

食品評価用標準物質の現状と動向

稲垣真輔*

(平成 23 年 12 月 12 日受理)

Present state and trend of reference materials for evaluating foodstuffs

Shinsuke INAGAKI

Abstract

To lead a healthy and wealthy life, we must ensure the safety and security of the foodstuffs used to prepare our daily meals. However, presently, accidents and affairs related to the safety and security of food occur frequently. To ensure food safety, we must focus on the development of analytical methods for the detection of toxic substances in foodstuffs with the aim of establishing evidence-based restrictions on foodstuffs containing toxic substances. In general, the pretreatment for foodstuff analysis is very complicated; this complexity may result in different analysts arriving at different results even when measuring chemical concentrations in the same specimen. Depending on the characteristics of the analytical equipment used, we may obtain values that are different from the true values despite carrying out an analysis with all possible precautions. Considering the enormous influence that the obtained values have on the decision on whether or not a particular foodstuff would be suitable for introduction in the market and sometimes on the social credibility of the company manufacturing the foodstuff would reduce drastically, it is important to guarantee the validity of such measured values. Therefore, it is desirable to have a method that would ensure accurate analysis of foodstuffs as well as reproducibility of the measured values via the use of matrix reference materials having compositions similar to those of actual foodstuffs. In this study, with emphasis on food analysis of organic compounds, the reference materials related to these are investigated and reported.

1. はじめに

人が健康な生活を営むため、食の安全は最も重要な課題の1つである。安全性の確保されていない食品が流通することは、ときには人の生命までも脅かし、また、社会生活を根本から揺るがしかねないため、毎日摂取する食事に安全を求めるのは当然である。ところが、食品の品種や産地の偽装、消費期限の改ざんなどをはじめ、食の安全に関連した事件は、古今東西を問わず頻繁に発生しており、後を絶たない¹⁾。食の安全・安心に関しては、生産・流通・消費のどこか1ヵ所がつまずいても深刻な事態となり得るため、生産者・流通業者・消費者のすべてを巻き込んだ問題となっている。

現代の日本では食生活の環境や文化がかつての様式から変化し、独自で伝統のある和食ばかりでなく、洋食や

中華料理など様々なジャンルの食事を嗜好するようになった。また、加工食品が一般家庭に普及し、さらには、調理済みの惣菜や冷凍食品なども利用されていることから、食品が人の口に入るまでの経路が非常に多様化している。

食の安全確保のためには、科学的根拠のある毒性評価や暴露評価を基に適切な規格基準値を設定し、人の健康を害する恐れのある化学物質の摂取量の低減を目指す必要がある。一方、日本の2010年度におけるカロリーベースの食料自給率は約39%であり、先進国の中では最低のクラスとなっている²⁾。したがって、輸入食品の安全性確保が日本の食品の安全確保の根幹を握っているといっても過言ではなく、国内で禁止されている農薬や抗菌剤などをはじめとする多岐にわたる化学物質の分析に対応するため、モニタリングの強化が求められている。

日本では生活レベルが向上して豊かになり^{3),4)}、食事に単に栄養素的な面ですぐれたものや味覚に訴えるもの

* 計測標準研究部門 有機分析科 有機組成標準研究室

を求めらばかりでなく、より健康で快適な生活を過ごせるようになることを目指した、いわゆる健康食品や機能性食品の需要が増してきた。それと同時に、日本は本格的な高齢化社会を迎え慢性疾患の顕在化が予測されることから、慢性毒性が懸念されるような有害物質への対応を重要視すべきであろう。また、東日本大震災に伴い発生した福島第一原子力発電所の事故の影響により、食品の放射性物質による汚染といった新たな問題が発生している³⁾⁶⁾。汚染された食品の流通を防ぐのはもちろんのこと、誤った情報や偏見に基づく風評被害の発生を事前に防ぐためにも、食品中に含まれる放射性物質もまた正確に測定し、結果を消費者に開示することが求められる。

このようなことから、食の安心・安全の確保は、以前と比較して非常に複雑で難しい問題となってきている。食の安心・安全の確保のために必要な取り組みとしては、ひとたび事故や事件が発生した後の対策ばかりではなく、化学物質など、食の安全に影響を与える要因についてのリスク管理を前もって行うことが重要である⁷⁾⁹⁾。また、有毒までとはいえなくとも長期的に摂取することにより生活習慣病を引き起こす可能性のあるような化学物質を含む食品に対しては、消費者に正確な情報が伝わるわかりやすい表示、例えば欧州などで採用されている信号の色によるものなどが望まれる。

科学的根拠に基づいた食品の評価を行うためには、有害化学物質が食品中に含まれているか、もし、含まれているのであればどの程度であるかを正確に知ることが求められる。しかも、ときには極微量の有害物質が対象となるため、非常に高感度な測定法が求められる。また、食品中には測定妨げとなる化学物質も多数かつ高濃度に共存するため、食品試料をそのまま分析することは一般に困難である。したがって、目的とする化学物質を正確に測定するには、適切な抽出操作や夾雑物質を除去するためのクリーンアップなど、数多くの前処理操作を経てから、機器分析に供する必要がある¹⁰⁾¹²⁾。しかしながら、これらの前処理過程は非常に複雑であるため、同一試料に含まれる化学物質の測定を行ったとしても、測定者によってその定量値が大きく異なることがある。そして、これら一連の操作が妥当であっても、分析装置の特性により真の値とは異なった値が得られることもある。測定結果を判断材料に、該当食品の市場への流通が規制されたり、回収命令が出されたりすることや、場合によっては、生産企業の社会的な信用が失墜したり、法的な処罰が下されたりするといった影響力の大きさを考慮すると、分析値の信頼性を確保することは極めて重要である。その目的のためには、実際の試料と成分が類似した

食品分析用の組成標準物質の利用が非常に効果的な手段のひとつと考えられる。本研究では国内外でこれまでに開発された食品分析用の標準物質について調査を行い、今後開発を行う上で必要な情報を収集した。

2. 本研究における調査対象

本研究は主に、米国国立標準技術研究所 (National Institute of Standards and Technology, NIST, USA)、EU 標準物質・計測研究所 (Institute for Reference Materials and Measurements, IRMM, EU)、英国政府化学研究所 (Laboratory of the Government Chemist, LGC, UK)、ドイツ連邦材料研究試験局 (Federal Institute for materials Research and Testing, Bundesanstalt für Materialforschung und -prüfung, BAM, Germany)、カナダ国立研究所 (National Research Council Canada, NRC, Canada)、韓国標準科学研究所 (Korea Research Institute of Standards and Science, KRIS, Korea)、国際原子力機関 (International Atomic Energy Agency, IAEA, Austria)、米国油脂化学協会 (The American Oil Chemists' Society, AOCS, USA)、食品総合研究所 (National Food Research Institute, NFRI, Japan)、国立環境研究所 (National Institute for Environmental Studies, NIES, Japan)、計量標準総合センター (National Metrology Institute of Japan, NMIJ, Japan) などの標準物質供給機関のホームページおよび国際標準物質データベース (COde d'indexation des Matériaux de Référence, COMAR) を調査し、食品関連の組成認証標準物質を試料マトリックス別に抜粋した。本研究では、穀物、豆類、野菜、果実類、動物肉および肝臓などの組織、魚介類、油脂類、乳製品、茶、飲料、アルコール類、菓子類などの組成標準物質を主な調査対象とし、本報告では主に有機化合物分析用の認証標準物質 (Certified Reference Material, CRM) を中心にまとめを行った。なお、食品関連の標準物質でも微量元素分析用のものに関しては既に報告されているため、詳細はそちらを参照されたい¹³⁾。

3. 食品分析用標準物質の開発状況および特徴

3.1 食品分析用組成標準物質の調製

組成標準物質は分析対象試料と類似したマトリックスを有し、分析種に認証値が付与されたものであり、一般に前処理操作を含む分析法の妥当性確認や内部品質管理における真度の検討、国際単位系 (SI) へのトレーサビリティ確保などのために用いられる¹⁴⁾。食品関係の CRM では有機化合物分析用のものも徐々に増加してい

るが、国内で作製されたものの種類は限られており、NISTやIRMMをはじめとする海外の機関により開発されたものを使用することが多いのが現状である。

食品を構成している各種成分は、たとえ同一種類の食品であっても、品種・産地・保存・加工・調理など、生産から消費にいたる様々な条件により、大きく変動することがある。また、同一検体であっても、部位によって著しい差のある場合もみられる。すなわち、食品中に含まれる各種成分を分析するにあたって、分析のために採取した試料がその食品を代表するものであるか否かは非常に重要である。さらに、分析項目に対して、適切な試料の調製方法やその保存方法を考える必要があり、測定前に前処理操作を行う際には変質しないような手法を選択しなければならず、取り扱いが不適切であれば、分析操作をいくら注意深く行っても意味のないものになってしまう。食品分析用の組成標準物質の調製やその分析の際にも、これらの問題は当てはまる^{14)~16)}。

食品分析用の組成標準物質の調製方法について具体的に述べる。一般に長期の保存が可能である小麦や米などの穀類の組成標準物質は、原料を粉碎し、均質化することで調製が可能である。野菜や肉などをはじめとする他の食品の組成標準物質を調製する際には、凍結乾燥が圧倒的に多く用いられている。凍結乾燥は物質（水溶液を含む）を凍結し、水蒸気圧以下に減圧することによって水を昇華させて除くといった原理によるものであり、その後、粉碎、均質化をすることで調製がなされる。標準物質の供給機関により若干手順が異なるが、ビン詰めした後、必要に応じてγ線照射による滅菌処理を施すこともある。最近では、凍結乾燥の他に凍結粉碎が用いられることもあるが、これは液体窒素などを利用して原料を瞬間的に凍結し、超低温・無酸素の条件下で粉碎する手法である。常温で粉碎するよりも流動性がよく微粉碎ができるといった特長があり、また酸化や発熱による変質がないことから食品に適用した際にも味や香りが損なわれず、凍結乾燥粉末と比較してより実試料に近い組成を維持することが可能である。

