

ストロンチウム安定同位体比分析による 切干大根の原料原産地判別法の開発

井伊 悠介¹, 後藤 祐之介², 石井 修人³, 申 基澈⁴, 陀安 一郎⁴
Yusuke Ii, Yunosuke Gotou, Shuto Ishii, Ki-Cheol Shin, Ichiro Tayasu

要 約

切干大根の原料大根の産地判別法の検討をストロンチウム安定同位体比分析により行った。産地判別の基準値設定のために78試料の国産の生鮮大根と57試料の外国産（中国産）の切干大根を収集した。生鮮大根から切干大根を製造するための乾燥工程がストロンチウム安定同位体比にほとんど影響を与えないことを確認した後に、収集した生鮮大根や切干大根のストロンチウム安定同位体比を測定し、カーネル密度推定とROC曲線により国産と外国産の判別のための基準値を設定した。ストロンチウム安定同位体比が0.7113以下を国産、0.7113超を外国産とする基準の場合、特異度は99.3%で収集した国産試料は全てが国産と正しく判別され、感度は98.8%で外国産試料は全てが外国産と正しく判別された。

1. はじめに

切干大根（千切大根）の表示にあつては、食品表示法（平成25年法律第70号）に基づき制定された食品表示基準（平成27年内閣府令第10号）により名称、原材料名などの表示の他に、輸入品以外のものにあつては原料原産地名を表示することが義務付けられている。

国産の加工向け大根の出荷量¹⁾は平成26年~平成28年の平均で約277,000トンで、この一部が原料原産地が国産表示の切干大根に用いられている。生産農業所得統計によると、切干大根の農産物産出額は14億円²⁾（平成26年~平成28年の平均）であり、その中で宮崎県が占める額は14億円である²⁾ことから、国産の切干大根のほとんどが宮崎県で生産されていると考えられる。平成26年~平成28年の宮崎県における切干大根の平均の生産量は1,733トンである³⁾。一方で乾燥大根の輸入量⁴⁾は平成26年~平成28年の平均で3,388トンで、この一部が原産国表示が外国の切干大根に用いられていると思われる。また、輸入量の99.9%は中国からのものである。原料原産地表示が日本と原産国表示が中国の製品間では、前者のほうが高価な傾向であることから、原料原産地表示の真正性を客観的に検証する科学的な技術の開発が求められる。

これまで、食品の産地判別のための科学的技術として食品中の元素濃度や、軽元素・重元素の安定同位体比の分析による手法が研究されており（梅干し⁵⁾、牛肉⁶⁾、養殖うなぎ⁷⁾、穀物⁸⁾、しらす干し⁹⁾、りんご¹⁰⁾、湯通し塩蔵わかめ¹¹⁾、小麦¹²⁾、わかめ加工品¹³⁾等）、農林水産消費安全技術センター（以下「FAMIC」という。）においてもこれらの技術を用いた食品の産地判別法の検討・開発を行っているところである（アスパラガス¹⁴⁾、ニホンウナギ加工品¹⁵⁾、湯通し塩蔵わかめ¹⁶⁾、乾わかめ¹⁷⁾、タケノコ・レンコン・ワラビ・ゼンマイの水煮¹⁸⁾、はちみつ¹⁹⁾²⁰⁾、冷

¹ 独立行政法人農林水産消費安全技術センター神戸センター（現）本部

² 独立行政法人農林水産消費安全技術センター神戸センター

³ 独立行政法人農林水産消費安全技術センター本部

⁴ 大学共同利用機関法人 人間文化研究機構 総合地球環境学研究所

凍ほうれんそう²¹⁾、乾しいたけ²²⁾、ネギ²³⁾、りんごジュース²⁴⁾、タマネギ²⁵⁾、かき類²⁶⁾、ショウガ²⁷⁾²⁸⁾、サトイモ²⁸⁾、ゴボウ²⁸⁾²⁹⁾、ニンニク²⁸⁾³⁰⁾、さやえんどう²⁸⁾³¹⁾等)。今回は重元素であるストロンチウムの安定同位体比 (⁸⁷Sr/⁸⁶Sr、以下「Sr 安定同位体比」という。) 分析による切干大根の原料原産地判別法の検討を行った。

