市販粒状落花生及びナッツ製品のアフラトキシン汚染調査 のための小規模サンプリング計画について^{*1}

(昭和 58 年 3 月 4 日受理)

山本勝彦^{*2} 坪内春夫^{*2}
久田和夫^{*2} 坂部美雄^{*2}

A Plan for Small-Scale Sampling of Retailed Grainy Peanut and Nut Products for Surveying Aflatoxin Contamination

(Studies on Mycotoxins in Foods. V)

Katsuhiko YAMAMOTO, Haruo TSUBOUCHI, Kazuo HISADA
and Yoshio SAKABE

(Nagoya City Health Research Institute; 1-11, Hagiya-cho, Mizuho-ku,
Nagoya, Japan)

A plan for sampling of retailled grainy peanut and nut products was designed on the basis of the law of binomial distribution to search for lots with aflatoxin (AF) contamination of 0.1% or more in kernel number and to estimate the proportion of contaminated kernels.

In this plan a grainy sample (500-1000 g) was divided into several subsamples of equal weight (100-200 g) followed by comminution and re-mixture of comminuted subsamples, and AF analyses were performed on the mixed subsamples to estimate the contamination level of the original sample and on each subsample to obtain the proportion of contaminated kernels.

In a 1981-1982 survey of 144 market samples collected in the Nagoya district, 2 lots of peanut samples were AF positive with AF B₁ contamination levels of 40.0 and 418 ppb; the proportions of contaminated kernels were 0.17 and 0.60%, respectively.

(Received March 4, 1983)

Key words: アフラトキシン汚染調査 survey of aflatoxin contamination; 小規模サンプリング small scale sampling; 二項分布 binomial distribution; 落花生 peanut; ナッツ nut

1. 緒 言

昭和46年3月、厚生省環食第128号の通達により、落花生及びその製品のアフラトキシン（以下 AF と略す）B₁ の試験法が都道府県市の検査機関等に示され¹⁾、その後、昭和56年9月環食第204号の通達により、ピスタチオナッツはじめ8種類のナッツ類に対し、AF 汚染に対する規制が設けられ、この試験法の適用が指示された²⁾。

この試験法には、1回の分析に必要な量が50gとされているが、試料のサンプリング方法については示され

ていない。殊に、落花生については行政需要から、昭和46年3月以後54年まで検査を実施してきたが、暫定的に200gを1検体として行った（昭和46年度³⁾、昭和49～54年度⁴⁾）。しかし、この検体量では、AFが検出されたものと同一のロットでも、再検査すると定量値が大きく異なったり、一方は検出しないという結果を生じることがある。特に、別々の検査機関からプラス、マイナスの相反する結果が提出されるに及んでは、行政措置の根拠となるべき検査機関の成績としては説得力に欠けるものである。

落花生の AF 検査におけるサンプリングに関する研

^{*1} 食品中の Mycotoxin に関する研究（第5報）

^{*2} 名古屋市衛生研究所：名古屋市瑞穂区萩山町 1-11

究の主なるものに Whitaker⁵⁻⁷⁾及び Knüttli⁸⁾らの報告がある。これらは、母集団について汚染度の母平均を推定する方法について検討されており、特に AF 汚染粒の不均一な分布によって、汚染品を非汚染品と判定したり（消費者リスク）、また非汚染品を汚染品と判定する（生産者リスク）過誤を、負の二項分布法則により、殊にサンプル量との関係から推計し、10,000 粒（3~5 kg）以上のサンプリングの必要なことを述べている。しかし、著者らの実施する市場調査では、一つの店頭から、同一の商品をそのように多量収集できないし、一たん流通段階に流れてしまって消費されつつあるものの母集団推定は、ロット全体からまんべんなくサンプリングできないので不可能である。従って、著者らの役割は、陸揚げ後の再汚染がもしあれば、それも含めて消費者リスク、すなわち、基準より高い汚染集団を摘発し、消費者を AF の危険から防ぐことにあてると考えられる。