3.2 食品中の主要成分の分析

食品分析の測定対象は多種に及び、①栄養上の主たる成分（水分、タンパク質、脂質、糖質・繊維（炭水化物）、灰分）、②ビタミン、ミネラルなどの微量成分、③有害物質としての農薬、食品添加物、重金属、毒素（カビ毒、フグ毒、その他）、④遺伝子組み換え食品および⑤放射性物質などに分類される。まず、栄養上の主たる成分について述べる。

水分は食品中において単一ではなく、その形態から自由水（分子運動が比較的自由に遊離水的）や束縛水（食品成分と相互作用をなして少なからず自由性が束縛されている）、結合水（食品成分と強く結合）などに区分される。食品に及ぼす影響も水分の形態の違いによって異なるものと考えられる。しかしながら、明確な区分は困難であるため、これらを区分することなく食品の水分を定量するのが一般的である。水分の定量に最も頻度が高く用いられるのは乾燥法であり、他には蒸留法やカールフィッシャー法などが用いられる¹⁷⁾。

食品中のタンパク質量は、窒素を定量し、その窒素量に窒素-タンパク質換算係数を乗じて求めることが多く、ケルダール法（Kjeldahl method）が定着している¹⁷⁾。しかし、近年ではより好ましい方法として、燃焼法（改良デュマ法）の公定法への認証化が進行している¹⁸⁾。

脂質の定量の際には乾燥した試料をエーテルで抽出し、その抽出液からエーテルを取り除いた残存物の重量をはかって脂質量とする（粗脂肪 crude fat）。ソックスレー法は1879年に牛乳中の脂肪分を抽出する方法として開発された抽出法であり、最もオーソドックスな抽出方法の一つである¹⁹⁾。酸分解法はAOAC Internationalにおいても公定法となっている。複合脂質の場合は、ソックスレー抽出法では必ずしも全量は抽出されないため、他の方法を用いる。穀類などのように、脂質が組織成分と強固に結合し、エーテル抽出されない脂質の割合が高い場合は、あらかじめ酸性下で分解を進めておき、脂質を遊離させて定量する方法が望ましく、酸分解法が用いられている。

その他、繊維の定量にはヘンネベルグ-ストーマン（Henneberg-Stohmann）改良法（AOACの公定法）が用いられる。灰分は食品を550℃で加熱灰化した残分として定義され、食品中に元来無機塩として存在するもののほかに、有機化合物の燃焼によって生じた無機物も含まれる。糖質は特別に分析されず、可溶性無窒素物として100%から糖質以外の五大成分を差し引いて求められる。

3.3 食品中の微量成分分析のための前処理

食品中に含まれる有害物質などの定量を行う場合、ときには極微量な成分を測定することが求められるため、非常に高感度な測定法が求められる。また、食品中には測定の影響となる成分も多数かつ高濃度に共存するため、食品試料を直接分析することは一般に困難である^{8), 10), 12)}。したがって、目的とする成分を正確に測定するには、適切な抽出操作や夾雑物質を除去するためのク

リーンアップなど、数多くの前処理操作を経てから、機器分析に供する必要がある。抽出効率、試料の均一性、試料の水分含量、溶媒の種類、抽出時間、温度などによって大きく異なる。抽出方法を変更する場合は、公定法と比較して同等またはそれ以上であることを確認する必要がある。

このような前処理法は食品分析に限らず、環境分析などの際にも重要であり、同様の手法が利用されている^{20)~23)}。

3.4 食品分析用標準物質のマトリックスによる分類

3.4.1 穀類・豆類

小麦粉、ライ麦粉、米粉およびトウモロコシ粉など様々な穀類の標準物質が多数の機関より頒布されている。表1にCRMの種類、供給機関、マトリックスおよび認証項目などの一覧を示す。小麦粉をマトリックスとした標準物質について認証されている項目として、栄養上の主たる成分や水溶性ビタミンの他、デオキシニバレノール(DON)やニバレノール(NIV)、オクラトキシンA(OTA)などのカビ毒が挙げられる。日本の主食である米をマトリックスとしたCRMは多数の機関から頒布されている

が、そのほとんどがCdなどの微量元素分析用である。有機化合物分析用のCRMとして、NMIJより残留農薬分析用の玄米粉が開発されているが^{24)~27)}、まだ認証項目の種類は少なく、引き続き開発がなされることが望まれる。一方、トウモロコシの標準物質として、DONやゼアラレノン(ZEA)、フモニシンB₁・B₂などのカビ毒分析用の他、遺伝子組み換え体の標準物質などが多数頒布されている。遺伝子組み換え食品関連の標準物質について表2に示す。2011年11月現在、日本で安全性の審査が完了した遺伝子組み換え食品は160品目あり、また遺伝子組み換え体由来の食品添加物が14品目ある。厚生労働省による安全性審査を経たもの以外が流通することのないよう規制されているが、今後も遺伝子組み換え食品が増加することが予測されることから、このような標準物質の開発は重要であり、食品の検査や導入された遺伝子産物の毒性やアレルギー誘発性の審査など様々な目的に活用されることが期待される。

3.4.2 野菜類・果実類

野菜類の組成標準物質として、ネギ、キャベツ、芽キャベツ、ニンジン、白菜、ホウレンソウおよび野菜混合

表1. 穀物および豆類の代表的なCRM

種類	供給機関	CRM No.	マトリックス	認証項目
麦	IRMM	BCR-121	小麦粉 (全麦粉)	ビタミン B ₁ (チアミン), B ₆ (ピリドキシン), 葉酸
	IRMM	BCR-379/396	小麦粉	デオキシニバレノール
	IRMM	BCR-471/472	小麦粉	オクラトキシン A
	IRMM	BCR-563	小麦粉	タンパク質, 灰分, 水分, その他 5 項目
	IRMM	ERM-BC382	小麦粉	ケルダール窒素, 総脂肪, デンプン, 灰分, Ca, K, Mg, P
	IRMM	ERM-BC600	小麦粉	デオキシニバレノール, ニバレノール, ゼアラレノン
	IRMM	ERM-BC-381	ライ麦粉	ケルダール窒素, 総脂肪, デンプン, 灰分, Ca, K, Mg, P
米	IRMM	BCR-465~467	米粉	アミロース
	NMIJ	NMIJ 7504-a	玄米粉	フェニトロチオン, エトフェンブロックス
トウモロコシ	IRMM	BCR-377	トウモロコシ粉	デオキシニバレノール
	IRMM	ERM-BC716/717	トウモロコシ粉	ゼアラレノン
豆	IRMM	BCR-262R/264	脱脂ピーナッツ	アフラトキシン B ₁
	IRMM	BCR-263R	脱脂ピーナッツ	アフラトキシン B ₁ , B ₂ , G ₁
	IRMM	ERM-BC383	インゲン豆	ケルダール窒素, 灰分, 食物繊維, Ca, K, Na
	IRMM	ERM-BC514	乾燥インゲン豆	食物繊維
	IRMM	ERM-BC517	大豆粉	食物繊維
	IRMM	BCR-446/447/448	ナタネ	油分, 水分, 揮発性成分
	IRMM	ERM-BC190/366/367	ナタネ	総グリコシレート, S

表 2. 遺伝子組み換え作物の代表的な CRM

種類	供給機関	CRM No.	マトリックス	認証項目
トウモロコシ	AOCS	AOCS 0406-A/D	トウモロコシ粉	MON88017 maize
	AOCS	AOCS 0407-A/B	トウモロコシ粉	GA21 maize
	AOCS	AOCS 0607-A	トウモロコシ粉	MIR604 maize
	AOCS	AOCS 0906-E	トウモロコシ粉	MON89034 maize
	AOCS	AOCS 1208-A	トウモロコシ粉	MIR162 maize
	IRMM	ERM-BF411a~f	トウモロコシ粉 (乾燥)	Bt-176 maize
	IRMM	ERM-BF412a~f	トウモロコシ粉 (乾燥)	Bt-11 maize
	IRMM	ERM-BF413ak~gk	トウモロコシ粉 (乾燥)	MON810 maize
	IRMM	ERM-BF414a~f	トウモロコシ粉 (乾燥)	GA21 maize
	IRMM	ERM-BF415a~f	トウモロコシ粉 (乾燥)	NK603 maize
	IRMM	ERM-BF416a~d	トウモロコシ粉 (乾燥)	MON863 maize
	IRMM	ERM-BF417a~d	トウモロコシ粉 (乾燥)	MON863×MON810 maize
	IRMM	ERM-BF418a~d	トウモロコシ粉 (乾燥)	1507 maize
	IRMM	ERM-BF419a~b	トウモロコシ粉 (乾燥)	H7-1 sugar beet
	IRMM	ERM-BF420a~c	トウモロコシ粉 (乾燥)	3272 maize
	IRMM	ERM-BF423a~d	トウモロコシ粉 (乾燥)	MIR604 maize
IRMM	ERM-BF424a~d	トウモロコシ粉 (乾燥)	59122 maize	
IRMM	ERM-BF427a~d	トウモロコシ粉 (乾燥)	98140 maize	
NFRI	NFRI-GM003	GM トウモロコシ	MON810	
ジャガイモ	AOCS	AOCS 0806-A~D	ジャガイモ粉	EN92-527-1
	IRMM	ERM-BF421A~B	ジャガイモ粉 (乾燥)	EH92-527-1 potato
大豆	AOCS	AOCS 0906-A/B	大豆粉	MON89788
	IRMM	ERM-BF410a~f	大豆粉	Roundup Ready™ soya bean
	IRMM	ERM-BF425a~d	大豆粉	356043 soya
	IRMM	ERM-BF426a~d	大豆粉	305423 soya
ナタネ	AOCS	AOCS 0304-A/B	ナタネ	RR Canola CTP 2/EPSPS CP 4