2. 実験方法

2.1 試料

産地判別の基準値設定のためのモデル試料として国産大根と外国産大根を用いた。産地履歴の確かな国産の大根の試料として平成 29 年に収穫された生鮮大根を主に農業協同組合を通じて収集した。1 本の大根を 1 試料とし 78 試料を入手した^(注)。これらの生産道府県は、表 1 のとおりであり、同一道府県の各試料は、異なる市町村や生産者において生育したものを収集した。

外国産大根については、輸入される乾燥大根のほとんどが中国産であることから、外国産大根として中国産大根を用いることにした。また、生鮮大根の入手が困難だったことから、原料大根の原産地表示が中国である、平成 28 年~平成 29 年に購入した市販の切干大根を中国産大根として用いた。1 商品を 1 試料として、57 試料を入手した。製造業者等に確認した結果、原料大根の栽培省は主に雲南省であった(表 1)。

表1 収集した大根の生産地と収集試料数

国産大根			中国産大根					
道府県	収集試料数	割合(%)	道府県	収集試料数	割合(%)	省	収集試料数	割合(%)
北海道	7	9	鳥取	1	1	雲南	41	72
青森	3	4	岡山	4	5	福建	1	2
岩手	3	4	広島	3	4	不明	15	26
秋田	3	4	山口	1	1			
茨城	1	1	徳島	3	4			
群馬	3	4	福岡	2	3			
千葉	3	4	長崎	5	6			
石川	3	4	熊本	3	4			
長野	3	4	大分	3	4			
愛知	3	4	宮崎	15	19			
京都	3	4	鹿児島	3	4			
収集試料数合計 78			収集試料数合計 57					

割合(%)は各国の合計に対する各道府県、省からの収集試料数の割合である。

2.2 試薬

試料の酸分解には、61%硝酸(高純度電子工業用、関東化学)、70%過塩素酸(TAMAPURE-AA-100、多摩化学工業)、50%ふっ化水素酸(原子吸光分析用、関東化学)を用いた。硝酸の希釈には超純水(比抵抗値18 MΩ・cm以上)を用いた。内標準法によるSrの濃度測定のために、標準物質としてSrとInの単元素標準物質(ともにPlasmaCal、SCP SCIENCE)を用いた。Srを精製

(注) 国産大根の収集は著者以外に農林水産消費安全技術センターの松岡高広、勝藤繁、小川恵吾、佐藤佳代子、野澤慎太郎、今村正彦、琵琶隆史、荒尾祐子、柿本芳久、野村ともみ、伊澤淳修、坪根政文、足立静香が担当した。

するために、Srレジン（Eichrom Technologies）を用いた。測定した大根試料のSr安定同位体比を補正するための標準物質として認証標準物質Strontium Carbonate SRM987（National Institute of Standards and Technology）を用いた。

2.3 装置

2.4.1の大根の乾燥には送風定温乾燥機（FC-610、ADVANTEC）を用いた。Sr濃度の測定には、誘導結合プラズマ質量分析装置（ICP-MS）（820MS、Varian（現Agilent Technologies））を用いた。Sr安定同位体比の測定には高精度分解能ICP-MS（HR-ICP-MS）（ElementXR、Thermo Fisher Scientific）もしくは大学共同利用機関法人人間文化研究機構総合地球環境学研究所（以下「RIHN」という。）所有の二重収束型のマルチコレクターICP-MS（MC-ICP-MS）（Neptune plus、Thermo Fisher Scientific）を用いた。

2.4 試料の前処理

2.4.1 試料の調製

国産大根については、セラミック刃の包丁で細切したもの、もしくは細切し乾燥させたもの（送風定温乾燥機内に65~80℃で一晩静置し、もとの重量の7%以下にした）を次の酸分解に用いることとした。中国産大根については、商品を開封し、無作為に選んだ1片を酸分解に用いた。

