

10 汚泥肥料, たい肥及び有機質肥料中の主要な成分等の

試験法の系統化

加藤公栄¹, 義本将之², 白井裕治³

キーワード 汚泥肥料, たい肥, 有機質肥料, 主要な成分, 主成分

1. はじめに

安心・安全な肥料の流通を確保するため, 肥料の主成分, 有害成分等の試験は不可欠である. 独立行政法人農林水産消費安全技術センター(FAMIC)においては, 検査に係る分析法の開発, 改良等も行って, 新たに妥当性が確認された試験法, 迅速試験法等を加えて, 肥料の品質管理等に活用できる「肥料等試験法」¹⁾を策定し, ホームページに掲載している. 試験法の妥当性確認は ISO/IEC 17025 (JIS Q 17025:2006)²⁾の要求事項である比較試験, 併行試験, 定量下限の確認等を IUPAC^{3, 4)}のプロトコルを参考に実施している. また, 肥料等試験法の策定にあたっては, 肥料分析法(1992年版)(以下, 「肥料分析法」という.)⁵⁾との整合性が保たれるように留意して書き換えも順次実施している.

肥料分析法及び「特殊肥料の品質表示基準」(農林水産省告示)⁶⁾に記載されている「主要な成分の含有量等の測定方法」(以下, 「たい肥等の分析法」)では, 汚泥肥料, たい肥及び動物の排せつ物中のりん酸全量, 加里全量, 石灰全量, 銅全量及び亜鉛全量の試料溶液の調製方法としては, ケルダール分解法, 炭化-塩酸煮沸法, 灰化-塩酸煮沸法及び灰化-硝酸分解法のうち, 一つないし複数の方法が採用されている. また, 汚泥肥料中のカドミウム, ニッケル, クロム及び鉛の試験法では灰化-王水分解法によって妥当性が確認されている. このように, 無機成分の試料溶液の調製について複数の方法が記述されている. 筆者らは, 試験業務の迅速化に対応するため, これらの試験法について比較試験等を実施してその系統化を試みたので, その概要を報告する.

2. 材料及び方法

1) 試料の採取及び調製

汚泥肥料等(汚泥発酵肥料(2点), し尿汚泥肥料(2点), 工業汚泥肥料(2点), たい肥(2点)及び動物の排泄物(1点)), 動物質肥料(魚かす粉末(1点)及び魚廃物加工肥料(1点)), 植物質肥料(大豆油かす(1点)及びなたね油かす(1点))並びに複合肥料(有機入り指定配合肥料(1点)及び有機入り化成肥料(1点))(計 15 点)を次のとおり収集して分析に供した. 試料 0.5~1.5 kg 程度を採取し, ビニール袋に入れて密封し, 分析時まで保存し, 目開き 500 μm のふるいを全通するまで粉碎して分析用試料を調製した.

¹ 独立行政法人農林水産消費安全技術センター札幌センター

² 独立行政法人農林水産消費安全技術センター札幌センター (現)神戸センター

² 独立行政法人農林水産消費安全技術センター肥飼料安全検査部

2) 装置及び器具

- (1) 分光光度計: JIS K 0115 に規定する分光光度計(島津製作所製, UV1800)
- (2) フレーム原子吸光分析装置: JIS K 0121 に規定する原子吸光分析装置(日立ハイテクノロジー製 Z-2310 形, 日本ジャーレルアッシュ SOAAR M5)
- (3) 電気炉: 試験温度 ± 5 °Cに保持できるもの(東洋製作所製, FUW242PA)
- (4) 砂浴
- (5) 分解フラスコ: ケルダールフラスコ

3) 試薬

肥料等試験法(2010)¹⁾に従って調製した。

4) 各試料溶液の調製操作

りん酸全量については(1), (3)及び(4)により, 加里全量及び石灰全量については(1)~(3)により, 銅全量及び亜鉛全量については(1)及び(3)により試料溶液を調製した。

(1) 灰化-王水分解(図 1)¹⁾

a) 分析試料 5 g を 1 mg の桁まではかりとり, トールビーカー 200~300 mL に入れ, トールビーカーを電気炉に入れ, 250 °C で加熱して炭化した。

b) 炭化後, 約 450 °C で強熱して灰化させた。

c) 放冷後, 少量の水で残留物を潤し, 硝酸約 10 mL 及び塩酸約 30 mL を加え, トールビーカーを時計皿で覆い, ホットプレート又は砂浴上で加熱して分解した。時計皿をずらし, ホットプレート又は砂浴上で加熱を続けて乾固近くまで濃縮した。

d) 放冷後, 塩酸(1+5) 50 mL を分解物に加え, トールビーカーを時計皿で覆い, 静かに加熱して溶かした。

e) 放冷後, 水で全量フラスコ 200 mL に移し, 標線まで水を加え, ろ紙 3 種でろ過し, 試料溶液とした。

(2) 炭化-塩酸煮沸(図 2)^{5, 6)}

a) 分析試料 5 g を 1 mg の桁まではかりとり, トールビーカー 200~300 mL に入れた。

b) トールビーカーを電気炉に入れ, 250 °C で加熱して炭化した。

c) 放冷後, 少量の水で残留物を潤し, 塩酸約 10 mL を徐々に加え, 更に水を加えて約 100 mL とした。トールビーカーを時計皿で覆い, ホットプレート又は砂浴上で加熱し, 5 分間煮沸した。