表 3. 野菜類の代表的な CRM

種類	供給機関	CRM No.	マトリックス	認証項目
根菜類	IRMM	ERM-BC515	ニンジン	食物繊維
	NIST	SRM 3276	ニンジン抽出物	δ-トコフェロール, γ-トコフェロール, 脂肪酸 (12 種)
葉菜類	IRMM	BCR-431	芽キャベツ	ビタミン C (総アスコルビン酸), ナイアシン
	NIST	SRM 2385	ハウレンソウスラリー	総ルテイン (エステルを含む), 総 β-カロテン, 微量元素 (7 種)
	NMIJ	NMIJ 7507-a	ネギ粉末	ダイアジノン, フェニトロチオン, ペルメトリン, シベルメトリン, エトフェンプロックス
	NMIJ	NMIJ 7508-a	キャベツ粉末	フェニトロチオン, クロルピリホス, ペルメトリン
	KRISS	KRISS108-05-03/004	白菜粉末	ダイアジノン, クロルピリホス, α-エンドスルファン, β-エンドスルファン
野菜混合物	IRMM	BCR-485	野菜混合物	ビタミン B ₁ (チアミン), B ₆ (総ピリドキシン), 葉酸, trans-α-カロテン, trans-β-カロテン, 総 α-カロテン, 総 β-カロテン, ルテイン, ルテイン+ゼアキサントチン

物などが開発されている (表 3)。認証値に水溶性ビタミン (ビタミン C, ナイアシン), 脂溶性ビタミン (δ-, γ-トコフェロール), 食物繊維, 脂肪酸などが付与されている。NMIJ では, 残留農薬分析用のネギおよびキャベ

ツ標準物質が開発され、2011年より頒布されている²⁸⁾。表を見ると、実際に食用される野菜の種類に対し、CRMとして頒布されているマトリックスの種類がまだ少ないことから、さらなるCRMの開発が重要と考える。

果実類では、NISTを中心にリンゴ、オレンジおよびベリー類などをマトリックスとしたCRMが開発され、柑橘類の酸味成分を中心に認証値が付与されている(表4)。国内の機関ではまだ果実類のCRMが開発されてい

ないことから、日本の食生活を考慮した適切なCRMの開発が望まれる。また、野菜、果実およびその他の食品などを通じて植物性自然毒分析用のCRMは見当たらなかった。植物性自然毒には膨大な種類があるが、現在でも食中毒が発生し死亡事故も起きていることから、発生頻度などを考慮して優先順位をつけ、その分析に対応したCRMが開発されることが期待される。

表 4. 果実類の代表的な CRM

種類	供給機関	CRM No.	マトリックス	認証項目
オレンジ	NIST	SRM 3258	ビターオレンジ (果実)	シネフリン, N-メチルチラミン, 総柑橘アルカロイド
	NIST	SRM 3259	ビターオレンジ抽出物	シネフリン, N-メチルチラミン, チラミン, 総柑橘アルカロイド
	NIST	SRM 3260	ビターオレンジ (錠剤・カプセル)	シネフリン, チラミン, カフェイン, 総柑橘アルカロイド
	NIST	SRM 3261	ビターオレンジ栄養補助食品	シネフリン, オクトパミン, チラミン, ホルデニン, N-メチルチラミン, 総柑橘アルカロイド, カフェイン
	LGC	ERM-BD011-015	オレンジジュース	ブリックス度, 屈折率
リンゴ	IRMM	ERM-BC516	乾燥リンゴ	食物繊維
クランベリー	NIST	SRM 3281	クランベリー (果実)	クエン酸, リンゴ酸, キナ酸, シキミ酸
	NIST	SRM 3282	低カロリー・クランベリージュース カクテル	クエン酸, リンゴ酸, キナ酸, シキミ酸, Ca, Cu, K, Mg, Mn, Na
	NIST	SRM 3283	クランベリー抽出物	クエン酸, リンゴ酸, キナ酸
	NIST	SRM 3284	クランベリー	クエン酸, リンゴ酸, キナ酸
ベリー類混合物	NIST	SRM 3285	ベリー類の混合物	リンゴ酸, キナ酸
ビルベリー	NIST	SRM 3291	ビルベリー抽出物	クエン酸, リンゴ酸, キナ酸

表 5. 魚介類の代表的な CRM

種類	供給機関	CRM No.	マトリックス	認証項目
魚類	IRMM	BCR-718	ニシンの缶詰	PCB (12 同族体)
	IRMM	BCR-719	チャブの缶詰	PCB (4 同族体)
	IRMM	BCR-725	サケの組織 (凍結乾燥)	フルメキン, オキソリン酸
	NRC	NRC CRM-CARP-2	コイ	PCB (10 同族体)
	NMIJ	NMIJ7404-a	スズキ魚肉粉末	PCB (5 同族体), 有機塩素系農薬 (5 種)
	NIST	SRM 1946	スベリオル湖の魚の組織	PCB (30 同族体), 有機塩素系農薬 (15 種), 抽出性脂肪, 総脂肪酸, 脂肪酸 (13 種), メチル水銀, 総水銀, As, Fe
	NIST	SRM 1947	ミシガン湖の魚の組織	PCB (32 同族体), 有機塩素系農薬 (15 種), PBDE (7 同族体), メチル水銀, Hg などの微量元素 (8 種)
貝類	IRMM	BCR-543	ムラサキガイの組織	サキシトキシン Σ HCl, de-サキシトキシン Σ HCl
	IRMM	BCR-682	ムラサキガイの組織	PCB (8 同族体)
	NRC	NRC CRM-DSP-Mus-b	ムラサキガイの組織	オカダ酸, ジノフィシストキシン-1
	NRC	NRC CRM-ASP-Mus-c	ムラサキガイの組織	ドウモイ酸
	NIST	SRM 1974b/2977/2978	ムラサキガイの組織	PAH, PCB, 有機塩素系農薬など

3.4.3 魚介類

魚類のCRMは可食部を凍結乾燥した後に粉碎するあるいは凍結粉碎することにより調製され、PCBや塩素系農薬などの有機汚染物質分析用およびメチル水銀やヒ素化合物などの微量元素分析用CRMとして各機関より頒布されている(表5)。PCBはいうまでもなく日本最大の食品公害といわれるカネミ油症事件を過去に引き起こしたという教訓からも、適切な管理・規制が求められる^{7), 8), 20)}。

また、貝類のCRMは、いずれも凍結乾燥後に粉碎して調製されており、主にPCBなどの有機汚染物質分析用もしくはメチル水銀を含む微量元素分析用として各機関より頒布されている。PCBや塩素系農薬分析用のCRMばかりではなく、貝毒分析用のCRMとしてムラサキガイをマトリックスとしたものが開発されており²⁹⁾、IRMMより供給されるBCR-543では麻痺性貝毒であるサキシトキシンに、NRCより供給されるCRM-DSP-Mus-bでは下痢性貝毒であるオカダ酸およびジノフィシストキシン-1、CRM-ASP-Mus-cでは記憶喪失性貝毒であるドウモイ酸に認証値が付与されている³⁰⁾。これらを分析する際には、抽出を経て、限外ろ過あるいは逆相カートリッジによる固相抽出などの処理を施した後、HPLC-蛍光検出による測定を行うのが一般的である^{31), 32)}。今後、ムラサキガイばかりではなく、他の二枚貝(例えばホタテガイやアサリ、カキなど)の組織を

マトリックスとしたCRMの開発も望まれる。また、これら貝毒の他にも動物性の自然毒にはフグ毒やシガテラ毒をはじめ様々な種類が存在するが、そのような毒素の分析に対応したCRMは見当たらないことから、今後、開発されることが望まれる。

3.4.4 肉類・卵類

肉類では牛や豚をはじめとする多くの種類をマトリックスとしたCRMが開発されており、それらは凍結乾燥後に粉碎して調製されたものが多い(表6)。かつて家畜の肥育促進の用途に用いられたジエチルスチルベストールやクレンプテロール、抗生物質(クロラムフェニコール³³⁾、クロロテトラサイクリン)、抗原虫薬のニトロイミダゾール類^{34), 35)}、アナボリックステロイドの17 α -トレンボロンなどの他、コレステロール、脂肪酸、ビタミンB類などに認証値が付与されている。なお、日本では食肉となる牛や豚などを飼育するために必要な飼料の多くを輸入に頼っていることから、飼料のCRMの開発も重要である。一方、卵をマトリックスとしたCRMはNISTより開発されており、コレステロールに認証値が付与されている。

3.4.5 乳製品

乳製品のCRMでは、粉乳、脱脂粉乳、無脂肪乳、ホエー、クリームおよびプロセスチーズなど様々なマトリ

表6. 肉類・卵類の代表的なCRM

種類	供給機関	CRM No.	マトリックス	認証項目
牛肉	IRMM	BCR-411/412	牛筋肉(凍結乾燥)	ジエチルスチルベストール
	IRMM	BCR-474/475	牛肝臓(凍結乾燥)	17 α -トレンボロン
	IRMM	BCR-648/649	牛肝臓	クレンプテロール
豚肉	IRMM	BCR-444/445	豚筋肉	クロラムフェニコール
	IRMM	BCR-697/698	豚筋肉	クロロテトラサイクリン
	IRMM	ERM-BB124	豚筋肉	ニトロイミダゾール(6種)
	IRMM	ERM-BB130	豚筋肉	クロラムフェニコール
	IRMM	ERM-BB384	豚筋肉(凍結乾燥)	ケルダール窒素, 総脂肪, 灰分, Ca, Mg, Na, P
	IRMM	BCR-487	豚肝臓	ビタミンB ₁ , B ₂ , B ₆ , B ₁₂ , 葉酸
	IRMM	BCR-695/696	豚肝臓	クロロテトラサイクリン
	IRMM	BCR-706/707	豚腎臓	クロロテトラサイクリン
	肉	NIST	SRM 1546	肉ホモジネート
IRMM		ERM-BB501	加工肉	水分, 窒素, 総脂肪, 灰分, ヒドロキシプロリン, Cl, NO ₃
SMRD		SMRD 2000	食肉	灰分, 水分, 脂肪, 窒素, ヒドロキシプロリン, デンブン, Ca, Fe, K, Na, NaCl, P
卵	NIST	SRM 1845	全卵	コレステロール