2.4.2 酸分解

細切した国産大根は3 g、細切・乾燥した国産大根は0.3 g、中国産大根は1片をPFA又はPTFEのビーカーに採取し、10 mLの61%硝酸を加え、ホットプレート上で120℃で2時間以上加熱した。褐色のガスが発生する激しい反応が収まった後に放冷し、2.5 mLの70%過塩素酸を加え、温度を上げながら200~230℃の範囲で加熱した。固形物が認められず、液が透明で、無色または薄い黄色になるまで分解した後に放冷し、0.5 mLの50%ふっ化水素酸を加え、80℃で1.5~2時間加熱した。放冷後、ビーカーにふたをせずに、200~230℃で加熱し分解液を乾固した。ビーカーに5 mLの1%硝酸を加え、残留物を60~80℃で加熱・溶解し、樹脂製容器に洗い込む操作を3回繰り返し、内標準としてInを5 µg/Lになるように加え、1%硝酸で50 mLに定容して得られた分解溶液をSr濃度の測定に供した。

2.4.3 Sr濃度の測定

分解溶液をICP-MSにより測定し、Sr濃度を内標準法で求めた。

2.4.4 Srの精製

200~400 ngのSrを含む分解溶液をビーカーに採取し、150℃で乾固させた後に、残留物を4 mLの8 M硝酸で溶解した。Sr安定同位体比測定を阻害するRbを除去する目的でSrレジンを用いた精製を次のとおり行った。0.05 M硝酸でコンディショニングしたSrレジンをカラム管に充填し、8 M硝酸で洗浄した後に、溶解液を数回に分けて負荷した。3 mLの8 M硝酸と0.4 mLの0.05 M硝酸の順で洗浄した後に、2 mLの0.05 M硝酸によりSrを溶出した。Sr安定同位体比をHR-ICP-MSで測定する場合は、Sr濃度が20 ng/mLになるように0.05 M硝酸で溶出液を希釈し、測定に用いる試料溶液とした。MC-ICP-MSで測定する場合は、この溶出液を65℃で乾固し、Sr濃度が100~200 ng/mLになるように残留物を3%硝酸で溶解し、測定に用いる試料溶液とした。

2.5 Sr 安定同位体比の測定

試料溶液及び試料溶液と同程度の Sr 濃度になるように希釈した SRM987 を HR-ICP-MS もしくは MC-ICP-MS により測定した。測定条件は HR-ICP-MS においては篠崎ら⁸⁾に準じ（データ収集の積算回数は 1500 回⁸⁾とした。サンプルガス流量は 1 分あたり 1.2 L とした）、MC-ICP-MS においては後藤ら²³⁾に準じた（測定サイクル数は 40 もしくは 50 とした）。測定により得られた大根試料や SRM987 の Sr 安定同位体比の補正は篠崎ら⁸⁾に準じ、⁸⁶Sr、⁸⁷Sr について ⁸⁶Kr、⁸⁷Rb によるスペクトル干渉の補正と Exponential law による内部補正を行い、補正後の SRM987 の Sr 安定同位体比を用いて大根試料の Sr 安定同位体比を補正し、結果の解析等にはこの補正後の値を用いた。

2.5.1 分析精度の確認

酸分解から HR-ICP-MS もしくは MC-ICP-MS による測定までの分析精度を確認した。

2.5.2 乾燥工程が Sr 安定同位体比に及ぼす影響の確認

生鮮大根とそれを用いて 2.4.1 の条件で乾燥させた大根を分析し、乾燥工程が Sr 安定同位体比に及ぼす影響を調べた。

2.5.3 モデル試料の分析

産地判別の基準値を設定するために、国産と中国産のモデル試料を HR-ICP-MS もしくは MC-ICP-MS により測定した。

2.6 ROC 曲線による産地判別の基準値の設定

モデル試料の Sr 安定同位体比の測定結果 ($n=135$) から、カーネル密度推定により、国産と中国産大根の Sr 安定同位体比の分布を推定した。測定した Sr 安定同位体比の分布範囲において、Sr 安定同位体比を産地判別の基準値としたカットオフ値を変化させて、特異度（国産試料を国産と正しく判別する確率、%）及び感度（中国産試料を中国産と正しく判別する確率、%）を算出した。偽陽性率（100-特異度）を横軸、感度を縦軸にプロットした Receiver Operating Characteristic (ROC) 曲線から産地判別の基準値（Sr 安定同位体比）を設定した。

