道衛研所報 Rep. Hokkaido Inst. Pub. Health, 73, 7–13（2023）

HPLC による食品中の 18 種タール色素一斉試験法の検討

Study on Simultaneous Analytical Method for 18 Coal Tar Dyes in Foods by HPLC

固本　皇聖*　　高橋　　諒　　岡部　　亮
羽賀　美優　　青柳　光敏

Kosei KATAMOTO, Ryo TAKAHASHI, Ryo OKABE,
Miyu HAGA and Mitsutoshi AOYAGI

Key words：food coal tar dye（食用タール色素）；non-permitted dye（指定外色素）；HPLC（高速液体クロマトグラフィー）；simultaneous analytical method（一斉試験法）

緒　　言

食品添加物は、原則として、厚生労働大臣が安全性と有効性を確認して指定した「指定添加物」以外は使用することができず、さらに、これらには使用してよい食品や使用量などの基準が定められている[1)]。合成着色料であるタール色素は加工食品に広く使用されており、現在、指定添加物として赤色 3 号、青色 1 号など 12 種類（以下、指定色素）が認められている。しかし、輸入食品においては、指定色素の使用が認められていない食品からの検出、海外では食品添加物として許可されているが日本では許可されていないタール色素（以下、指定外色素）の検出といった違反事例が報告されている[2)]。

指定色素の試験法[3)] は国から通知されているが、たらこ等の高タンパク食品ではキサンテン系色素（赤色 3 号、赤色 104 号及び赤色 105 号）の検出が困難であることから、その対処法が検討されており[4–7)]、筆者らも古賀らの方法[7)] を参考とした固相抽出カラムを用いた食用タール色素試験法を報告した[8)]。しかし、本法で測定対象としたのは指定色素のみであり、指定外色素は対象としていない。国産、輸入を問わず、食品中の食用タール色素を試験するには、指定色素に加え、指定外色素も同時に試験可能な試験法が有用であることから、今回、前報[8)] の試験法を改良し、測定対象を指定色素 12 種類及び違反事例の多い指定外色素 6 種類とする試験法を開発したので報告する。

方　　法

1．試料

札幌市内でタール色素使用の表示がない 13 食品（アイスクリーム（ラクトアイス）、厚揚げかまぼこ、いちご、ウインナー、オレンジゼリー、魚肉ソーセージ、すじこ、タコ燻製、たらこ、漬物（セロリ）、生ラーメン、ビーフジャーキー、焼き菓子）及び赤色 102 号使用の表示がある鯨ベーコンの計 14 食品を購入した。アイスクリーム（ラクトアイス）はそのまま、その他の食品はフードプロセッサーで均一化し、試料とした。

2．色素標準品

指定色素 12 種類：青色 1 号（B1）、青色 2 号（B2）、赤色 2 号（R2）、赤色 3 号（R3）、赤色 102 号（R102）、赤色 104 号（R104）、赤色 105 号（R105）、赤色 106 号（R106）、黄色 4 号（Y4）、黄色 5 号（Y5）及び緑色 3 号（G3）は三栄化学工業(株)製、赤色 40 号（R40）は和光純薬工業(株)製を用いた。

指定外色素 6 種類：アゾルビン（AZO）及びオレンジⅡ（OR Ⅱ）は和光純薬工業(株)製、キノリンイエロー（QY）は SIGMA-ALDRICH 社製、パテントブルー V（PBV）、ファストレッド E（FR）及びブラック PN（BPN）は東京化成工業(株)製を用いた。

3．標準溶液

各標準品 10 mg を正確にはかり採り、水に溶解して 1,000 mg/L としたものを標準原液とした。各標準原液 1 mL を採り、混合した後、水で希釈して 50 mg/L としたものを混合標準原液とした。混合標準原液を水で希釈し、5 mg/L としたものを添加用混合標準溶液とした。添加用混合標

* 現　北海道保健福祉部健康安全局地域保健課

準溶液を水で適宜希釈して、0.25 mg/L、0.5 mg/L 及び 0.75 mg/L としたものを検量線作成用標準溶液とした。

4．試薬等

試薬：アンモニア水（28%）及び酢酸アンモニウムは富士フイルム和光純薬(株)製特級、水は関東化学(株)製高速液体クロマトグラフィー用、アセトニトリル、エタノール及びメタノールは関東化学(株)製残留農薬試験用を用いた。