d) 放冷後, 水で全量フラスコ 250~500 mL に移し, 標線まで水を加え, ろ紙 3 種でろ過し, 試料溶液とした。

(3) 灰化-塩酸煮沸(図 2)⁶⁾

a) 分析試料 5 g を 1 mg の桁まではかりとり, トールビーカー 200~300 mL に入れ, トールビーカーを電気炉に入れ, 250 °C で加熱して炭化した。

b) 炭化後, 約 550 °C で 4 時間以上強熱して灰化させた。

c) 放冷後, 少量の水で残留物を潤し, 塩酸約 10 mL を徐々に加え, 更に水を加えて約 100 mL とした。トールビーカーを時計皿で覆い, ホットプレート又は砂浴上で加熱し, 5 分間煮沸した。

d) 放冷後, 水で全量フラスコ 250~500 mL に移し, 標線まで水を加え, ろ紙 3 種でろ過し, 試料溶液とした.

(4) ケルダール分解(図 3)

a) 分析試料 5 g を 1 mg の桁まではかりとり, 分解フラスコ 300 mL に入れた.

b) 硫酸カリウム及び硫酸銅(II)五水和物を 9 対 1 の割合で混合した分解促進剤 5~10 g 加え, 更に硫酸 20~40 mL を加えて振り混ぜ, 穏やかに加熱した. 泡が生じなくなつてから硫酸の白煙を発生するまで加熱し, 有機物が完全に分解するまで強熱した.

c) 放冷後, 少量の水を加えて良く振り混ぜ, 水で全量フラスコ 250~500 mL に移した. 放冷後, 標線まで水を加え, ろ紙 3 種でろ過し, 試料溶液とした.