ックスのものが開発されており、認証項目としては、有機塩素系農薬、PCB、カビ毒および抗生物質などが挙げられる（表7）。とりわけ、抗生物質や動物性医薬品の分析は重要であることから、さらに多数の医薬品の分析に対応したCRMの開発が求められる。

福島第一原子力発電所の事故により、食品の放射性物

質による汚染が懸念されていることから、科学的根拠の伴わない風評被害を防ぐためにも、食品中の放射性物質を精確に測定することが求められる。しかし、IAEAより粉乳やホエーなどをマトリックスとした放射性物質測定用の標準物質が開発されているのみで、食品中の放射性物質測定用のCRMの種類はまだ少ないことから、乳

表7. 乳製品の代表的なCRM

種類	供給機関	CRM No.	マトリックス	認証項目
粉乳	IRMM	BCR-187	粉乳	有機塩素系農薬（4種）
	IRMM	BCR-188	粉乳	有機塩素系農薬（8種）
	IRMM	BCR-380R	粉乳	粗タンパク質、脂肪、ラクトース、灰分
	IRMM	BCR-450	粉乳	PCB（6同族体）
	IRMM	BCR-607	粉乳	PCDD（5同族体）、PCDF（6同族体）
	IRMM	ERM-BD282~284	全粉乳	アフラトキシン M ₁
	IRMM	ERM-BB492/493	粉乳（一部脱脂）	オキシテトラサイクリン（オキシテトラサイクリンおよび4-エピオキシテトラサイクリンの和）
	NIST	SRM 1846	幼児用のミルク	ビタミン C, B ₂ , B ₆ , ナイアシン, ヨウ素
NIST	SRM 1849	幼児/大人用のミルク	脂肪酸（16種）、ビタミン（14種）、微量元素（13種）	
脱脂粉乳	IRMM	BCR-492/493	脱脂粉乳（凍結乾燥）	オキシテトラサイクリン
	IRMM	BCR-685	脱脂粉乳	粗タンパク質、脂肪
凝乳	IRMM	BCR-599	羊および山羊の凝乳	牛乳の偽和

表8. 油脂類の代表的なCRM

種類	供給機関	CRM No.	マトリックス	認証項目
魚油	IRMM	ERM-BB350	魚油	PCB（18同族体）
	NIST	SRM 3275	魚油	脂肪酸（17種）
	NMIJ	NMIJ 7401-a	サメ肝油	有機塩素系農薬（2種）
	NIST	SRM 1588b	タラ肝油	PCB（27同族体）、有機塩素系農薬（15種）、脂肪酸（15種）
	IRMM	BCR-349	タラ肝油	PCB（6同族体）
	IRMM	BCR-598	タラ肝油	有機塩素系農薬（13種）
動物性脂肪	IRMM	BCR-163	牛豚混合脂肪油	脂肪酸（7種）、コレステロール
	IRMM	ERM-BB444~446	豚の脂肪	PCB（7同族体）、総PCB
	IRMM	ERM-BB-430	豚の脂肪	有機塩素系農薬（7種）
	KRISS	KRISS108-03-001/002	豚の脂肪	有機塩素系農薬（4種）
	IRMM	BCR-519/632A/632B	バター脂肪	遊離コレステロール、トリグリセリド（16種）
	IRMM	BCR-633	バター脂肪（無水）	β-アポ-8'-カロテン酸エチルエステル、β-シトステロール、スチグマステロール、n-ヘプタン酸トリグリセリド
植物性脂肪	IRMM	BCR-122	マーガリン	ビタミン D ₃ , E（α-トコフェロール）
	IRMM	BCR-162R	ダイズ/トウモロコシ混合油	脂肪酸（5種）
	NIST	SRM 1563	ヤシ油	コレステロール、エルゴカルシフェロール、dl-α-トコフェロール（酢酸塩）
	IRMM	BCR-459	ヤシ油	PAH（6同族体）
	IRMM	IRMM-801	ココアバター	トリグリセリド（5種）
	IRMM	BCR-385R/401R	ビーナッツバター	アフラトキシン B ₁ , B ₂ , G ₁ , G ₂ , 総アフラトキシン
	NIST	SRM 2387	ビーナッツバター	抽出性脂肪、総脂肪酸、飽和脂肪酸、不飽和脂肪酸、脂肪酸（12種）、α-トコフェロール、δ-トコフェロール、γ+β-トコフェロール、微量元素（9種）
	NIST	SRM 3274	植物油	脂肪酸（17種）
食用油	NIST	SRM 3278	食用油	α-, β-, γ-, δ-トコフェロール

製品ばかりではなく、米や牛肉、茶などをはじめとする日本での食生活の状況から優先度の高い食品の CRM が直ちに開発されることが望まれる。また、日本で食品への放射線照射は、バレイシヨの発芽抑制のために⁶⁰Coのγ線照射が認められているが、世界的には50カ国以上の国において200種以上の食品への放射線照射が許可されている。これらの食品が輸入される可能性もあることから、許可された食品について、放射線照射の適正な使用を確認することは、法規制に効力を持たせる上で重要なことである。しかしながら、食品に放射線が残留しないことから、照射履歴を検知するには、照射により生じる食品の物理化学的な変化を検出する間接的な手法が用いられる。現在では、2-アルキルシクロブタノン類が食品照射の代表的な検知指標として知られており^{36), 37)}、今後、これらの分析に対応した CRM の開発も期待される。

3.4.6 油脂類

油脂類に関しては植物および動物由来のものをマトリックスとした様々な CRM が開発されており(表8)、魚油および動物性油脂には PCB および有機塩素系農薬に認証値が与えられている。また、植物性のもものではコレ

ステロール、脂肪酸および脂溶性ビタミンなど多数の栄養素に認証値が与えられている一方で³⁸⁾、カビ毒分析用としてピーナッツバターをマトリックスとした CRM も開発されている³⁹⁾。また、認証値が付与されておらず CRM に分類されないため表には挙げていないが、LGCより食品添加物分析用の標準物質として LGC7120 (トウモロコシ油)が開発されており、酸化防止剤であるジブチルヒドロキシルエン (BHT) およびブチルヒドロキシアニソール (BHA) に参考値が付与されている。油脂類に限らず他のマトリックスを由来とする CRM においても食品添加物分析用のものは見当たらないことから、保存料や着色料、酸化防止剤分析用などの適切な CRM が開発されることが望まれる。

3.4.7 アルコール類・飲料・茶

茶葉あるいはその抽出液の CRM は NIST を中心に開発されており、カテキン類やカフェインなどに認証値が与えられている。また、国内では NFRI より、アクリルアミド分析用のほうじ茶葉標準物質が開発されている(表9)。一方、酒類に関する CRM ではウイスキー、ビール、シャンデー、ブランデー、ワインなど様々なアル

表9. アルコール・飲料・茶の代表的な CRM

種類	供給機関	CRM No.	マトリックス	認証項目
ウイスキー	LGC	LGC5100	ウイスキー	メタノール, 酢酸エチル, プロパノール, 2-メチルプロパノール, 2-メチルブタノール, 3-メチルブタノール, 2+3-メチルブタノール
シャンデー	LGC	LGC5004	シャンデー	アルコール
ビール	IRMM	BCR-651/652	ビール	エタノール
	LGC	ERM-BA005a	ビール	アルコール濃度
ブランデー	LGC	ERM-BA006a	ブランデー	アルコール濃度など
ワイン	IRMM	BCR-653	ワイン	エタノール
	IRMM	BCR-658/659	ワイン	¹⁸ O 同位体比
	IRMM	BCR-656	ワイン	エタノールの元素の同位体比, アルコール度数
	IRMM	BCR-660	ワイン	エタノールの元素の同位体比, アルコール度数
	BAM	ERM-BD476	ワイン	オクラトキシン A
	LGC	LGC5001-5003	ワイン	アルコール濃度
清涼飲料	LGC	LGC7131	清涼飲料	サッカリン, アセサルファーム K
	LGC	LGC7140	清涼飲料	ボンゾー4R, サンセットイエロー, タートラジン
ジュース	LGC	ERM-BD011~015	オレンジジュース	ブリックス度, 屈折率
コーヒー	BAM	ERM-BD476	コーヒー	オクラトキシン A
茶	NIST	SRM 3254	緑茶葉	(±)-エピカテキン, (±)-エピカテキンガレート, (±)-エピガロカテキン, (±)-エピガロカテキンガレート, (±)-ガロカテキンガレート, カフェイン, テオブロミン
	NIST	SRM 3255	緑茶抽出物	(+)-カテキン, (±)-エピカテキン, (±)-エピカテキンガレート, (±)-エピガロカテキン, (±)-エピガロカテキンガレート, (±)-ガロカテキン, (±)-ガロカテキンガレート, カフェイン, テオブロミン
	NIST	SRM 3256	緑茶 (錠剤・カプセル)	(+)-カテキン, (±)-エピカテキン, (±)-エピカテキンガレート, (±)-エピガロカテキン, (±)-エピガロカテキンガレート, (±)-ガロカテキン, カフェイン, テオブロミン, 没食子酸, As, Cd, Hg, Pb
	NFRI	NFRI-AA001a/b	ほうじ茶葉	アクリルアミド (付与値)

