

ハラールフードの安心・安全を守る
サプライチェーン構築のための食品製造技術

Food Technology Ascertainning
Supply Chain Integrity

Norhidayah Suleiman
(Universiti Putra Malaysia)

Muhammad Syafiq Hakimi Kamarudin
(Universiti Putra Malaysia)

(日本語訳：高野倉雅人)

1. はじめに

食品の安心・安全が、数多くの食品スキャンダルの発生以降、食品の性質・成分・品質・安全性だけでなく、食品製造においても「食品が提供され配送される経路において、消費者に届くまで誠実であること (Elliot, 2014)」のように、広く重要視されている。これまでに発生した食品の安心・安全を脅かす事件として、ヨーロッパの馬肉スキャンダル、中国の乳児用調整粉乳へのメラミンの混入、アメリカの誤った魚種のラベリングなどがある。食品の安心・安全を実現する主要な関心事として、食品サプライチェーンマネジメントがあり、それは品質マネジメント・食品安全マネジメント・食品の安心・安全に関するマネジメントに分類される (Manning, 2017)。例えば、食品の安心・安全に関するマネジメントシステムを、食品サプライチェーンに導入する目的としては、第一に安全・品質・真正性の保証、第二に信頼できるラベリング、第三にハラルの状態など食品に由来する効果的なマネジメントの実現がある (Manning, 2017)。全体として、食品の安心・安全を実現する主要な要因として、製品、プロセス、社会の人びと、そしてデータが挙げられる。それら要因の例を図1に示す。

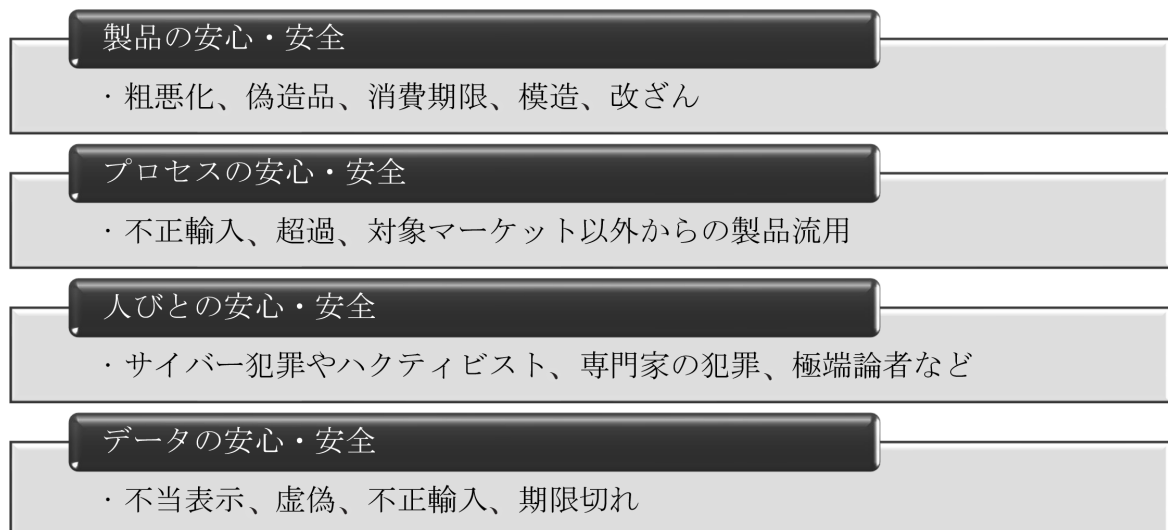


図1 食品の安心・安全に関する要因例 (Manning, 2017)

2. 食品の安心・安全

食品の安心・安全とは、すべての人びとが安全で真正であり、かつ栄養のある食品に、いつでもアクセスできることである。この章では、食品の安心・安全を守る科学技術の役割に焦点を当てる。食品の安心・安全は、品質、安全、真正性、トレーサビリティ、粗悪化など、複数の要因から構成される。

食品の品質は、消費者が受け入れ可能な食品の性質にもとづいて測定される。食品の物理的な性質としては、食感や風味のほか、大きさ・形・色・等級など食品の見栄えがある。化学的な性質は、食品の栄養成分に関係する。加えて、法令や食品成分に関係した基準を満たすような品質も、消費者が受け入れ可能なエシカル（倫理的）でサステナブル（持続的）な生産に関係している。

食品の安全は、健康に良い食事を実現する栄養価を保ち、汚染を避けるような、食品の前処理、取り扱い、製造から貯蔵までの生産方法に関係する (FAO, 2004; Sheikha, 2015)。食品製造上の不

適切な管理によって、健康を害するような生物学的・化学的・物理的な物質が混入することは、食品ハザードの原因となる。食中毒が発生するような生物学的なハザードは、食品産業の重要な関心事である。サルモネラ菌やボツリヌス菌などにより、食中毒のような健康被害が発生して、死に至ることもある。食品ハザードの原因となる殺虫剤や重金属のような化学的な物質は、(i) 天然由来物質、(ii) 製剤に使用される化学物質、(iii) 意図せず付随的に最終製品に生じる化学物質の3グループに分類できる。ハザードの原因となる物理的な成分としては、骨やガラス、木材などがある。そのため、食品の安全を脅かす過去のハザードに関する研究やデータにもとづき、リスクアセスメントや適切な軽減処置を実施する必要がある。

一般的に、商品価値を高めたり、製造コストを下げたりすることで、経済的な利益を得ようとするのが、食品偽装の原因となっており、粗悪化、改ざん、超過、流用、盗用、偽造に分類される。粗悪化または汚染は、食品から有効な成分を取り除いたり、安価または低品質の成分に置き換えたりすることである (Goyal et al., 2022; Roy & Yadav, 2022)。食品製造のプロセスやサプライチェーンが長く複雑な時に、粗悪化や汚染が起きやすい。そのため、食品の安全や品質を保持して消費者を守るために、粗悪化や汚染を防ぐことが重要である。また、ラベリングや原材料、最終製品の検査を担当する公的機関と産業界の両者が、法令や国際標準、その他のガイドラインや仕様を遵守することも重要である (Baeten & Dardenne, 2002)。

これまでに報告された食品の粗悪化に関する事例は、次の6グループに分類される (Hong et al., 2017)。(1) 動物由来の食品や海産物：牛乳と乳製品、食肉と加工肉、魚肉と海産物。(2) 食用油と脂肪分。(3) 飲料：フルーツジュース、コーヒーやお茶、アルコール飲料。(4) 香辛料と甘味料：スパイスとその抽出物、ハチミツを含む甘味料。(5) 穀物食品：穀類と豆類。(6) その他：オーガニック食品と栄養補助食品。食品の産業界や学術研究機関、政府機関を含む関係者は、この重要な問題に注意を払い、生産方法や手順を含めて食品の安心・安全を実現するよう努力する必要がある。有能で速く、信頼できる分析が、それらの課題を解決する方法となり、食品の品質を高める。食品の真正性もしくは粗悪化されているかどうかを、物理的、化学/生化学、DNA分子を含むさまざまな方法によって検査する技術が実現されている (Bansal et al., 2017)。非破壊放射性評価やフィンガープリントのような分析方法を使用した即時検出や真正性を検査する最新技術を紹介する。

3. 物理的な方法

食品の真正性は、色やテクスチャ、溶解性、かさ密度、形態的特徴などの食品の物理的な性質を分析することで調査できる (Bansal et al., 2017)。肉眼もしくは顕微鏡を使った物理的な方法は、食品の物理的な特徴を明らかにするために用いられている。

Louveaux et al., (1978) は、光学顕微鏡を使用して、サトウキビから作られた蔗糖へのハチミツの混入を検出した。Sheorey & Tiwari (2011) は、化学的なプロファイリングに肉眼と顕微鏡を組み合わせて、ハーブや薬草の成分を特定して、その成分が真正であることを示した。肉眼と顕微鏡を組み合わせた方法により、菌類のような微生物の食品への混入を検出できる。さらに電子顕微鏡の出現により、植物由来の成分も検出できるようになった。例えば、花粉の表面パターンを分析することで、ハチミツ由来であるかを分析できる (Jones & Bryant, 2014)。

4. 化学的／生化学的方法

一般的に、化学的／生化学的方法から、より正確な分析結果を得ることができ、低濃度であっても食品の汚染を検出できる。しかし、それらの方法は、コストと時間がかかり、検査の実施には訓練された人材が必要である。化学的／生化学的方法は、主に (1) 分光法、(2) クロマトグラフ法、(3) 免疫学的方法、(4) 電気泳動法の 4 カテゴリーに分類される。この節では、食品が粗悪化されているかの検査に良く利用される分光法とクロマトグラフ法について紹介する。

4.1 振動分光分析

近赤外分光分析法 (FT-NIR) や中赤外分光分析法 (MIR)、ラマン分光法、ハイパースペクトルイメージング (HIS) のような振動分光分析は、食品の汚染を検出する高速で感度の高い分析方法である。食品の真正性の検査に利用される振動分光分析の一例を、図 2 に示す。振動分光分析は、比較的到低コストの非破壊検査が可能で、定性分析と定量分析の両方に適用できること、ウェットケミカル分析などの代替法となる利点がある (Lohumi et al., 2013)。

780~2500nm の近赤外 (NIR) 領域は、高振動周波数を持つ C-H, O-H, N-H のような原子の化学結合のための倍音や結合バンドを検出できる (Osborne et al., 1993)。近赤外分光分析法 (FT-NIR) は、ほとんどサンプルがなくても定性分析や定量分析が実施できる (Lohumi et al., 2015)。これまでの技術開発により、信頼性と効率が高まっており、品質管理の標準的な分析方法となっている。近赤外分光分析法 (FT-NIR) は、機器デバイスにより、3 グループに分けられている。(i) シーケンシャル機器 - 時間的に連続した吸光で、モノクロメーターやフィルターが利用される。(ii) フーリエ変換・マルチプレックス機器 - インターフェログラムの形式で複数の周波数を同時に検出する。(iii) マルチチャンネル機器 - 複数の検出器が複数の波長の吸光を検出する (Lohumi et al., 2015)。