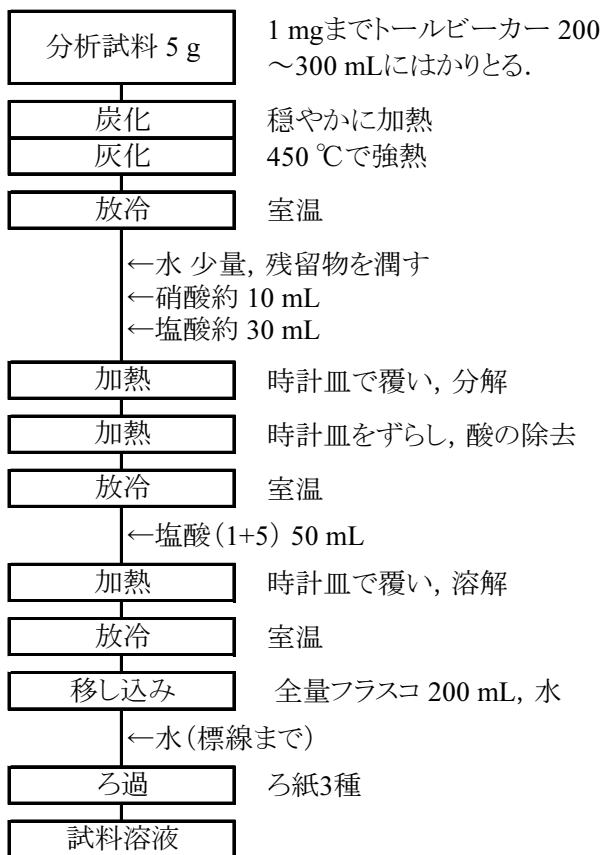


図1 灰化-王水分解による試料溶液の調製方法フローシート

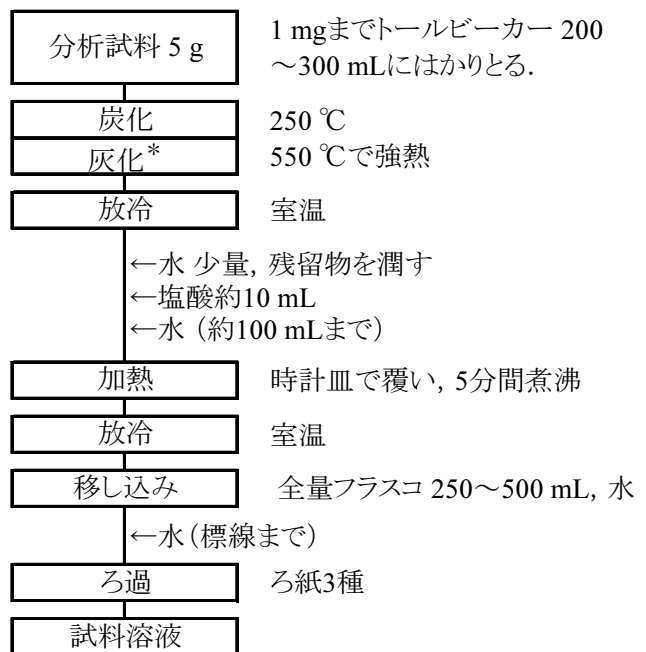


図2 炭化及び灰化-塩酸煮沸による試料溶液の調製方法フローシート

* 炭化-塩酸煮沸による前処理操作法の場合は, 灰化操作を除く

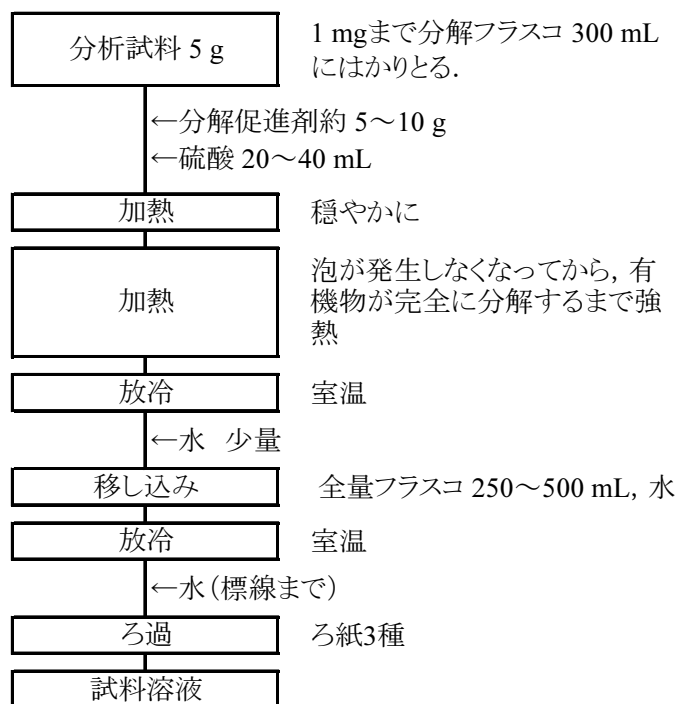


図3 ケルダール分解による試料溶液の調製方法
フローシート

5) 各成分の測定等の試験操作

(1) リン酸全量の発色及び測定の実験操作

2.4) (1) 及び(3)~(4)に従って調製した各試料溶液について、肥料等試験法 4.2.1.a バナドモリブデン酸アンモニウム吸光光度法の(4.2)発色及び(4.3)測定に従って操作し、分析試料中のリン酸全量を求めた。

(2) 加里全量の測定の実験操作

2.4) (1)~(3)に従って調製した各試料溶液について、肥料等試験法 4.3.1.a フレーム原子吸光法又はフレーム光度法の(4.2)測定に従って操作し、分析試料中の加里全量を求めた。

(3) 石灰全量の測定の実験操作

2.4) (1)~(3)に従って調製した各試料溶液について、肥料等試験法 4.5.1.a フレーム原子吸光法の(4.2)測定に従って操作し、分析試料中の石灰全量を求めた。

(4) 銅全量の測定の実験操作

2.4) (1) 及び(3)に従って調製した各試料溶液について、肥料等試験法 4.10.1.a フレーム原子吸光法の(4.2)測定に従って操作し、分析試料中の銅全量を求めた。

(5) 亜鉛全量の測定の実験操作

2.4) (1) 及び(3)に従って調製した各試料溶液について、肥料等試験法 4.9.1.a フレーム原子吸光法の(4.2)測定に従って操作し、分析試料中の亜鉛全量を求めた。

3. 結果

1) 各試料溶液の調製方法による各成分の測定値の比較

(1) リン酸全量

2.1)で調製した分析用試料(15点)について2.4)(1)灰化-王水分解の試料溶液の調製方法による分析試料中のリン酸全量の測定値に対する2.4)(3)灰化-塩酸煮沸及び2.4)(4)ケルダール分解による測定値の相関を図4-1~2に示した. それらの測定値(0.58~10.56%)の一次回帰式の回帰係数及び切片は0.978~1.009及び-0.05~0.08であった. その相関係数(r)は0.999であり, 高い相関が認められた. また, 灰化-王水分解による測定値に対する灰化-塩酸煮沸及びケルダール分解による測定値の割合は91.3~103.7%であり, これらの測定値はほぼ一致した.

