

## はちみつ स्ट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

豊田 正俊<sup>1</sup>, 箱田 晃子<sup>1</sup>, 石井 修人<sup>1</sup>, 鈴木 彌生子<sup>2</sup>  
Masatoshi Toyoda, Akiko Hakoda, Shuto Ishii, Yaeko Suzuki

### 要 約

国産（日本産）はちみつ及び外国産はちみつについて、ストロンチウム（Sr）安定同位体比を利用した原料原産地判別法を検討した。国産はちみつ試料と、外国産（中国産、アルゼンチン産、カナダ産、ミャンマー産、ハンガリー産及びニュージーランド産）はちみつ試料の Sr 安定同位体比を比較した。その結果、国産はちみつと外国産はちみつの Sr 安定同位体比の分布の重なりが大きく、Sr 安定同位体比で国産と外国産を判別することは困難であると考えられた。

一方、アカシアはちみつの元素分析判別モデルについては、ハンガリー産試料等の分析データを追加して再構築を行った。その結果、判別モデル構築に使用した国産 107 試料中 104 試料、中国産 70 試料全て、ハンガリー産 18 試料全ての原料原産地を正しく判別した。このことから、元素分析によるアカシアはちみつの原料原産地判別をハンガリー産にも適用できる可能性があると考えられた。また、アカシアはちみつの元素分析と Sr 安定同位体比分析を組み合わせることで、元素分析単独による原料原産地判別法と比較して判別精度がより高くなる可能性が示唆された。

### 1. はじめに

食品表示法（平成 25 年法律第 70 号）に基づき定められた食品表示基準（平成 27 年内閣府令第 10 号）には、食品を販売する際に表示しなければならない表示事項やその表示の方法が規定されている。平成 29 年 9 月 1 日には同基準の一部を改正する内閣府令（平成 29 年内閣府令第 43 号）が施行され、それまで一部の加工食品にのみ義務付けられていた原料原産地名の表示が、輸入食品以外の全ての加工食品に拡大された（経過措置期間平成 34 年 3 月 31 日まで）。

はちみつの平成 27 年における輸入量は 36,222 トンであり、主な輸入先（輸入量）は、中国（26,411 トン）、アルゼンチン（3,278 トン）、カナダ（2,842 トン）、ミャンマー（738 トン）、ハンガリー（721 トン）、ニュージーランド（549 トン）となっている<sup>1)</sup>。一方、平成 27 年の国内生産量は 2,865 トン<sup>2)</sup>であり、国内生産量に比べ多量のはちみつが輸入されている。このため、はちみつに表示された原料原産地の真正性を科学的に検証する技術の開発が求められてきた。

食品における産地の科学的検証法は、元素分析や安定同位体比分析を利用した方法が報告されている<sup>3) - 5)</sup>。これらの方法は、土壌や水質等の生育環境の違いがそこで栽培された農産物の元素濃度や安定同位体比に影響を与えることを利用した産地判別法である。そこで、FAMIC においても平成 27 年に、国産と中国産の判別を目的として、アカシアはちみつの元素分析による原料原産地判別法を開発した<sup>6)</sup>。アカシアはちみつはニセアカシアを蜜源としたはちみつの一般的な呼び方であり、日本で採れる主要なはちみつの一つである。

<sup>1</sup> 独立行政法人農林水産消費安全技術センター本部

<sup>2</sup> 国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構食品研究部門

日本で採れるはちみつには、アカシアはちみつ以外にもレンゲ、ミカン、トチノキ等の様々な植物の単花蜜があり、また蜜源植物を特定しない百花蜜もある。また、上述したように、中国以外の国々からのはちみつの輸入量も多い。このため、はちみつの原料原産地判別の適用対象を拡大することが求められてきた。

はちみつの元素濃度は蜜源によって異なり、元素濃度に影響を与える要因としては、産地よりも蜜源のほうが大きいことが報告されている<sup>7)</sup>。そのため、はちみつの原料原産地判別法を元素分析により検討する場合、蜜源ごとに検討を行う必要があると考えられる<sup>8)</sup>。一方、Sr 安定同位体比は、同じ場所であれば蜜源植物の種類にかかわらず同様な値を示すと考えられる。そこで、国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構高度解析センター（以下「農研機構高度解析センター」という。）が所有する高分解能誘導結合プラズマ質量分析装置（以下「HR-ICP-MS」という。）を用いて、Sr 安定同位体比分析によるはちみつの原料原産地判別法について検討を行った。

