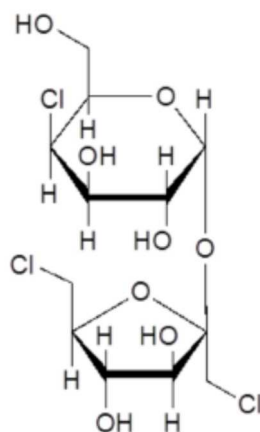


甘味料

スクラロース

Sucralose

別名：トリクロロガラクトスクロース



$C_{12}H_{19}Cl_3O_8$: 397.63

1. 分析法の概要

食品中のスクラロースは、透析法により抽出した後、ポリマー固相抽出カラムで精製し、液体クロマトグラフィーにより定量する。(2023年設定)

2. 分析法¹⁾ (液体クロマトグラフィー)

(1) 検体の採取と試料の調製

一般試料採取法を準用する。

(2) 試験溶液の調製

① 透析

試料約 20 g²⁾ を精密に量る³⁾。次に約 20 mL⁴⁾ の透析内液と混和して流動状とし、少量の透析内液を用いて透析膜チューブ内に移した後、空気を追い出してからチューブの上端を密封し、200 mL 容の目盛り付き容器⁵⁾ に入れる。次いでこの目盛り付き容器に透析外液を加えて全量⁶⁾ を正確に 200 mL とする。時々、密栓又はフィルム等で覆って目盛り付き容器内を混和しながら室温で 24～48 時間透析し⁷⁾、透析終了後の透析外液を抽出液とする。

② カラムによる精製

抽出液 50 mL を正確にとり、ポリマー固相抽出カラムに負荷する⁸⁾。水 10 mL、0.2 mol/L 水酸化ナトリウム溶液 5 mL、水 10 mL を順次通して洗浄後、メタノール 5 mL で溶出する。溶出液を減圧乾固後、水を加えて正確に 1 mL とし、メンブランフィルター (0.45 μm) でろ過したもの

を試験溶液とする。

(3) 検量線用標準溶液の調製⁹⁾

スクラロース 50.0mg を量り、水を加えて正確に 50mL とし、標準溶液とする（濃度 1000 μ g/mL）。標準溶液 1、2、4、10 及び 20mL を正確にとり、水を加えてそれぞれ正確に 20mL とし、検量線用標準溶液とする（濃度 50～1000 μ g/mL）。

(4) 測定法

① 測定条件¹⁰⁾

示差屈折計付液体クロマトグラフを用い、次の条件によって測定する。

カラム充填剤：オクタデシルシリル化シリカゲル

カラム管：内径 4.6mm、長さ 150～250mm

カラム温度：40℃

移動相：メタノール／水混液（7：3）

流速：1.0mL／分

注入量：20 μ L

② 検量線

検量線用標準溶液をそれぞれ液体クロマトグラフに注入し、ピーク面積から検量線を作成する。

③ 定量¹¹⁾

試験溶液を液体クロマトグラフに注入し、得られたピーク面積と検量線によって試験溶液中のスクラロース濃度（ μ g/mL）を求め、次式によって試料中のスクラロース含量（g/kg）を計算する¹²⁾。

$$\text{スクラロース含量 (g/kg)} = \frac{C \times 200 \times 1}{W \times 50 \times 1000}$$

C：試験溶液のスクラロース濃度（ μ g/mL）

W：試料の採取量（g）

④ 定量限界 0.01 g/kg

試薬・試液等

1. スクラロース：市販品を用いる。
2. 塩化ナトリウム：[特級]
3. 塩酸：[特級]
4. 透析内液：塩化ナトリウム 100 g を 0.01mol/L 塩酸に溶解して 1000mL とする。