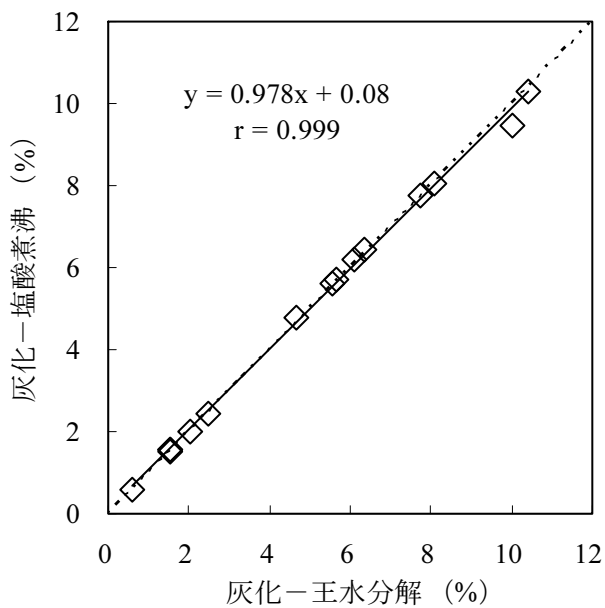


図4-1 リン酸全量の測定値の相関(1)

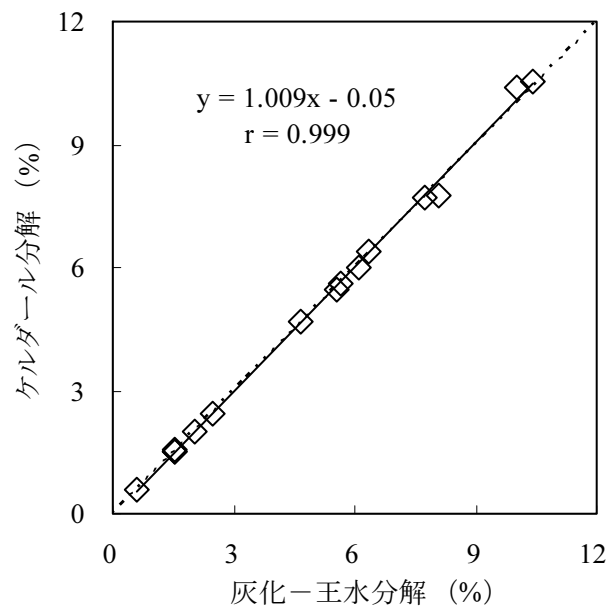


図4-2 リン酸全量の測定値の相関(2)

(2) 加里全量

2.1)で調製した分析用試料(動物質肥料を除く.)(13点)について2.4)(1)灰化-王水分解による分析試料中の加里全量の測定値に対する2.4)(2)炭化-塩酸煮沸及び2.4)(3)灰化-塩酸煮沸による測定値の相関を図5-1~2に示した. 灰化-王水分解及び灰化-塩酸煮沸による測定値(0.123~12.39%)の一次回帰式の回帰係数及び切片は1.009及び-0.01であった. その相関係数(r)は1.000であり, 高い相関が認められた. また, 灰化-王水分解による測定値に対する灰化-塩酸煮沸による測定値の割合は96.1~106.4%であり, これらの測定値はほぼ一致した.

しかしながら, 汚泥発酵肥料(1点)及び動物の排泄物(1点)の炭化-塩酸煮沸による測定値(0.130及び2.03%)は, 灰化-王水煮沸による測定値(0.173及び4.16%)の75.1及び49.9%と低い値を示した. なお, 炭化-塩酸煮沸により調製した試料溶液は, 灰化-塩酸煮沸により調製した試料溶液に比べて, 全体的に若干粘性があり, 着色していた.

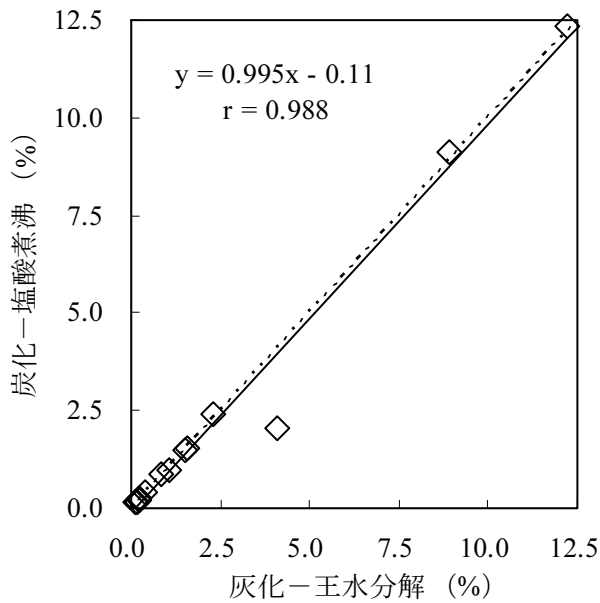


図5-1 加里全量の測定値の相関(1)

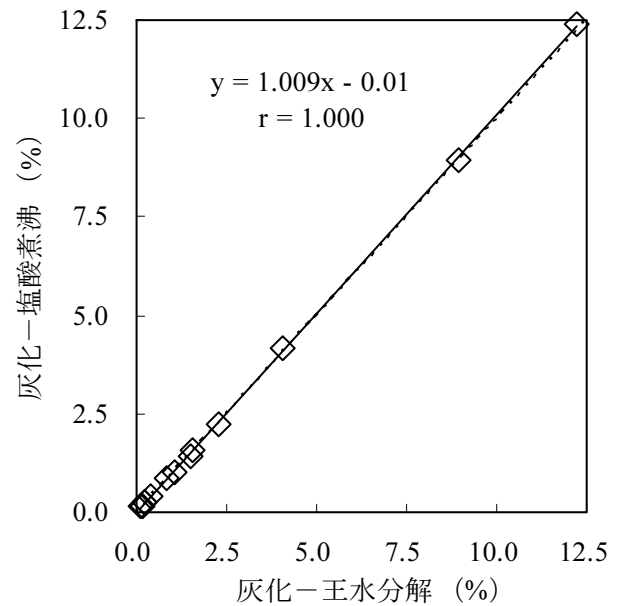


図5-2 加里全量の測定値の相関(2)