固相抽出カラム：Agilent Technologies 社製 Mega BE-C18（1 g/6 mL）（以下、C18 ミニカラム）をアセトニトリル 5 mL、次いでアセトニトリル－エタノール－水（4：3：3）混液 5 mL でコンディショニングした後、用いた。ジーエルサイエンス(株)製InertSep MA-2（500 mg/6 mL）（以下、MA-2 ミニカラム）をメタノール 5 mL、次いで水 5 mL でコンディショニングした後、用いた。

5．HPLC 条件

HPLC は（株)島津製作所製 SPD-20A 紫外可視分光光度計付き LC-20AB 高圧グラジエントシステムを用い、分析カラムはジャスコエンジニアリング(株)製J-Pak Wrapsil C18（4.6 × 250 mm、5 μm）を用いた。カラム温度は 40℃、移動相は 10 mmol/L 酢酸アンモニウム溶液（A 液）及びアセトニトリル（B 液）のグラジエント溶出とし、グラジエント条件は B 濃度 4%（0 min）→ 23%（38 min）→ 54 %（65 min）→ 95 %（66 min）→ 95 %（76 min）、流速は 1 mL/min、サンプルクーラーは 20℃、注入量は 20 μL に設定した。測定波長は、430 nm（Y4、Y5、OR Ⅱ、QY）、530 nm（R2、R3、R40、R102、R104、R105、R106、AZO、FR）、580 nm（BPN）、630 nm（B1、B2、G3、PBV）とした。

6．試験溶液の調製

試験溶液調製法を図 1 に示した。

1）抽出

a）アイスクリーム（ラクトアイス）以外の場合

試料 5 g をはかり採り、エタノール－水（6：4）混液 30 mL を加え、70℃の水浴中で時々かくはんしながら 15 分間加温した後、遠心分離（3,000 rpm、5 分間）し、上澄液を採った。残留物にアンモニア水－エタノール－水（1：60：39）混液 30 mL を加え、70℃の水浴中で時々かくはんしながら 15 分間加温した後、遠心分離（3,000 rpm、5 分間）し、上澄液を採る操作を 2 回繰り返した。得られた各上澄液を合わせ、水で 100 mL に定容し、抽出液とした。

b）アイスクリーム（ラクトアイス）の場合

試料 5 g をはかり採り、エタノール－水（9：1）混液 30 mL を加え、70℃の水浴中で時々かくはんしながら 15 分間加温した後、アンモニア水－エタノール－水（1：90：9）混液で 100 mL に定容し、抽出液とした。

2）精製

抽出液 20 mL を採り、アセトニトリル－水（4：1）混液 20 mL（生ラーメンはアセトニトリル 20 mL）を加えて 1 分間激しく振とうした後、遠心分離（3,000 rpm、5 分間）した。得られた上澄液を C18 ミニカラムに負荷した後、アセトニトリル－エタノール－水（4：3：3）混液 5 mL を注入し、負荷液を含む全溶出液を採った。溶出液を約 15 mL まで減圧下濃縮した後、MA-2 ミニカラムに負荷し、水 5 mL、次いでメタノール 5 mL を注入し、流出液は捨てた。アンモニア水－メタノール（1：9）混液 6 mL を注入し、溶出液をあらかじめ水 1.5 mL 加えた容器に採った後、溶出液を減圧下濃縮し、水で 2 mL としたものを試験溶液とした。

7．定量

各検量線作成用標準溶液 20 μL を HPLC に注入し、得られたピーク面積により検量線を作成した。試験溶液も同様に HPLC に注入し、得られたピーク面積から絶対検量線法により各色素の回収率を算出した。

8．添加回収試験

試料に添加用混合標準溶液 1 mL（各色素 1 mg/kg 相当濃度）を添加し、30 分間放置したものについて回収試験を行った。試行回数は、無添加試料 1 回及び添加試料 3 回で行った。