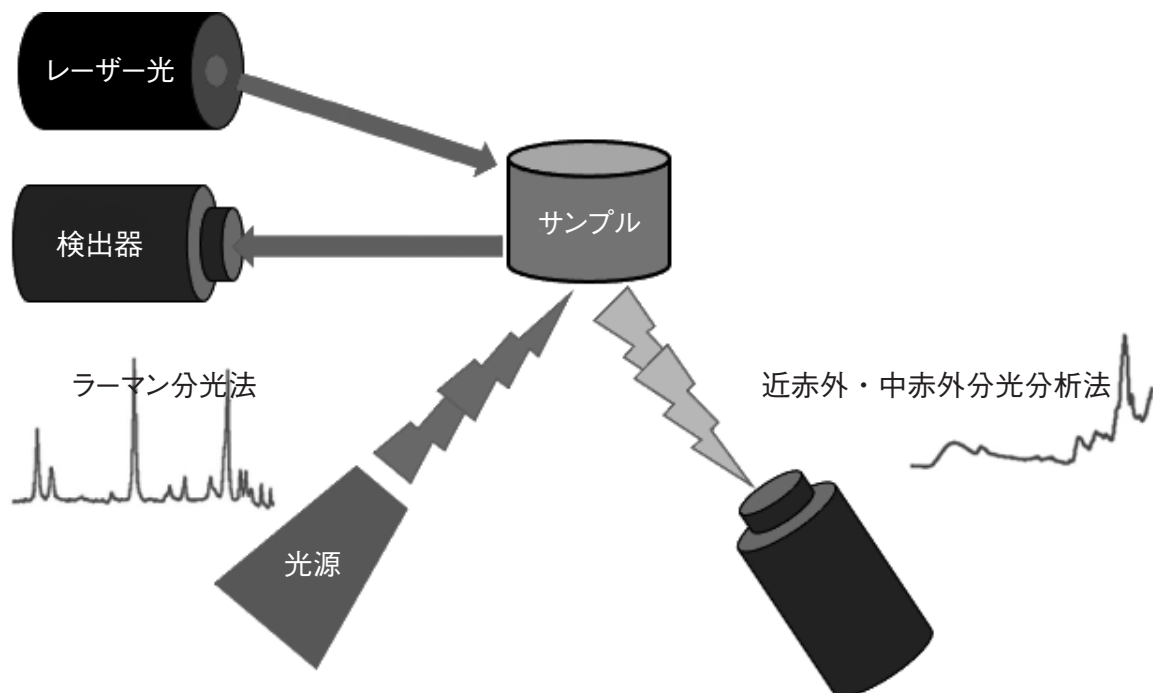


図 2 典型的な振動分光分析法の模式図

近赤外分光分析法 (FT-NIR) を利用した食品の粗悪化を検出する多くの研究が行われている。例えば、どの動物種の肉製品であるかの特定 (Cozzolino & Murray, 2004)、牛ハンバーガーの粗悪化の検出 (Ding & Xu, 2000)、カニ肉の粗悪化やどの動物種の成分なのかの判定 (Gayo et al., 2006) などがある。さらに、ヨーグルトへのタンパク質の混入や粉ミルクのメラミン汚染 (Haughey et al., 2013)、大豆粕の検出 (Xu et al., 2013) にも成功している。近赤外分光分析は、サンプルの外的・内的性質を検査するため、反射、透過、インタラクタンス、トランスフレクタンスを含む異なるスペクトルモードで利用されている。Downey et al. (2016) は、NIR 反射スペクトル (1100-2498nm) を使用して、オレンジジュースと糖酸混合物の 10% 果肉ウォッシュを、90% の正確さで検出した。また透過モードは、固体・液体・気体のサンプルを分析する最も簡単なサンプリング法である。サンプルの外部や内部の品質を検査するために利用され、例えば、白ワインの産地を識別したり (Daniel Cozzolino et al., 2003)、牛肉や鶏肉に含まれる脂肪酸成分を検出したり (Riovanto et al., 2012) するのに使用される。インタラクタンスモードは、透過測定が難しい場合に内部の情報を取得するために利用される。トランスフレクタンスモードは、反射モードと透過モードの組み合わせであり、透明もしくは薄いサンプルのスペクトルを測定するために利用される。

赤外分光分析法 (FT-IR) は、電磁スペクトルにおける $4000\sim 400\text{cm}^{-1}$ までの中赤外領域 MIR が対象で、分子の振動・回転ストレッチモードからサンプルの化学的な性質を測定する。この分析法は、近赤外領域で測定される倍音や結合バンドの代わりに、基本的な振動を測定するため、近赤外分光分析と比較して、サンプルから豊富な化学的情報を取得できる (Lohumi et al., 2015)。中赤外領域は、官能基 ($4000\sim 1500\text{cm}^{-1}$) とフィンガープリント (指紋) ($1500\sim 500\text{cm}^{-1}$) の 2 領域に分けられる。

赤外分光分析法 (FT-IR) は、全反射測定 (ATR)、拡散反射、高スループット透過 (HTT)、透過セルなどの異なる測定モードを用いて、すべてのサンプルを対象とした測定を可能にする。ATR-FT-IR は、定性分析と定量分析の両方が可能なため、食品の粗悪化の分析に広く利用されている方法である。全反射測定は、牛乳における微生物腐敗のようなサンプルに対して、高スループット透過よりも高い精度を持つ良好なサンプリング方法である (Nicolaou & Goodacre, 2008)。赤外分光分析とサンプリング方法のさまざまな組み合わせは、ハチミツの粗悪化の検出に利用されている。また赤外分光分析法は、オリーブオイルやアボカドオイルのような食用油を分析する計量化学と組み合わせて利用される。食用油の粗悪化は、脂肪酸と中性脂肪の差異から、別個の分類を通して検出できる (Christopoulou et al., 2004)。フルーツジュースの糖濃度は、近赤外線と比べて高感度スペクトル領域を持つ中赤外線のフィンガープリント領域での赤外分光を用いて分析される。以上のように、赤外分光分析法は、食品の検査において多目的で強力な方法である。赤外分光分析法 FT-IR と近赤外分光分析法 FT-NIR は、それぞれが持つ長所と短所を補う関係にある。

4.2 クロマトグラフ法

クロマトグラフは、フィンガープリント (指紋) 分析の中で、より多くの情報を得られる方法である。クロマトグラフ法により、面積や高さ、位置を表すピーク強度を変換した情報 (リテンション時間) が得られる。食品に関する最も多くの情報量を提供する高い感度、再現性、頑健性を持っており (Esteki et al., 2018)、特に食品の真正性を判断するために利用されている食品サンプルの性質を判断する簡便で信頼性のある方法である。

以前は、さまざまな検出器を用いて、脂肪酸やオリゴ糖、トコフェロールなど化学的粗悪化のマー

カーを発見するために、クロマトグラフ法が利用されていた (Fanali et al., 2016)。クロマトグラフ法には、高パフォーマンス液体クロマトグラフィー (HPLC) やガスクロマトグラフィー (GC) があり、これらの方法は炭水化物、カロテノイド、アミノ酸、フェノール類やほかの有機化合物を検出するために開発された (Herrero et al., 2017)。例えば、クロマトグラフ法は、油の粗悪化を検出でき、油に混入したトリアシルグリセロール (TAGs)、ステロール、脂肪酸化合物を検出することで、ブレンドされた油の組成を検査できる (Wernig et al., 2018)。

食品の粗悪化や真正性の検査に広く利用されている方法が、ガスクロマトグラフ (GC) や高速液体クロマトグラフ (HPLC) である。GC-FID 法は、安価で高速、頑健性が確立したポピュラーなクロマトグラフ法である。GC 法は、脂肪酸化合物と計量化学分析を比較することでオリーブオイルの粗悪化を検出するために開発された方法で、植物油のエステル交換により得られる脂肪酸エチルエステル (FAME) に着目することで、異なる植物油を区別することができる (Brodnjak-Vončina et al., 2005)。また Yang et al. (2013) は、GC-MS 法を使用して、コーン油・ピーナッツ油・菜種油・ヒマワリ油が含まれるエクストラバージンオリーブオイルの特定に成功した。表面弾性波検出器を使った GC 法 (GC-SAW システム) と計量化学の組み合わせは、バージンココナッツオイルに、ラードが含まれることを特定できる (Mansor et al., 2011)。加えて、エクストラバージンオリーブオイルに 5% の大豆油が含有することも、GC 法を使ったリノール酸成分を示す脂肪酸化合物の分析によって特定できる (Jabeur et al., 2014)。アプリコットカーネルオイルへのアーモンドパウダーの含有も、計量化学法と GC 法による脂肪酸のフィンガープリントを使うことで検出できる (Esteki et al., 2017)。しかし、誘導体化が必要なことが、GC 法の欠点となっている。

この欠点は、誘導体化の必要がなく極性化合物と無極性化合物の両方を分析できる高速液体クロマトグラフ (HPLC) の利用で補える。HPLC 法でホエイタンパク質 β -ラクトグロブリンを分析することにより、ヒツジやヤギのチーズやミルクに牛乳が含有することを 2%v/v の低レベルで検出できる (Chen et al., 2004)。Veloso et al. (2002) は、逆相 HPLC を使って牛乳とヒツジ・ヤギのミルクを検出した。15 種類のポリフェノール濃度に対して、主成分分析 (PCA) や線形判別分析 (LDA) を適用した HPLC 法により、カナリア諸島やスペインを産地とする異なるエリアのワインを分類できる (Rodríguez-Delgado et al., 2002)。主成分分析や線形判別分析と紫外線検出を組み入れた HPLC 法を組み合わせることで、75%~100% の精度で、オーストラリアワインの地理的なグループも分類できる (Bellomarino et al., 2009)。さらに、主成分分析や線形判別分析を組み合わせた逆相 HPLC により、中性脂肪とトコフェロール混合物の分析を通じて、さまざまな焙煎前後のコーヒー豆を区別できる (González et al., 2001)。固定相の粒子サイズやサンプルサイズおよび移動相のため、HPLC 法から超高速液体クロマトグラフ (UHPLC) 法へシフトしている最近のトレンドは、減速する傾向にある。そのため、より効率的で、高い感度・スループット・速度・解像度が求められている。

4.3 エレクトリックノーズ

食品の真正性を検出する方法の多くは、時間と費用がかかり、分析を行うための専門家を必要とする。近年増えている食品の粗悪化に関するスキャンダルに対処するため、リアルタイムに高速で信頼性の高い検出方法が求められている。市場に流通する加工食品を対象とした検査に、高速な検出技術が利用されている。それらの技術の一つとして、人間の鼻の機能を模した人工の嗅覚系や、においを自動で検出する臭気センサなどのエレクトリックノーズ (e ノーズ) がある (Roy & Yadav, 2022)。