3. 結果及び考察

3.1 分析精度の確認

並行分析 ($n=7$) により酸分解から Sr 安定同位体比測定までの分析精度を確認したところ、測定機器が HR-ICP-MS の場合は RSD=0.045 %、MC-ICP-MS では RSD=0.0051 % であり、分析精度は MC-ICP-MS が優れていた。ただし、篠崎ら⁸⁾は HR-ICP-MS での Sr 安定同位体比の日内測定精度を確認し、0.044-0.087 % と報告しており、今回の HR-ICP-MS の分析精度は問題ないと考えられた。

3.2 乾燥工程が Sr 安定同位体比に及ぼす影響の確認

7 本の生鮮大根とそれらを乾燥させたものについて、それぞれ 1 点ずつ Sr 安定同位体比を MC-ICP-MS で測定した結果、生鮮大根と切干大根の平均値間においてはペアの t 検定（有意水準 5 %）では有意差は認められず ($p=0.24$)、乾燥による Sr 安定同位体比への影響は小さいと考え

られた。

3.3 産地判別の基準値設定のためのモデル試料の分析

産地判別の基準値設定のために HR-ICP-MS で 32 試料の国産、8 試料の中国産の大根試料を、MC-ICP-MS で 46 試料の国産、49 試料の中国産の大根試料を測定した。測定結果からの各種統計量を表 2 に、国産と中国産大根の Sr 安定同位体比のヒストグラムを図 1 に示した。平均値±標準偏差は国産大根では 0.7077 ± 0.0013 ($n=78$)、中国産大根では 0.7236 ± 0.0061 ($n=57$) で、国産より中国産大根の Sr 安定同位体比が高い傾向であり、分散が等しくないと仮定した t 検定では、有意水準 5% で平均値に有意差が確認された ($p < 0.01$)。

表2 モデル試料の大根のSr安定同位体比の各種統計量

	国産	中国産
試料数	78	57
平均値	0.7077	0.7236
標準偏差	0.0013	0.0061
RSD (%)	0.18	0.84
最小値	0.7053	0.7128
第1四分位数	0.7067	0.7191
中央値	0.7076	0.7231
第3四分位数	0.7087	0.7268
最大値	0.7107	0.7410