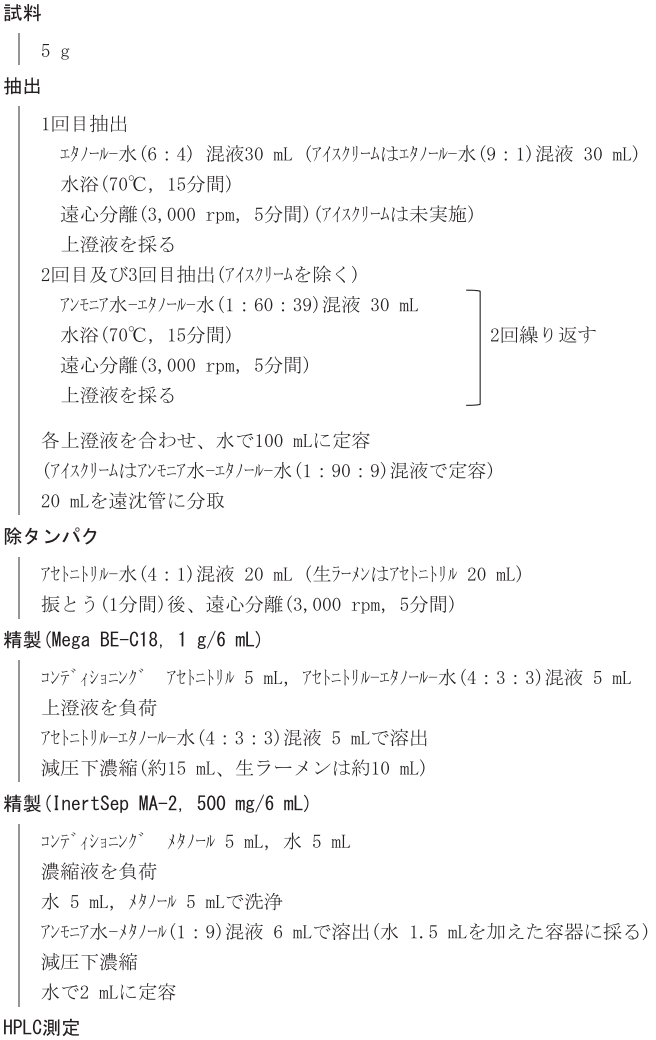

図 1　試験溶液調製法

結 果 と 考 察

1．HPLC 条件の検討

18 種類の色素を測定するための HPLC 条件を検討した。移動相は、通知法[3] で使用されている 10 mmol/L 酢酸アンモニウム溶液（A 液）及びアセトニトリル（B 液）のグラジエント溶出とし、分析カラムについてジャスコエンジニアリング(株)製J-Pak Wrapsil C18（4.6 × 250 mm、5 μm）及び関東化学(株)製Mightysil RP-18GP（4.6 × 250 mm、5 μm）を比較検討した。その結果、各色素の分離がより良好であった J-Pak Wrapsil C18 を選択した。グラジエント条件については、各色素の分離状況を考慮してB濃度が4%～54%の濃度勾配を 65 分間で行い、その後 95%でカラムを洗浄する条件とした。また、測定波長については、各色素の紫外可視吸収スペクトルから、430 nm で黄色系色素（Y4、Y5、OR Ⅱ、QY）、530 nm で赤色系色素（R2、R3、R40、R102、R104、R105、R106、AZO、FR）、580 nm で黒色系色素（BPN）、630 nm で青色系色素（B1、B2、G3、PBV）を測定することとした。色素 18 種類の HPLC クロマトグラムを図 2 に示した。なお、各色素の検量線はいずれも相関係数 0.997 以上が得られ、検出下限値は 10 ng であった。