また、アカシアはちみつについては、今回測定した元素分析データと既報<sup>9)</sup>のデータを用いて、元素分析により国産と外国産（中国産及びハンガリー産）を判別する原料原産地判別モデルを線形判別分析により構築し、Sr 安定同位体比分析との組み合わせについても検討したので報告する。

## 2. 実験方法

### 2.1 試料

Sr 安定同位体比分析には、はちみつ 273 試料（国産 135 試料、中国産 91 試料、アルゼンチン産 10 試料、カナダ産 16 試料、ミャンマー産 4 試料、ハンガリー産 10 試料、ニュージーランド産 7 試料）を用いた。国産試料の道府県別の試料点数を表 1 に示す。また、蜜源別の試料点数を表 2 及び表 3 に示す。

元素分析には、アカシアはちみつ 30 試料（国産 7 試料、中国産 5 試料、ハンガリー産 18 試料）を用いた。

国産試料は、平成 19～25 年及び平成 28 年に採取されたはちみつを業界団体を通じて入手した。外国産試料は、平成 23、24 年並びに平成 28、29 年に業界団体や小売店等を通じて入手した。

### 2.2 試薬

試料の陽イオン交換、分解及び調製には、陽イオン交換樹脂（DOWEX 50W X8 100-200mesh 又は 200-400mesh、ダウ・ケミカル）、61 % 硝酸（高純度電子工業用、関東化学）、60 % 過塩素酸（原子吸光分析用、関東化学又は試薬特級、和光純薬工業）、70% 過塩素酸（TAMAPURE-AA-100、多摩化学工業）を用いた。Sr の精製には、Sr レジン（50-100  $\mu\text{m}$ 、eichrom technologies）を用いた。元素濃度測定用の検量線用混合標準溶液は、単元素標準溶液（メルク）を適宜希釈して調製した。また、In の単元素標準溶液（メルク）を内標準溶液として希釈調製し、検量線用混合標準溶液及び試料溶液に添加した。Sr 安定同位体比測定用の標準溶液は、NIST（米国立標準技術研究所）の認証標準物質 Strontium Carbonate SRM987 を溶解し、適宜希釈して調製した。水は超純水製造装置（Super-Q システム：メルクミリポア）により製造した超純水（比抵抗値 18  $\text{M}\Omega \cdot \text{cm}$  以上）を用いた。

表1 Sr安定同位体比分析に用いた国産試料の道府県別の試料点数

道府県	点数	道府県	点数	道府県	点数
北海道	19	長野県	12	広島県	3
青森県	5	岐阜県	2	山口県	2
岩手県	3	静岡県	4	徳島県	2
秋田県	6	愛知県	2	香川県	3
山形県	2	滋賀県	3	愛媛県	3
福島県	2	京都府	3	福岡県	3
茨城県	2	大阪府	3	佐賀県	2
栃木県	2	兵庫県	3	長崎県	3
群馬県	2	奈良県	2	熊本県	4
埼玉県	2	和歌山県	6	大分県	2
千葉県	2	鳥取県	1	宮崎県	2
神奈川県	4	島根県	3	鹿児島県	2
新潟県	2	岡山県	1	沖縄県	3
福井県	3				