コールのエタノール度数（含量）などに認証値が与えられている。

3.4.8 食事・菓子類・サプリメント

これまでに挙げた食品の他にも、食事、菓子類さらにはサプリメントなどをマトリックスとしたCRMが開発されている（表10）。特に、菓子類では比較的多数のマトリックスのCRMが開発されており、糖質を中心とした栄養素分析用の他、アクリルアミド分析用のものが開発されている。また、サプリメントについても、イチヨウやノコギリヤシをはじめ多数のものが開発されている。

3.5 食品に含まれる有害物質分析用の標準物質

栄養上の主たる成分に認証値が付与されたCRMは、特にIRMMにより多数開発されている。マトリックスの種類は、穀類（小麦粉ERM-BC382・ライ麦粉ERM-BC381）、豆類（インゲン豆ERM-BC383/514）、肉類（豚肉ERM-BB384）、乳製品（粉乳BCR-380R）など多岐にわたっており、それぞれケルダール窒素や脂肪、灰分、

食物繊維などについて認証値が付与されている。この他にも、脂肪酸やコレステロール、トリグリセリドなどに認証値が付与されたCRMが多数開発されている。脂溶性および水溶性ビタミンについても同様であり⁴⁰⁾、栄養上の主たる成分およびビタミン類分析用の組成標準物質は、まだ完全ではないものの、比較的整備されているように見受けられた⁴¹⁾⁻⁴³⁾。

一方で、有害物質分析用のCRMは測定対象およびマトリックスの種類のみ組み合わせが膨大であることから、完全に網羅して開発することは現実的とはいえない。したがって、社会のニーズなどを最大限に考慮し、ユーザーの必要とするCRMの調査などを行った上で優先順位を付け、開発に取り組む必要があると考える。筆者は今後、食品分析用のCRMの開発に着手することを計画しているが、これまでに開発されたものの中で有害物質分析用のものを中心に詳細な調査を行った。

3.5.1 カビ毒

カビ毒（マイコトキシン）が原因と考えられる中毒事例は多数報告されているが、カビ毒はヒトや動物の肝臓・

表 10. 食事・菓子類・サプリメントの代表的なCRM

種類	供給機関	CRM No.	マトリックス	認証項目	
食事	NIST	SRM 1544	冷凍食品混合物	コレステロール、脂肪酸（6種）	
	IRMM	BCR-644/645	人工食品	スクロース、ラクトース、 デンプン/グルコースなど	
	IRMM	ERM-BD273	トースト	アクリルアミド	
菓子類	NIST	SRM 2384	ベーキングチョコレート	抽出性脂肪、総脂肪酸、脂肪酸（11種）、 カフェイン、テオブロミン、(+)-カテキン、(-)-エピカテキン、 カテキンモノマー、Ca, Fe	
	BAM	ERM-BD272	クリスピーブレッド	アクリルアミド	
	BAM	ERM-BD274	ラスク焼き	アクリルアミド	
	LGC	LGC7017	砂糖菓子	グルコース、フルクトース、スクロース、マルトース	
	LGC	LGC7103	ビスケット	窒素、総脂肪、灰分、フルクトース、スクロース、 微量元素（7種）	
	LGC	LGC7105	ライスブディング	水分、窒素、総脂肪、灰分、スクロース、微量元素（7種）	
	LGC	LGC7107	マディラケーキ	水分、窒素、総脂肪、灰分、スクロース、ラクトース	
	KRISS	KRISS108-10-001/003	ポテトチップ粉末	アクリルアミド	
	サプリメント	NIST	SRM 3240-3245	エフェドラ	エフェドリン、プソイドエフェドリン、メチルエフェドリン、 総アルカロイド、As, Cd, Hg など
		NIST	SRM 3246-3249	イチヨウ	クエルセチン、ケンフェロール、イソラムネチン、 総アグリコン、ギンゴライド類、Pb など
NIST		SRM 3250-3251	ノコギリヤシ	カンパステロール、 β -シトステロール、スチグマステロール、 脂肪酸など	
NIST		SRM 3280	マルチビタミン錠	α -トコフェロール、アスコルビン酸、塩酸チアミン、 リボフラビン、ナイアシンアミド、パントテン酸、 塩酸ピリドキシン、葉酸、シアノコバラミン、ビオチン、 エルゴカルシフェロール、フィロキノン、Trans- β -カロテン、 総 β -カロテン、微量元素（17種）	
NRC		NRC SELM-1	セレン強化酵母	総Se、セレノメチオニン、メチオニン	
KRISS		KRISS108-10-002/004	サプリメント	D-グルコサミン	

腎臓・胃腸などに障害を与え、場合によっては死に至らしめることもあり、加えて、発癌性や催奇形性を示すものもある。中でも、*Aspergillus* 属などのカビが作り出すアフラトキシン (AF) は毒性の強さおよび汚染実態から最も重要なカビ毒であるとともに、天然物中で最強の発癌物質の1つである。穀類・種実類・香辛料などから AFB₁・B₂・G₁ および G₂ が、牛乳やチーズなどの乳製品から AFB₁・B₂ の代謝物である AFM₁・M₂ が検出されることがある。なお、これら AFB₁・B₂・G₁・G₂ の4種類の総和は総アフラトキシン (総 AF) として定義されている。日本における AF の摂取経路は主にナッツ類であり、発癌性や暴露頻度の高さのため、慢性疾患の原因物質として最も憂慮すべき食品汚染物質と考えられている^{44), 45)}。AF は食品衛生法により全食品を対象に検出されてはならないとされ、これまで AFB₁ を指標に規制が行われてきた。しかし、落花生などから AFB₁・B₂ とともに AFG₁・G₂ も検出される事例が多くなったことから、2011年10月より総 AF の規制値を 10 µg/kg (0.01 ppm) とする規制に改正された⁴⁶⁾。米国では、総 AF の規制値が 20 µg/kg とされ、欧州では AFB₁ および総 AF を加工用 (それぞれ 8, 15 µg/kg) と直接消費用 (2, 4 µg/kg) の2段階の最大基準値が設定されている (表 11)。

AF 測定の手順は、粉碎あるいは細切した試料を溶媒抽出し、イムノアフィニティーカラム (IAC) あるいは逆相・イオン交換の充填剤を混合した多機能カラムと呼ばれる固相抽出カラムで精製した後、トリフルオロ酢酸 (TFA) で誘導体化し、HPLC - 蛍光検出にて測定を行うという流れである⁴⁷⁾。TFA 法の他にもポストカラムで紫

外線照射により生成する蛍光誘導体化物を測定する PR 法⁴⁸⁾ や電気化学的に生ずるブロムにより生成するブロム誘導体化物を測定する KC 法^{49), 50)} などがある。もし、AF が陽性と判定された場合は、LC/MS による確認試験を行う。TFA 法は国内に限らず、AOAC などの公定法にも同様の手法が採用されており、広く利用されている⁵¹⁾⁻⁵⁴⁾。

AF 分析用の組成 CRM としては、これまでに BCR-262R/263R/264 (脱脂ピーナッツ) や BCR-385R/401R (ピーナッツバター)、ERM-BD282/283/284 (全粉乳) などが開発されている。また、家畜用の飼料をマトリックスとした BCR-375 や ERM-BE375/376 (合成飼料) も開発されている。

カビ毒は AF の他にも様々な種類があり、DON や NIV, OTA, ZEA などが挙げられるが、これらを測定対象とした組成 CRM が既に開発されている。IRMM より組成 CRM として、DON 分析用の BCR-377 (トウモロコシ粉) および BCR-396 (小麦粉)、OTA 分析用の BCR-471/472 (小麦粉)、ZEA 分析用の ERM-BC716/717 (トウモロコシ粉) が、BAM より、OTA 分析用の ERM-BD475 (コーヒー) および ERM-BD476 (赤ワイン)、DON・NIV・ZEA 分析用の ERM-BC-600 (小麦粉) をはじめ多数が開発されている⁵⁵⁾⁻⁵⁸⁾。なお、これらの組成 CRM は実際にカビ毒を含むものおよびブランクの両者があるが、カビ毒を含むものはその量が実際の規制値や実試料に含まれる量などと比較して妥当な値となるよう調製されている (表 12)。

また、カビ毒の分析では組成 CRM ばかりではなく、標準液も多数開発されている。標準液として ERM-

表 11. アフラトキシンの規制値

国・組織	対象食品	アフラトキシンの規制値 (µg/kg)		
		AFB ₁	AFM ₁	総 AF
日本	全食品			10
米国	全食品			20
	牛乳		0.5	
EU	加工用	8		15
	直接消費用	2		4
	香辛料	5		10
	牛乳		0.5	
コーデックス委員会	加工用			15
	直接消費用			10
	牛乳		0.05	