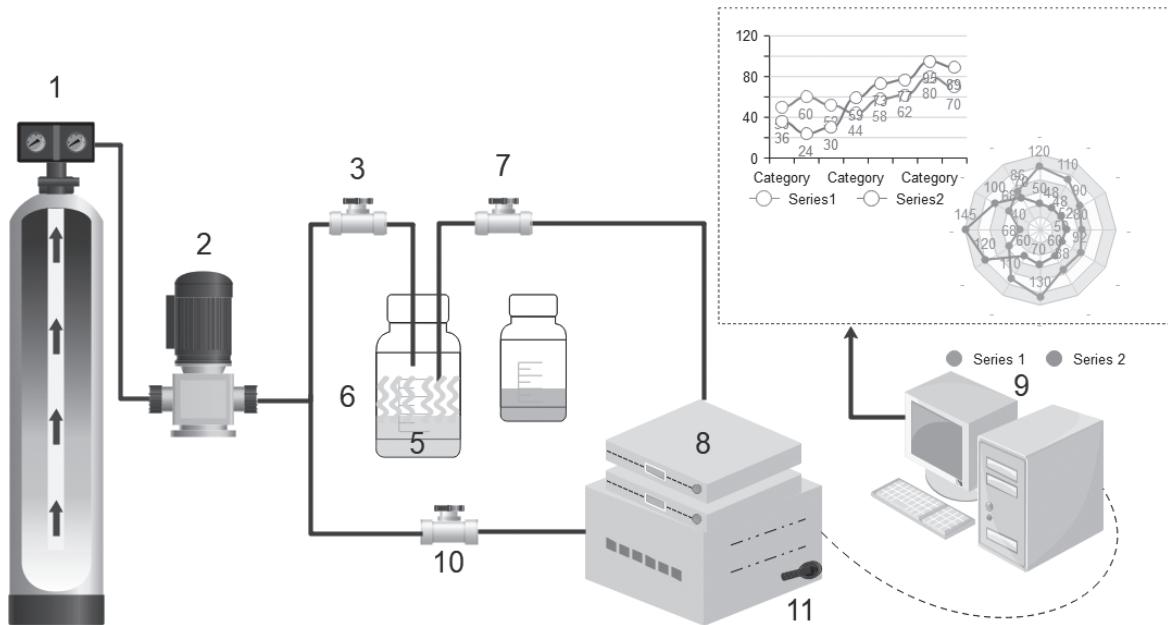


図3 エレクトリックノーズの典型的なブロック図：1 合成空気シリンダー、2 送風装置、3 給気口、4 サンプルを入れるコンテナ、5 サンプル、6 揮発した有機化合物、7 サンプルバルブ、8 センサアレイ、9 データ処理とパターン認識、10 パージバルブ、11 パージアウトレット (Source: Roy & Yadav, 2022)。

エレクトリックノーズは、環境モニタリングや農産物の品質管理アセスメント、意図的な粗悪化や損傷物の検査など、多くの適用範囲がある広く利用される非破壊検査法に分類される。この方法は、においの特定物質の検出や化学組成の分析による食品の品質検査に利用され、操作が容易で低コスト・短時間に分析できるため、実験室の日常的な検査に利用されている (Roy & Yadav, 2022)。

エレクトリックノーズを使った食品の品質検査に関係した多くの研究が、これまで報告されている。Persaud & Dodd (1982) により、化学センサにより芳香 (かおり) を判別するアイデアが実現された。一般に、エレクトリックノーズは、4つの主要ユニットから構成される。(i) 化学物質を検出する電子的多重センサアレイシステム。(ii) 情報処理ユニット。(iii) においを識別するデジタルなパターン認識アルゴリズムシステム。(iv) 参照データベース。図3にエレクトリックノーズの典型的なブロック図を示す。

エレクトリックノーズのメカニズムは、選択性センサで検出される電圧の差異にもとづき、食品サンプルから生成される揮発性有機化合物の同定である。通常利用されるセンサとしては、表面弾性波 (SAW) やポリマー金属酸化膜半導体 (MOS) である。MOS センサは、化学的な安定性が高く、水分に対して低い応答性があり、長寿命で、価格も高くないことから、広く利用されている。生成された揮発性有機化合物が、合成空気 (純度 99.9%) により、サンプルから、センサアレイ領域に移る。生成された揮発性有機化合物をセンサアレイ領域に移すために、測定中に給気口とサンプルバルブは開いているのに対して、パージバルブは閉じている。データ取得カードと組み合わせられたガスセンサから構成されるセンサアレイで発生したアナログ信号は、デジタル信号に変換されて、モニタに表示される (Roy & Yadav, 2022)。この原理にもとづき、食品サンプルに含まれる複雑なにおいを区別することで、電圧応答値 (出力) として、食品の品質を分類できる。

エレクトリックノーズは、ハチミツ、牛乳・乳製品、果物、肉製品・水産物、香辛料、食用油、アルコールおよび非アルコール飲料、コーヒーやお茶を含む、様々な食品の粗悪化の検出に広く利用されている。例えば、食用油と近い脂肪酸成分を持つ安価な油・脂肪・ステロール成分の混入

の検査に利用される。このような食用油の粗悪化は、スペインで発生したオリーブオイルの食中毒事件のような、重大な健康問題を引き起こす原因となる (Clemente & Cahoon, 2009)。高い信頼性と感度を持つ技術であるエレクトリックノーズを使用すれば、食用油の純粋さと真正さを確認できる。Hai & Wang (2006) は、10 個の MOS センサから構成されるエレクトリックノーズを使って、コーン油へのカメラア (ツバキ) 種子油の混入を検出した。Bougrini et al. (2014) は、5 個の MOS センサから構成されるエレクトリックノーズを使い、ヒマワリ油へのアルガンオイルの混入を検出した。Yu et al. (2007) は、MOS センサを使ったエレクトリックノーズを利用して、水と還元粉ミルクのスキムミルクへの混入を検出した。ガスクロマトグラフィーを使用したエレクトリックノーズは、ハチミツへのトウモロコシやコメで作られたシロップの混入を検査するために利用されている (Gan et al., 2016)。また、エレクトリックノーズで食肉の芳香 (かおり) 成分を検出することで、様々な肉製品の粗悪化の検査に利用されている。Tian et al. (2019) は、においフィンガープリントにもとづく 10 個の選択性 MOS ガスセンサを含む PEN 2 エレクトリックノーズシステムを使って、ヒツジのひき肉への豚肉の混入を検出したことを報告している。Wang et al. (2019) は、揮発成分を検出する SPME と 10 個の MOS センサから構成される PEN 3 エレクトリックノーズシステムを使って、ヒツジ肉へのカモ肉の混入を検出することに成功した。またエレクトリックノーズは、香辛料の粗悪化の検出にも利用されている。Banach et al. (2012) は、38 個の MOS センサから構成される商用エレクトリックノーズ (KAMINA, Yson GmbH) を使用して、サビロイとソーセージの香辛料として、カレーリーフおよびガーリックパウダーが 20% 濃度レベルで含まれることを調査している。

5. DNA 分子法

DNA は生物に固有の有機体であるため、DNA にもとづく技術は食品の粗悪化を検出する効果的なツールとなっている。物理的および化学的／生化学的方法とは異なり、DNA にもとづく技術から、定量的にも定性的にも正確な結果が得られる。そのため、現在までに開発されたマルチプレックス PCR 法、定量 PCR (qPCR) 法、DNA シーケンシング、RFLP (restriction fragment length polymorphism)、RAPD (randomly amplified polymorphic DNA)、SSR (simple sequence repeats)、マイクロサテライト法などの有用な技術があり、これら技術は各国および国際貿易機関が定める基準でも必要とされている。例えば、DNA にもとづく分子技術は、近い物理特性を持つ食品への混入物の検出に利用されており、最近では、HRM (high-resolution melting) PCR、ddPCR (droplet digital PCR)、等温増幅 (例えば、loop-mediated isothermal amplification, recombinase-polymerase amplification, strand-displacement amplification, helicase-dependent amplification, rolling-circle amplification) や、次世代シーケンシング (NGS) が、感度、特異性、速度やマルチプレックスの観点から良好な検査技術として開発されている。

5.1 PCR 法と定量 PCR 法

食品の粗悪化や動植物の種類を同定するために、高い感度と特異性を持ち比較的に高速な PCR 技術が利用されている。特定のプライマーを使ったマルチプレックス PCR 分析により、複数の動植物の種類を同時に特定できることから、食品に含まれる動植物の検出や区別が可能になっている (Böhme et al., 2019)。この分析方法は、数百万の複製を生成するサーマルサイクラーを使ってターゲットとする DNA 分子を指数関数的に増幅することで、非常に低い濃度でも、複雑なマトリッ

クスに含まれるターゲットとなる動植物を検出できる (Bohme 2019)。細胞コピー数が多いミトコンドリア DNA の領域をターゲットとしたマルチプレックス PCR 分析により、肉製品に含まれる異なる動物種を同時に検出が可能である。例えば、イヌやネズミ、ウサギ、リスの肉のミートボールへの混入を、0.1% のレベルで検出できる (Ahamad et al., 2017; Rahman et al., 2014)。しかしながら、細胞あたりのコピー数が、動植物の種類や個体ばかりでなく、同じ個体の組織間でも異なることが、PCR 技術の限界となっている。

食品の粗悪化を定量的に測定することは、混入が意図的なのか、そうでないのかに関わらず、食品の真正性を証明するために非常に重要である。その意味で定量 PCR (qPCR) 法は、食品の粗悪化に対して、信頼性と簡便性を持つ検査方法である。qPCR 法の原理は、リアルタイムにモニタリングできる核酸の増幅であり、各 PCR サイクルにおける二重鎖 DNA 結合染料の放出に由来する蛍光を測定することで定量化している (Böhme et al., 2019)。qPCR 法は従来の方法と比べて、高感度、マルチプレックス、高速、比較的到低コストな方法である。また、ターゲットとする DNA 分子の増幅数をリアルタイムでモニタリングできることから、従来の方法で必要であった PCR プロセス後のステップが不要である。そのため、加工前後のハラル食品に、豚肉のような禁止されている食肉成分が含まれるかどうかを検査できる (Karabasanavar et al., 2014; Sakalar et al., 2015)。さらに、水産業において、マグロ製品の不正やラベル偽装の検査にも利用されている (Liu et al., 2016)。しかし、組織の構成やマトリクス成分が PCR の効率と正確さに影響することが、qPCR 法の主な限界となっている。

5.2 DNA ホイル

DNA ホイルは、DNA を利用した新しい技術で、PCR 法のように高価な装置を必要としない。また、持ち運びが可能で、現場で一人でも利用できる方法で、30 分程度の短時間で食品の粗悪化を検査できる。DNA ホイルの流れとメカニズムを、図 4 に示す。