5. 透析外液：0.01mol/L 塩酸
6. 透析膜チューブ：透析用セルロース製チューブ（平面幅 44mm、直径 28mm、膜厚 0.0203mm）を適当な長さに切ったものを水で洗浄し、片端を結んで閉じる。
7. ポリマー固相抽出カラム：スチレンジビニルベンゼン共重合体固相抽出カラム（1000mg）。あらかじめメタノール 5 mL、水 10mL を順次通してコンディショニングしたものを用いる。
8. 水酸化ナトリウム：[特級]
9. 0.2mol/L 水酸化ナトリウム溶液：水酸化ナトリウム 0.8 g に水を加えて 100mL とする。
10. メタノール：[高速液体クロマトグラフィー用]
11. 0.1mol/L 塩酸：塩酸 9 mL に水を加えて 1000mL とする。
12. 0.01mol/L 塩酸：0.1mol/L 塩酸 100mL に水を加えて 1000mL とする。

[注]

- 1) 本法は、既報^{文献 1,2)}を参照した検討結果に基づく。また、参考 1 及び参考 2 には、本法の透析後抽出液を逆相固相抽出カラム処理し、液体クロマトグラフィー質量分析を用いる分析法^{文献 3)}や、さらに逆相固相抽出カラム溶出液を減圧乾固し、塩化ベンゾイルで誘導体化した後、紫外可視吸光度検出器付液体クロマトグラフを用いる分析法^{文献 4)}を示す。スクラロースを特定する必要がある場合には、参考 1 に示す分析法を用いることができる。
- 2) 試料のかさが大きいもの、水分を含むと膨張する場合は、試料採取量を 5～10 g に減らす。
- 3) 炭酸を多く含む試料の場合は、試料の秤量後に、超音波処理によりその大部分を除去する。また、脂肪分を多く含む試料の場合は、試料の秤量後に、ヘキサン約 20mL ずつで 2～3 回洗浄した後、ヘキサン臭がなくなるまで放置又は加温する。ただし、乳化した食品（ピーナッツバター、マヨネーズ等）は脱脂操作を省略できる。
- 4) 試料と混和して流動状にならない場合は、透析内液を適宜追加する。
- 5) 正確に 200mL を量ることができる目盛精度を有する容器。透析チューブの実効長が 15cm の場合は直径（内径）4 cm 以下がよい。
- 6) 試料、透析内液、透析外液の合計量。
- 7) 透析膜チューブの実効長約 15cm の場合、スクラロースは水分含量の高い食品では 24 時間で十分透析されるが、穀類の調製品や魚介乾製品等の水分含量の低い食品及びはっ酵乳等の乳製品では透析率が低下する傾向があるため、48 時間透析を行う。また、より実効長の長い透析膜チューブを用いる既報^{文献 5)}に記された透析条件を用いることにより、穀類の調製品や魚介乾製品等の水分含量の低い食品及びはっ酵乳等の乳製品等においても 4 時間の透析で、上記方法とほぼ同等の透析率が得られる^{文献 6)}。
- 8) 毎分 3～4 mL の流速で流す。
- 9) 検量線用標準溶液の濃度及び数は、必要があれば、直線性が確保できる範囲で、適宜、変更してもよい。

- 10) 測定条件は例示である。他のカラム、条件を用いる場合は、スクラロースのピークが妨害ピークの影響を受けないことを確認する。移動相に水／アセトニトリル混液（85：15）を用いることもできる^{文献1)}。
- 11) 本法では、操作の煩雑さ軽減のため、分析操作後の透析外液量を乗じず、操作時の試料体積を含めた定容量を乗じている。そのため、固体試料等では実態より数%～10%ほど高い定量値となる場合もあり、本法での添加回収率が非常に高い場合には、要因の一つにこの点もあることを考慮する。
- 12) 本法によるスクラロースの添加回収試験の結果を注表1及び注表2に示す。

注表1 スクラロースの各種食品での添加回収率^{*1}

試料	添加量 (g/kg)	回収率 (%)	相対標準偏差 (%)
ジュース	0.02	95	4.0
ゼリー	0.02	98	3.0
ジャム	0.02	91	5.8
しょうが酢漬	0.02	97	4.2
たくあん漬	0.02	92	3.2