(3) 石灰全量

2.1)で調製した汚泥肥料等の分析用試料(9点)について2.4)(1)灰化-王水分解による分析試料中の石灰全量の測定値に対する2.4)(2)炭化-塩酸煮沸及び2.4)(3)灰化-塩酸煮沸による測定値の相関を図6-1~2に示した。それらの測定値(0.790~27.3%)の一次回帰式の回帰係数及び切片は0.957~0.990及び-0.10~-0.03であった。その相関係数(r)は1.000であり、高い相関が認められた。また、灰化-王水分解による測定値に対する炭化-塩酸煮沸及び灰化-塩酸煮沸による測定値の割合は90.8~100.9%であり、これらの測定値はほぼ一致した。

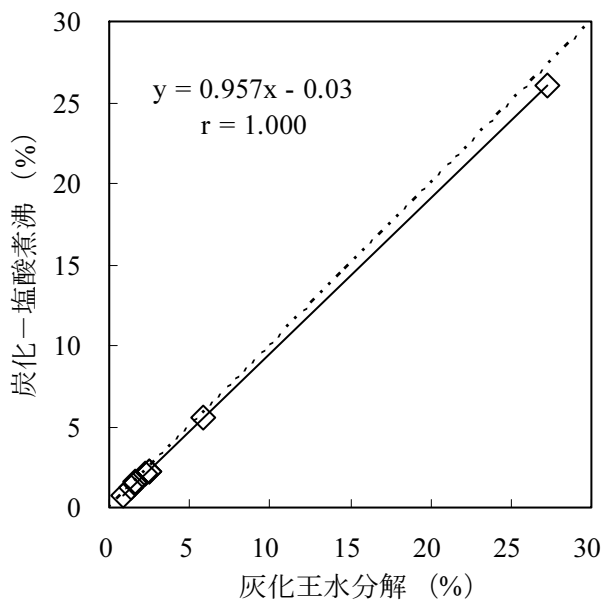


図6-1 石灰全量の測定値の相関(1)

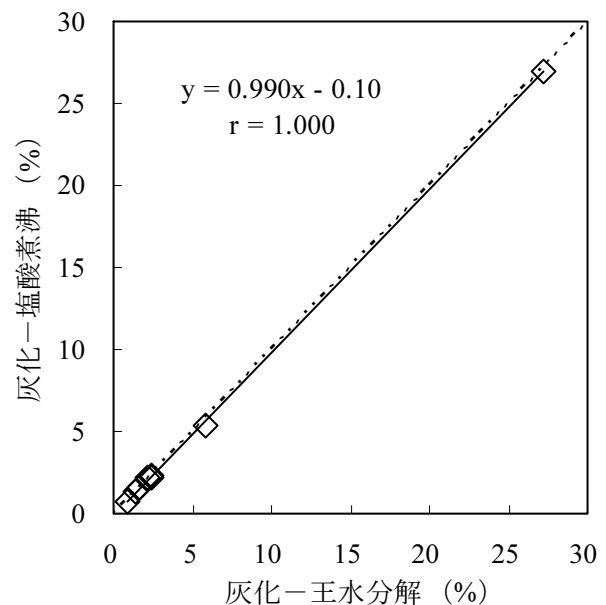


図6-2 石灰全量の測定値の相関(2)

(4) 銅全量

2.1)で調製した汚泥肥料等の分析用試料(9点)について 2.4) (1)灰化-王水分解による分析試料中の銅全量の測定値に対する 2.4) (3)灰化-塩酸煮沸による測定値の相関を図 7 に示した. それらの測定値(29~819 mg/kg)の一次回帰式の回帰係数及び切片は 0.976 及び-0.3 であった. その相関係数(r)は 1.000 であり, 高い相関が認められた. また, 灰化-王水分解による測定値に対する灰化-塩酸煮沸による測定値の割合は 94.3~101.6 % であり, これらの測定値はほぼ一致した.