DNA ホイルでは、次のステップで食品の粗悪化を検査している (Sheikha, 2019)。はじめに、食品サンプルを容器に入れて、DNA を切断、分解、抽出、中和、安定化する。次に抽出した DNA を反応チューブに移してから水に入れることで、ターゲットとする DNA を増幅する。このとき、酵素や特定のプライマーを使って、DNA を増幅してコピーを生成する。30 分が経過した

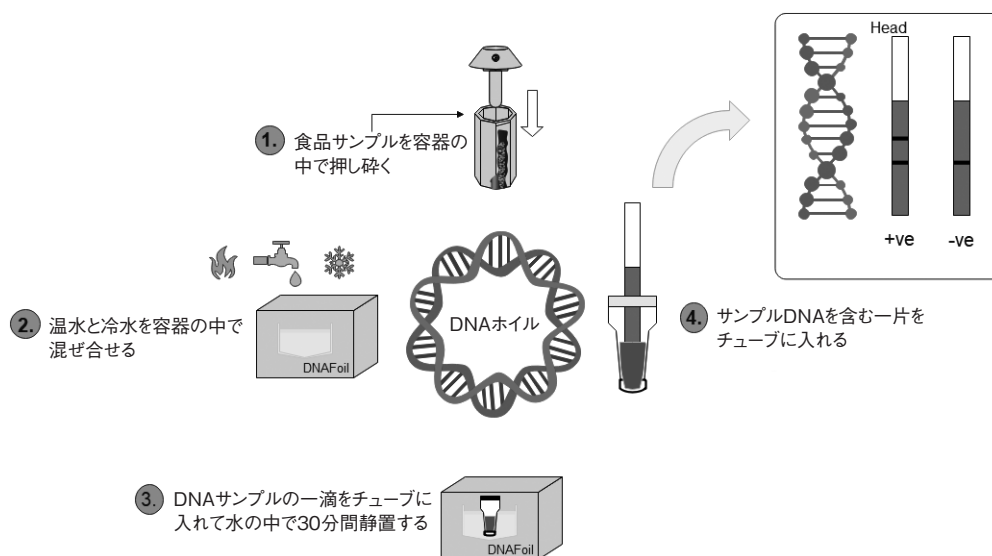


図 4 DNA ホイルの処理フローとメカニズム (Sheikha, 2019)

ら、生成物を検査する。このとき、毛細管現象により検査スペースに移動したターゲット DNA の切片を検査する。以上のように、DNA ホイルは、高速かつ多くの用途で信頼できる検査方法である。

2018年1月にオーストラリアで開催されたイベント（Meat and Livestock Australia）で、DNA ホイルの検査キットにより、牛肉に豚肉成分が含まれることを、低レベルでも検出できることが示された。DNA ホイルの有効性は、qPCR 法によって確認されている。Aronoff et al. (2018) は、qPCR 法と DNA ホイルにより、乳製品への野菜成分の含有を再現性をもって検査できることを示した。この研究から、DNA ホイルが、食品成分を検査する高速で信頼性のある方法であることが示された。また DNA ホイルは、研究設備を使用せずに専門家でなくても、短時間で食品成分を検査する方法として利用されている。

6. まとめ

食品サプライチェーンに関係するすべてのステイクホルダにおいて、信頼とブランドの安心・安全を創り出すために、食品の安心・安全を守るマネジメントシステムを実現することが重要となっている。具体的には、(i) 食品の安全、品質、真正性を守る、(ii) 信頼できるラベリングを実現する、(iii) ハラルの状態やビーガン、オーガニック食品など食品が何からどのように作られているかといった食品の起源の効果的なマネジメントを実現する取り組みにより、食品の安心・安全を守るマネジメントシステムが構築される。その実現に向けた第1の取り組みとしては、食品の真正性と食品の粗悪化が重要な問題であり、この数年間で、産業界、政府機関、学術研究機関、そして消費者を含む、すべてのプレイヤーからの関心が高まっている。

食品の安心・安全を調べる分析技術、特に、これまで数多く発生している食品スキャンダルによって、食品の粗悪化の検出や分析において、数多くの技術開発・改良が実現されてきた。この取り組みは、消費者の信頼の獲得だけが目的ではない。消費者の権利を守ることを目的とした、食品の品質・安全・真正性の保証する方法、および標準的な業務手順を定める方法を提供する重要な取り組みである。

以上のように、本章では、食品サプライチェーンで利用される食品の安全・品質・真正性に関係した食品科学技術の視点から、食品の安心・安全を守る活動をレビューした。これまで発生した消費者が被害を受ける事件や食品産業のスキャンダルを通して、このような課題解決を目指して、高速な分析技術が開発されてきた。特に化学／生化学および DNA 分子技術に焦点を当てて、現在利用されている分析技術を紹介した。今後も高効率・高速かつ最小のコストのような利点を活かして、食品の真正性と食品の粗悪化に関する問題を解決できる分析技術を開発することが重要である。しかし、それら分析技術にも今なお限界があり、これからも継続的な研究と技術開発が必要とされている。

1. Overview

The dimension of food integrity widened after many food scandals emerged, not only focusing on the scope of nature, substance, and quality and safety of food but also concerning the food production, including “the way it has been sourced and distributed and being honest about those areas to consumers” (Elliot, 2014). Among the incidents, the horsemeat scandal in Europe, the contamination of melamine in infant formula milk in China, and the mislabeling of fish species in the United States hit the sensation of food integrity. The main interest of food integrity is in food supply chain management. However, it can be categorized into developing quality management, food safety management systems, and food integrity management systems (Manning, 2017). For instance, developing food integrity management systems into the broader food supply chain aimed firstly to guarantee safety, quality, and authenticity; secondly to ensure reliable labelling, and thirdly to ensure effective management of provenance such as halal status (Manning, 2017). After all, the main elements of food integrity should be concerned with product, process, people, and data integrity. The example of each component in food integrity has been tabulated in Figure 1.

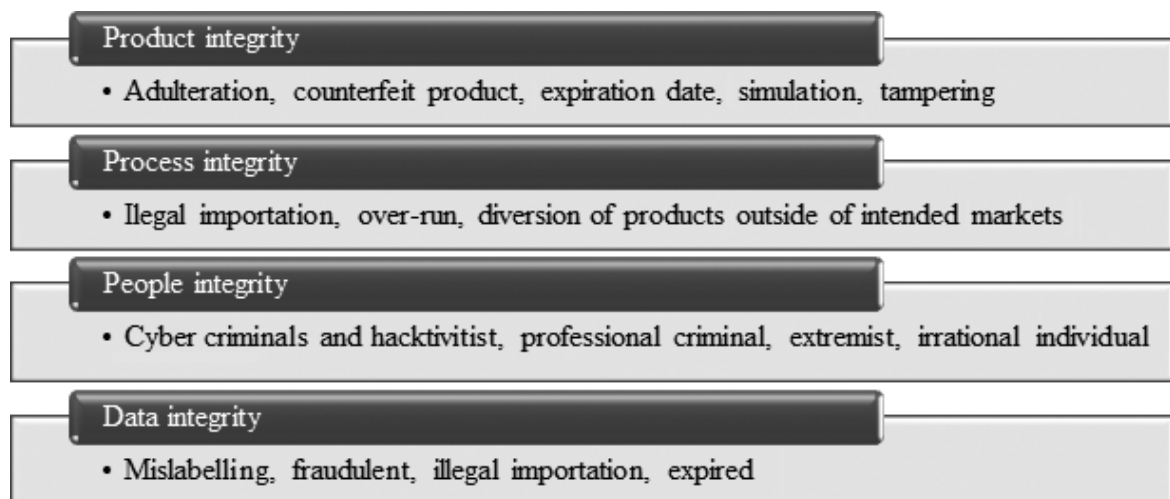


Fig. 1 Examples of each element of food integrity (Manning, 2017)

2. Food product integrity

Food integrity denotes that all people can have access to safe, authentic, and nutritious food at all times. In this chapter, the focus is given on the role of food science and technology in verifying food product integrity. Food integrity consists of several elements: quality, safety, authenticity, traceability, and adulteration.

Food quality can be measured based on the food characteristics acceptable to the consumer. The physical characteristics of food include texture, flavor, and appearance of food products such as size, shape, color, and grade. Chemical characteristics are related to the nutritional content of

the food product. In addition, the high quality of food that meets the standards set up in legislation and product specifications is also related to ethical and sustainable production concerning the consumer's acceptability.

Food safety can be defined as the manufacturing practice of preparing, handling, producing, and storing food to avoid contamination and maintain the nutritional value of food in supporting a healthy diet (FAO, 2004; Sheikha, 2015). Any biological, chemical or physical agent that can cause any illness or injury without control is considered a food hazard. Biological hazards that can result on the foodborne illness outbreaks are the major concern in the food industry. The common organisms that can cause infection, intoxication, and even death include *Salmonella*, *E. coli*, and *Clostridium botulinum*. Chemical agents such as pesticides and heavy metals that can cause hazards in food can be categorized into three groups: (i) natural chemicals; (ii) chemicals used in formulation for food products, or (iii) chemicals that are unintentionally or incidentally present in the finished product. Physical agents that can cause physical hazards are not limited to bone, glass, wood, faces, etc. Therefore, risk assessments and suitable mitigation measurements can be carried out based on the research and previous data on food safety hazards.

Generally, the purpose of food fraud is to gain financially by the enhancement of the apparent value of the product or reducing the production cost. It can be classified as adulteration, tampering, product overrun, diversion, theft, and counterfeiting. The adulteration or contamination of foods is considered if the valuable component in the food is removed or replaced with a cheaper or poor quality to concealed with an actual food product or substitutes instead of expensive ingredients (Goyal et al., 2022; Roy & Yadav, 2022). Food products can be easily adulterated since it has a lengthy, complicated processing and supply chain. Therefore, food authentication is important to ensure the safety and quality of food products and consumer protection. It is also important for both official bodies and industries in charge of labelling and raw materials and finished products to be tested for compliance with the national legislation, international standards, and other guidelines and specifications (Baeten & Dardenne, 2002).

The high food adulteration incidence was reported in the literature and can be categorized into six groups which were '*animal origin and seafood*' for milk and dairy products, meat and meat products, fish and seafood; '*oils and fats*'; '*beverages*' for fruit juices, coffee and tea, alcoholic beverages; '*spices and sweeteners*' for spices and extracts, sweeteners including honey; '*grain-based food*' for cereals and pulse; and '*others*' for organic foods and dietary supplements (Hong et al., 2017). The key players, including the food industry, academia, and government, are aware of this serious issue and have implemented efforts to ensure food integrity, including methods and procedures. A competent, fast, and reliable analysis is needed to overcome the challenges and ensure product quality. The authentication and adulteration of food can be validated by various technique including physical, chemical/ biochemical, or DNA molecular depending on the type of adulterant to be detected (Bansal et al., 2017). This use of analytical methods such as non-destructive radiative evaluation, fingerprinting characterization, novel technology for rapid detection, and authentication were reviewed.

