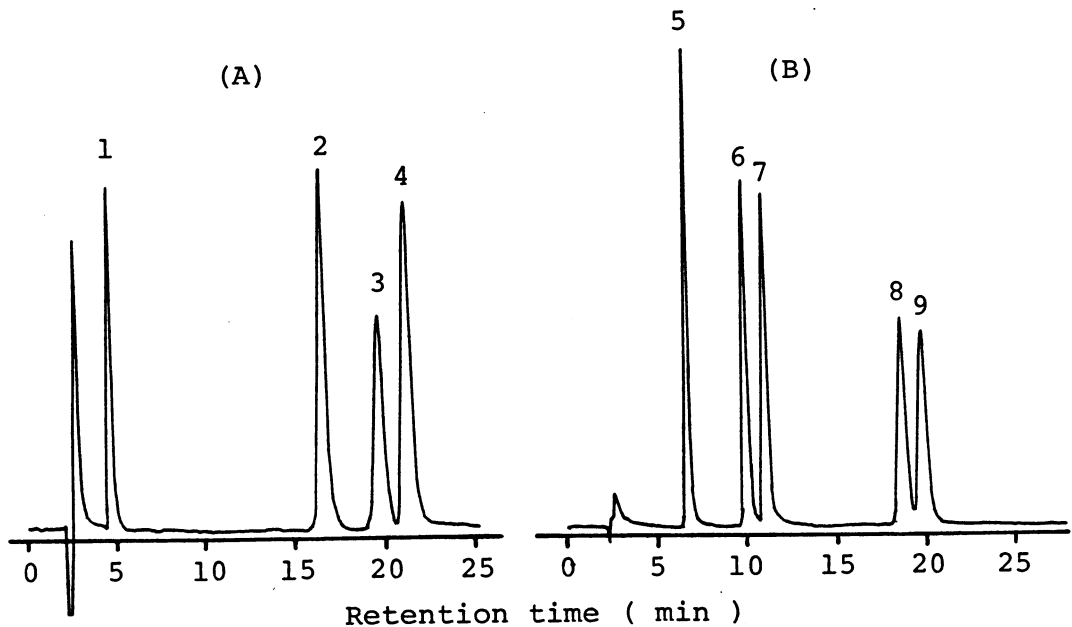


Fig. 1 Liquid chromatogram of the standard solution containing SA, SOA, BA, DHA, and five esters of PHBA

Peak-1 : SA, 2 : BA, 3 : DHA, 4 : SOA, 5 : PHBA-Et, 6 : PHBA-iso-Pr, 7 : PHBA-n-Pr, 8 : PHBA-iso-Bu, 9 : PHBA-n-Bu

Operating conditions-column : Inertsil ODS-2 (5 μ m, 4.6mm i.d. X 150mm), column temperature : 40°C, mobile phase : (A)methanol-5 mM citric acid buffer pH4.0 (25 : 75) and (B)methanol-5 mM citric acid buffer pH4.0 (55 : 45), flow rate : 0.8 ml/min, detection : (A)230nm (0.04 AUFS) and (B)254nm (0.08 AUFS), injection volume : 20 μ l

Concentration of each standard was 5 μ g/ml.

パラオキシ安息香酸、パラオキシ安息香酸メチルについて測定対象とした9種の食品添加物への影響を検討した。その結果、アスパルテーム、ズルチン及びパラオキシ安息香酸はSAとBAの間に溶出した。また、パラオキシ安息香酸メチルはSOAの後及びPHBA-Etの前に溶出し、グリチルリチン酸はPHBA-n-Buの後に溶出した。従って、上記の5種の食品添加物はいずれも測定対象の9種の食品添加物と分別でき、共存の影響は見られなかった。