表2 Sr安定同位体比分析に用いた国産試料の蜜源別の試料点数

蜜源	点数	蜜源	点数
ニセアカシア	53	アザミ	1
百花	31	エゴノキ	1
ミカン	16	キハダ	1
レンゲ	7	クリ	1
クロガネモチ	4	クローバー	1
トチノキ	4	サクラ	1
カラスザンショウ	3	シナノキ	1
ソバ <sup>a)</sup>	3	フジ	1
ハゼノキ	3	リョウブ	1
ソヨゴ	2		

a)ソバはちみつ3点中1点は、シナノキはちみつが混入したものの。

表3 Sr安定同位体比分析に用いた外国産試料の蜜源別の試料点数

国	蜜源	点数	蜜源	点数
中国	ニセアカシア	62	ショウシ	1
	レンゲ	8	ミカン	1
	ナタネ	5	モクシュク	1
	百花	5	ヤハシ	1
	ウイキョウ	1	リュウガン	1
	キュウリュウトウ	1	レイシ	1
	クコ	1	ロウガ	1
	コウキツ	1		
	アルゼンチン	百花	10	
カナダ	百花	16		
ミャンマー	百花	4		
ハンガリー	ニセアカシア	10		
ニュージーランド	クローバー	4	マヌカ	3

## 2.3 装置

Sr 安定同位体比 ( $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ) の測定には、農研機構高度解析センターが所有する HR-ICP-MS (ELEMENT2 : Thermo Fisher Scientific) を用いた。元素濃度の測定には、農研機構高度解析センターが所有する誘導結合プラズマ発光分光分析装置 (ICP-OES) (Agilent5100 : Agilent) 及び HR-ICP-MS (ELEMENT2 : Thermo Fisher Scientific) を用いた。

## 2.4 分析

### 2.4.1 Sr 安定同位体比分析

#### 2.4.1.1 陽イオン交換カラム処理及び酸分解

まず、はちみつに含まれる糖類等を除去する目的で陽イオン交換カラムを用いた処理を行った。陽イオン交換樹脂を水に懸濁させ、カラム管に充填し 4 M 硝酸及び水でコンディショニングを行った。はちみつ試料 25 g に水を加えて 50 mL の混合液とし、コンディショニングを行った陽イオン交換樹脂に負荷した。水 40 mL を加えて陽イオン交換樹脂を洗浄後、4 M 硝酸 10 mL を加えて陽イオンを溶出させ、溶出液を酸分解用試料溶液とした。

次に、酸分解用試料溶液の全量を 61 % 硝酸 3 mL 及び 60 % 過塩素酸 0.5 mL で酸分解し、蒸発乾固させた。残留物を 8 M 硝酸 6 mL に溶解したものを Sr 精製用試料溶液とした。

#### 2.4.1.2 Sr 精製

Sr 精製は石井ら<sup>8)</sup>の方法に従った。すなわち、Sr レジンを 0.05 M 硝酸に懸濁させ、カラム管に充填し、8 M 硝酸でコンディショニングを行った。Sr 精製用試料溶液の適量をコンディショニングを行った Sr レジンに負荷した。8 M 硝酸 3 mL を加えて Sr レジンを洗浄後、0.05 M 硝酸 2 mL を加えて Sr を溶出させ、溶出液を Sr 安定同位体比測定用試料溶液とした。

#### 2.4.1.3 Sr 安定同位体比測定

HR-ICP-MS を用いて exponential law を用いた内部補正法<sup>9)</sup>により Sr 安定同位体比を測定した。

### 2.4.2 元素分析

酸分解は既報<sup>6)</sup>に準じた。すなわち、試料約 1 g を硝酸及び過塩素酸で分解し、蒸発乾固させた後、残留物を 1 % 硝酸で 50 mL に定容し、元素濃度測定用試料溶液とした。内標準用の In は定容後の濃度が 5  $\mu\text{g/L}$  となるように添加した。ICP-OES を用いて検量線法により Mg、P、K 及び Ca の 4 元素の元素濃度を測定した。また、HR-ICP-MS を用いて内標準法により Mn、Rb 及び Sr の 3 元素の元素濃度を測定した。

## 2.5 採取年及び蜜源の違いによる Sr 安定同位体比への影響の確認

採取地及び蜜源が同じであるが、採取年が異なるはちみつの Sr 安定同位体比の差の確認には、試料として国内 4 地域で採取したアカシアはちみつを用いた。採取地及び採取年が同じであるが、蜜源が異なるはちみつの Sr 安定同位体比の差の確認には、試料として平成 28 年に採取した国内 4 地域で採取したはちみつを用いた。これらの実験の試料調製及び Sr 安定同位体比測定は 2.4.1 のとおり行った。