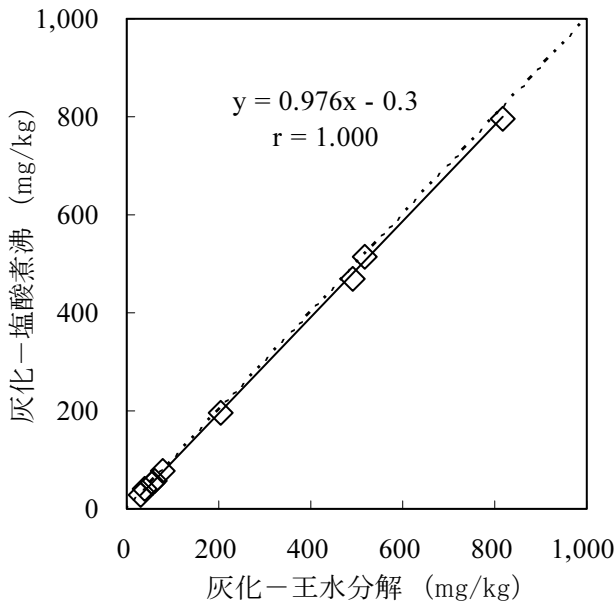


図7 銅全量の測定値の相関

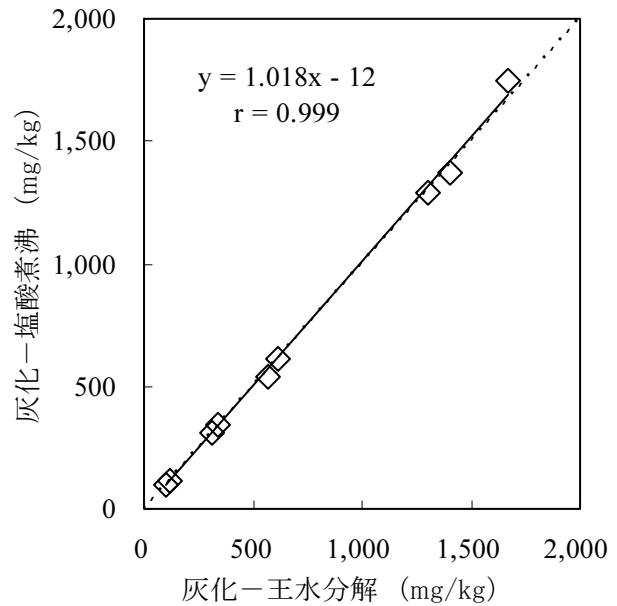


図8 亜鉛全量の測定値の相関

(5) 亜鉛全量

2.1)で調製した汚泥肥料等の分析用試料(9点)について 2.4) (1)灰化-王水分解による分析試料中の亜鉛全量の測定値に対する 2.4) (3)灰化-塩酸煮沸による測定値の相関を図 8 に示した. それらの測定値(100~1740 ng/kg)の一次回帰式の回帰係数及び切片は 1.018 及び-12 であった. その相関係数(r)は 0.999 であり, 高い相関が認められた. また, 灰化-王水分解による測定値に対する灰化-塩酸煮沸による測定値の割合は 94.7~104.4 % であり, これらの測定値はほぼ一致した.

2) 併行試験成績

有機入り指定配合肥料及び有機入り化成肥料中のりん酸全量及び加里全量並びに汚泥発酵肥料(2点), し尿汚泥肥料(2点), たい肥中のりん酸全量, 加里全量, 石灰全量, 銅全量及び亜鉛全量について灰化-塩酸煮沸による試料溶液の調製方法を用いて 3点併行で測定した平均値, 併行標準偏差(SD_f), 併行相対標準偏差(RSD_f)及び併行 HorRat 値を表 1~2 に示した. HorRat 値は分析方法の精度の評価をするために用いられており, 併行 HorRat 値は $RSD_f/RSD_f(P)$ 及び Ho_R は $RSD_R/RSD_R(P)$ により求められる⁷⁾. なお, $RSD_f(P)$ は, 平均定量値から Horwitz 式⁷⁾により求めた $RSD_R(P)$ に係数(1/2)を乗じて求めた^{8, 9)}.

りん酸全量は, 平均値 0.588~10.13 % の範囲で, それらの標準偏差及び相対標準偏差は 0.003~0.09 % 及び 0.1~0.8 % であった. 加里全量は, 平均値 0.163~12.40 % の範囲で, それらの標準偏差及び相対標準偏差は 0.001~0.03 % 及び 0.1~4.4 % であった. 石灰全量は, 平均値 1.38~2.44 % の範囲

で、それらの標準偏差及び相対標準偏差は0.004~0.02%及び0.2~1.5%であった。銅全量は、平均値39.2~794 mg/kgの範囲で、それらの相対標準偏差は0.3~1.4%であった。銅全量は、平均値112~1,756 mg/kgの範囲で、それらの相対標準偏差は0.1~1.4%であった。また、RSD_rの評価に用いる併行 HorRat 値は0.04~1.68であり、いずれも2以下であった¹⁰⁾。