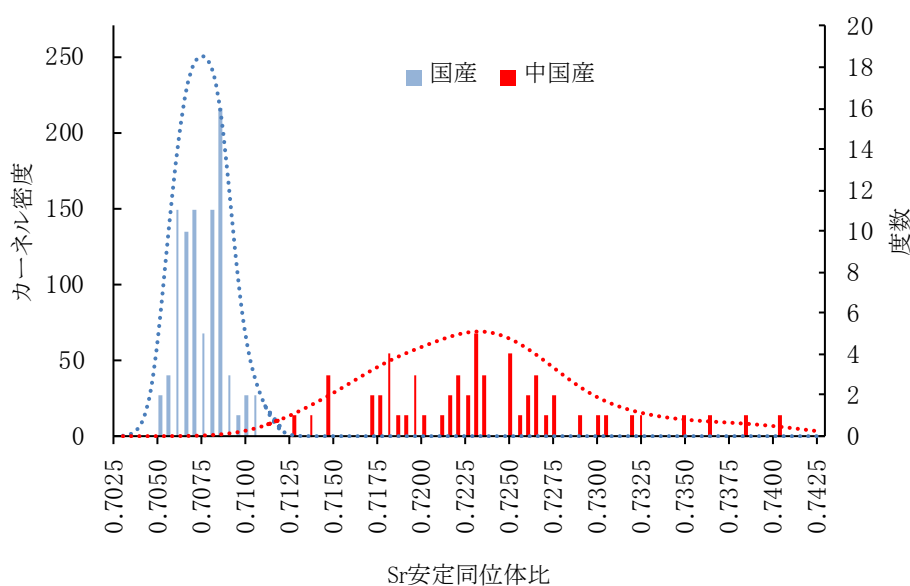


図1 モデル試料の国産と中国産大根のSr安定同位体比の分布

3.4 ROC 曲線による産地判別のための基準となる Sr 安定同位体比の設定

Sr 安定同位体比 (カットオフ値) を変化させ、各値での偽陽性率と感度を求めて ROC 曲線を作成した。偽陽性率 0%、感度 100% の点から一番距離が短い、ROC 曲線上の点の値 (偽陽性率、感度) を与える Sr 安定同位体比を産地判別の基準値とすることとした。この点の値は偽陽性率 0.7% (特異度 99.3%)、感度 98.8% であり (図 2)、対応する Sr 安定同位体比は 0.7113 であった。0.7113 を基準値として、0.7113 以下を国産、0.7113 超を中国産と判別する場合、カーネル密度推定の結果では国産と中国産大根の Sr 安定同位体比の分布で一部重なりが見られたが (図 1

の点線)、モデル試料については国産大根は全て国産と、中国産大根は全て中国産と正しく判別された。

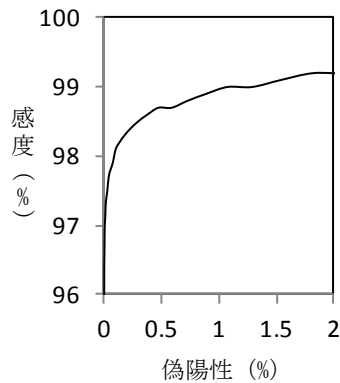


図2 国産と中国産大根判別のためのROC曲線

偽陽性(%)は100-特異度(%)である。偽陽性率0%、感度100%の点から距離が最も短い偽陽性率0.7%(特異度99.3%)、感度98.8%を与えるカットオフ値(Sr安定同位体比)は0.7113であり、これを基準値とした。特異度は国産大根を国産大根と、感度は中国産大根を中国産大根と正しく判別する確率である。

3.5 ふっ化水素酸を用いない酸分解の検討

本検討では大根試料中のケイ酸を、 SiF_4 として揮散させて除去するために、酸分解時にふっ化水素酸を用いたが、使用にあたっては毒物であることから試験者への安全性の考慮や対応したドラフトチャンバーが必要である。よって酸分解時においてふっ化水素酸の使用の有無(各 $n=5$)で大根試料のSr安定同位体比に違い出るかをHR-ICP-MSを用いて調べた結果、等分散と仮定したt検定では、有意水準5%で有意差は認められなかった($p=0.41$)。このことからふっ化水素酸の使用の有無が大根試料のSr安定同位体比に及ぼす影響は小さく、用いない場合でも、用いた場合と同程度の測定結果が得られると考えられた。ただしケイ酸が含まれる試料溶液の測定により、HR-ICP-MS、MC-ICP-MSを含むICP-MSにおいてネプライザーの詰まりやトーチやコーンの損傷のような装置の不具合が生じる可能性があることから、ふっ化水素酸の利用等によるケイ酸の除去を実施しない場合は、この点に注意する必要がある。

3.6 Sr安定同位体比分析による国産と中国産の原産地もしくは原料原産地判別

石田ら¹²⁾は元素分析とSr安定同位体比分析を行い、それぞれの結果を組み合わせた判別式による小麦の産地判別法を報告している。FAMICにおいても、一部の食品の産地判別法の検討において元素分析と安定同位体比分析によりデータ収集を行い²⁰⁾⁻²³⁾²⁶⁾²⁷⁾、得られた測定結果を組み合わせることで元素分析と安定同位体比分析の結果をそれぞれ単独で用いた場合よりも判別精度が向上する場合を確認している²⁰⁾²²⁾²³⁾²⁷⁾。今回の切干大根の原料原産地判別法の検討においては、Sr安定同位体比分析のみで国産と外国(中国)産のモデル試料を正しく判別することができた。