3. Physical technique

The authenticity of food products can be examined by analyzing the physical characteristics of food such as color, texture, solubility, bulk density, morphological traits, etc (Bansal et al., 2017). Physical techniques such as microscopic and macroscopic can be used for the physical characterization.

In the early years, Louveaux et al., (1978) detected honey adulteration with cane sugar and cane sugar products through optical microscopy. Combining microscopy and macroscopy with chemical profiling also identifies and authenticates herbs and medicinal plants (Sheorey & Tiwari, 2011). The utilization of microscopy and macroscopy helps detect microbial contamination in food such as fungi. Furthermore, the botanical origin can be detected with the advent of electron microscopy. For instance, the origin of honey can be determined by analyzing the surface pattern of pollen from honey (Jones & Bryant, 2014).

4. Chemical/biochemical technique

In general, the chemical/biochemical techniques offer more accurate results, and the food's contaminants can be detected even at lower concentrations. However, these techniques are costly, time-consuming and require well-trained operators to conduct the experimental works. The chemical/biochemical techniques can be categorized into four main categories: (1) spectroscopic-based, (2) chromatographic-based, (3) immunologic-based, and (4) electrophoretic-based techniques. The focus of this section is given to the spectroscopic-based and chromatographic-based technique since these two techniques are the most used especially in food adulteration and authenticity.

4.1 Vibrational spectroscopic techniques

A range of vibrational spectroscopic techniques such as Fourier transform near-infrared spectroscopy (FT-NIR), mid-infrared (MIR), Raman spectroscopy, and hyperspectral imaging (HIS) has been successfully used as sensitive and fast analytical techniques for the determination of food contamination. Figure 2 shows the typical vibrational spectroscopic techniques used for food authentication. The main advantages of these techniques are being non-destructive, relatively low analysis cost, being adopted for both qualitative and quantitative analysis, and providing an alternative to wet-chemical and time-consuming techniques (Lohumi et al., 2013).

NIR region is between 780 to 2500 nm and can detect overtone and combination bands for the chemical bonds between light atoms, such as C-H, O-H, and N-H that have high vibrational frequencies (Osborne et al., 1993). FT-NIR can be used for qualitative and quantitative analysis with little or no sample preparation (Lohumi et al., 2015). Continuous development makes this technique reliable and efficient, and it has become a standard analytical method for quality control measurements. FT-NIR can be categorized into three groups based on instrumental devices: (i) sequential instruments - the absorbance is sequentially collected in time, and the instrument

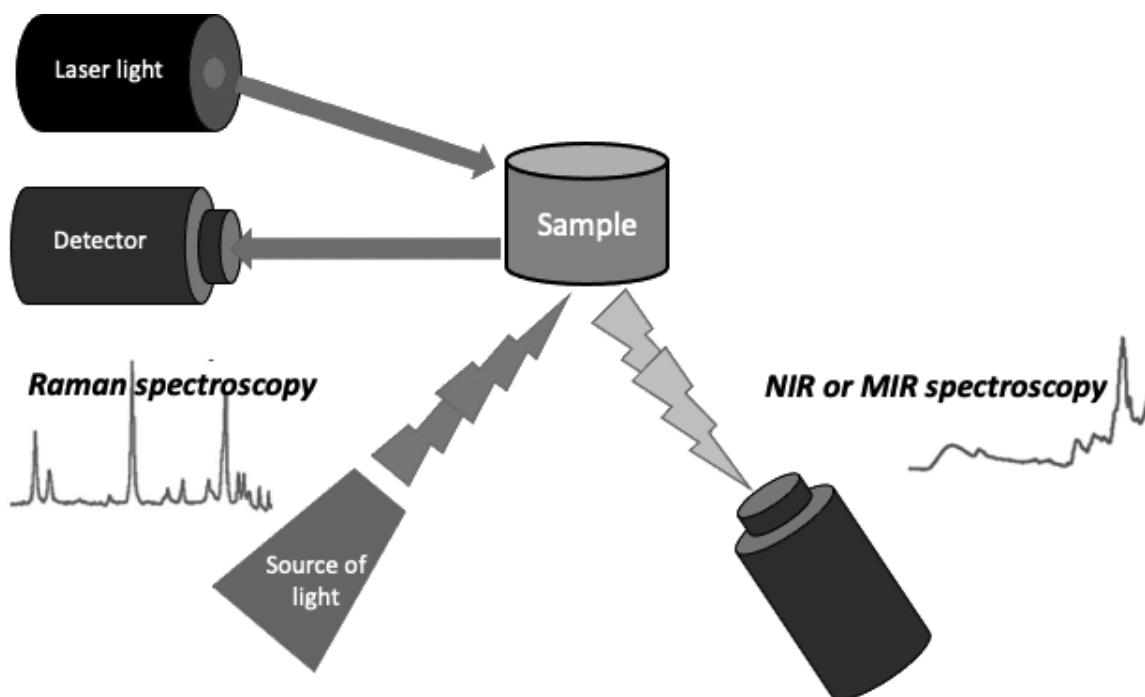


Fig. 2 Schematic diagram of typical vibrational spectroscopic techniques.

is equipped with a monochromator or filters; (ii) Fourier transform or multiplex instruments - several frequencies are detected simultaneously in the form of an interferogram; and (iii) multi-channel instruments - several detectors separately detect the absorbance at several wavelengths (Lohumi et al., 2015).

Numerous studies on detecting food adulterations have been conducted using this technique. For instance, identification of animal meat muscles (Cozzolino & Murray, 2004), detection of beef hamburger adulteration (Ding & Xu, 2000), adulteration in crabmeat and species authenticity (Gayo et al., 2006). Besides that, this technique also successfully detected protein adulteration in yogurt and melamine contamination in milk powder (Haughey et al., 2013) and soya bean meal (Xu et al., 2013). NIR spectroscopy can be used in different spectral modes, including reflectance, transmission, interactance, and transflectance, to estimate the sample's external and internal properties. NIR reflectance spectra (1100–2498 nm) managed to detect 10% pulp wash in orange juice and sugar-acid mixtures with 90% accuracy (Downey et al., 2016). The transmission mode offers the most straightforward sampling technique for analyzing solid, liquid, and gas samples. It can be used to detect a sample's external and internal qualities. For example, this mode has been used to differentiate white wine based on the origin (Daniel Cozzolino et al., 2003) and detection of fatty acid composition in beef and chicken (Riovanto et al., 2012). The interactance mode is used for the internal information of a sample when the transmission measurements are challenging to obtain. The transflectance mode is the combination of transmission and reflectance modes. It is specifically designed to measure the spectra of thin or clear sample.

FT-IR focuses on the MIR region between 4000 to 400 cm^{-1} of the electromagnetic spectrum. It can produce a chemical profile of the sample through the fundamental vibrational and rotational stretching modes of molecules. FT-IR provides more excellent chemical information of the

sample compared to NIR spectroscopy because it measures fundamental vibrations instead of the overtones and combinations band measured in the NIR region (Lohumi et al., 2015). The MIR region can be divided into two, which known as the functional group region (4000 to 1500 cm^{-1}) and the fingerprint region (1500 to 500 cm^{-1}).

FT-IR also enables the measurement of all types of samples by using different measurement modes such as attenuated total reflectance (ATR), diffuse reflectance, high-throughput transmission (HTT), and transmission cell. ATR-FT-IR has been widely used in the analysis of food authentication because it can analyze both qualitative and quantitative analysis. ATR demonstrated a better sampling method with higher accuracy than HTT for a sampling technique such as microbial spoilage in milk (Nicolaou & Goodacre, 2008). Various combinations of FT-IR with sampling techniques have been successfully applied for adulteration detection in honey. FT-IR spectroscopy has also been combined with chemometrics to analyze high-value edible oils such as olive oil, avocado oil, etc. The adulteration in edible oils can be detected through a distinct classification due to the difference in fatty acid and triglyceride content (Christopoulou et al., 2004). The determination of sugar concentration in fruit juice also can be analyzed using FT-IR spectroscopy at the fingerprint region of MIR because this region has high sensitivity spectral region as compared to NIR. This suggested FT-IR is a versatile and powerful analytical method for food applications. FT-IR and NIR are compliments to each other with advantages and disadvantages for each technique.

4.2 Chromatographic techniques

Among fingerprint techniques, chromatography is found to be more informative in fingerprint analysis. The chromatographic method will provide information by translating the peak intensity presenting the area or height and their position (retention time). This method is convenient and reliable to characterize the food sample particularly for the used in identifying food authenticity. This is because, this chromatographic technique promotes vast and remarkable capabilities with high sensitivity, reproducibility, and robustness that enable them to provide the highest information content of the food products (Esteki et al., 2018).

Previously, using various types of detectors, the chromatographic technique has been used to identify chemical adulteration markers such as fatty acids, oligosaccharides, and tocopherols (Fanali et al., 2016). Most HPLC or GC methods were developed to detect carbohydrates, carotenoids, amino acids, phenolic or other organic compounds (Herrero et al., 2017). For instance, the chromatographic technique could detect the adulteration in oil and characterize the blend's composition of oils by determining triacylglycerols (TAGs), sterols, and fatty acids compounds present in the oil (Wernig et al., 2018).

The most widely used in detecting the adulteration or identification of the authenticity of food products are gas chromatography (GC) and high-performance liquid chromatography (HPLC). GC-FID is a popular chromatography mode due to being cheap, well-established, robust, and rapid. GC method was developed to detect adulteration in olive oil by comparing the fatty acid composition and chemometric analysis. GC method can be used to characterize and differentiate different vegetable oils by focusing on the fatty acid methyl esters (FAME), obtained

through trans-esterification of vegetable oils (Brodnjak-Vončina et al., 2005). For instance, the identification of extra virgin olive oil, which is an adulterer with corn, peanut, rapeseed, and sunflower oils, was successfully demonstrated by Yang et al. (2013) using the GC-MS method. GC with surface acoustic wave detector (GC-SAW system) combined with chemometrics was also used to identify the presence of lard in virgin coconut oil (Mansor et al., 2011). Besides that, the adulteration of extra virgin olive oil with 5% soybean oil has also been identified using the GC method by analyzing the fatty acids composition as an indicator of purity and the linoleic acid content as a parameter for the detection (Jabeur et al., 2014). The adulteration of almond powder with the apricot kernel was also detected using GC fatty acid fingerprinting combined with chemometric methods (Esteki et al., 2017). Nevertheless, frequently, GC needed derivatization to become the main limitation of GC.