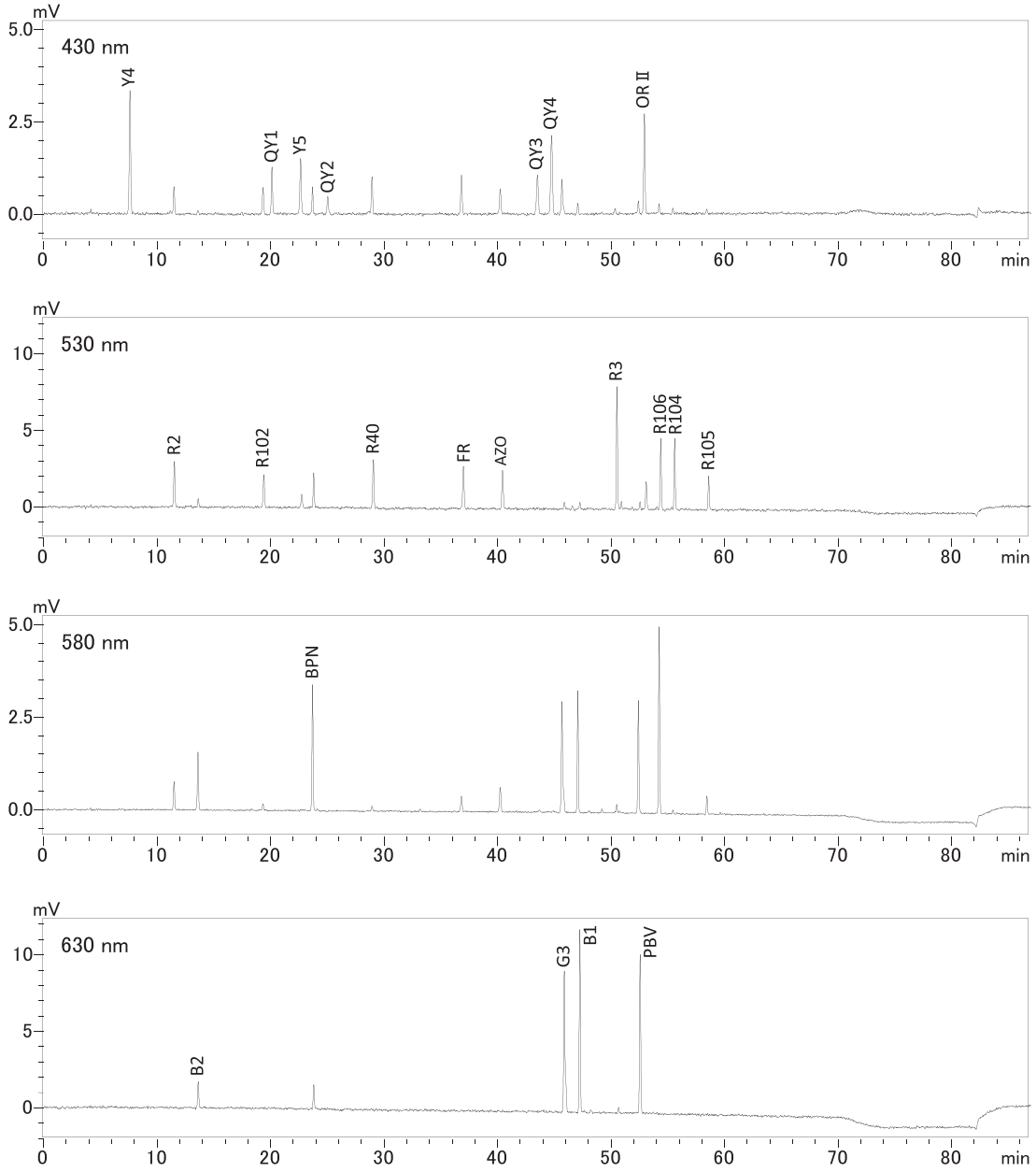

図 2　色素 18 種類の HPLC クロマトグラム

標準溶液濃度：0.5 mg/L
注入量：20 μL
430 nm、530 nm、580 nm、630 nm：測定波長
QY1、QY2、QY3、QY4：QY の 4 異性体の各ピーク

2．抽出条件の検討

試料から各色素を抽出する方法について、各色素 100 μg を添加したたらこ試料 5 g を用いて検討した。前報[8] では、抽出溶媒として 0.3% アンモニア含有 60% エタノールを用い、70℃の水溶中で時々かくはんしながら 20 分間加温する操作を 2 回繰り返して抽出している。そこで、この操作法を参考にしてアンモニア水－エタノール－水（1：60：39）混液を用いて 70℃の水浴中で時々かくはんしながら 15 分間加温して抽出する操作を 3 回繰り返し、回収率を確認した。その結果を図 3 に示した（抽出条件 A）。3 回の合計回収率は、R102 が 45%、BPN が 5% と低回収率であったが、他の色素は 70% 以上であった。次に、溶媒をエタノール－水（6：4）混液に替えて同様に操作したところ、R102 及び BPN の回収率は各々 83% 及び 70% と向上したが、R105 が 38% と低かった（図 3 抽出条件 B）。そこで、上記両抽出溶媒を組み合わせて抽出する方法を検討した。1 回目の抽出にアンモニア水－エタノール－水（1：60：39）混液を用いたところ、2 回目及び 3 回目をエタノール－水（6：4）混液としても R102 の回収率は 48%、BPN は 7% と低く、1 回目の溶媒としてアンモニア水－エタノール－水（1：60：39）混液は適していないと思われた（図 3 抽出条件 C）。R105 は抽出条件 A、B 及び C の結果から、アンモニア水－エタノール－水（1：60：39）混液での抽出が必須であるが、1 回では不十分で 2 回以上の抽出が必要と考えられた。そこで、1 回目の溶媒としてエタノール－水（6：4）混液、2 回目及び 3 回目にアンモニア水－エタノール－水（1：60：39）混液を用いて抽出を行ったところ、すべての色素について 80% 以上の回収率を得ることができた（図 3 抽出条件 D）。以上の結果から、抽出条件 D を採用した。しかし、アイスクリーム（ラクトアイス）試料を抽出条件 D で抽出すると前報[8] 同様に抽出液が乳濁し、固相抽出カラム精製で目詰まりして精製困難となった。そこで、1 回目の抽出溶媒をエタノール－水（9：1）混液、2回目及び3回目をアンモニア水－エタノール－水（1：90：9）混液として検討した。その結果、抽出液は乳濁せず、精製操作についても問題なく行うことが可能であった。また、添加回収試験の結果も各色素の回収率は 79% 以上と良好であった。色素は 1 回目の抽出操作で目視上すべて抽出されていたことから、実際の操作は、エタノール－水（9：1）混液 30 mL で抽出し、2 回目及び 3 回目の抽出溶媒であるアンモニア水－エタノール－水（1：90：9）混液により定容する方法を採用した。