## 2.6 アカシアはちみつの元素分析判別モデルの構築

2.4.2 で得られた元素分析のデータ (国産 7 試料、中国産 5 試料、ハンガリー産 18 試料) と既

報<sup>6)</sup>の判別モデルを構築した元素分析のデータ（国産 100 試料、中国産 65 試料）を新たな判別モデルの構築に用いた。

判別モデルの構築は、石井ら<sup>8)</sup>の方法に準じた。すなわち、各試料の試料中元素濃度及び試料中元素濃度の常用対数を説明変数として、線形判別及びサポートベクターマシン（SVM）により判別モデルを構築した。線形判別は R 3.4.0 の MASS パッケージを使用し、SVM は e1071 パッケージを使用した。構築した判別モデルの未知試料に対する的中率は、判別モデル構築用試料を用いた Leave-one-out cross validation（LOOCV）により確認した。なお、解析には各試料 2 点併行で測定した結果の平均値を用い、SVM は線形カーネルのみを検討した。

## 2.7. アカシアはちみつの元素分析と Sr 安定同位体比分析の組み合わせ判別モデルの構築

元素分析と Sr 安定同位体比分析の両分析を行ったアカシアはちみつ試料（国産 39 試料、中国産 62 試料、ハンガリー産 10 試料）について、各試料の 2.6 で得られた元素分析判別得点及び 2.4.1.3 で得られた Sr 安定同位体比を説明変数として、2.6 と同様の方法で判別モデルを構築した。

## 3. 結果及び考察

### 3.1 採取年の違いによる Sr 安定同位体比への影響

採取地及び蜜源が同じであるが、採取年が異なるはちみつの Sr 安定同位体比の差が大きい場合には、本研究のデータ解析に影響が生じると考えられる。このため、国内 4 地域で採取したアカシアはちみつを用いて、平成 23～24 年産と平成 28 年産との Sr 安定同位体比の差の確認を行い、その結果を表 4 に示した。

平成 23～24 年産と平成 28 年産との Sr 安定同位体比の差は 0.0002～0.0016 であり、Sr 安定同位体比測定において真度確認に用いている岩石標準物質（JB-3 又は JG-1a）を繰り返し測定した場合の併行許容差（0.0010）と比較して大きな差はないことを確認した。

表 4 採取年の違いによる Sr 安定同位体比への影響

はちみつ 産地	採取年	<sup>87</sup> Sr/ <sup>86</sup> Sr	差
北海道 A 市	平成 23 年	0.7080	0.0004
	平成 28 年	0.7076	
北海道 B 市	平成 24 年	0.7082	0.0016
	平成 28 年	0.7066	
青森県 C 町	平成 23 年	0.7059	0.0002
	平成 28 年	0.7057	
青森県 D 市	平成 23 年	0.7078	0.0008
	平成 28 年	0.7085	

### 3.2 蜜源の違いによる Sr 安定同位体比への影響

採取地及び採取年が同じであるが、蜜源が異なるはちみつの Sr 安定同位体比を比較し、蜜源の違いによる Sr 安定同位体比への影響があるのか否かを確認した。国内 4 地域で平成 28 年に採取したはちみつを用いて、蜜源が異なるはちみつの Sr 安定同位体比の差の確認を行い、その結果を表 5 に示した。蜜源が異なるはちみつの Sr 安定同位体比の差は、0.0002～0.0015 であり、岩石標準物質（JB-3 又は JG-1a）を繰り返し測定した場合の併行許容差（0.0010）と比較して大きな差

はないことを確認した。

表 5 蜜源の違いによるSr安定同位体比への影響

はちみつ 産地	蜜源	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	差
北海道E町	ニセアカシア	0.7073	
	アザミ	0.7075	0.0002
北海道F町	ニセアカシア	0.7086	
	ソバ	0.7071	0.0015
神奈川県G市	サクラ	0.7061	
	フジ	0.7067	0.0007
神奈川県H市	ミカン	0.7044	
	百花	0.7049	0.0005