^{*1} 5試行の平均値

注表2 スクラロースのたくあん漬での添加回収率^{*1}

試料	添加量 (g/kg)	回収率 (%)	相対標準偏差 (%)
たくあん漬	0.01	84	9.4
	0.58	97	3.2

^{*1} 5試行の平均値

ただし、移動相は水／アセトニトリル混液（85：15）^{文献1)}で試験した。

[文献]

- 1) 日本薬学会編：衛生試験法・注解 2020、397（2020）、金原出版
- 2) 小林千種ら：食衛誌、**42**、139（2001）
- 3) 畑野和広ら：食衛誌、**43**、267（2002）
- 4) 石井達三ら：埼玉県衛研所報、**39**、137（2005）
- 5) 田原正一ら：食衛誌、**55**、13（2014）
- 6) 大槻崇ら：第106回日本食品衛生学会学術講演会講演要旨集（2013.11、沖縄）

参考1

スクラロース確認分析法1

1. 分析法の概要

食品中のスクラロースを、透析法により抽出した後、逆相固相抽出カラムで精製し、液体クロマトグラフィー質量分析により確認を行う。(2023 年設定)

2. 分析法（液体クロマトグラフィー質量分析）

（1）検体の採取と試料の調製

一般試料採取法を準用する。

（2）試験溶液の調製

① 透析

スクラロース分析法（2）試験溶液の調製 ① 透析を準用する。

② カラムによる精製

抽出液 5 mL を正確にとり、逆相固相抽出カラムに負荷し¹⁾、水 10 mL を通して洗浄する。次いで 40 vol% メタノール 5 mL で溶出し、溶出液を 40 vol% メタノールで正確に 5 mL とする。この液をメンブランフィルター（0.22 μm）でろ過したものを試験溶液²⁾とする。

（3）定性用標準溶液及び検量線用標準溶液の調製³⁾

スクラロース 50.0 mg を量り、40 vol% メタノールを加えて溶かし、正確に 50 mL とする。この 1 mL を正確にとり、40 vol% メタノールを加えて正確に 100 mL としたものを標準原液とする（濃度 10 μg/mL）。標準原液 10 mL を正確にとり、40 vol% メタノールを加えて正確に 50 mL としたものを標準溶液とする（濃度 2 μg/mL）。標準溶液 1、2、4、6 及び 10 mL をそれぞれ正確にとり、40 vol% メタノールを加えてそれぞれ正確に 10 mL とし、定性に適した濃度の定性用標準溶液（2 μg/mL 等）及び検量線用標準溶液（濃度 0.2～2 μg/mL）を調製する。

（4）測定法

① 測定条件^{4、5)}

液体クロマトグラフ質量分析計（LC-MS）を用い、次の条件によって測定する。

カラム充填剤：オクタデシルシリル化シリカゲル

カラム管：内径 2.1 mm、長さ：100～150 mm

カラム温度：40℃

移動相⁶⁾：A液 2 mmol/L 酢酸アンモニウム含有 1 vol% アセトニトリル

B液 2 mmol/L 酢酸アンモニウム含有 95 vol% アセトニトリル

グラジエントの条件		
時間(分)	A (%)	B (%)
0	99	1
12	40	60
12.01	0	100
17	0	100
17.01	99	1
22	99	1

流速：0.2mL／分

イオン化モード：ESI（－）

検出法：スキャン（ m/z 50～450）、

選択イオンモニタリング（SIM）（モニターイオン： m/z 395⁷⁾）

注入量：1μL

② 検量線³⁾

検量線用標準溶液をそれぞれLC-MSに注入し、ピーク面積から検量線を作成する。

③ 定性^{8、9)}

試験溶液及び定性用標準溶液をLC-MSに注入し、試験溶液のクロマトグラム上で、定性用標準溶液で検出されたピークと同じ保持時間にピークが検出されること、このピークのスクリーン検出で得られるマススペクトルの主なイオンの m/z が定性用標準溶液の主ピークのそれと一致することを確認する。