This limitation can be overcome by using HPLC, which does not need any derivatization and can analyze both polar and non-polar compounds. HPLC has successfully demonstrated the adulteration of ovine, caprine cheese, and milk with bovine milk at lower levels (2 % v/v) by analyzing the whey protein β -lactoglobulin (Chen et al., 2004). Veloso et al. (2002) also detected bovine, ovine, and caprine milk using reversed-phased HPLC. HPLC method managed to classify wines from different denominations of origin in the Canary Islands, Spain, by analyzing 15 polyphenol concentrations combined with principal component analysis (PCA) and linear discriminant analysis (LDA) (Rodríguez-Delgado et al., 2002). The combination of PCA and LDA, as well as HPLC equipped with a UV detector, was also used to classify some Australian wines based on geographical groups with accuracy in the 75 to 100 % range (Bellomarino et al., 2009). In addition, reversed-phased HPLC combined with PCA and LDA was used to discriminate different varieties of green and roasted coffee beans by analyzing the triglyceride and tocopherol composition (González et al., 2001). The current trend shifting from HPLC to UHPLC due to the particle size of the stationary phase, sample size, and mobile phase have been reduced. Hence, it becomes more efficient, with high selectivity, throughput, speed, and resolution.

4.3 Electric nose

Most detection methods for food authentication are time-consuming and costly and require professional operators to conduct the analysis. As the adulteration scandals become intense recently, a real-time rapid and reliable detection method is needed to tackle this issue. This rapid detection technique can be used for commercialized processed foods in the market. One of the technologies invented is the electric nose (e-nose), which mimics the human nose as an artificial olfactory system or machine olfaction for automated simulation of the sense of smell (Roy & Yadav, 2022).

E-nose is classified as a non-destructive method widely used in many applications, including environment monitoring, quality control assessment in agricultural goods, fraudulent adulteration, and spoilages. This method can differentiate the quality of food products by detecting the specific components of an odor and analyzing its chemical makeup to identify it. This detection is preferred to routine laboratory analysis because of easy handling of the system, cost effective, and short time analysis (Roy & Yadav, 2022).

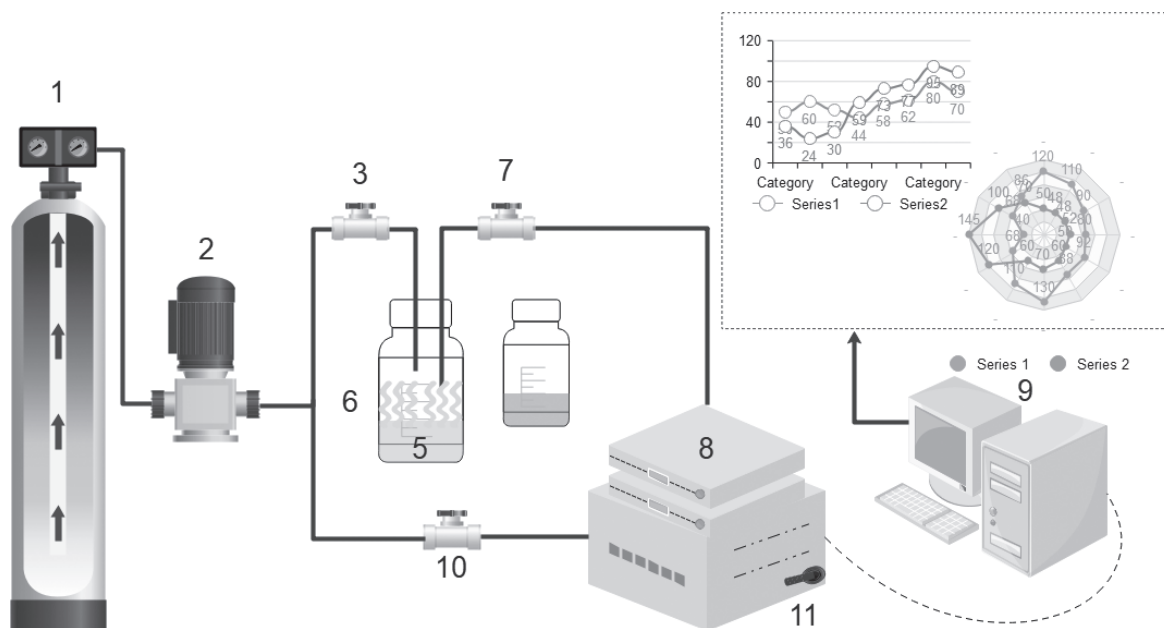


Fig. 3 The typical block diagram of an e-nose consists of: 1 synthetic air cylinder, 2 blower, 3 air inlet valve, 4 closed sample container, 5 sample, 6 volatiles, 7 sampling valve, 8 sensory array chamber, 9 data processing and pattern recognition, 10 purge valve, 11 purge outlet. (Source: Roy & Yadav, 2022).

Many research related to food quality using this e-nose has been reported previously. The idea of an e-nose system for aroma discrimination based on chemical sensors has been demonstrated by Persaud & Dodd (1982). In general, e-nose consists of four main units: (i) an electronic multi-sensor array system for chemical detection; (ii) an information processing unit; (iii) a digital pattern recognition algorithm system that is capable of recognizing odors; and (iv) a reference library database. Figure 3 illustrates the typical block diagram of an e-nose.

The mechanism of e-nose is based on the identification of volatile organic compounds generated from the food samples in the translation to voltage differences which are detected by limited selective sensors. Commonly used sensors are surface acoustic waves (SAW), and conducting polymer and metal oxide semiconductors (MOS). MOS sensor has been widely used because of their high chemical stability, low response to moisture, long life, and reasonable price. The synthetic air (99.9 % pure) blows the generated volatile organic compounds from the sample to the sensor array chamber. The air inlet and sampling valves remain open during the measurement, whilst the purging valve will be closed to introduce the generated volatile organic compounds to the sensor array chamber. The received analogue signal by the sensor array which consists of selective and sensitive gas sensors coupled with a data acquisition card will then convert to digital signals which can be read on the monitor (Roy & Yadav, 2022). In principle, food quality can be classified by differentiating the complex odors from food samples generated as voltage response value (output).

An e-nose has been widely used in detecting various food adulteration including honey, milk and dairy products, fruits, meat, fish, spice, edible oils, alcoholic and non-alcoholic drinks, tea and coffee, etc. The examples include the adulteration of edible plant oils with cheaper sources of oils, fats, and sterols, which have nearly similar fatty acid profiles. Sometimes, adulteration of edible

oils might cause serious health problems such as Spanish olive oil syndrome (Clemente & Cahoon, 2009). However, this e-nose technology is trustworthy and highly sensitive to ascertain the purity and authenticity of the edible oil. The authenticity of edible oils can be determined through various e-nose systems that have been developed. Hai & Wang (2006) detected the adulteration of Camellia seed oil with maize oil using an e-nose device with 10 MOS sensors. The adulteration of argan oil with sunflower oil using 5 MOS sensor-based e-nose (Bougrini et al., 2014). Besides that, Yu et al. (2007) also demonstrated the adulteration of skim milk with water and reconstituted milk powder using an e-nose based on MOS sensors. The gas chromatography-based e-nose was used to inspect the adulteration of honey with corn and rice syrup (Gan et al., 2016). For commodities like meat, aroma is the main indicator to be used in e-nose technology. This is because meat's lowered shelf-life stability made the aroma more vulnerable. An e-nose has been successfully used to detect the adulteration of various meats. Tian et al., (2019) reported the minced mutton was adulterated with pork using a PEN 2 e-nose system containing ten selective MOS gas sensors based on the odor fingerprint. Wang et al. (2019) also successfully detected the adulteration of mutton with duck meat using SPME for volatile compound extraction and PEN 3 e-nose system comprised of 10 MOS sensors. Another common application of e-nose is the detection of adulteration in spice. Banach et al. (2012) investigated the adulteration of 'saveloy' and 'sausage' spices with an admixture of 20% concentration level of adulteration with curry leaves and garlic spice powder using 38 MOS sensor-based commercial type e-nose (KAMINA, Yson GmbH).

5. DNA molecular-based technique

DNA is a unique organism, hence, DNA-based techniques can be an effective tool in food adulteration detection. Unlike physical, chemical and biochemical techniques, this DNA-based technique can provide an accurate result quantitatively and qualitatively. Therefore, the developed techniques such as multiplex-PCR, quantitative PCR (qPCR), DNA sequencing, restriction fragment length polymorphism (RFLP), randomly amplified polymorphic DNA (RAPD), and simple sequence repeats (SSR) or microsatellites methods are the potent technology which are required by countries and international trade organizations to agree especially on the standard. For instance, the DNA-based molecular technique can be used to detect adulteration, particularly for food with nearly similar physical characteristics. New tools, including high-resolution melting (HRM) PCR, droplet digital PCR (ddPCR), isothermal amplification (e.g., loop-mediated isothermal amplification, recombinase-polymerase amplification, strand-displacement amplification, heli-case-dependent amplification, and rolling-circle amplification), and next-generation sequencing (NGS) have emerged with a better performance in terms of sensitivity, specificity, speed, and multiplex.

5.1 PCR and qPCR

Detection of adulteration and identification of animal and plant species can be carried out using high sensitivity, specificity, and relatively fast PCR techniques. The simultaneous identifica-

tion of several species can be obtained through multiplex PCR assays using specific primers. Thus, it can detect and distinguish the species in the food products (Böhme et al., 2019). This technique allows the detection of a target in a complex matrix at a very low concentration through the exponential amplification of a target DNA molecule using a thermal cycler that generates up to millions of copies (Bohme 2019). Multiplex PCR assays targeting the sensitive qualitative region of mitochondrial DNA have been developed to simultaneously detect different animal species in meat because this region has a high cell copy number. For example, the adulteration of meatballs with meat from dog, rat, rabbit, and squirrel were identified down to 0.1% (Ahamad et al., 2017; Rahman et al., 2014). Nevertheless, the limitation of the PCR technique is not reliable for quantification because the copy numbers per cell change between species, individuals, and even tissues within the same individual.