FAMICで検討した各作物等の原産地もしくは原料原産地の産地判別法において、国産と中国産の判別に着目した場合、試料のSr安定同位体比の平均値は国産に比べ中国産が高い傾向であり、Sr安定同位体比分析の結果のみで各作物等ごとに算出した基準値による国産と中国産の試料の判別の正答率は、国産、中国産の順に、例えば冷凍ほうれんそう²¹⁾は、100%($n=57$)、92%($n=37$)、原木栽培乾しいたけ²²⁾は93%($n=55$)、95%($n=22$)、ネギ²³⁾は98.4%($n=64$)、61%($n=38$)、ショウガ²⁷⁾は100%($n=55$)、84%($n=43$)であった。しかし、ゼンマイ(水煮)¹⁸⁾、ハチミツ²⁰⁾は国産と中国産の試料間でSr安定同位体比の分布範囲の重なりが小さくないため、国産試料を国産と正しく判別する観点から基準値を設定した場合、Sr安定同位体比分析のみによる産地判別は困難と考えられる場合もあった。このように作物等によってSr安定同位体比分析による国産と中国産の産地判別への適用可能性は異なる結果となった。

この原因としては検討に用いた作物等が育った各地域の農地土壌のSr安定同位体比の違いが

考えられる。作物の Sr 安定同位体比は、生育した土壌中の作物が吸収できる Sr の安定同位体比を反映する傾向があることから²⁸⁾、日本と中国の各地域の土壌の Sr の違いが反映されたと思われる。質量数 87 の Sr は同じ質量数の Rb のベータ崩壊（半減期 489 億年）によって生じ、年代の古い地質の方が Sr 安定同位体比は高い傾向となる。よって同一国内でも地域間で地質の形成された時代が異なれば、その土壌の Sr 安定同位体比は異なると考えられる。Aoyama ら²⁸⁾は実際に、日本の複数地域の作物の農地土壌の Sr 安定同位体比について調査し、地域間によって Sr 安定同位体比が異なる場合があることを報告している。

本検討で用いた国産試料について、試料数の割合が最も多い宮崎県産大根の Sr 安定同位体比の平均値±標準偏差は 0.7082 ± 0.0009 ($n=15$) で、二番目に多い北海道産大根は 0.7063 ± 0.0009 ($n=7$) であり、Sr 安定同位体比は異なる傾向となった。これらの値は宮崎県と北海道の農地土壌の Sr 安定同位体比の値²⁸⁾と同じ傾向であった。また、ネギの産地判別法の検討²³⁾においては、中国の二つの省で栽培されたネギを用いており、省別の Sr 安定同位体比（平均値±標準偏差、最小値~最大値）は 0.7071 ± 0.0013 、 $0.7051 \sim 0.7098$ ($n=11$) と 0.7109 ± 0.0013 、 $0.7083 \sim 0.7127$ ($n=37$) であり、省によって異なる傾向であった。これらのことから、原産地や原料原産地の判別対象となる作物等については、日本と中国のそれぞれの地域で生育したかにより Sr 安定同位体比分析の産地判別への適用可能性が変わると考えられた。

本検討も含めて、FAMIC が産地判別の検討のために測定した国産試料（RIHN 所有の MC-ICP-MS により測定した試料も含む）¹⁸⁾²⁰⁾²¹⁾²³⁾²⁵⁾²⁷⁾²⁸⁾ ($n=802$ 、47 都道府県)の各作物等（タケノコ・レンコン・ワラビ・ゼンマイ水煮、はちみつ、冷凍ほうれんそう、ネギ、タマネギ、ショウガ、サトイモ、ゴボウ、ニンニク、サヤエンドウ）ごとの Sr 安定同位体比の平均値の範囲は $0.7073 \sim 0.7094$ で、RSD の範囲は $0.08 \sim 0.24$ %であった（タマネギ²⁵⁾の国産試料の RSD は不明であるが、国産試料の各 Sr 安定同位体比について、最大値と最小値の差は 0.0060 であった。）。一方で、今回の結果から中国の雲南省で栽培される大根の Sr 安定同位体比 (0.7238 ± 0.0050 、 $n=41$) はこれらに比べ高い傾向にあるので、国産と中国産の作物等の産地判別の検討では、中国産の作物等が雲南省における大根と同じ地域で栽培されているならば、Sr 安定同位体比分析の利用が有効と考えられた。