特に、問題となるのは、極めて少数の AF 汚染粒の混在であっても、1 粒の汚染度が高いためサンプル全体としては AF が検出する場合である。すなわち、この汚染粒局在形のロットでは、最初の何回かのサンプリングによる検査では検出しないという結果を得ても、検査回数を増せば、いつかは AF 汚染粒を捉えることになる。同時に、検査結果の不一致による混乱をひき起こすことになる。

環食第 128 号の通達による方法では、行政上検出限度を 10 ppb と定め、それ以下は検出しないと判定するよう指示されている。同様に、汚染粒率についても一定の検出限度を定め、これらの両面から AF 汚染を捉えることにより、いたずらに検査回数を増すことへの歯止めと、検査結果の不一致に対し生ずる混乱を少くすることができるものと考えられる。

著者らは、このような観点に立って、最少量のサンプルで、AF 汚染品の検索と汚染粒率の推定のできるサンプリング方法を、二項分布法則に基づいて考案し、実態調査への応用を試みたので報告する。

2. 理 論

市販品の調査という点に鑑み、同一の商品の 1 ロットを母集団と考え、そこから任意に抜き取った複数の包装単位の各々をサブサンプル、サブサンプルを統合したものをサンプルと呼ぶことにする。ここで、入手したサンプル中に、AF 汚染粒が 1 粒でも混入していれば、必ず AF が検出できるものとする。

環食第 128 号の方法では、実験上の検出限度は 1 ppb であるから、仮りに 500 g をサンプルとしたとき、もし 1 粒のみに AF 汚染が存在したとすると、1 粒中に AF B₁ は 0.5 µg 以上存在する必要がある。

2-1 汚染度の推定に必要なサンプル量

汚染粒率 p の母集団から、サブサンプルとして n 粒を取り出したとき、その中に汚染粒が k 粒入っている確

Table 1. Probability of Occurrence of Aflatoxin Contaminated Kernels in a Subsample Taken from a Lot with Contaminated Proportion of 0.1% or 0.5% in Kernel Number

No. of contaminated kernels in subsample $k/200$ g ($n=500$)	Probability of k -occurrence $Pr\%$ *	
	Percentage of contaminated proportion in kernel number, p	
	0.1%	0.5%
0	60.6	8.2
1	30.3	20.5
2	7.6	25.7
3	1.3	21.4
4	0.2	13.4
5	0.0	6.7
6	0.0	2.8
7	0.0	1.0

* Probability of k -occurrence was calculated based on the formula,

$$Pr\% = \frac{n!}{k!(n-k)!} p^k (1-p)^{n-k} \times 100$$

率 $Pr\%$ は、二項分布法則に従うものと考えられ、確率式 $Pr\%$ は (1) 式で与えられる⁹⁾。

$$Pr\% = \frac{n!}{k!(n-k)!} p^k (1-p)^{n-k} \times 100 \quad (1)$$

ここで、著者¹⁰⁾及び Cucullu¹¹⁾らの報告では、通常 0.1~0.5% の汚染粒率のものに遭遇する機会が多いこと、また、それ以下の汚染粒率のものを追求しても偶然性に左右され、再現性に乏しく、再び汚染粒を捉えようとしても困難であることから、0.1% 以上のものを検索の対象とした。

Table 1 には、0.1% 及び 0.5% 汚染粒率について、500 粒を抜き取った場合、そのうち k 粒が汚染している確率を示した（通常汚染のよく見つけられるスパニッシュ種の落花生では、約 200 g に相当する）。

ここで、汚染粒率 0.1% ($p=0.001$) において、サブサンプルとして 500 粒 ($n=500$) を取り出したとき、汚染粒を 1 粒 ($k=1$) 取り出す確率は、 $Pr=30.3\%$ と計算され、さらに $k=2, 3, 4$ の場合、 Pr はそれぞれ 7.6, 1.3, 0.2% となり、1 粒以上 4 粒まで含まれる確率は、これらの合計 39.4% である。ここで初めの数回に及ぶ 500 粒ずつの抜き取りによっても、残った母集団中の汚染粒率に何ら影響を及ぼさないほど母集団の量が十分多いと考えると（通常、菓子製造には、何百 kg の単位で同一のロットが製造されるので、母集団としては十分量と考えてよい）、合計 3 つのサブサンプル、すなわち 3 回分 (500 粒×3) を抜き取ると、そのうち 1 回は汚染粒を