The quantification measurement in food adulteration is very important to justify whether it is intentional or unintentional mixing. In this sense, qPCR is a reliable and convenient method to quantify adulterated food products. The principle of qPCR is amplification of nucleic acids, which can be monitored in real-time, and quantification by measuring the fluorescence coming from the release of double-strand-DNA-binding dye, which is measured in each PCR cycle (Böhme et al., 2019). The performance of qPCR offers high sensitivity, multiplexing, high speed, and relatively low cost compared to the conventional method. Furthermore, this technique does not require the post-PCR processing steps like in the conventional method because it is based on real-time monitoring of the increasing number of target DNA molecules. This qPCR technique has successfully detected the presence of forbidden meat species like pork in raw and processed halal food products (Karabasanavar et al., 2014; Sakalar et al., 2015). Besides that, it has been used in the seafood industry to detect fraud or mislabeling in tuna products (Liu et al., 2016). However, the effects of tissue composition and matrix components on the PCR efficiency and precision are the main limitations on the absolute or relative quantification.

5.2 DNAFoil

DNAFoil is a novel technology based on DNA-approach can be used for food adulteration detection. It is portable, completely self-administered, and can be performed on-site without expensive equipment such as PCR or any experimental work to validate the food adulteration in a very short time, as little as 30 minutes. Figure 4 illustrates the process flow and mechanism of the DNAFoil technique.

Herein, this technique can detect food adulteration by following these five main steps (Sheikha, 2019): initially, the provided barrel to break, lyses, extract, neutralize, and stabilize DNA in the food sample. Subsequently, the DNA target amplifies by transferring one drop of the extracted DNA (step 1) to the reaction tube, which is then placed in the water. The DNA target will amplify and make multiple copies using enzymes and specific primers identified. Finally, immerse the revealing strip after waiting about 30 minutes to detect any traces. The target DNA will be transferred via capillary force to the detection surface of the test strip during the final stages. The target DNA fragments will be captured in a band on the test strip. These procedures show the versatile, potent, and rapid technology of DNAFoil.

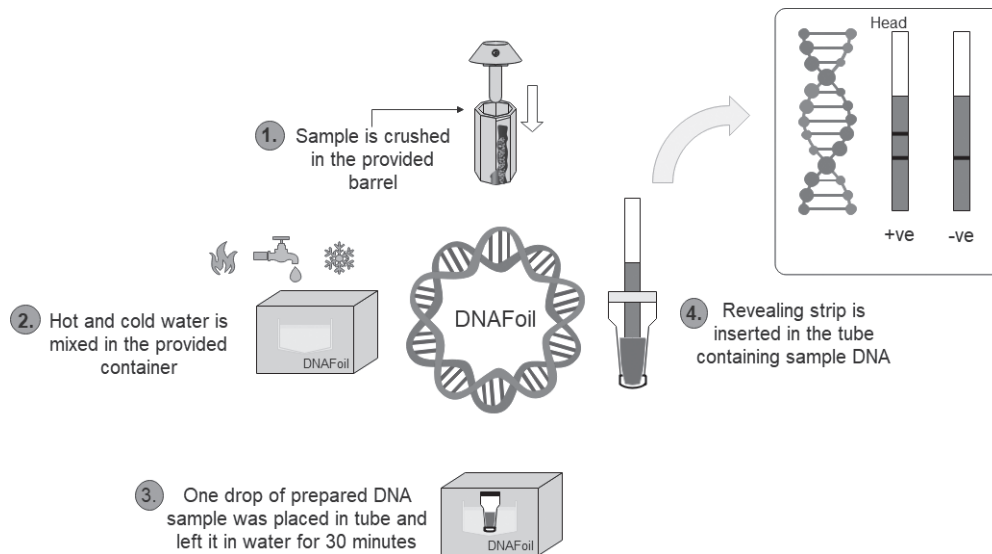


Fig. 4 Process flow and mechanism of DNAFoil technique (Sheikha, 2019)

This DNAFoil kit technology has successfully detected pork adulteration in beef at lower levels, which was reported in Meat and Livestock Australia Limited in January 2018. The DNAFoil validity has been confirmed using qPCR. Aronoff et al. (2018) demonstrated the reproducibility data to detect the vegetal material in milk products using qPCR. This finding indicates this DNAFoil kit technology is a rapid and reliable method to validate product content. It can also be used to identify the characteristics in minimal time without needing any lab equipment, technicians, or scientists.

6. Conclusion

The development of food integrity management system within food supply chain is important to create trust and brand integrity among stakeholders. This can be achieved through a few contexts by ensuring: (i) safety, quality, and authenticity of food products, (ii) reliable labelling, and (iii) effective management of provenance such as halal status, vegan, or organic product. In the sense of the first context, adulteration and authenticity is a key issue that has been gaining increasing attention by all players including industry, government, academia, and consumers in recent years.

A tremendous improvement on the analytical methodologies to investigate the food product integrity especially in detecting or analyzing the adulterants are seriously in need due to the countless food scandals have evolved. This is important to gain the consumer confidence and protecting consumer rights by guarantee the quality, safety, and authenticity of the food product as well as processing methods according to the standard operating procedures.

For this reason, this chapter reviewed the food integrity in the perspective of food science and technology on the safety, quality, and authenticity of the food product within the wider food supply chain. With an increasing crises and food industry scandals, a rapid analytical technique has been developed to carter with this issue. Herein, the available analytical methods particularly

for chemical/biochemical and DNA-molecular technique have been reviewed. This review indicates a significant enhancement of the analytical methods development to mitigate the adulteration or authenticity issues by promoting several advantages such as high efficacy, rapid, and minimal cost. Nevertheless, there still need a continuous research and development to improve the limitation of the techniques.

References

- Ahamad, M. N. U., Ali, M. E., Hossain, M. A. M., Asing, A., Sultana, S., & Jahurul, M. H. A. (2017). Multiplex PCR assay discriminates rabbit, rat and squirrel meat in food chain. *Food Additives and Contaminants - Part A Chemistry, Analysis, Control, Exposure and Risk Assessment*, *34* (12), 2043–2057.
<https://doi.org/10.1080/19440049.2017.1359752>
- Aronoff, R., Vernez, I., Rotman, N., & Rando, G. (2018). *Detection of milk adulteration using DNAFoil UniPlant*.
- Baeten, V., & Dardenne, P. (2002). Spectroscopy: Developments in instrumentation and analysis. *Grasas y Aceites*, *53* (1), 45–63.
<https://doi.org/10.3989/gya.2002.v53.i1.289>
- Banach, U., Tiebe, C., & Hübert, T. (2012). Multigas sensors for the quality control of spice mixtures. *Food Control*, *26* (1), 23–27. <https://doi.org/10.1016/j.foodcont.2012.01.015>
- Bansal, S., Singh, A., Mangal, M., Mangal, A. K., & Kumar, S. (2017). Food adulteration: Sources, health risks, and detection methods. *Critical Reviews in Food Science and Nutrition*, *57* (6).
<https://doi.org/10.1080/10408398.2014.967834>
- Bellomarino, S. A., Conlan, X. A., Parker, R. M., Barnett, N. W., & Adams, M. J. (2009). Geographical classification of some Australian wines by discriminant analysis using HPLC with UV and chemiluminescence detection. *Talanta*, *80* (2), 833–838.
<https://doi.org/10.1016/j.talanta.2009.08.001>
- Böhme, K., Calo-Mata, P., Barros-Velázquez, J., & Ortea, I. (2019). Review of Recent DNA-Based Methods for Main Food-Authentication Topics. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, *67* (14), 3854–3864.
<https://doi.org/10.1021/acs.jafc.8b07016>
- Bougrini, M., Tahri, K., Haddi, Z., Saidi, T., El Bari, N., & Bouchikhi, B. (2014). Detection of adulteration in argan oil by using an electronic nose and a voltammetric electronic tongue. *Journal of Sensors*, 245831.
<https://doi.org/10.1155/2014/245831>
- Brodnjak-Vončina, D., Kodba, Z. C., & Novič, M. (2005). Multivariate data analysis in classification of vegetable oils characterized by the content of fatty acids. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, *75* (1), 31–43.
<https://doi.org/10.1016/j.chemolab.2004.04.011>
- Chen, R. K., Chang, L. W., Chung, Y. Y., Lee, M. H., & Ling, Y. C. (2004). Quantification of cow milk adulteration in goat milk using high-performance liquid chromatography with electrospray ionization mass spectrometry. *Rapid Communications in Mass Spectrometry*, *18* (10), 1167–1171.
<https://doi.org/10.1002/rcm.1460>
- Christopoulou, E., Lazaraki, M., Komaitis, M., & Kaselimis, K. (2004). Effectiveness of determinations of fatty acids and triglycerides for the detection of adulteration of olive oils with vegetable oils. *Food Chemistry*, *84* (3), 463–474.
[https://doi.org/10.1016/S0308-8146\(03\)00273-5](https://doi.org/10.1016/S0308-8146(03)00273-5)
- Clemente, T. E., & Cahoon, E. B. (2009). Soybean oil: Genetic approaches for modification of functionality and total content. *Plant Physiology*, *151* (3), 1030–1040.
<https://doi.org/10.1104/pp.109.146282>
- Cozzolino, D., & Murray, I. (2004). Identification of animal meat muscles by visible and near infrared reflectance spectroscopy. *LWT*, *37* (4), 447–452.
<https://doi.org/10.1016/j.lwt.2003.10.013>
- Cozzolino, Daniel, Smyth, H. E., & Gishen, M. (2003). Feasibility Study on the Use of Visible and Near-Infrared Spectroscopy Together with Chemometrics to Discriminate between Commercial White Wines of Different Varietal Origins. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, *51* (26), 7703–7708.
<https://doi.org/10.1021/jf034959s>