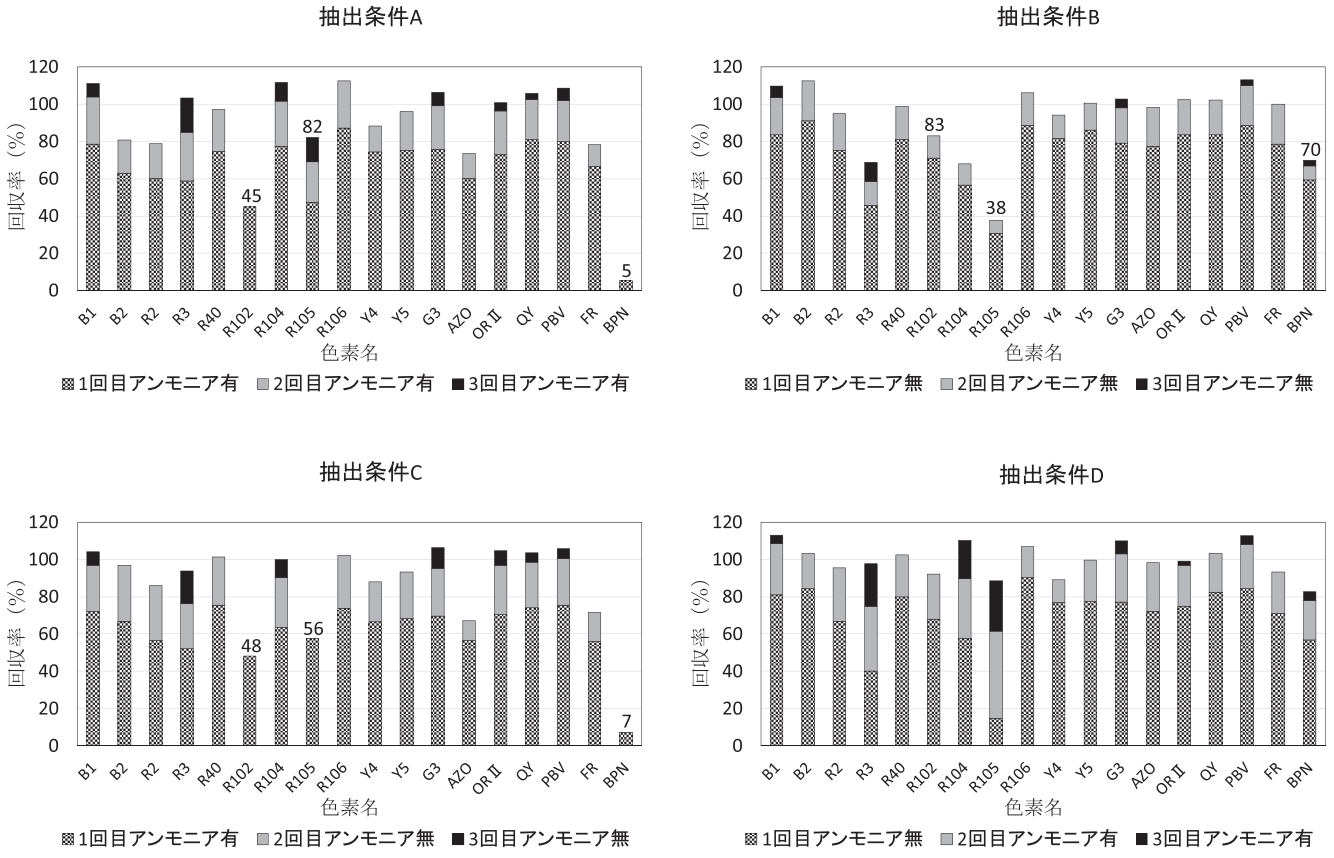

図 3　各抽出条件における色素の回収率の比較

試料：たらこ 5 g
色素の添加濃度：20 μg/g
抽出温度及び時間：70℃、各 15 分間
抽出溶媒：アンモニア有；アンモニア水－エタノール－水（1：60：39）混液
　　アンモニア無；エタノール－水（6：4）混液