1粒以上取り出せる可能性が高い(確率 77.7%), 一方, $k=0$, すなわち, 1つのサブサンプル中に1粒も汚染粒を取り出さない確率は 60.6% と高く, 3回に2回は $k=0$ と考えられる。この $k=0$ の事象が連続して3回起きる確率は, 22.3% ($0.606^3 \times 100$) であり, 言い替えれば, この1回500粒のサブサンプルを3回くり返し, それを1組としたサンプル構成では, 5組のサンプル中, 1組には汚染粒が1粒も含まれないことになる(不検出率 20%)。

また, 汚染粒率 0.5% の場合, 1つのサブサンプルとして500粒取り出して, その中に1粒も汚染粒を取り出さない確率は 8.2% と小さく, 逆に1粒以上汚染粒の含まれている確率は 91.8% であるから, 10回抜き取っても9回は検出する。このような考え方から, 500粒(200g)内容のものであれば, 最低3回以上サブサンプルとして抜き取る必要がある。

2-2 汚染粒率の推定

二項分布式(1)において, 1粒も汚染粒を取り出さない場合, $k=0$ と置けば, そのときの確率は(2)式で表わされる。

$$Pr\% = (1-p)^n \times 100 \quad (2)$$

ここで, サブサンプルの粒数 n は実測できるから, (2)式の $Pr\%$ が明らかとなれば, 汚染粒率 p は算出できる。たとえば, 五つのサブサンプルのうち三つが検出し, 二つが不検出であれば, $k=0$ の確率を 40% (2/5) と考えて p を推定することができる。さらにすべてのサブサンプルから AF が検出された場合は, 汚染粒率は $(1/n) \times 100\%$ 以上であるが, ここで再度サンプリングをすることができれば, サブサンプルを適当な数に等分し, ミニサブサンプルを調製し同様に検査し, すべてのミニサブサンプルのうち1つでも不検出があれば, $k=0$ の確率が定まるから汚染粒率 p は推定できる。

3. 実験方法

3-1 分析試料の調製

3-1-1 1包装単位が 500 g~1 kg の場合

サンプルを粉碎せずに, 粒状のまま必要数に応じて等

分し (Scheme 1, 5等分の例を示した), サブサンプル 1~5 を調製し, それぞれ別々にカップ・ナイフ付のジュースミキサー (700 ml) で粉碎し, 1つのサブサンプル分を同一のポリエチレン製袋に入れよく混合し, それぞれのサブサンプルより同量ずつ分取し, 別の袋に入れ混合し, 統合サブサンプル 120~150 g を調製した(サンプルの代表とする)。

3-1-2 包装内容が 500 g 以下の場合

総量で 500 g 以上となるように, 数個のサブサンプルを収集し, 3-1-1 の場合と同様に, 別々に粉碎し, 同量ずつ分取し, 統合サブサンプル (サンプルの代表) を調製した。

3-2 アフラトキシンの定量

統合サブサンプルより 50 g を分取し, 環食第 128 号の方法により AF の試験をした。試料をメタノール:1% 食塩水 (55:45, v/v) 及び n -ヘキサンと共に抽出し, メタノール水層をクロロホルムで抽出後, クロロホルム抽出物を濃縮し, シリカゲルカラム (Kieselgel 60, Art 7734, Merck 社製, 10 g) に吸着させ, n -ヘキサン, エチルエーテルの順に洗い, クロロホルム:メタノール (97:3, v/v) にて溶出し, 溶媒を留去後, ペンゼン:アセトニトリル (98:2, v/v) に溶かし薄層クロマトグラフィー (TLC) 用試料とした。