表 12. カビ毒分析用の代表的な CRM

種類	供給機関	CRM No.	マトリックス	認証項目 (認証値)	
麦	IRMM	BCR-379	小麦粉	DON (673 ± 21 µg/kg)	
	IRMM	BCR-396	小麦粉	DON (< 0.05 µg/kg)	
	IRMM	BCR-471	小麦粉	OTA (<0.6 µg/kg)	
	BAM	ERM-BC600	小麦粉	DON (102 ± 11 µg/kg) NIV (1000 ± 130 µg/kg) ZEN (90 ± 8 µg/kg)	
トウモロコシ	IRMM	BCR-377	トウモロコシ粉	DON (< 0.05 mg/kg)	
	IRMM	BCR-378	トウモロコシ粉	DON (< 425 ± 38 mg/kg)	
	IRMM	ERM-BC716	トウモロコシ粉	ZEN (< 5 µg/kg)	
	IRMM	ERM-BC717	トウモロコシ粉	ZEN (83 ± 9 µg/kg)	
豆	IRMM	BCR-262R	脱脂ピーナッツ	AFB ₁ (< 3.0 µg/kg)	
	IRMM	BCR-263R	脱脂ピーナッツ	AFB ₁ (17.1 ± 2.4 µg/kg) AFB ₂ (3.0 ± 0.4 µg/kg) AFG ₁ (3.0 ± 0.5 µg/kg) AFG ₂ (0.62±0.21 µg/kg)* 総 AF (23.7±2.5 µg/kg)*	
	IRMM	BCR-264	脱脂ピーナッツ	AFB ₁ (206 ± 13 µg/kg)	
	IRMM	BCR-385R	ピーナッツバター	AFB ₁ (1.77 ± 0.30 µg/kg) AFB ₂ (0.48 ± 0.08 µg/kg) AFG ₁ (0.9 ± 0.4 µg/kg) AFG ₂ (0.30 ± 0.12 µg/kg) 総 AF (3.5 ± 0.5 µg/kg)	
	IRMM	BCR-401R	ピーナッツバター	AFB ₁ (< 0.2 µg/kg) AFB ₂ (< 0.2 µg/kg) AFG ₁ (< 0.2 µg/kg) AFG ₂ (< 0.2 µg/kg) 総 AF (< 0.2 µg/kg)	
	粉乳	IRMM	ERM-BD282	粉乳	AFM ₁ (< 0.02 µg/kg)
		IRMM	ERM-BD283	粉乳	AFM ₁ (0.111 ± 0.018 µg/kg)
IRMM		ERM-BD284	粉乳	AFM ₁ (0.44 ± 0.66 µg/kg)	
コーヒー	BAM	ERM-BD475	コーヒー豆	OTA (6.0 ± 0.6 µg/kg)	
ワイン	BAM	ERM-BD476	赤ワイン	OTA (0.52 ± 0.11 µg/kg)	
飼料	IRMM	BCR-375	合成飼料	AFB ₁ (< 1 µg/kg)	
	IRMM	ERM-BE375	合成飼料	AFB ₁ (2.6 ± 0.4 µg/kg) AFB ₂ (0.20 ± 0.04 µg/kg) AFG ₁ (0.4 ± 0.1 µg/kg) AFG ₂ (< 0.2 µg/kg)	
	IRMM	ERM-BE376	合成飼料	AFB ₁ (12.9 ± 1.8 µg/kg) AFB ₂ (0.68 ± 0.10 µg/kg) AFG ₁ (5.2 ± 0.8 µg/kg)	

*参考値

AC057*060 (AFB₁, B₂, G₁, G₂, アセトニトリル溶液), BCR-423 (AFM₁, クロロホルム溶液), ERM-AC699 (ZEA, アセトニトリル溶液), IRMM-315 (DON, アセトニトリル溶液) および IRMM-316 (NIV, アセトニトリル溶液) などが頒布されている。組成 CRM および標準液の両者を効果的に利用することにより精度の高い測定が可能と考えられる (表 13)。

しかしながら、現状でカビ毒分析用の CRM が完全に整備されているわけではない。現在の日本におけるカビ毒の規制は非常に種類が少なく、AF (総 AF で 10 ppb) の他、DON (1.1 ppm) およびパツリン (50 ppb) で設けられており、NIV が審議中 (0.7 ppm) となっている。Penicillium 属により産生されるパツリンは多くの種類の動物に致死的な毒性を有するカビ毒であり、日本を含め多くの国でリンゴ果汁などに対して規制値が設定されている。しかし、パツリン分析用の組成 CRM は現時点では見当たらず、そのほかのカビ毒分析用の CRM が近いうちに完全に整備されることが望まれる。また、日本の主食である米をマトリックスとした CRM も現時点で存在しないことから、今後、開発されることが望まれる。

3.5.2 農薬

農薬は農薬取締法によってその製造・販売・使用が規制されるとともに、最近では、食品に残留する農薬等についてポジティブリスト制度が食品衛生法により導入され、健康被害の防止策の強化が計られている。現在、農水省に登録されている農薬の種類は有効成分で約 500 種と非常に多いことから、その分析およびそれに対応した CRM の開発は重要である。

野菜については、国内では残留農薬分析用の CRM として NMIJ より、NMIJ 7507-a (ネギ粉末) および NMIJ 7508-a (キャベツ粉末) が開発され、数種類の有機リン系およびピレスロイド系農薬に対し認証値が付与されて

いる²⁸⁾。国外では KRIS108-05-003/004 (白菜粉末) が開発され、同様の農薬に対して認証値が与えられている。しかしながら、CRM として供給されているマトリックスの種類がまだ少ないことから、さらなる整備が望まれる。

一方、穀類では、米の残留農薬分析用の CRM として、NMIJ 7504-a (玄米粉末) が開発されている一方²⁴⁾⁻²⁶⁾、小麦やトウモロコシ、大豆などについては農薬分析用の CRM は見当たらない。日本ではこれら米以外の穀類の多くを輸入に頼っているため、ポストハーベスト農薬を含む残留農薬分析用の CRM 開発が望まれる。また、農薬の分析を行う現場では個別の農薬の分析ばかりではなく、一斉分析もまた行っていることから、それに対応した CRM 開発の工夫も求められる。この他にも、魚介類(魚肉・貝類)を中心に有機汚染物質分析用として有機塩素系農薬に認証値を付与した CRM が多数開発されている^{59), 60)}。

3.5.3 抗生物質・動物用医薬品

野菜などに対する残留農薬ばかりではなく、畜産・水産動物に対して使用される医薬品もまた食の安全を脅かすものとして警戒せねばならない。特に抗生物質は家畜の感染症の予防や治療あるいは発育促進を目的とする飼料添加物として各種の薬剤と共に使用されることがある。これらの分析に対応した CRM は、豚肉を中心に、既にいくつか開発されている。BCR-444/445 および ERM-BB130 (豚筋肉) では、抗生物質であるクロラムフェニコールに同位体希釈 LC/MS 法および GC/MS 法により認証値が与えられている³³⁾。BCR-695/696 (豚肝臓)、BCR-697/698 (豚筋肉) および BCR-706/707 (豚腎臓) ではクロルテトラサイクリンに認証値が与えられている。ERM-BB124 (豚筋肉) は 4 種の抗原虫薬を投与した豚の肉を凍結乾燥したものを粉碎して調製した CRM

表 13. カビ毒分析用の標準液

供給機関	CRM No.	CRM の名称	認証値 (濃度)
IRMM	ERM-AC057	Aflatoxin B ₁ in Acetonitrile	3.79 µg/g
IRMM	ERM-AC058	Aflatoxin B ₂ in Acetonitrile	3.80 µg/g
IRMM	ERM-AC059	Aflatoxin G ₁ in Acetonitrile	3.78 µg/g
IRMM	ERM-AC060	Aflatoxin G ₂ in Acetonitrile	3.80 µg/g
IRMM	ERM-AC699	Zearalenone in Acetonitrile	9.95 µg/g
IRMM	IRMM-315	Deoxynivalenol in Acetonitrile	25.10 µg/g
IRMM	IRMM-316	Nivalenol in Acetonitrile	24.00 µg/g

であり、同位体希釈 LC/MS 法により、投与した薬物の他、3 種類の代謝物に認証値が与えられている。また、認証項目に挙げられる抗生物質および動物用医薬品の種類が少ないことから、今後、さらに多くの種類の医薬品の分析に対応した CRM の開発が望まれる。

3.5.4 アクリルアミド

アクリルアミドは、必ずしも食品の原材料に含まれているのではなく、炭水化物を多く含む原材料を加熱調理した際にメイラード反応により生成する。神経毒で発癌性が指摘されている化学物質であり、現時点では規制値などは設けられていないが、食品からの摂取を低減する取組みが進められている⁶¹⁾。

アクリルアミド分析用の組成 CRM として、IRMM より ERM-BD273 (トースト) が、BAM より ERM-BD272 (クリスピーブレッド) および ERM-BD274 (ラスク焼き) が開発されている^{62), 63)}。また、KRIS からも、KRIS108-10-001/003 (ポテトチップ) が頒布されている⁶⁴⁾。これらを表 14 にまとめる。

アクリルアミドの分析の際には同位体希釈質量分析法が利用され、試料の前処理として除タンパクや除糖および固相抽出などにより精製した後、直接 LC/MS/MS あるいは誘導体化後 GC/MS による測定が行われている。

このように、原材料中に必ずしも含まれていなくとも、食品の加工や調理などの際に生成する化学物質を対象とした分析も重要であり、アクリルアミドの他には、肉や魚のいわゆるお焦げ中に含まれる PAH やヘテロサイクリックアミンなどの分析にも対応した CRM の開発が望まれる。

3.5.5 トランス脂肪酸

トランス脂肪酸は、トランス型の二重結合を有する脂肪酸のことであるが、コーデックス委員会では、少なくとも 1 つ以上のメチレン基で隔てられたトランス型の非共役炭素-炭素の二重結合をもつ単価および多価不飽和脂肪酸のすべての幾何異性体と定義している⁶⁵⁾。これを多量に摂取し続けた場合、悪玉コレステロールである LDL コレステロールを増加させ、心臓疾患のリスクを高めるなど、健康への悪影響が指摘されている⁶⁶⁾。トランス脂肪酸が多く含まれる主な食品として、マーガリンやファットスプレッド、ショートニング、さらにはこれらを原材料に使った洋菓子や揚げ物などが挙げられる。欧米を中心とする一部の国では既に含量表示が義務づけられており、日本でも現在検討中である。