④ 定量^{8、10～13)}

試験溶液をLC-MSに注入し、SIMで得られたピーク面積と検量線から試験溶液中のスクラロース濃度（μg/mL）を求め、次式によって試料中のスクラロース含量（g/kg）を計算する。

$$\text{スクラロース含量 (g/kg)} = \frac{C \times 200 \times 5}{W \times 5 \times 1000}$$

C：試験溶液のスクラロース濃度（μg/mL）

W：試料の採取量（g）

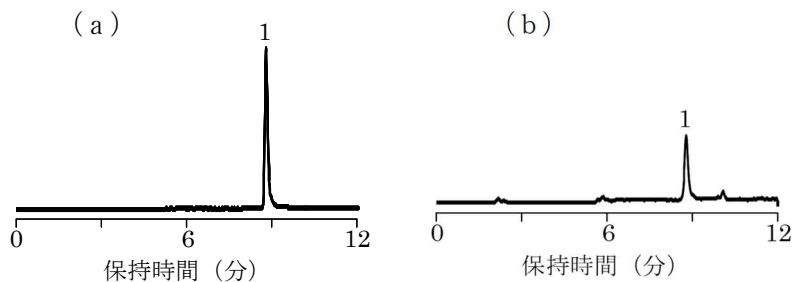
試薬・試液等

- スクラロース分析法の試薬・試液等を準用する。
- 逆相固相抽出カラム：オクタデシルシリル化シリカゲル固相抽出カラム（500mg）。あらかじめメタノール5mL、水5mLを順次通してコンディショニングしたものを用いる。
- 酢酸アンモニウム：[特級]
- 2mmol/L 酢酸アンモニウム含有1vol%アセトニトリル：酢酸アンモニウム154.2mgを水に溶解して1000mLとする。この溶液990mLにアセトニトリル10mLを加えて混合する。

5. 2 mmol/L 酢酸アンモニウム含有 95vol%アセトニトリル：酢酸アンモニウム 15.4mg
を水に溶解して 100mL とする。この溶液 50mL にアセトニトリル 950mL を加えて混合する。
6. アセトニトリル：[高速液体クロマトグラフィー用]

[注]

- 1) 毎分 3～4 mL の流速で流す。
- 2) 試験溶液中の濃度が高く、検量線の濃度範囲を逸脱する場合は、試験溶液を、試験溶液の調製の最終段階で用いた溶液で適宜希釈して定量をやり直し、計算式に希釈倍率を乗じて含量を求める。
- 3) 検量線用標準溶液の濃度及び数は、必要があれば、直線性が確保できる範囲で、適宜、変更してもよい。
- 4) 測定条件は例示である。他のカラム、条件を用いる場合は、スクラロースのピークが妨害ピークの影響を受けないことを確認する。
- 5) その他の測定条件は各測定機器に従い、検量線用標準溶液のモニターイオン強度が最大になるように、あらかじめ最適化を行う。
- 6) その他、0.1vol%ギ酸含有 5 vol%アセトニトリルと 0.1vol%ギ酸含有 95vol%アセトニトリルによるグラジエント溶離等が使用できる。
- 7) 食品中の夾雑物の影響により定量が困難な場合は、 m/z 397 をモニターイオンとして用いることもできる。
- 8) LC-MSを用いて確認や定量を行う場合、食品中の夾雑物の影響によりイオン化抑制や促進を生じて確認や定量を正しく行えないおそれがあるため、別途、対象試料の試験溶液に標準溶液を添加し、ピークの検出感度やマススペクトルの変化について確認する。
- 9) スキャン測定により、スクラロースの脱プロトンイオン m/z 395 を確認することができる。バックグラウンドが高い場合は補正する。
- 10) 本法では、操作の煩雑さ軽減のため、分析操作後の透析外液量を乗じず、操作時の試料体積を含めた定容量を乗じている。そのため、固体試料等では実態より数%～10%ほど高い定量値となる場合もあり、本法での添加回収率が非常に高い場合には、要因の一つにこの点もあることを考慮する。
- 11) スクラロースのマスキロマトグラムの例を注図 1 に示す。