### 3.3 Sr安定同位体比による国産及び外国産はちみつの判別

国産及び外国産はちみつのSr安定同位体比の測定結果の概要を表6及び図1に示した。

まず、国産試料と中国産試料を比較すると、国産試料のSr安定同位体比の範囲は0.7044~0.7134、平均値は0.7085であり、中国産試料のSr安定同位体比の範囲は0.7099~0.7206、平均値は0.7116であった(表6)。国産は中国産よりもSr安定同位体比が低い傾向がみられたが、国産と中国産の分布の重なりが大きい結果となった。特に、国産の5試料(長野県産2試料及び茨城県産、愛知県産、滋賀県産各1試料)は中国産試料の平均値より高い値を示した。これには、国内主要産地である長野県産(平成27年の都道府県別生産量全国1位<sup>2)</sup>)と愛知県産(同8位<sup>2)</sup>)が含まれており、日本産を中国産と誤って判別する可能性が高くなると予想される。そのため、Sr安定同位体比で国産と中国産を判別することは困難であると考えられた。

中国産以外の外国産はちみつについては、国産はちみつとSr安定同位体比の分布の重なりがさらに大きい結果となった(表6及び図1)。このことから、Sr安定同位体比によるはちみつの原料原産地判別は困難であると考えられた。

表 6 収集した試料中のSr安定同位体比

	最小値	最大値	平均値	標準偏差
国産 (n=135)	0.7044	0.7134	0.7085	0.0017
中国産 (n=91)	0.7099	0.7206	0.7116	0.0012
アルゼンチン産 (n=10)	0.7065	0.7078	0.7071	0.0004
カナダ産 (n=16)	0.7086	0.7247	0.7119	0.0046
ミャンマー産 (n=4)	0.7098	0.7132	0.7117	0.0015
ハンガリー産 (n=10)	0.7090	0.7105	0.7097	0.0004
ニュージーランド産 (n=7)	0.7066	0.7104	0.7084	0.0014

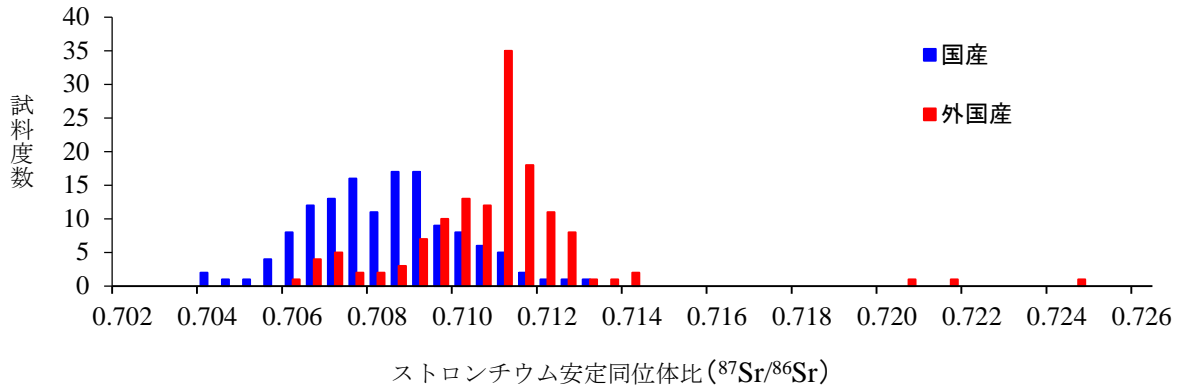


図1 収集した試料中の Sr 安定同位体比のヒストグラム

### 3.4 アカシアはちみつの元素分析判別モデルの構築

国産 107 点、中国産 70 点、ハンガリー産 18 点のアカシアはちみつのデータを解析して判別モデルを構築した。その結果、最適な判別モデルとして、Rb、Sr、Ca 及び Mn の Mg に対する試料中濃度比及び濃度比の常用対数を説明変数とする判別モデルが得られた (式 1)。

$$X = -13.93 \times [\text{Rb}/\text{Mg}] + 299.1 \times [\text{Sr}/\text{Mg}] - 3.89 \times \log_{10}[\text{Ca}/\text{Mg}] + 2.669 \times \log_{10}[\text{Mn}/\text{Mg}] + 5.431 \times \log_{10}[\text{Rb}/\text{Mg}] - 6.688 \times \log_{10}[\text{Sr}/\text{Mg}] - 3.292 \quad (\text{式 1})$$