トランス脂肪酸の測定には、赤外分光 (IR) 法およびガスクロマトグラフィー (GC) が利用されている^{67), 68)}。前者は孤立トランス二重結合を検出する方法であり、前処理などが非常に簡便で迅速に孤立トランス脂肪酸の総量を測定可能といった長所を有するものの、一方で、検出感度が低く、また、総量のみでの測定であり、炭素鎖長やトランス二重結合の位置・数に関する情報は得られないなどの短所を有している。一方、後者にはトランス脂肪酸を測定する際の公定法として、米国の AOAC 996.06⁶⁹⁾ および AOCS Cs 1f-96⁷⁰⁾・Ce 1h-05⁷¹⁾、日本の基準油脂分析試験法 暫 17-2007^{72), 73)}などが挙げられ、ガスクロマトグラフィー/水素炎イオン化検出法 (GC/FID) が利用されている。しかしながら、炭素鎖の長さ、二重結合の数およびその位置を考慮すると、トランス脂肪酸の種類は膨大である上に、その標準品はほとんど整備されていない。また、GC による分離後の検出に FID が利用され

表 14. アクリルアミド分析用の代表的な CRM

供給機関	CRM No.	マトリックス	認証項目 (認証値)
BAM	ERM-BD272	クリスピーブレッド	アクリルアミド (0.98 ± 0.09 mg/kg)
IRMM	ERM-BD273	トースト	アクリルアミド (425 ± 29 mg/kg)
BAM	ERM-BD274	ラスク焼き	アクリルアミド (74 ± 7 mg/kg)
KRIS	KRIS108-10-001	ポテトチップ	アクリルアミド (0.5 ~ 2 mg/kg)
KRIS	KRIS108-10-003	ポテトチップ	アクリルアミド (0.0455 ± 0.012 mg/kg)
NIST	SRM 2387	ピーナッツバター	アクリルアミド (87.0 ± 7.8 mg/kg)*
NFRI	NFRI-AA001a	ほうじ茶葉	アクリルアミド (0.0560 ± 0.0160 mg/kg)*
NFRI	NFRI-AA001b	ほうじ茶葉	アクリルアミド (1.490 ± 0.390 mg/kg)*

*参考値

るが、得られる定量値は感度係数により補正した概算値であり、必ずしも精確な値ではない。事実、トランス脂肪酸の情報開示に関する指針（消費者庁）⁶⁵⁾で許容される誤差範囲は、分析精度にばらつきがあることを理由に、プラス20%と極めて大きな値が設定されている。このようなことから、トランス脂肪酸分析の分析精度をさらに高めることは重要であり、トランス脂肪酸分析用の組成CRMなどはまだ開発されていないことから、今後、直ちに開発されることが望まれる。

4. 食品分析用標準物質の今後の展望

食品分析用の組成CRMはこれまでに多数開発されている一方で、完全な整備には程遠いのが現状である。認証項目も比較的少ないため、ユーザーが求めるマトリックスと類似したCRMが存在しても目的に合致しないことも多い。しかしながら、CRMの用途を広げるために認証項目の数やマトリックスの種類を単に増やしていくことは、食品分析における測定対象およびマトリックスの組み合わせが極めて膨大であることを考慮すると非効率であり、決して得策ではない。今後は、CRMを効率よく整備し、今まで以上にユーザーのニーズに応えるためにも、必要とされるCRMの調査を行い、優先順位を付けた上で計画的な開発に取り組むなどの工夫が必要と考える。なお、CRM開発の優先順位を付ける際には、①社会的な関心度、②CRM開発の緊急性、③CRMの開発が社会にもたらす影響など、様々な項目を尺度に多角的に評価する必要がある。

今後開発に着手すべき食品分析用のCRMとして、今回の調査結果を踏まえ、以下の点を指摘したい。栄養上の主たる成分およびビタミン類分析用のCRMは、まだ完全ではないものの、比較的整備されているように見受けられ、また、昨今大きな問題となっている食の安全を守る観点からも、有害物質分析用のCRMの開発に力を注ぐことは、ユーザーのニーズそして一般の消費者の利益と合致するものと考え。その際には、現時点で開発されているCRMで対応しきれっていない有害物質や今後新たに規制される物質を測定対象としたCRMの開発が求められるのは当然であるが、それ以外にも、高齢化社会などを考慮し、直ちに有害ではなくとも長期的な観点から摂取低減すべき化学物質を測定対象としたCRMの開発も重要となる。また、この他にも、国や地域などの食文化を考慮した独自性の高いCRMの開発を検討すべきである。適切なCRMの開発は、食の安全・安心を守ることにもつながり、社会に大きく貢献することから、

今後も更なる進展が望まれる。

謝辞

本研究をまとめるにあたり、多大なるご指導を賜った沼田雅彦有機組成標準研究室長ならびに高津章子有機分析科長をはじめ、有益なご意見を賜った有機分析科の皆様から御礼申し上げます。

参考文献

- 1) 日本分析化学会、表示・起源自分析技術研究懇談会：食品表示を裏づける分析技術－科学の目で偽装を見破る－（東京電機大学出版局、2010）。
- 2) 農林水産省：食料自給率表 平成22年度（2011）。
- 3) World Health Organization: World Health Statistics 2011, (WHO Press, Geneva, 2011) 45-55.
- 4) 木苗直秀：健康と長寿への挑戦－食品栄養科学からのアプローチ－（南山堂、2006）。
- 5) 食品安全委員会：放射性物質に関する緊急とりまとめ（2011）。
- 6) 消費者庁：食品と放射能Q&A（2011）6-47。
- 7) 食品安全ハンドブック編集委員会：食品安全ハンドブック（丸善、2010）。
- 8) 菅谷祐輔、坂本義光：食安全の科学 食生活を脅かす化学物質の生体作用、三共出版、2009。
- 9) 菅原龍幸、前川昭男：新食品分析ハンドブック（健帛社、2000）。
- 10) 日本分析化学会編：試料分析講座 食品分析（丸善出版、2011）。
- 11) 日本分析化学会、機器分析の辞典（朝倉書店、2005）。
- 12) 中村 洋、分析試料前処理ハンドブック（丸善、2003）。
- 13) 朱 彦北：産総研計量標準報告、7（2008）75-86。
- 14) 久保田正明：化学分析・試験に役立つ標準物質活用ガイド（丸善、2009）。
- 15) 久保田正明：標準物質－分析・計測の信頼性確保のために－（化学工業日報社、1998）。
- 16) 田中龍彦：化学分析の基礎と実際（日本規格協会、2008）。
- 17) 高橋幸資、和田敬三：新食品学実験法（朝倉書店、1999）。
- 18) 松井精司：食品の全窒素測定の基礎と最新技術「燃烧法」、第11回基準油脂分析試験法セミナー（2011）。

- 15-24.
- 19) F. Soxhlet: Die gewichtsanalytische Bestimmung des Milchfettes, *Polytechnisches J. (Dingler's)* 232 (1879) 461.
- 20) 大竹貴光: PCBs・有機塩素系農薬類分析用生物標準物質に関する調査研究, 産総研計量標準報告, 6 (2007) 39-52.
- 21) 伊藤信靖: 多環芳香族炭化水素分析用環境組成型標準物質に関する調査研究, 産総研計量標準報告, 4 (2006) 211-226.
- 22) 沼田雅彦: 有機分析のためのマイクロ波加熱を利用した抽出技術, *ぶんせき* 409 (2009) 16-22.
- 23) 沼田雅彦, 鎗田孝, 青柳嘉枝, 山崎美佐子, 山本葉子, 高津章子, 石川啓一郎: 生物試料中の有機汚染物質分析法の開発及び関連する国際比較への参加: 分析化学 55 (2006) 29-40.
- 24) T. Otake, N. Itoh, Y. Aoyagi, M. Matsuo, N. Hanari, S. Otsuka and T. Yarita: Development of Certified Reference Material for Quantification of Two Pesticides in Brown Rice. *J. Agric. Food Chem.* 57 (2009) 8208-8212.
- 25) T. Otake, Y. Aoyagi and T. Yarita: Multiresidue Analysis and Monitoring of Pesticides in Rice by Pressurized Liquid Extraction, *J. Environ. Sci. and Health, part B* 44 (2009) 423-427.
- 26) T. Otake, Y. Aoyagi, M. Matsuo, N. Itoh and T. Yarita: Evaluation of Pressurized Liquid Extraction for the Analysis of Four Pesticides in Unpolished Rice, *J. Environ. Sci. and Health, part B* 43 (2008) 390-394.
- 27) N. Itoh, T. Otake, Y. Aoyagi, M. Matsuo and T. Yarita: Application of Pesticide Quantification in Unpolished Rice by LC-Dopant-Assisted Atmospheric Pressure Photoionization-MS. *Chromatographia* 70 (2009) 1073-1078.
- 28) T. Otake, T. Yarita, Y. Aoyagi, Y. Kuroda, M. Numata, H. Iwata, K. Mizukoshi, M. Nakamura, M. Watai, H. Mitsuda, T. Fujikawa and H. Ota: Development of Green Onion and Cabbage Certified Reference Materials for Quantification of Organophosphorus and Pyrethroid Pesticides. *J. Agric. Food Chem.* 59 (2011) 8568-8574.
- 29) S. A. Wise, B. A. Benner, Jr., R. G. Christensen, B. J. Koster, J. Kurz, M. M. Schantz and Rolf Zelsler: Preparation and Analysis of a Frozen Mussel Tissue Reference Material for the Determination of Trace Organic Constituents. *Environ. Sci. Technol.* 25 (1991) 1695-1704
- 30) T. Suzuki and M. Quilliam: LC-MS/MS Analysis of Diarrhetic Shellfish Poisoning (DSP) Toxins, Okadaic Acid and Dinophysistoxin Analogues, and Other Lipophilic Toxins, *Anal. Sci.* 27 (2011) 571-584.
- 31) 新垣雄光: 貝毒を迅速に分析する, *ぶんせき* (2008) 236-237.
- 32) 安井久二: 貝毒の分析方法の最近の動向について, *日本海洋生物研究所年報* (2008) 83-96.
- 33) R. Zeleny, H. Emteborg and H. Schimmel: Assessment of Commutability for Candidate Certified Reference Material ERM-BB130 "Chloramphenicol in Pork", *Anal. Bioanal. Chem.* 398 (2010) 1457-1465.
- 34) R. Zeleny, H. Schimmel, F. Ulberth and H. Emons: Development of a Certified Reference Material for the Content of Nitroimidazole Parent Drugs and Hydroxy Metabolites in Pork Meat, *Anal. Chim. Acta* 634 (2009) 237-242.
- 35) R. Zeleny, S. Harbeck and H. Schimmel: Validation of a Liquid Chromatography-Tandem Mass Spectrometry Method for the Identification and Quantification of 5-Nitroimidazole Drugs and Their Corresponding Hydroxy Metabolites in Lyophilised Pork Meat, *J. Chromatogr. A*, 1216 (2009) 249-256.
- 36) H. Obana: Analysis of 2-Alkylcyclobutanone and Detection of the Irradiated Food, *Food Irradiation, Japan*, 43 (2008) 37-45.
- 37) E. M. Stewart, W. C. McRoberts, J. T. G. Hamilton and W. D. Graham: Isolation of Lipid and 2-Alkylcyclobutanones from Irradiated Foods by Supercritical Fluid Extraction, *J. AOAC Int.* 84 (2001) 976-986.
- 38) K. E. Sharpless, J. B. Thomas, D. L. Duewer, K. Putzbach, C. A. Rimmer, L. C. Sander, M. M. Schantz, S. A. Wise, T. Yarita and J. H. Yen: Preparation and Characterization of Standard Reference Material 3276, Carrot Extract in Oil, *Anal. Bioanal. Chem.* 389 (2007) 207-217.
- 39) K. E. Sharpless, C. S. Phinney, L. J. Wood, J. H. Yen and D. W. Howell: Value Assignment of Nutrient and Aflatoxin Concentrations in Standard Reference Material 2387 Peanut Butter, *J. Agric. Food Chem.* 51 (2003) 6745-6751.
- 40) P. M. Finglas, U. Faure and P. J. Wagstaffe: Improvements in the Determination of Vitamins in Food Through Intercomparisons and Preparation of RMs for Vitamin Analysis within the BCR1 Programme, *Fresenius J. Anal. Chem.* 345 (1993) 180-184.