表1 灰化-塩酸煮沸による各成分の併行試験(その1)

| 測定成分名 | 肥料の種類等 | 平均値 ^{a)} (%) | 標準偏差 (%) | 相対標準偏差 (%) | 併行 HorRat値 |
|-------|------------|--------------------------|-------------|---------------|---------------|
| りん酸全量 | 汚泥発酵肥料A | 7.88 | 0.02 | 0.2 | 0.16 |
| | 汚泥発酵肥料B | 4.72 | 0.01 | 0.3 | 0.18 |
| | し尿汚泥肥料A | 5.75 | 0.01 | 0.1 | 0.07 |
| | し尿汚泥肥料B | 5.60 | 0.01 | 0.2 | 0.14 |
| | たい肥 | 0.588 | 0.003 | 0.5 | 0.21 |
| | 有機入り指定配合肥料 | 10.13 | 0.09 | 0.8 | 0.60 |
| | 有機入り化成肥料 | 9.48 | 0.01 | 0.1 | 0.06 |
| 加里全量 | 汚泥発酵肥料A | 0.163 | 0.007 | 4.4 | 1.68 |
| | 汚泥発酵肥料B | 0.408 | 0.005 | 1.2 | 0.53 |
| | し尿汚泥肥料A | 0.240 | 0.002 | 0.7 | 0.27 |
| | し尿汚泥肥料B | 0.232 | 0.001 | 0.3 | 0.12 |
| | たい肥 | 0.994 | 0.006 | 0.6 | 0.28 |
| | 有機入り指定配合肥料 | 12.40 | 0.02 | 0.1 | 0.10 |
| | 有機入り化成肥料 | 8.91 | 0.03 | 0.4 | 0.27 |
| 石灰全量 | 汚泥発酵肥料A | 2.44 | 0.02 | 0.8 | 0.45 |
| | 汚泥発酵肥料B | 1.38 | 0.02 | 1.5 | 0.77 |
| | し尿汚泥肥料A | 2.24 | 0.004 | 0.2 | 0.10 |
| | し尿汚泥肥料B | 2.17 | 0.01 | 0.6 | 0.35 |
| | たい肥 | 1.52 | 0.01 | 0.5 | 0.28 |

a) 3点併行試験の平均値

表2 灰化-塩酸煮沸による各成分の併行試験(その2)

| 測定成分名 | 肥料の種類等 | 平均値 ^{a)} (mg/kg) | 標準偏差 (mg/kg) | 相対標準偏差 (%) | 併行 HorRat値 |
|-------|---------|------------------------------|-----------------|---------------|---------------|
| 銅全量 | 汚泥発酵肥料A | 794 | 4 | 0.6 | 0.19 |
| | 汚泥発酵肥料B | 509 | 4 | 0.8 | 0.25 |
| | し尿汚泥肥料A | 193 | 2 | 1.3 | 0.36 |
| | し尿汚泥肥料B | 470 | 1 | 0.3 | 0.08 |
| | たい肥 | 39.2 | 0.5 | 1.4 | 0.29 |
| 亜鉛全量 | 汚泥発酵肥料A | 1,756 | 11 | 0.6 | 0.23 |
| | 汚泥発酵肥料B | 1,287 | 4 | 0.3 | 0.12 |
| | し尿汚泥肥料A | 617 | 4 | 0.7 | 0.22 |
| | し尿汚泥肥料B | 1,368 | 2 | 0.1 | 0.04 |
| | たい肥 | 112 | 2 | 1.4 | 0.37 |

a) 3点併行試験の平均値

5. 考察

たい肥, 汚泥肥料及び有機質肥料中のりん酸全量, 加里全量, 石灰全量, 銅全量及び亜鉛全量の試験法は, 農林水産省告示に示されている. しかしながら, それらの試験法を用いると, 表3のとおり, 3種類の試料溶液を調製しなければならない. りん酸全量, 加里全量, 石灰全量, 銅全量及び亜鉛全量の試験業務の系統化及び迅速化するため, 灰化-王水分解(重金属の分解法), 炭化-塩酸煮沸, 灰化-塩酸煮沸及びケルダール分解の各試料溶液の調製方法による比較試験を実施したところ, 灰化-王水分解による測定値に対して灰化-塩酸煮沸及びケルダール分解の測定値は高い相関が認められた. なお, 炭化-塩酸煮沸による加里全量の一部試料の測定値は, 灰化-王水分解に対して75.1及び49.9%と低い値を示した. また, 炭化-塩酸煮沸により調製された試料溶液は, 他の試料溶液に比べて粘性があった. このことから, 試料溶液の状態に差により原子吸光分析装置における物理干渉, 化学干渉等が現れる可能性が懸念された.

有機入り指定配合肥料及び有機入り化成肥料中のりん酸全量及び加里全量並びに汚泥発酵肥料(2点), し尿汚泥肥料(2点)及びたい肥中のりん酸全量, 加里全量, 石灰全量, 銅全量及び亜鉛全量の併行精度を求めている灰化-塩酸煮沸による試料溶液の調製方法について併行試験を実施したところ, その併行相対標準偏差(RSD_r)は0.1~0.8, 0.1~4.4, 0.2~1.5, 0.3~1.4及び0.1~1.4%と良好な成績であった. また, その評価に用いる併行 HorRat 値は0.04~1.68であり, いずれも2以下であった.