ここで、 $[\text{Rb}/\text{Mg}]$ 、 $[\text{Sr}/\text{Mg}]$ 、 $[\text{Ca}/\text{Mg}]$  及び  $[\text{Mn}/\text{Mg}]$  はそれぞれの元素の Mg に対する試料中濃度比を示す。LOOCV により得られた判別得点  $X$  のヒストグラムを図 2 に示す。判別得点  $X$  が正の場合は国産、負の場合は外国産と判別した。この判別モデルでは、判別モデル構築に用いた試料のうち、国産試料の 97% (104/107)、中国産試料の 100% (70/70)、ハンガリー産試料の 100% (18/18) を正しく判別した。

なお、既報<sup>6)</sup>において最適とされた判別モデルは、国産試料の 97%、中国産試料の 100% を正しく判別する判別モデルであった。このことから、既報<sup>6)</sup>の判別モデルの精度を維持しつつ、元素分析によるアカシアはちみつの原料原産地判別をハンガリー産にも適用できる可能性が考えられた。

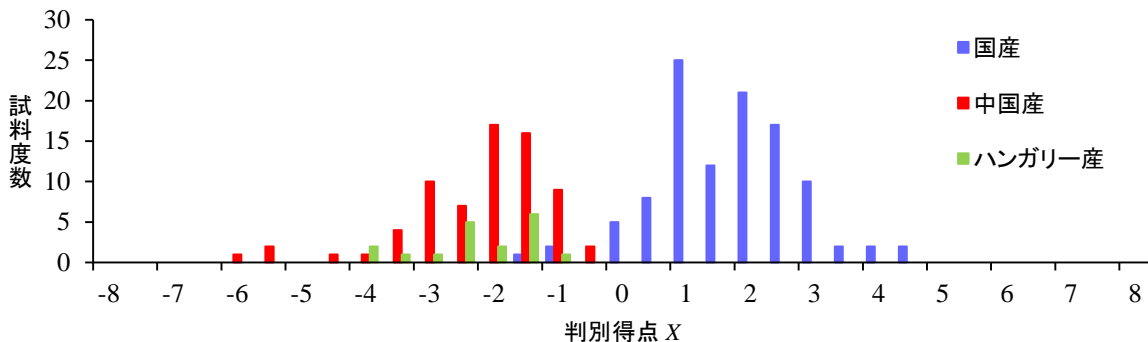


図2 構築したアカシアはちみつの元素分析判別モデルの LOOCV 判別得点のヒストグラム

### 3.5 アカシアはちみつの元素分析と Sr 安定同位体比分析の組み合わせ判別モデルの構築

国産 39 点、中国産 62 点、ハンガリー産 10 点のアカシアはちみつのデータを解析して判別モデルを構築した。その結果、最適な判別モデルとして、元素分析判別モデルによる判別得点  $X$  と Sr 安定同位体比 ( $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ) を説明変数とする判別モデルが得られた (式 2)。

$$Y = 1.032 \times X - 317.1 \times (^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}) + 225.4 \quad (\text{式 2})$$

ここで、 $Y$  は元素分析と Sr 安定同位体比分析の組み合わせ判別モデルによる判別得点を示す。LOOCV により得られた判別得点が  $-0.5$  以上の場合は国産、 $-0.5$  未満の場合は外国産と判別した。この判別モデルでは、判別モデル構築に用いた試料のうち、国産試料の95% (37/39)、中国産試料の100% (62/62)、ハンガリー産試料の100% (10/10) を正しく判別した。今回判別モデル構築に使用した国産 39 点、中国産 62 点、ハンガリー産 10 点の元素分析による判別得点  $X$  と Sr 安定同位体比の散布図を図 3 に示す。散布図から、元素分析と Sr 安定同位体比分析を組み合わせると、元素分析単独の場合に比べて判別精度がより高くなる可能性が示唆された (図 3)。