- 41) K. E. Sharpless, J. B. Thomas, S. J. Christopher, R. R. Greenberg, L. C. Sander, M. M. Schantz, M. J. Welch and S. A. Wis: Standard Reference Materials for Foods and Dietary Supplements, *Anal. Bioanal. Chem.* 389 (2007) 171-178.
- 42) K. E. Sharpless, R. R. Greenberg, M. M. Schantz, M. J. Welch, S. A. Wise and M. Ichnat: Filling the AOAC Triangle with Food-matrix Standard Reference Materials, *Anal. Bioanal. Chem.* 378 (2004) 1161-1167.
- 43) K. E. Sharpless, J. C. Colbert, R. R. Greenberg, M. M. Schantz and M. J. Welch: Recent Developments in Food-matrix Reference Materials at NIST, *Anal. Bioanal. Chem.* 370 (2001) 275-278.
- 44) 田端節子, ぶんせき, 406 (2008) 551-557.
- 45) 小西良子, 杉山圭一: 食衛誌, 49 (2008) 1-10.
- 46) 厚生労働省医薬食品局, 食安発第 0331 第 5 号 (2011).
- 47) 厚生労働省医薬食品局, 食安監発第 0728004 号 (2008).
- 48) H. Joshua: Determination of Aflatoxins by Reversed-Phase High-performance Liquid Chromatography with Post-Column In-Line Photochemical Derivatization and Fluorescence detection, *J. Chromatogr. A* 654 (1993) 247-254.
- 49) W. Th. Kok, Th. C. H. van Neer, W. A. Traag and L. G. M. Th. Tuinstra: Determination of Aflatoxins in Cattle Feed by Liquid Chromatography and Post-Column Derivatization with Electrochemically Generated Bromine, *J. Chromatogr.* 367 (1986) 231-236.
- 50) A. Papadopoulou-Bouraoui, J. Stroka and E. Anklam: Comparison of Two Post-Column Derivatization Systems, Ultraviolet Irradiation and Electrochemical Determination, for the Liquid Chromatographic Determination of Aflatoxins in Food, *J. AOAC Int.* 85 (2002) 411-416.
- 51) AOAC Official Method 990.33: Aflatoxins in Corn and Peanut Butter Liquid Chromatographic Method (2000).
- 52) M. Sulyok, R. Krska and R. Schuhmacher: A Liquid Chromatography/Tandem Mass Spectrometric Multi-mycotoxin Method for the Quantification of 87 Analytes and Its Application to Semi-quantitative Screening of Moldy Food Samples, *Anal. Bioanal. Chem.* 389 (2007) 1505-1523.
- 53) Y. Ren, Y. Zhang, S. Shao, Z. Cai, L. Feng, H. Pan and Z. Wang: Simultaneous Determination of Multi-component Mycotoxin Contaminants in Foods and Feeds by Ultra-performance Liquid Chromatography Tandem Mass Spectrometry, *J. Chromatogr. A*, 1143 (2007) 48-64.
- 54) M. Sulyok, F. Berthiller, R. Krska and R. Schuhmacher: Development and Validation of a Liquid Chromatography/Tandem Mass Spectrometric Method for the Determination of 39 Mycotoxins in Wheat and Maize, *Rapid Commun. Mass Spectrom.* 20 (2006) 2649-2659.
- 55) J. Gilbert, A. Boenke and P. J. Wagstaffe: Deoxynivalenol in Wheat and Maize Flour Reference Materials. 1. An Intercomparison of Methods, *Food Addit. Contam.* 9 (1992) 71-81.
- 56) J. Gilbert, M. Sharman, S. Patel, A. Boenke and P. J. Wagstaffe: Deoxynivalenol in Wheat and Maize Flour Reference Materials. 2. Preparation and Certification, *Food Addit. Contam.* 9 (1992) 119-135.
- 57) E.F. Moazamia and S. Jinapa: Optimisation of the Determination of Deoxynivalenol in Wheat Flour by HPLC and a Comparison of Four Clean-up Procedures, *Food Addit. Contam. Part A* 26 (2009) 1290-1297.
- 58) T. Neuhof, N. Ganzauer, M. Koch and I. Nehls: A Comparison of Chromatographic Methods for the Determination of Deoxynivalenol in Wheat, *Chromatographia* 69 (2009) 1457-1462.
- 59) T. Otake, Y. Aoyagi, T. Yarita and M. Numata: Characterization of Certified Reference Material for Quantification of Polychlorinated Biphenyls and Organochlorine Pesticides in Fish, *Anal. Bioanal. Chem.* 397 (2010) 2569-2577.
- 60) T. Otake, Y. Aoyagi, M. Numata and T. Yarita: Evaluation of Microwave-assisted Extraction for the Analysis of Polychlorinated Biphenyls and Organochlorine Pesticides in Fish, *J. AOAC Int.* 91 (2008) 1124-1129.
- 61) S. Inagaki, H. Hirashima, Y. Esaka, T. Higashi, J. Z. Min and T. Toyo'oka: Screening DNA Adducts by LC-ESI-MS-MS: Application to Screening New Adducts Formed from Acrylamide. *Chromatographia* 72 (2010) 1043-1048.
- 62) M. Koch, W. Bremser, R. Koeppen, D. Siegel, A. Toepfer and I. Nehls: Development of Two Certified Reference Materials for Acrylamide Determination in Foods, *J. Agric. Food Chem.* 57 (2009) 8202-8207.
- 63) M. Dabrio, B. Sejerøe-Olsen, S. Musser, H. Emteborg, F. Ulberth and H. Emons: Production of a Certified Reference Material for the Acrylamide Content in Toasted Bread, *Food Chemistry* 110 (2008) 522-530.
- 64) B. Kim, S. Park, I. Lee, Y. Lim, E. Hwang and H.-Y. So: Development of a Certified Reference Material for the Determination of Acrylamide in Potato Chips, *Anal. Bioanal. Chem.* 398 (2010) 1035-1042.

- 65) 消費者庁：トランス脂肪酸の情報開示に関する指針 (2011).
- 66) M. M. Mossoba and J. K. G. Kramer: Official Methods for the Determination of Trans Fat 2nd Edition (AOCS Press, 2009) 1-51.
- 67) P. Delmonte and J. I. Rader: Evaluation of Gas Chromatographic Methods for the Determination of Trans Fat, *Anal. Bioanal. Chem.* 389 (2007) 77-85.
- 68) S. Shirasawa, M. Shiota, H. Arakawa, Y. Shigematsu, K. Yokomizo, N. Shionoya, T. Okamoto, Y. Miyazaki, S. Takahashi and K. Himata: Quantitative Determination of Trans-Fatty Acids in Oils and Fats by Capillary Gas Chromatography: Results of a JOCS Collaborative Study, *J. Oleo Sci.* 56 (2007) 405-415.
- 69) AOAC Official Method 996.06: Fat (Total, Saturated, and Unsaturated) in Foods (2001).
- 70) AOCS Official Method Ce 1f-96: Cis and Trans Fatty Acids in Oils and Fats by Capillary GLC, Official Methods and Recommended Practices of the AOCS (2009).
- 71) AOCS Official Method Ce 1h-05: Fatty Acids by Capillary GC for Nutritional Labeling, Official Methods and Recommended Practices of the AOCS (2009).
- 72) 暫 17-2007: トランス脂肪酸含量 (キャピラリーガスクロマトグラフ法), 基準油脂分析試験法 (2007).
- 73) 飯田泰浩: トランス脂肪酸分析法の比較, 第 11 回基準油脂分析試験法セミナー (2011) 51-62.