よって, 表3のとおり, たい肥, 汚泥肥料及び有機質肥料中のりん酸全量, 加里全量, 石灰全量, 銅全量及び亜鉛全量の試験を迅速に実施するため, 試料溶液の調製方法としてカドミウム等の重金属を同時に測定する場合は灰化-王水分解(重金属の分解法)を, また, 重金属を測定しない場合は灰化-塩酸煮沸を用いることを推奨される.

表3 各試験法に規定されている試料溶液の調製方法

| 成分名 | 試験法等名 | 炭化- 塩酸煮沸 | 灰化- 塩酸煮沸 | 灰化- 王水煮沸 | 湿式分解 | ケルダール 分解 |
|-------|--------------|-----------------|-----------------|-------------|------|-----------------|
| りん酸全量 | 肥料分析法(1992) | | ◎ ¹⁾ | | | ○ ²⁾ |
| | 特殊肥料の品質基準 | | ◎ | | | |
| | 肥料等試験法(2010) | | ◎ | ○ | | ◎ |
| 加里全量 | 肥料分析法(1992) | ◎ | | | | |
| | 特殊肥料の品質基準 | ◎ | | | | |
| | 肥料等試験法(2010) | △ ³⁾ | ◎ | ○ | | |
| 石灰全量 | 肥料分析法(1992) | ◎ | | | | |
| | 特殊肥料の品質基準 | | ◎ | | | |
| | 肥料等試験法(2010) | △ | ◎ | ○ | | |
| 銅全量 | 肥料分析法(1992) | | | ○(硝酸) | ◎ | |
| | 特殊肥料の品質基準 | | | | ◎ | |
| | 肥料等試験法(2010) | | ○ | ◎ | | |
| 亜鉛全量 | 肥料分析法(1992) | | | ○(硝酸) | ◎ | |
| | 特殊肥料の品質基準 | | | | ◎ | |
| | 肥料等試験法(2010) | | ○ | ◎ | | |

1) ◎は本文に記載記述されている方法

2) ○は付記又は備考に記述されている方法

3) △は制限付きで記述されている方法

6. まとめ

灰化－王水分解(重金属の分解法), 炭化－塩酸煮沸, 灰化－塩酸煮沸及びケルダール分解の各試料溶液の調製方法による 5 成分の比較試験を実施したところ, 灰化－王水分解による測定値に対して灰化－塩酸煮沸及びケルダール分解の測定値は高い相関が認められた. 有機入り指定配合肥料及び有機入り化成肥料中のりん酸全量及び加里全量並びに汚泥発酵肥料(2 点), し尿汚泥肥料(2 点)及びたい肥中のりん酸全量, 加里全量, 石灰全量, 銅全量及び亜鉛全量の併行精度を求めている灰化－塩酸煮沸による試料溶液の調製方法について併行試験を実施したところ, その併行相対標準偏差(RSD_r)は良好な成績であった. よって, 灰化－塩酸煮沸操作又は灰化－王水分解操作で試料溶液を調製することによって 5 成分を系統的に測定することが可能となった.

このことから, 2009 年度肥料等技術検討会の審議を受け, りん酸全量, 加里全量, 石灰全量, 銅全量及び亜鉛全量の試験法において灰化－塩酸煮沸による試料溶液の調製方法が肥料等試験法(2010)に記載された¹⁾.

文 献

- 1) 独立行政法人農林水産消費安全技術センター(FAMIC):肥料等試験法 (2010)
<<http://www.famic.go.jp/ffis/fert/bunseki/sub9.html>>
- 2) ISO/IEC 17025 (2005): “General requirements for the competence of testing and calibration laboratories” (JIS Q 17025 :2006, 試験所及び校正機関の能力に関する一般要求事項)
- 3) Thompson, M., Ellison, S.L.R., Wood, R.: Harmonized Guidelines for Single-Laboratory Validation of Methods of Analysis, *Pure & Appl. Chem.*, **74** (5), 835~855 (2002)
- 4) Horwitz, W.: Protocol for the Design, Conduct and Interpretation of Method-Performance Studies, *Pure & Appl. Chem.*, **67** (2), 331~343 (1995)
- 5) 農林水産省農業環境技術研究所:肥料分析法(1992 年版), p.21~22, p.34~37, p.70~71, 日本肥糧検定協会, 東京 (1992)
- 6) 農林水産省告示:特殊肥料の品質表示基準, 平成 12 年 8 月 31 日, 農林水産省告示第 1163 号 (2000)
- 7) Fearn, T., Thompson, M., A new test for ‘sufficient homogeneity’, *Analyst*, **126**, 1414~1417 (2001)
- 8) AOAC OFFICIAL METHODS OF ANALYSIS Appendix E: Laboratory Quality Assurance, AOAC INTERNATIONAL, Gaithersburg (2000)
- 9) Horwitz, W., Kamps, L.R., Boyer, K.W.: Quality control. Quality assurance in the analysis of foods for trace constituents, *J. AOAC Int.*, **63** (6), 1344~1354 (1980)
- 10) Codex Alimentarius: “Recommendation for a checklist of information required to evaluate method of analysis and submitted to the Codex Committee on Method of Analysis and Sampling for endorsement”, Vol.13, p.129 (1994)