1. スクラロース

(a) 標準溶液 0.5µg/mL、(b) いちごジャム抽出物 (スクラロース 0.002 g/kg 添加)

<測定条件>

カラム充填剤：オクタデシルシリル化シリカゲル (粒径 3µm)

カラム管：内径 2.1mm、長さ 150mm カラム温度：40℃

流速：0.2mL/分

注入量：10µL

移動相： A液 アセトニトリル／2mmol/L酢酸アンモニウム混液 (1：99)

B液 アセトニトリル／2mmol/L酢酸アンモニウム混液 (95：5)

グラジエントの条件

時間(分)	A (%)	B (%)
0	99	1
12	40	60
12.01	0	100
17	0	100
17.01	99	1
22	99	1

イオン化モード：ESI (－)

検出法：選択イオンモニタリング (SIM) (モニターイオン： m/z 395)

注図1 スクラロースのマスキロマトグラム

12) 本法によるスクラロースの添加回収試験の結果を注表1及び注表2に示す。

注表1 スクラロースの各種食品での添加回収率*1

試料	添加量 (g/kg)	回収率 (%)	RSD*2 (%)	添加量 (g/kg)	回収率 (%)	RSD*2 (%)
チューインガム	2.6	92	2.5	0.002	105	5.6
ビスケット	1.8	97	2.9	0.002	110.8	7.0
いちごジャム	1.0	90	6.9	0.002	93	5.8
ソース	0.58	98	5.7	0.002	84	9.7
白菜漬	0.58	94	6.6	0.002	104	6.9
さきいか	0.58	81	4.1	0.002	90	8.5
紅茶	0.4	101	5.2	0.002	96	4.7
ヨーグルト	0.4	91	5.7	0.002	93	6.6

*1 5試行の平均値、*2 相対標準偏差

注表2 スクラロースのたくあん漬での添加回収率*¹

試料	添加量 (g/kg)	回収率 (%)	相対標準偏差 (%)
たくあん漬	0.002	109	1.9
	0.01	98	1.1

*¹ 5試行の平均値

13) 液体クロマトグラフタンデム質量分析計 (LC-MS/MS) を用いる確認分析法が報告されている^{文献1)}。

[文献]

- 1) 畑野和広ら：食衛誌、**43**、267 (2002)

参考2

スクラロース確認分析法2

1. 分析法の概要

食品中のスクラロースを、透析法により抽出して逆相固相抽出カラムにより精製し、塩化ベンゾイルで誘導体化して精製した後、液体クロマトグラフィーにより確認を行う¹⁾。(2023 年設定)

2. 分析法（液体クロマトグラフィー）

（1）検体の採取と試料の調製

一般試料採取法を準用する。

（2）試験溶液の調製

① 透析

スクラロース分析法（2）試験溶液の調製 ① 透析を準用する。

② 誘導体化及び精製

抽出液 5 mL を正確にとり、逆相固相抽出カラム²⁾に負荷し³⁾、水 10 mL を通して洗浄する。次いで 40 vol% メタノール 5 mL で溶出し、溶出液を 40 vol% メタノールで正確に 5 mL とする。この液 3 mL を正確にとり、60℃で減圧乾固し、残留物を 4% 炭酸ナトリウム含有 20% 塩化ナトリウム溶液 0.1 mL で溶解する⁴⁾。これに、アセトニトリル 9 mL を加え、よく混和した後、メンブランフィルター（0.45 μm）でろ過し、塩化ベンゾイル 0.4 mL を加え振り混ぜる。次いで、60 w/v % 水酸化ナトリウム溶液 0.3 mL を加え振り混ぜた後、超音波洗浄器に入れ 30 秒間超音波処理する。その後、8 分間振とう⁵⁾した後、遠心分離（10 分間、3000 回転/分）し、上層を分取する。沈殿物にアセトニトリル 8 mL を加え、ミクロスパーテルでかくはんして沈殿物を懸濁させた後、振り混ぜ、30 秒間超音波処理する。次いで、8 分間振とう後、遠心分離（10 分間、3000 回転/分）する。上層を先に分取した液に合わせ、水 10 mL を加えて振り混ぜた後、逆相固相抽出カラム⁶⁾に負荷し、アセトニトリル/水混液（6：4）10 mL で洗浄する。次いで、アスピレーターで吸引し水分を除いた後、アセトニトリル 5 mL で溶出し、溶出液の全量を正確に 5 mL とする。この液をメンブランフィルター（0.45 μm）でろ過したものを試験溶液とする。