TLC 分析には, 既製のプレート (Kieselgel 60, Art 5721, 20×20 cm Merck 社製) を使い, 試料と同時に AF B₁, B₂, G₁, G₂ 標準 (Makor 社製) をスポットし, クロロホルム:アセトン (9:1, v/v) で展開後, 365 nm の紫外線照射下に発する蛍光を, デンシトメトリーによって (島津 High Speed TLC Scanner CS-920) 比色定量した。

第1回目の分析で, AF が検出されなければ, 該当するサブサンプルはすべて AF は検出しないものとし (従ってサンプルも不検出と判定する), 1回目の分析で AF が検出されたら, もう一度統合サブサンプルより 50 g を取り, 2回目の分析を行い, 2回の平均値を以って統合サブサンプル及びサンプルの AF 汚染度とした。AF

Scheme 1. Sampling and analytical plan for aflatoxin analysis of grainy peanut and nut products

が検出された場合は、すべてのサブサンプルの AF を定量し、サブサンプル間の変動を調べると同時に、汚染粒率の推定を行った。

4. 実験結果及び考察

昭和56年及び57年に名古屋市より収集した落花生及びナッツ製品など144検体の調査で、AF が検出されたもののうち、詳しく追跡調査できた3例につきサブサンプル及び統合サブサンプルの AF 定量値並びに、汚染粒率の推定値を Table 2 に示した。

ロット No. 1 は、シリア産のスパニッシュ種で、保健所よりサブサンプル No. 1 及び2の2袋が当初搬入された。外観は、粒のまま穀粉に食塩など調味し、コーティングして焼いた加工品であった。この検体は、当初本調査計画に基づくサンプル量に満たなかったが、とりあえず2袋につき分析したところ AF B₁ 1580 ppb 検出された。直ちに行政当局に連絡し、追加のサブサンプル4袋 (Table 2, No. 3~6) を入手し検査した。6袋の AF B₁ は、不検出から 2040 ppb と広い範囲にばらつき、全平

均値は 418 ppb であった。行政当局により全該当ロットの回収命令が出された (昭和56年9月)。

汚染粒率の推定は、1粒の平均重量が 0.527 g であったので、1袋には約 300 粒が入っていたと計算される。そこで $n=300$ と置き、6回の検査のうち1回だけ不検出であったから、16.7% (1/6) が AF 汚染粒を1粒も含まなかった確率と考えれば、(2) 式は、 $16.7 = (1-p)^{300} \times 100$ となるから、 $p=0.0060$ すなわちこのロットの汚染粒率は 0.60% と推定された。

ロット No. 2 も No. 1 と同様の形態をした加工品であったが、原料豆はスーダン産のスパニッシュ種であった。この検体は、500 g 入り1袋 (サブサンプル No. 1) が保健所より搬入された、AF B₁ 41.9 ppb が検出された。しかし、この製品については、以前関係業態から同一のロットと思われる製品の依頼検査を当所において行い、その時は検出しなかったので、さらに詳しく調査するため 2 kg を追加入手し、これを4分して約 500 g のサブサンプルとし、AF の検査を行った。全サブサンプ

Table 2. Analytical Results of Aflatoxins in Subsamples and Combined Subsamples and Estimated Percentages of Contaminated Proportions in Kernel Number

Aflatoxin positive lot	Kernel weight (g)	No.	Net weight (g)	Subsamples		Combined subsamples				Estimated percentage of contaminated proportion in kernel number (%)		
				Aflatoxin (ppb)		Aflatoxin (ppb) [mean ppb]						
				B ₁	B ₂	B ₁	B ₂	B ₁	B ₂			
Lot No. 1												
Processed peanut	0.527 ±0.020	1	160	89.4	14.4	①	1440	135	[1580 141]		0.60	
flour coated and roasted		2	160	2040	204	②	1710	147				
Spanish type imported		3	160	nd	nd							
from Silia		4	160	3.9	0.3							
		5	160	60.9	8.6							
Lot No. 2												
Processed peanut	0.522 ±0.072	1	500	41.9	11.3	①	39.9	10.7	[40.0 9.0]		0.17	
flour coated and roasted		2	500	131	35.3	②	40.1	7.3				
Spanish type imported		3	510	nd	nd							
from Sudan		4	500	26.8	1.5							
		5	512	3.9	0.9							
Lot No. 3												
Pistachio nut salted and roasted	0.550 +0.110	1	83*	nd	nd	①	83.7	8.7	[88.8 12.8]			
imported from Iran		2	83	218	31.8	②	93.9	16.8				