3．除タンパク質の検討

たらこ試料の抽出液をそのままミニカラム精製すると目詰まりが生じ、精製が困難となった。最初、抽出液は含水エタノールであることから、析出した低極性夾雑物が目詰まりを起こすと考え、ジエチルエーテル－石油エーテル（1：1）混液で抽出液を洗浄して低極性夾雑物を除去したが、目詰まりは解消されなかった。そこで次に、抽出液中に含まれるタンパク質等の夾雑物に注目し、有機溶媒を加えてタンパク質を変性、沈殿させて精製する方法[6]を検討した。抽出液20 mLを遠沈管に採り、等量のアセトニトリルを加えて1分間振とうした後、遠心分離（3,000 rpm、5分間）したところ、沈殿物が認められた。この沈殿物に色素の沈着はほとんど認められず、抽出液は操作前よりも透明となった。得られた上澄液をC18ミニカラム、引き続きMA-2ミニカラムで精製したところ、目詰まりせず、自然落下による精製が可能であったことから、アセトニトリルによる除タンパク操作を行うこととした。しかし、焼き菓子など試料によっては目詰まりが生じたことから、各試料を用い、除タンパク操作で加える溶媒を検討した。血しょうに対する除タンパク操作では、有機溶媒を試料に対して1倍から4倍容、すなわち、最終有機溶媒濃度が50％～80％となるように加えるが、血しょう1 mLあたり有機溶媒2 mL（最終有機溶媒濃度67％）以上を加えるとほぼ100％の除タンパク効果を示すと報告されている[9]。そこで、加える溶媒としてアセトニトリル（最終有機溶媒濃度約80％）及びアセトニトリル－水（4：1）混液（同約70％）について比較した。その結果、アセトニトリル－水（4：1）混液は生ラーメンを除いてミニカラムの目詰まりを生じることがなく、生ラーメンについては、アセトニトリルでは目詰まりが認められなかった。これらのことから、アセトニトリル－水（4：1）混液を除タンパク操作の溶媒として選択し、生ラーメンについてはアセトニトリルとすることで、すべての試料で自然落下によるミニカラム精製が可能となった。

4．固相抽出カラムによる精製の検討

前報[8]では、脂質の少ない食品については抽出液を減圧下濃縮した後に、脂質の多い食品に対してはジエチルエーテル－石油エーテル（1：1）混液による脱脂操作を行い、減圧下濃縮した後に弱陰イオン交換性であるMA-2ミニカラムによる精製を行っていた。しかし、脱脂操作において、抽出液とジエチルエーテル－石油エーテル（1：1）混液との分離を良くするために抽出溶媒に応じた水の添加が必要であり、また、抽出液を減圧下濃縮する際には泡立ちの発生や突沸が起きやすいことから、濃縮操作に時間を要していた。そこで今回は、脱脂及び低極性夾雑物の除去をC18ミニカラムで行うこととした。カラム精製することにより、抽出液を減圧下濃縮する際の突沸抑制効果[10-12]も期待できた。抽出溶媒であるエタノール－水（6：4）混液30 mL及びアンモニア水－エタノール－水（1：60：39）混液60 mLを混合し、水で100 mLに定容した後、20 mL採り、アセトニトリル－水（4：1）混液20 mLを加えて混和した。この溶液に混合標準原液1 mL（各色素50 μg）を添加し、C18ミニカラムに負荷した後、負荷液の溶媒組成とほぼ同じ組成のアセトニトリル－エタノール－水（4：3：3）混液5 mLを注入した。負荷液を含む全溶出液を採り、各色素の回収率を算出した結果、AZOは80％であったが、他の色素は89％～105％であり、良好な回収率が得られた。また、同様に、アイスクリーム（ラクトアイス）試料の抽出溶媒であるエタノール－水（9：1）混液30 mLにアンモニア水－エタノール－水（1：90：9）混液を加えて100 mLに定容し、その後の操作を上記と同様に行った場合の回収率は、BPNが84％であったが他の色素は92％～100％と良好であった。試料抽出液をC18ミニカラムで精製すると、カラム上部には夾雑物が保持されていることが目視で確認できたことから、本操作は低極性夾雑物の除去に有効であると考えられた。また、溶出液の減圧下濃縮時には、泡立ちの発生や突沸が起こりにくく、濃縮操作の時間短縮につながった。以上の結果から、除タンパク操作の上澄液をC18ミニカラムに負荷し、引き続きアセトニトリル－エタノール－水（4：3：3）混液5 mLで溶出することとした。