（3）検量線用標準溶液の調製

スクラロース 60.0 mg を量り、アセトニトリルを加えて正確に 50 mL としたものを標準原液 A とする（濃度 1200 μg/mL）。標準原液 A 5 mL を正確にとり、アセトニトリルを加えて正確に 100 mL としたものを標準原液 B とする（濃度 60 μg/mL）。標準原液 B 1、2、4 及び 10 mL をそれぞれ正確にとり、アセトニトリルを加えてそれぞれ正確に 100 mL とし、また、標準原液 A 1 及び 2.5 mL をそれぞれ正確にとり、アセトニトリルを加えてそれぞれ正確に 100 mL とし、標準溶液とする

(濃度 0.6～30 $\mu\text{g}/\text{mL}$)。

あらかじめ4%炭酸ナトリウム含有20%塩化ナトリウム溶液0.1mLにアセトニトリル8mLを入れた容器に、各標準溶液1mLをそれぞれ正確に加え、塩化ベンゾイル0.4mLを加え振り混ぜ、以下、(2)試験溶液の調製②誘導体化及び精製の場合と同様に操作して得られたものを検量線用標準溶液(濃度0.12～6 $\mu\text{g}/\text{mL}$)とする⁷⁾。

(4) 測定法

① 測定条件⁸⁾

紫外可視吸光光度検出器付液体クロマトグラフを用い、次の条件によって測定する。

カラム充填剤：オクタデシルシリル化シリカゲル

カラム管：内径4.6mm、長さ150～250mm

カラム温度：40℃

移動相：アセトニトリル／水混液(8：2)

流速：1.0mL／分

測定波長：230nm

注入量：20 μL

② 検量線⁷⁾

検量線用標準溶液をそれぞれ液体クロマトグラフに注入し、ピーク面積から検量線を作成する。

③ 定量^{9～11)}

試験溶液を液体クロマトグラフに注入し、得られたピーク面積と検量線によって試験溶液中のスクラロース濃度($\mu\text{g}/\text{mL}$)を求め、次式によって試料中のスクラロース含量(g/kg)を計算する。

$$\text{スクラロース含量}(\text{g}/\text{kg}) = \frac{C \times 200 \times 5}{W \times 3 \times 1000}$$

C：試験溶液のスクラロース濃度($\mu\text{g}/\text{mL}$)

W：試料の採取量(g)

試薬・試液等

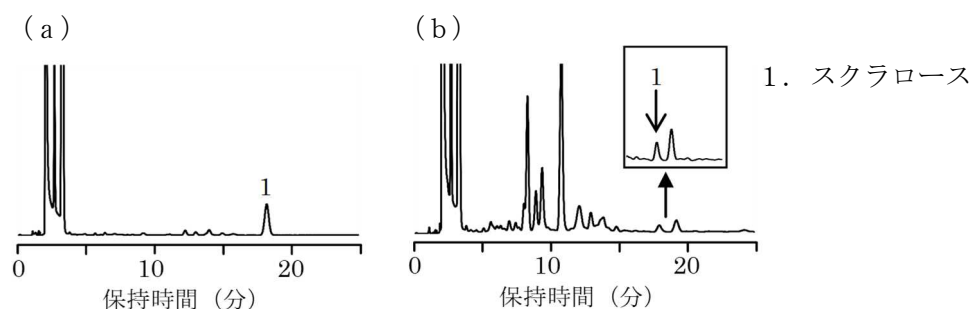
1. スクラロース分析法の試薬・試液等を準用する。
2. 逆相固相抽出カラム：オクタデシルシリル化シリカゲル固相抽出カラム(500mg)。
3. 炭酸ナトリウム：[特級]
4. 4%炭酸ナトリウム含有20%塩化ナトリウム溶液：炭酸ナトリウム4g及び塩化ナトリウム20gを水に溶解して100mLとする。
5. アセトニトリル：[高速液体クロマトグラフィー用]