3. 前処理方法の比較検討

食品からの甘味料及び保存料の抽出、精製法としてはエーテル抽出法^{1-3,5,10,11)}、Sep-pak C₁₈処理法^{6,8,12,13)}及び水蒸気蒸留法^{11,12,14)}等がある。食品中の甘味料及び保存料のHPLC分析での前処理方法についてはこれまで比較検討がなされておらず、どの前処理方法が最適か明確ではない。そこで、同一試料を用い上記の3種の前処理方法について比較検討を行った。

エーテル抽出法及びSep-pak C₁₈処理法について

は、油分の混入を避け、9種の食品添加物を分解することなく抽出できるよう0.1Mホウ酸ナトリウム溶液を用いて抽出した後、各々の精製操作を行った。

水蒸気蒸留法については、PHBA-Es類の回収率が食品によって非常に低くなる場合がある¹⁰⁾ため、PHBA-Es類の回収率の向上を目的に従来法¹⁾の試料量、試料の処理法及び蒸留条件に一部改良を加えた。Table 1に示したように改良法は従来法に比べPHBA-Es類の回収率が良好となったことから、比較検討にはこの改良した水蒸気蒸留法を用いることとした。

1) 添加回収率の比較

9種の食品にSA, SOA, BA及びDHAを、5種の食品にPHBA-Es類を各々100 μ g/gとなるように添加し、3種の前処理方法を用いて抽出、精製し、HPLC測定を行った。本回収実験に用いた食品は各食品添加物に対して妨害ピークの存在しないものを選定した。回収実験の結果をTable 2及び3に示した。

Table 1. Recoveries of Five Esters of PHBA from Foods by Original and Modified Steam Distillation Methods

Sample	Recovery (%)									
	PHBA-Et		PHBA-iso-Pr		PHBA-n-Pr		PHBA-iso-Bu		PHBA-n-Bu	
	O ^{a)}	M ^{a)}	O ^{a)}	M ^{a)}	O ^{a)}	M ^{a)}	O ^{a)}	M ^{a)}	O ^{a)}	M ^{a)}
Tsukudani	55.8	83.4	67.8	99.0	58.5	91.7	60.0	90.3	55.5	88.0
Boiled and dried sardine	52.6	96.9	62.8	101.0	49.0	97.9	51.2	97.6	44.6	96.2
Salad dressing	42.6	91.1	44.0	95.0	30.9	88.6	17.7	75.0	18.9	70.6
Margarin	29.7	98.1	29.0	96.0	19.7	89.1	16.0	70.9	12.8	67.2

Each compound was simultaneously added to each sample at the level of 100 μg/g.

a) O : original steam distillation method
M : modified steam distillation method

Table 2. Recoveries of SA, SOA, BA and DHA from Foods by Three Pretreatment Methods

Sample	Recovery (%)										
	SA		SOA			BA			DHA		
	I ^{a)}	II ^{a)}	I ^{a)}	II ^{a)}	III ^{a)}	I ^{a)}	II ^{a)}	III ^{a)}	I ^{a)}	II ^{a)}	III ^{a)}
Soy sauce	97.8	99.0	89.0	88.5	96.0	96.8	88.0	100.1	91.7	84.5	100.0
Orange juice	96.2	101.0	100.5	98.0	97.8	101.6	97.3	108.5	93.3	80.6	102.2
Tsukudani	90.6	92.2	92.6	82.8	96.3	91.5	83.0	98.1	89.9	78.1	99.2
Margarin	98.3	88.2	101.5	93.8	90.2	97.5	93.5	96.3	102.0	89.0	92.9
Fermented milk	91.4	94.1	99.8	90.5	93.7	103.1	94.2	107.8	92.9	81.4	98.1
Sausage	100.5	92.1	101.0	99.5	97.1	102.1	100.8	96.4	99.8	87.5	98.4
Cheese	92.2	83.3	98.1	96.2	93.3	96.4	108.5	88.0	95.7	77.7	89.7
Cream	90.5	85.8	99.3	88.6	96.2	98.5	88.9	94.2	92.4	85.4	96.7
Kamaboko	98.6	84.8	97.9	87.3	92.7	97.2	86.7	99.7	93.9	85.8	98.5