- Ding, H. B., & Xu, R. J. (2000). Near-infrared spectroscopic technique for detection of beef hamburger adulteration. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 48 (6), 2193–2198.
<https://doi.org/10.1021/jf9907182>
- Downey, G., McNulty, P. B., Twomey, M., Downey, G., & McNulty, P. B. (2016). *The Potential of NIR Spectroscopy for the Detection of the Adulteration of Orange Juice*. JANUARY 1995, 77–84.
- El Sheikha, A. F. (2019). DNAFoil: Novel technology for the rapid detection of food adulteration. *Trends in Food Science and Technology*, 86 (September 2018), 544–552.
<https://doi.org/10.1016/j.tifs.2018.11.012>
- Elliot. (2014). *Review into the Integrity and Assurance of Food Supply Networks-Final Report A 165 National Food Crime Prevention Framework*.
- Esteki, M., Simal-Gandara, J., Shahsavari, Z., Zandbaaf, S., Dashtaki, E., & Vander Heyden, Y. (2018). A review on the application of chromatographic methods, coupled to chemometrics, for food authentication. *Food Control*, 93 (April), 165–182.
<https://doi.org/10.1016/j.foodcont.2018.06.015>
- Esteki, Mahnaz, Farajmand, B., Kolahderazi, Y., & Simal-Gandara, J. (2017). Chromatographic Fingerprinting with Multivariate Data Analysis for Detection and Quantification of Apricot Kernel in Almond Powder. *Food Analytical Methods*, 10 (10), 3312–3320.
<https://doi.org/10.1007/s12161-017-0903-5>
- Fanali, C., Dugo, L., & Mondello, L. (2016). 10 – advances in chromatographic techniques for food authenticity testing. In *Advances in food authenticity testing* (pp. 253–284). Woodhead publishing.
<http://dx.doi.org/10.1016/B978-0-08-100220-9.00010-2>
- FAO (Food and Agriculture Organization). (2004). *24th regional conference for Europe. Item six – food safety and quality in Europe: Aspects concerning in particular quality, nutritional balance, the importance of agricultural land and cultural heritage*.
<http://www.fao.org/docrep/MEETING/007/J1818e.HTM>
- Gan, Z., Yang, Y., Li, J., Wen, X., Zhu, M., Jiang, Y., & Ni, Y. (2016). Using sensor and spectral analysis to classify botanical origin and determine adulteration of raw honey. *Journal of Food Engineering*, 178, 151–158.
<https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2016.01.016>
- Gayo, J., Hale, S. A., & Blanchard, S. M. (2006). Quantitative analysis and detection of adulteration in crab meat using visible and near-infrared spectroscopy. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 54 (4), 1130–1136.
<https://doi.org/10.1021/jf051636i>
- González, A. G., Pablos, F., Martín, M. J., León-Camacho, M., & Valdenebro, M. S. (2001). HPLC analysis of tocopherols and triglycerides in coffee and their use as authentication parameters. *Food Chemistry*, 73 (1), 93–101.
[https://doi.org/10.1016/S0308-8146\(00\)00282-X](https://doi.org/10.1016/S0308-8146(00)00282-X)
- Goyal, K., Kumar, P., & Verma, K. (2022). Food Adulteration Detection using Artificial Intelligence: A Systematic Review. *Archives of Computational Methods in Engineering*, 29 (1), 397–426.
<https://doi.org/10.1007/s11831-021-09600-y>
- Hai, Z., & Wang, J. (2006). Detection of adulteration in camellia seed oil and sesame oil using an electronic nose. *European Journal of Lipid Science and Technology*, 108 (2), 116–124.
<https://doi.org/10.1002/ejlt.200501224>
- Haughey, S. A., Graham, S. F., Cancouët, E., & Elliott, C. T. (2013). The application of Near-Infrared Reflectance Spectroscopy (NIRS) to detect melamine adulteration of soya bean meal. *Food Chemistry*, 136 (3–4), 1557–1561.
<https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2012.01.068>
- Herrero, M., Castro-Puyana, M., Ibáñez, E., & Cifuentes, A. (2017). Compositional analysis of foods. In *Liquid chromatography: Applications* (2nd edition, pp. 359–380). Elsevier.
- Hong, E., Lee, S. Y., Jeong, J. Y., Park, J. M., Kim, B. H., Kwon, K., & Chun, H. S. (2017). Modern analytical methods for the detection of food fraud and adulteration by food category. *Journal of the Science of Food and Agriculture*, 97 (12), 3877–3896.
<https://doi.org/10.1002/jsfa.8364>
- Jabeur, H., Zribi, A., Makni, J., Rebai, A., Abdelhedi, R., & Bouaziz, M. (2014). Detection of chemlali extra-virgin olive oil adulteration mixed with soybean oil, corn oil, and sunflower oil by using GC and HPLC. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 62 (21), 4893–4904.

- <https://doi.org/10.1021/jf500571n>
- Jones, G. D., & Bryant, V. M. (2014). Pollen studies of East Texas honey. *Palynology*, 38 (2), 242–258.
<https://doi.org/10.1080/01916122.2014.899276>
- Karabasanavar, N. S., Singh, S. P., Kumar, D., & Shebannavar, S. N. (2014). Detection of pork adulteration by highly-specific PCR assay of mitochondrial D-loop. *Food Chemistry*, 145, 530–534.
<https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2013.08.084>
- Liu, S., Xu, K., Wu, Z., Xie, X., & Feng, J. (2016). Identification of five highly priced tuna species by quantitative real-time polymerase chain reaction. *Mitochondrial DNA*, 27 (5), 3270–3279.
<https://doi.org/10.3109/19401736.2015.1015004>
- Lohumi, S., Lee, S., Lee, H., & Cho, B. K. (2015). A review of vibrational spectroscopic techniques for the detection of food authenticity and adulteration. *Trends in Food Science and Technology*, 46 (1), 85–98.
<https://doi.org/10.1016/j.tifs.2015.08.003>
- Lohumi, S., Mo, C., Kang, J.-S., Hong, S.-J., & Cho, B.-K. (2013). Nondestructive Evaluation for the Viability of Watermelon (*Citrullus lanatus*) Seeds Using Fourier Transform Near Infrared Spectroscopy. *Journal of Biosystems Engineering*, 38 (4), 312–317.
<https://doi.org/10.5307/jbe.2013.38.4.312>
- Louveaux, J., Maurizio, A., & Vorwohl, G. (1978). Methods of melissopalynology. *Bee World*, 59, 139–157.
- Manning, L. (2017). *Food Integrity*. 119 (1), 2597–2609.
- Mansor, T. S. T., Man, Y. B. C., & Rohman, A. (2011). Application of Fast Gas Chromatography and Fourier Transform Infrared Spectroscopy for Analysis of Lard Adulteration in Virgin Coconut Oil. *Food Analytical Methods*, 4 (3), 365–372.
<https://doi.org/10.1007/s12161-010-9176-y>
- Nicolaou, N., & Goodacre, R. (2008). Rapid and quantitative detection of the microbial spoilage in milk using Fourier transform infrared spectroscopy and chemometrics. *Analyst*, 133 (10), 1424–1431.
<https://doi.org/10.1039/b804439b>
- Osborne, B. G., Fearn, T., & Hindle, P. T. (1993). *Practical NIR spectroscopy with applications in food and beverage analysis (2nd ed.)* Longman Scientific and Technical.
- Persaud K., & Dodd G. (1982). Analysis of discrimination mechanisms in the mammalian olfactory system using a model nose. *Nature*, 299 (5881), 352–355
- Rahman, M. M., Ali, M. E., Hamid, S. B. A., Mustafa, S., Hashim, U., & Hanapi, U. K. (2014). Polymerase chain reaction assay targeting cytochrome b gene for the detection of dog meat adulteration in meatball formulation. *Meat Science*, 97 (4), 404–409.
<https://doi.org/10.1016/j.meatsci.2014.03.011>
- Riovanto, R., De Marchi, M., Cassandro, M., & Penasa, M. (2012). Use of near infrared transmittance spectroscopy to predict fatty acid composition of chicken meat. *Food Chemistry*, 134 (4), 2459–2464.
<https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2012.04.038>
- Rodríguez-Delgado, M. Á., González-Hernández, G., Conde-González, J. E., & Pérez-Trujillo, J. P. (2002). Principal component analysis of the polyphenol content in young red wines. *Food Chemistry*, 78 (4), 523–532.
[https://doi.org/10.1016/S0308-8146\(02\)00206-6](https://doi.org/10.1016/S0308-8146(02)00206-6)
- Roy, M., & Yadav, B. K. (2022). Electronic nose for detection of food adulteration: a review. *Journal of Food Science and Technology*, 59 (3), 846–858.
<https://doi.org/10.1007/s13197-021-05057-w>
- Sakalar, E., Ergün, S. Ö., & Akar, E. (2015). A simultaneous analytical method for duplex identification of porcine and horse in the meat products by EvaGreen based real-time PCR. *Korean Journal for Food Science of Animal Resources*, 35 (3), 382–388.
<https://doi.org/10.5851/kosfa.2015.35.3.382>
- Sheikha, A. E. L. (2015). Food Safety Issues in Saudi Arabia. *Nutrition and Food Technology*, 11 (1), 1–17.
<https://doi.org/10.1016/B978-0-444-87438-2.50017-0>
- Sheorey, R. R., & Tiwari, A. (2011). Random amplified polymorphic DNA (RAPD) for identification of herbal materials and medicines - A review. *Journal of Scientific and Industrial Research*, 70 (5), 319–326
- Tian, X., Wang, J., Ma, Z., Li, M., Wei, Z., & Diaz-Cruz, J. M. (2019). Combination of an E-Nose and an E-Tongue for Adulteration Detection of Minced Mutton Mixed with Pork. *Journal of Food Quality*, 2019.
<https://doi.org/10.1155/2019/4342509>

- Veloso, A. C. A., Teixeira, N., & Ferreira, I. M. P. L. V. O. (2002). Separation and quantification of the major casein fractions by reverse-phase high-performance liquid chromatography and urea-polyacrylamide gel electrophoresis: Detection of milk adulterations. *Journal of Chromatography A*, *967* (2), 209–218.
[https://doi.org/10.1016/S0021-9673\(02\)00787-2](https://doi.org/10.1016/S0021-9673(02)00787-2)
- Wang, Q., Li, L., Ding, W., Zhang, D., Wang, J., Reed, K., & Zhang, B. (2019). Adulterant identification in mutton by electronic nose and gas chromatography-mass spectrometer. *Food Control*, *98* (September 2018), 431–438.
<https://doi.org/10.1016/j.foodcont.2018.11.038>
- Wernig, F., Buegger, F., Pritsch, K., & Splivallo, R. (2018). Composition and authentication of commercial and home-made white truffle-flavored oils. *Food Control*, *87*, 9–16.
<https://doi.org/10.1016/j.foodcont.2017.11.045>
- Xu, L., Yan, S. M., Cai, C. B., Wang, Z. J., & Yu, X. P. (2013). The feasibility of using near-infrared spectroscopy and chemometrics for untargeted detection of protein adulteration in yogurt: Removing unwanted variations in pure yogurt. *Journal of Analytical Methods in Chemistry*, *2013*.
<https://doi.org/10.1155/2013/201873>
- Yang, Y., Ferro, M. D., Cavaco, I., & Liang, Y. (2013). Detection and identification of extra virgin olive oil adulteration by GC-MS combined with chemometrics. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, *61* (15), 3693–3702.
<https://doi.org/10.1021/jf4000538>
- Yu, H., Wang, J., & Xu, Y. (2007). Identification of adulterated milk using electronic nose. *Sensors and Materials*, *19* (5), 275–285.