6. 塩化ベンゾイル:市販品を用いる。

7. 60w/v%水酸化ナトリウム溶液:水酸化ナトリウム 60 gを水に溶解して 100mL とする。

[注]

- 1) スクラロースは、紫外部に吸収帯を持たないため、塩化ベンゾイルで誘導体化した後、紫外可視吸光光度検出器付液体クロマトグラフを用いて定量する^{文献1)}。
- 2) あらかじめメタノール5 mL、水5 mL を順次通してコンディショニングしたものを用いる。
- 3) 毎分3～4 mL の流速で流す。
- 4) 液量が少量であるため、時間をかけて残留物全体を溶解する。必要な場合は、超音波水浴中に放置してもよい。
- 5) 60w/v%水酸化ナトリウム溶液は、反応液中で沈降し分離するので、反応を精度良く進行させるためには、振とう操作が必要である。
- 6) あらかじめメタノール10mL、アセトニトリル10mL 及びアセトニトリル/水混液(6:4) 5 mL を順次通してコンディショニングしたものを用いる。抽出液のクリーンアップに使用したカートリッジを使用してもよい。
- 7) 検量線用標準溶液の濃度及び数は、必要があれば、直線性が確保できる範囲で、適宜、変更してもよい。
- 8) 測定条件は例示である。他のカラム、条件を用いる場合は、スクラロースのピークが妨害ピークの影響を受けないことを確認する。
- 9) スクラロースの液体クロマトグラム例を注図1に示す。



(a) 標準溶液 0.5µg/mL、(b) いちごジャム抽出物 (スクラロース 0.002 g/kg 添加)

<測定条件>

カラム充填剤: オクタデシルシリル化シリカゲル (粒径 3µm)

カラム管: 内径 4.6mm、長さ 150mm

カラム温度: 40℃

移動相: アセトニトリル/水混液 (8:2)

流速: 1.0mL/分

検出器: 紫外可視吸光光度検出器 (230nm)

注入量: 20µL

注図1 スクラロースの液体クロマトグラム

10) 本法によるスクラロースの添加回収試験の結果を注表1及び注表2に示す。

注表1 スクラロースの各種食品での添加回収率*1

試料	添加量 (g/kg)	回収率 (%)	RSD*2 (%)	添加量 (g/kg)	回収率 (%)	RSD*2 (%)
チューインガム	2.6	88	2.4	0.002	100	7.6
ビスケット	1.8	80	4.6	0.002	86	8.6
いちごジャム	1.0	88	7.7	0.002	94	3.7
ソース	0.58	90	5.2	0.002	80	5.5
白菜漬	0.58	95	4.3	0.002	96	5.1
さきいか	0.58	83	6.8	0.002	89	3.4
紅茶	0.4	101	3.1	0.002	93	6.2
ヨーグルト	0.4	97	2.4	0.002	86	4.6

*1 5試行の平均値、*2 相対標準偏差

注表2 スクラロースのたくあん漬での添加回収率*1

試料	添加量 (g/kg)	回収率 (%)	相対標準偏差 (%)
たくあん漬	0.002	75	3.2
	0.58	84	2.5

*1 5試行の平均値

11) 本法では、操作の煩雑さ軽減のため、分析操作後の透析外液量を乗じず、操作時の試料体積を含めた定容量を乗じている。そのため、固体試料等では実態より数%~10%ほど高い定量値となる場合もあることを考慮する。また、本法での添加回収率が非常に高い場合には、要因の一つにこの点もあることを考慮する。

[文献]

- 1) 石井達三ら：埼玉県衛研所報、**39**、137（2005）