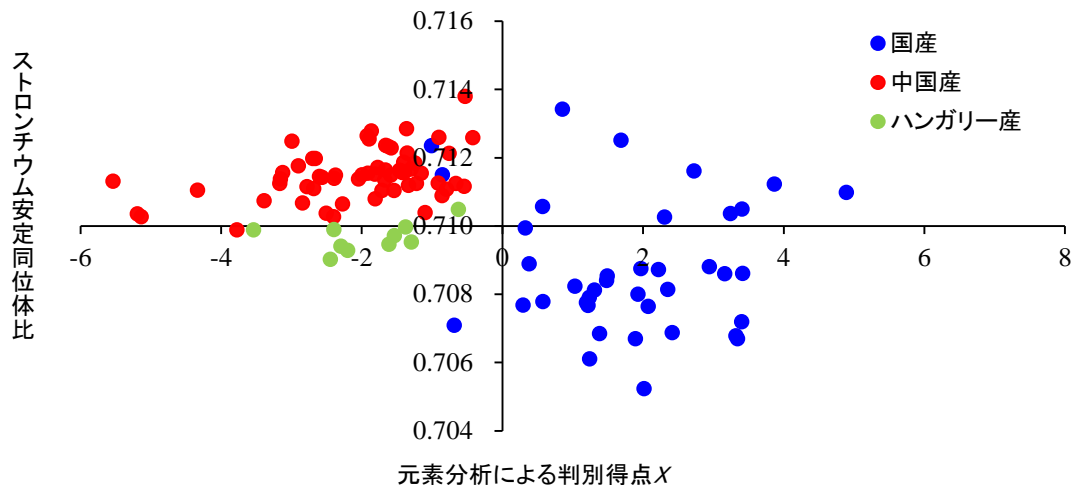


図 3 判別モデル構築に使用したアカシアはちみつ試料の判別得点  $X$  と Sr 安定同位体比の散布図

## 4. まとめ

本研究では、国産はちみつ及び外国産はちみつ (中国産、アルゼンチン産、カナダ産、ミャンマー産、ハンガリー産及びニュージーランド産) について Sr 安定同位体比を利用した原料原産地判別法を検討した。その結果、国産と外国産の Sr 安定同位体比の分布の重なりが大きく、Sr 安定同位体比で国産と外国産を判別することは困難であると考えられた。アカシアはちみつについては、ハンガリー産試料等の元素分析データを追加して元素分析判別モデルの再構築を行った。その結果、判別モデル構築に使用した国産 107 試料中 104 試料、中国産 70 試料全て、ハンガリー産 18 試料全ての原料原産地を正しく判別した。このことから、元素分析によるアカシアはちみつの原料原産地判別をハンガリー産にも適用できる可能性があると考えられた。また、アカシアはちみつの元素分析と Sr 安定同位体比分析を組み合わせると、元素分析単独による産地判別法と比較して判別精度がより高くなる可能性が示唆された。



## 謝 辞

本研究は、国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構食品研究部門との共同研究として実施しました。Sr 安定同位体比分析及び元素分析は、国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構高度解析センターの施設及び機器を使用して実施しました。本研究を実施するにあたり、試料収集のご協力やご助言をいただきました一般社団法人日本養蜂協会、一般社団法人全国はちみつ公正取引協議会をはじめ、ご協力やご助言をいただきましたすべての皆様に心より御礼申し上げます。

## 文 献

- 1) 財務省貿易統計
- 2) 養蜂をめぐる情勢 (平成 28 年 10 月), 農林水産省生産局畜産部, 2017-10-06 参照,  
<<http://www.maff.go.jp/j/chikusan/kikaku/lin/sonota/attach/pdf/bee-3.pdf>>
- 3) 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)
- 4) 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)
- 5) 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)
- 6) 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)
- 7) Chudzinska, M., Baralkiewicz, D.: Application of ICP-MS method of determination of 15 elements in honey with chemometric approach for the verification of their authenticity. *Food Chem. Toxicol.*, **49**, 2741-2749 (2011)
- 8) 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)
- 9) 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)
- 10) 中村哲, 法邑雄司, 豊田正俊: ゴボウの原産地判別の試料調製法の再検討, 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, **37**, 1-10 (2013)