4. まとめ

切干大根の原料原産地判別法を Sr 安定同位体比分析により検討した。その結果、Sr 安定同位体比 0.7113 を原料原産地判別の基準値にしたところ（陽性尤度比は 136）、収集した全ての大根試料（国産 78 試料、中国産 57 試料）の産地を正しく判別することができた。

謝 辞

本研究を実施するにあたり、国産大根の収集にご協力いただいた農業協同組合、切干大根の生産量についてご教示いただいた日本かんぶつ協会の皆様に深く感謝いたします。

文 献

- 1) 農林水産省、作物統計（だいこん都道府県別の用途別出荷量）（平成 26 年~平成 28 年産）
- 2) 農林水産省、生産農業所得統計（農産物産出額の順位と構成比）（平成 26 年~平成 28 年）

- 3) 日本かんぶつ協会調べ
- 4) 財務省、貿易統計（乾燥野菜のうちのだいこん）
- 5) 井上博道, 梅宮善章, 中村ゆり: ウメ干しの仁の微量元素濃度による日本産と中国産の判別, 日本土壌肥科学雑誌, **76**(6), 875-880(2005)
- 6) 中下留美子, 鈴木彌生子, 赤松史一, 小原和仁, 伊永隆史: 安定同位体比解析による国産・豪州産・米国産牛肉の産地判別の可能性, 日本食品科学工学会誌, **55**(4), 191-193(2008)
- 7) 中下留美子, 鈴木彌生子, 一宮孝博, 伊永隆史: 生元素安定同位体比解析による養殖ウナギの産地判別の可能性, 日本食品科学工学会誌, **56**(9), 495-497(2009)
- 8) 篠崎美由起, 有山薫, 川崎晃, 平田岳史: 単一検出器型高分解能誘導結合プラズマ質量分析装置を用いる穀物のストロンチウムと鉛の同位体比分析, 分析化学, **59**(11), 1003-1011(2010)
- 9) 小泉鏡子, 中下留美子, 鈴木彌生子: 安定同位体比分析によるしらす干しの原料原産地判別の可能性, 日本食品科学工学会誌, **58**(6), 259-262(2011)
- 10) 鈴木彌生子, 中下留美子, 河邊亮, 北井亜希子, 富山眞吾: 炭素・酸素安定同位体比分析による青森県産および中国産リンゴの産地判別の可能性, 日本食品科学工学会誌, **59**(2), 69-75(2012)
- 11) 鈴木彌生子, 國分敦子, 絵面智宏, 中山和美: 炭素・窒素・酸素安定同位体比分析による湯通し塩蔵ワカメの産地判別の可能性, 日本食品科学工学会誌, **60**(1), 1-10(2013)
- 12) 石田悦基, 中村健治, 有山薫, 川崎晃: 微量元素濃度及び重元素同位体比を利用する小麦の産地判別, 分析化学, **63**(3), 255-261(2014)
- 13) 絵面智宏, 國分敦子, 阿部洋俊, 濱田真子, 加藤栄一, 鈴木彌生子: わかめの加工による微量元素組成変動と産地判別の可能性, 日本食品科学工学会誌, **62**(10), 484-491(2015)
- 14) 服部賢志, 船木紀夫, 法邑雄司: 無機元素分析によるアスパラガスの産地判別, 日本食品科学工学会誌, **56**(2), 108-113(2009)
- 15) 服部賢志, 木村康晴, 高嶋康晴, 法邑雄司: 無機元素分析によるニホンウナギ加工品の原産地判別, 日本水産学会誌, **75**(5), 844-848(2009)
- 16) 諸橋保, 青山恵介, 浪越充司, 木村康晴, 服部賢志: 元素分析による湯通し塩蔵わかめの原料原産地判別, 日本水産学会誌, **77**(2), 243-245(2011)
- 17) Hiraoka, H.; Morita, S.; Gotou, Y.; Hattori, S.; Ishikawa, T.; Okano, K.: Confirming the authenticity of the geographical origin of Naruto dried wakame *Undaria pinnatifida* using stable nitrogen isotope ratios, *Fisheries Science*, **80**(3), 635-642(2014)
- 18) 伊澤淳修, 青山恵介, 申基澈, 中野孝教: ストロンチウム安定同位体比によるタケノコ等野菜の水煮加工品の原料原産地判別法の検討, 農林水産消費安全技術センター食品関係等調査研究報告, **38**, 6-15(2014)
- 19) 一色摩耶, 中村哲, 鈴木彌生子: 多元素同時分析によるアカシアはちみつの原料原産地判別, 日本食品科学工学会誌, **62**(5), 257-262(2015)
- 20) 豊田正俊, 箱田晃子, 石井修人, 鈴木彌生子: はちみつのストロンチウム安定同位体比分析による原料原産地判別法の検討, 農林水産消費安全技術センター食品関係等調査研究報告, **41**, 22-30(2017)
- 21) 森田先恵, 伊澤淳修, 申基澈, 中野孝教: 元素分析及びストロンチウム安定同位体比分析による冷凍ほうれんそうの原料原産地判別法の検討, 農林水産消費安全技術センター食品関係等調査研究報告, **39**, 31-37(2015)