Each compound was simultaneously added to each sample at the level of 100 μg/g.

a) I : ether extraction method
II : Sep-pak C₁₈ method
III : steam distillation method

Table 3. Recoveries of Five Esters of PHBA from Foods by Three Pretreatment Methods

Sample	Recovery (%)														
	PHBA-Et			PHBA-iso-Pr			PHBA-n-Pr			PHBA-iso-Bu			PHBA-n-Bu		
	I ^{a)}	II ^{a)}	III ^{a)}	I ^{a)}	II ^{a)}	III ^{a)}	I ^{a)}	II ^{a)}	III ^{a)}	I ^{a)}	II ^{a)}	III ^{a)}	I ^{a)}	II ^{a)}	III ^{a)}
Soy sauce	98.4	78.9	92.0	97.9	82.5	95.8	97.8	81.7	96.5	95.7	84.7	95.8	97.2	87.2	95.3
Worcester sauce	90.8	96.9	94.1	88.2	97.3	95.8	88.1	97.3	97.8	85.6	93.6	94.4	85.1	95.1	94.2
Orange juice	98.8	98.1	96.9	98.0	98.4	101.3	97.4	98.4	100.9	96.9	97.5	101.9	97.0	97.8	102.8
Coffee drink	99.6	95.6	89.8	99.2	92.8	97.9	99.1	92.9	95.6	97.7	93.2	94.0	97.7	93.2	89.7
Tsukudani	99.3	75.1	87.0	100.0	67.0	97.5	100.5	60.9	92.7	100.0	59.3	90.4	99.1	57.6	89.3

Each compound was simultaneously added to each sample at the level of 100 μg/g.

a) See Table 2.

SA, SOA, BA及びDHAのエーテル抽出法による回収率は89.0~103.1%, Sep-pak C₁₈処理法による回収率は77.7~108.5%, SA, BA及びDHAの水蒸気蒸留法による回収率は90.2~108.5%であった。エーテル抽出法と水蒸気蒸留法は良好な回収率を示したが、Sep-pak C₁₈処理法は他の2法に比べやや低い回収率を示した。

PHBA-Es類のエーテル抽出法による回収率は85.1~100.5%, Sep-pak C₁₈処理法による回収率は57.6~

98.4%, 水蒸気蒸留法による回収率は87.0~102.8%で、SA, SOA, BA及びDHAの結果と同様、Sep-pak C₁₈処理法が他の2法に比べやや低い回収率を示した。

2) 食品由来の妨害ピークの存在状態の比較

Sep-pak C₁₈処理法で夾雑ピークが多く観察された6種の食品について3種の前処理方法で抽出、精製し、HPLC測定を行い、各食品添加物に対する妨害ピークの存在の有無を調べた。結果をTable 4及び5に示した。

Table 4. Comparison of Three Pretreatment Methods for the Effect of Interfering Substances Originated from Foods on the Determination of SA, SOA, BA and DHA

Sample	SA		SOA			BA			DHA		
	I ^{a)}	II ^{a)}	I ^{a)}	II ^{a)}	III ^{a)}	I ^{a)}	II ^{a)}	III ^{a)}	I ^{a)}	II ^{a)}	III ^{a)}
Soy sauce	○ ^{b)}	△ ^{b)}	○	○	○	○	○	○	○	○	○
Worcester sauce	○	△	○	○	○	○	○	○	○	○	○
Red wine	○	△	○	○	○	○	○	○	○	○	○
Soybean paste	○	△	○	○	○	○	○	○	○	×	○
Peanuts butter	△	×	○	○	○	○	○	○	○	○	○
Peel of lemon	○	×	△	△	○	○	×	○	×	×	○

a) I : ether extraction method

II : Sep-pak C₁₈ method

III : steam distillation method

b) ○ : absence of peak originated from food in the retention time of measuring compound and the neighborhood