次に、指定外色素のMA-2ミニカラムからの溶出状況を確認した。前報[8]では、MA-2ミニカラムの溶出液を1％アンモニア含有メタノールとしているが、予備検討において溶出が遅い色素が認められたことからアンモニア水－メタノール（1：9）混液を用いることとした。そこで、指定色素についても併せて溶出状況を確認した。MA-2ミニカラムに混合標準原液1 mLを負荷した後、水5 mL、メタノール5 mLを注入し、その後、アンモニア水－メタノール（1：9）混液1 mLずつを注入して各画分中の色素を確認した。その結果、水画分及びメタノール画分には各色素の溶出は認められず、アンモニア水－メタノール（1：9）混液の6 mL画分までに各色素が85％～108％溶出した。以上の検討結果から、MA-2ミニカラム精製法として、C18ミニカラムの溶出液を約15 mLまで減圧下濃縮して有機溶媒を除去した後、MA-2ミニカラムに負荷し、水5 mL、次いでメタノール5 mLで洗浄した後、アンモニア水－メタノール（1：9）混液6 mLで溶出することとした。なお、MA-2ミニカラム溶出液を減圧下濃縮すると、液量が少量になったときにR105などの色素が一部析出して再溶解せず、回収率が低下する事例が確認された。そこで、濃縮時の液量確保のため、溶出液を受けるガラス器具に水を1.5 mL加えておき、色素析出防止策とした。

5．試験法の性能評価

14試料に1 mg/kg相当濃度の色素を添加した後、開発した試験法により試験溶液を調製し、回収率を求めた結果を表1に示した。回収率が60％未満であったのは、魚肉ソーセージのB2（58％）、鯨ベーコンのB2（52％）及びたらこのB2（49％）、60％～70％はすじこのB2（63％）、R3（68％）及びR105（64％）、たらこのBPN（68％）、漬物（セ

ロリ）のR105（68%）、生ラーメンのB2（61%）、ビーフジャーキーのR105（62%）及びBPN（60%）であり、他は70%以上の回収率を示した。アルカリ性の溶液中では比較的不安定なB2[13]において回収率50%程度の試料も認められたものの、本法は食用タール色素を検出するのに十分な性能を有していると考えられ、対象とする指定色素及び指定外色素の一斉試験法として有用であると判断できた。

表1　食品毎におけるタール色素の添加回収試験結果

試料名	添加濃度 (mg/kg)	回収率（%）（RSD（%））$n = 3$								
		B1	B2	R2	R3	R40	R102	R104	R105	R106
アイスクリーム（ラクトアイス）	1	94（1）	76(16)	95（4）	84（6）	94（3）	102（1）	88（2）	72(11)	104（3）
厚揚げかまぼこ	1	100（3）	76(11)	95（3）	81（5）	102（2）	99（3）	89（7）	78（9）	101（5）
いちご	1	94（2）	88（1）	93（2）	85（2）	92（4）	98（2）	93（2）	84（8）	92（2）
ウインナー	1	101（1）	89（2）	103（1）	89（3）	102（2）	106（2）	91（3）	89（5）	105（1）
オレンジゼリー	1	93（3）	79(11)	93（6）	78（3）	88（1）	96（4）	85（1）	74（7）	95（4）
魚肉ソーセージ	1	96（4）	58(18)	95（4）	76（3）	97（3）	100（4）	79（7）	74（8）	99（3）
鯨ベーコン	1	96（3）	52(14)	91（7）	82（3）	98（4）	—*	90（4）	83（9）	99（4）
すじこ	1	96（2）	63(11)	90（3）	68（5）	96（1）	89（2）	77（6）	64（4）	101（2）
タコ燻製	1	92（3）	87（6）	91（2）	83（3）	95(12)	88（8）	87（2）	82（2）	96（2）
たらこ	1	98（3）	49(23)	93（6）	73（1）	94（6）	96（1）	75（1）	72（4）	102（4）
漬物（セロリ）	1	93（2）	70（6）	98(10)	80（3）	91（6）	91（7）	93（3）	68(10)	94（2）
生ラーメン	1	95（6）	61（5）	87（9）	77(10)	101（7）	88（2）	77(14)	71(12)	98（5）
ビーフジャーキー	1	93（1）	85（5）	86（1）	80（3）	93（2）	79（2）	86（1）	62（3）	96（1）
焼き菓子	1	97（3）	86（4）	100（1）	75（3）	99（7）	105（6）	82（5）	78（3）	99（3）