- 22) 石井修人, 箱田晃子: 原木栽培乾しいたけの元素分析とストロンチウム安定同位体比分析の組み合わせによる原料原産地判別法の検討, 農林水産消費安全技術センター食品関係等調査研究報告, **40**, 9-16(2017)
- 23) 後藤祐之介, 伊澤淳修, 申基澈, 中野孝教: ネギのストロンチウム安定同位体比分析による原産地判別法の検討, 農林水産消費安全技術センター食品関係等調査研究報告, **40**, 17-24(2017)
- 24) 渡邊彩乃, 寺田昌市: 炭素・酸素安定同位体比分析によるりんごジュースの原料りんごの原産地判別法の検討, 農林水産消費安全技術センター食品関係等調査研究報告, **40**, 25-32(2017)
- 25) Hiraoka, H.; Morita, S.; Izawa, A.; Aoyama, K.; Shin, K.C.; Nakano, T.: Tracing the geographical origin of onions by strontium isotope ratio and strontium content, *Analytical Sciences*, **32**(7), 781-788(2016)
- 26) 小岩智宏, 伊澤淳修, 後藤祐之介: かき類の元素分析及び軽元素安定同位体比分析による原産地判別法の検討, 農林水産消費安全技術センター食品関係等調査研究報告, **41**, 15-21(2017)
- 27) 松野和久, 井伊悠介, 寺田昌市, 太田民久, 申基澈, 陀安一郎: ショウガの元素分析及びストロンチウム安定同位体比分析による原産地判別法の検討, 農林水産消費安全技術センター食品関係等調査研究報告, **41**, 8-14(2017)
- 28) Aoyama, K.; Nakano, T.; Shin, K.C.; Izawa, A.; Morita, S.: Variation of strontium stable isotope ratios and origins of strontium in Japanese vegetables and comparison with Chinese vegetables, *Food Chemistry*, **237**, 1186-1195(2017)
- 29) 船木紀夫, 服部賢志, 木村康晴, 佐藤耕一, 塚田政範, 津村明宏, 佐野雅敏、豊田正俊、小塚健志、門倉雅史、法邑雄司: 無機元素分析によるゴボウの原産国判別, 日本食品科学工学会誌, **57**(2), 70-77(2010)
- 30) 門倉雅史, 有山薫: 無機分析によるニンニクの原産国判別法の開発, 農林水産消費安全技術センター調査研究報告, **31**, 1-7(2007)
- 31) 服部賢志, 木村康晴, 船木紀夫, 法邑雄司: 無機元素組成によるさやえんどうの産地判別, 日本食品科学工学会誌, **56**(10), 529-532(2009)