△ : presence of peak originated from food in the neighborhood of the retention time of measuring compound

×

Table 5. Comparison of Three Pretreatment Methods for the Effect of Interfering Substances Originated from Foods on the Determination of Five Esters of PHBA

Sample	PHBA-Et			PHBA-iso-Pr			PHBA-n-Pr			PHBA-iso-Bu			PHBA-n-Bu		
	I ^{a)}	II ^{a)}	III ^{a)}	I ^{a)}	II ^{a)}	III ^{a)}	I ^{a)}	II ^{a)}	III ^{a)}	I ^{a)}	II ^{a)}	III ^{a)}	I ^{a)}	II ^{a)}	III ^{a)}
Soy sauce	○ ^{b)}	△ ^{b)}	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
Worcester sauce	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
Red wine	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
Soybean paste	○	×	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
Peanuts butter	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
Peel of lemon	○	△	○	○	○	○	△	△	△	×	×	×	○	○	○

a) See Table 4.

b) See Table 4.

SA, SOA, BA及びDHAの測定ではエーテル抽出法でレモン果皮に、Sep-pak C₁₈処理法で味噌、ピーナッツバター、レモン果皮に妨害ピークの存在が認められた。SOA, BA及びDHAの水蒸気蒸留法での測定では、いずれの食品においても妨害ピークは存在しなかった。

PHBA-Es類の測定ではエーテル抽出法でレモン果

皮、Sep-pak C₁₈処理法で味噌とレモン果皮、水蒸気蒸留法でレモン果皮に妨害ピークの存在が認められた。

以上の比較検討結果から、HPLC測定に最も適した前処理方法は水蒸気蒸留法であり、次がエーテル抽出法、Sep-pak C₁₈処理法の順であることがわかった。しかし、水蒸気蒸留法はSAの抽出ができないことから、9

種の食品添加物を同時に抽出し測定する時は、エーテル抽出法で行い、SA以外の食品添加物に対し妨害ピークが存在する可能性が高い場合には、水蒸気蒸留を行い、再度測定すれば良いものと考えられる。

なお、エーテル抽出法におけるSAの測定において、ピーナツバターにSAの保持時間に近接した位置に大きな夾雑ピークが存在していたため、過マンガン酸カリウム処理³⁾による夾雑ピークの除去も検討した。その結果、夾雑ピークのほとんどない良好なクロマトグラムが得られ、過マンガン酸カリウム処理の有効性が確認された。エーテル抽出法でSAに対し妨害ピークが存在する可能性が高い場合は、過マンガン酸カリウム処理を追加し、再度測定すれば良いものと考えられる。

IV まとめ

食品中のSA, SOA, BA, DHA及び5種のPHBA-Es類のHPLC分析法について検討し、以下の結果を得た。

1. 分離カラムとしてInertsil ODS-2を用い、SA, SOA, BA及びDHAには移動相としてメタノールクエン酸緩衝液(25:75)を、PHBA-Es類にはメタノールクエン酸緩衝液(55:45)を用いることにより各食品添加物を25分以内で良好に分離することができた。

2. グリチルリチン酸、パラオキシ安息香酸等の5種の甘味料及び保存料はいずれも測定対象とした9種の食品添加物と分別でき、共存の影響は見られなかった。

3. 3種の前処理方法について各食品添加物の食品からの回収率及び食品由来の妨害ピークの存在状態を比較した結果、HPLC測定に最も適した方法は水蒸気蒸留法であり、次がエーテル抽出法、Sep-pak C₁₈処理法の順であった。しかし、水蒸気蒸留法はSAの測定が困難であるため、9種の食品添加物を同時に抽出、測定する時はエーテル抽出法を用い、必要に応じて水蒸気蒸留法を用いれば良いものと考えられる。