*　色素使用のため未評価

表1　食品毎におけるタール色素の添加回収試験結果（続き）

試料名	添加濃度 (mg/kg)	回収率（%）（RSD（%））$n = 3$								
		Y4	Y5	G3	AZO	OR Ⅱ	QY	PBV	FR	BPN
アイスクリーム（ラクトアイス）	1	95（5）	96（1）	95（1）	95（6）	107（2）	95（4）	98（3）	92（6）	84（1）
厚揚げかまぼこ	1	104（1）	99（2）	102（3）	102（6）	96（3）	98（3）	102（3）	102（4）	86（5）
いちご	1	96（2）	88（4）	93（1）	94（2）	90（2）	96（2）	96（1）	90（1）	101（5）
ウインナー	1	100（0）	100（4）	98（1）	99（1）	96（1）	101（2）	100（1）	101（1）	92（1）
オレンジゼリー	1	95（4）	91（1）	93（4）	90（6）	89（4）	88（4）	97（4）	89（6）	92（3）
魚肉ソーセージ	1	96（5）	96（3）	97（3）	95（3）	92（4）	97（5）	96（3）	91（1）	89（3）
鯨ベーコン	1	99（3）	96（3）	97（4）	93（5）	93（3）	94（3）	97（2）	100（3）	81（4）
すじこ	1	94（0）	93（5）	96（1）	97（2）	92（1）	92（3）	98（0）	96（1）	82（2）
タコ燻製	1	89（2）	88（2）	91（4）	90（4）	91（2）	107（4）	96（1）	94(11)	79（3）
たらこ	1	97（4）	93（1）	98（4）	92（7）	91（2）	96（2）	99（3）	89（6）	68（3）
漬物（セロリ）	1	96（2）	92（5）	93（2）	93（4）	91（1）	91（2）	96（2）	93（3）	90（2）
生ラーメン	1	92（5）	96（6）	95（6）	88（9）	96（2）	93（4）	98（5）	89（7）	81(15)
ビーフジャーキー	1	91（1）	103（2）	95（1）	103(16)	93（2）	89（2）	95（1）	89（9）	60（3）
焼き菓子	1	100（4）	93（4）	100（3）	94（8）	89（3）	91（4）	100（3）	93（5）	92（2）

文　　献

1）厚生省告示第 370 号「食品、添加物等の規格基準」，昭和 34 年 12 月 28 日
2）厚生労働省ホームページ：輸入時における輸入食品違反事例，https://www.mhlw.go.jp/stf/seisakunitsuite/bunya/kenkou_iryou/shokuhin/yunyu_kanshi/ihan/index.html（確認：2023 年 5 月 9 日）
3）日本食品衛生協会編：第 2 版食品中の食品添加物分析法 2000，壮光舎印刷，東京，2000，pp.113–131
4）大須賀愛幸，植松洋子，山嶋裕季子，藤原卓士，田原正一，宮川弘之，水町敏子，門間公夫：高タンパク食品中の酸性タール色素分析－精製カラムに負荷する溶液の pH の影響についての検討－．食衛誌，**57**，207–212（2016）
5）林　都香，千葉美子，栁　　茂，山口友美，氏家愛子，濱名　徹：食用酸性タール色素の抽出および精製法の検討．宮城県保健環境センター年報，**27**，97–99（2009）
6）荒川　武，田野井隆，青木信夫，西宮律子，中根活広：たらこにおける酸性タール色素の抽出精製法の検討．宇都宮市衛生環境試験所年報平成 25 年版，34–37（2014）
7）古賀梓美，赤木浩一：福岡市における辛子明太子の着色料検出状況と精製法の検討．福岡市衛生研究所報，**37**，77–80（2011）
8）久保田晶子，岡部　亮，柿本洋一郎，青栁光敏：固相抽出ミニカラムを用いた食用タール色素試験法の検討．道衛研所報，**67**，57–62（2017）
9）日本分析化学関東支部編：高速液体クロマトグラフィーハンドブック改訂 2 版，丸善，東京，2000，p.237
10）長南隆夫，西村一彦，平間祐志：HPLC による畜産食品中の 5 種動物用医薬品の迅速定量．食衛誌，**41**，326–329（2000）
11）野口正一郎，寺田久屋，田村征男：LC/MS/MS を用いた畜水産物中の残留動物用医薬品の一斉分析法．食衛誌，**49**，177–188（2008）
12）青栁光敏，新山和人，根本　了：LC/MS による畜水産物中のクロフェンセットの分析法．食衛誌，**52**，156–160（2011）
13）山上隆也，矢崎礼子：食用タール色素検査における検体前処理法の検討．山梨県衛生環境研究所年報，**55**，42–44（2011）