文献

- 1) 日本薬学会編(1990): 衛生試験法・注解, 金原出版(東京), pp. 445-451.
- 2) 宮本文夫, 佐伯政信(1983): 紫外外部吸光法による食品中の合成保存料の定量, 千葉衛研報告, 7, 40-44.
- 3) 永田知子, 宮本文夫, 佐伯政信(1982): 食品中の

- 4) サッカリンナトリウムの定量法, 千葉衛研報告, 6, 45-47.
- 4) 日本薬学会編(1990): 衛生試験法・注解, 金原出版(東京), pp. 493-495.
- 5) 厚生省生活衛生局監修(1989): 食品衛生検査指針・食品中の食品添加物分析法, 日本食品衛生協会(東京), pp. 14-32, 190-195.
- 6) 寺田久屋, 久田和夫, 丸山吉正, 坂部美雄(1983): 食品中のサッカリン, 安息香酸, ソルビン酸の定量におけるイオンペアクロマトグラフィーの応用について, 衛生化学, 29, 297-302.
- 7) 村上千秋, 丸山武紀(1985): 高速液体クロマトグラフィーによるマーガリン中の安息香酸, ソルビン酸及びデヒドロ酢酸の定量, 食衛誌, 26, 385-388.
- 8) 松永明信, 大戸幹也, 山本敦, 斉藤行雄, 牧野正雄(1986): 高速液体クロマトグラフィーによる食品中のサッカリンナトリウム及びグリチルリチンの定量, 食衛誌, 27, 408-412.
- 9) 守安貴子, 斉藤和夫, 中里光男, 菊地洋子, 藤沼賢司, 二島太郎(1989): 清涼飲料水中のアセスルファミンK, サッカリン及びアスパルテムの同時分析法, 食衛誌, 30, 164-169.
- 10) 高津和弘, 大橋敏夫, 鳥海正次, 杉山茂, 江成郁夫, 金子増夫, 鮎瀬良一郎, 臼井進, 平川俊昭(1989): 高速液体クロマトグラフィーを用いた合成保存料・合成甘味料同時検査法の検討, 食品衛生研究, 39, 11号, 59-63.
- 11) 北田善三, 玉瀬喜久雄, 佐々木美智子, 西川喜孝, 谷川薫(1980): 高速液体クロマトグラフィーによるしょうゆ中のサッカリン, 安息香酸, パラオキシ安息香酸エステル類の分析, 食衛誌, 21, 480-484.
- 12) 松永明信, 山本敦, 牧野正雄(1985): アイソクラティック高速液体クロマトグラフィーによる液体食品中のサッカリン, ソルビン酸, 安息香酸及び5種類のパラオキシ安息香酸エステルの一斉分析法, 衛生化学, 31, 269-273.
- 13) 小林加代子, 辻澄子, 外海泰秀, 伊藤誓志男(1986): HPLCによる液体食品中のサッカリン, 安息香酸, ソルビン酸及び6種類のパラオキシ安息香酸エステル類の迅速一斉分析法, 日食工誌, 33, 514-518.
- 14) 西山良子, 田村行弘, 井部明広, 中里光男, 上村尚, 田端節子, 橋本秀樹, 斉藤和夫, 菊地洋子, 藤沼賢司, 二島太郎(1987): 高速液体クロマトグラフィーによる保存料の同時分析について, 東京都衛研年報, 38, 198-202.

高速液体クロマトグラフィーによる食品中のサッカリン，ソルビン酸，安息香酸，デヒドロ酢酸及び5種類のパラオキシ安息香酸エステル類の定量

15) Ikai, Y., OKA, H., Kawamura, N. and Yamada, M. (1988) : Simultaneous determination of nine food additives using high performance liquid chromatography, J. Chromatography, 457, 333-343.

16) 加藤文夫，加藤由美，大沢テイ子，井上康子，関俊彦 (1987) : 食品添加物の一日摂取量調査 (第8報) -加工食品中のパラオキシ安息香酸エステル類-，仙台市衛生試験所報，17， 263-269.