* shelled and 55% of original weight

① first analysis ② second analysis

ルの平均 AF B₁ 汚染度は 40.0 ppb であり (範囲, 不検出から 131 ppb), 該当加工品の廃棄処分と, 保蔵原料豆約 6 トンにつき, 行政指導によって不良品の選別除去が行われた (昭和56年11月)。

このロットの汚染粒率は, 500 g が約 960 粒と換算されたから, $k=0$ の時の $Pr=20\%$ より, (2) 式は, $20=(1-p)^{960} \times 100$ となり, 汚染粒率 p は 0.17% と推定された。

ロット No. 3 は, イラン産のピスタチオナッツであり, 東京都の発表により検査したものであるが, 発表と同時に大部分は市場から回収されていて, 2袋のみ搬入されたので汚染粒率の推定は無理である。

これらの結果は, 0.1% 汚染粒率のものを検索の対象とした当初の計画と一致し, 本計画の実用性を示しているものと思われる。

理論の項でも少し触れたように, 0.1% 以下の汚染粒率のものを追跡するには, 本実験で行われたサンプル量の数倍以上を必要とするため, 0.1% 程度が実際には限度と考えられる。従って汚染粒率の推定で 0.1% 以上の計算値が得られ, AF B₁ の汚染度が 10 ppb を超えた場合にはじめて行政当局に連絡するなどの基準の設定も考えられる。すなわち, 500 粒づつの検査で, 5回検査した場合, 4回は不検出で1回検出したとすると, 汚染粒率は, 0.045% と計算される。一方2回検出し, 3回検出しないという場合は, 0.1% と計算される。従って, 5回の検査で2回以上検出すれば, 汚染粒率の推定値は 0.1% 以上となる。このように全統合サブサンプルの汚染度 (サンプルの汚染度) と汚染粒率の両方から一定の基準設定が, AF 汚染の判定の手段として有効と考えられる。本報では, 技術上 (サンプルの入手の面から) 0.1% を一つの目安としたが, AF の毒性の評価の中で, 今後 AF 汚染粒の局在性と発ガンの危険性との間に, 一定の相関性が見出されるなら, 0.1% の仮の提案基準は, 変更されるべきものと考えられる。

汚染粒率の推定に必要なサブサンプル数について少し考察すると, サブサンプル数が多ければ, それだけ正確な推定ができる。しかし, 本実験計画の原則である少量のサンプルという点で, 総量で 1 kg までと考えられ, 5~10 個のサブサンプルで推定せざるを得ない。ロット No. 2 のサンプルでは, 追加サブサンプルを製造元から入手できたので, 総計 2.5 kg のサンプルで判定したが, あまりよい応用例とは言えない。しかし, 行政処分の対象になる場合には, 特別に可能な限りサンプル量を多くする必要はある。

汚染粒率の誤差に関しては, もう一つ問題がある。(2) 式より, $k=0$ の確率は, $Pr\%$ の小さいときに, 少しの数の変化にも, 汚染粒率 p は大きく変動し, $Pr\%$ が大きくなるときわめて変動が小さくなる。たとえば, $n=500$ のとき, $k=0$ の確率が $Pr=20\%$ のとき, p は 0.32%, $Pr=50\%$ のとき p は 0.14%, $Pr=80\%$ のとき, p は 0.04% となることから理解され, 汚染粒率 p の推定誤差を少なくするには, サブサンプル数を多くすることと, $k=0$ の確率で, Pr の高いところで p を求める努力が必要である。

なお参考のため, 144 検体の AF 検出状況を Table 3 に示した。生の落花生は, 主に流通段階にある原料チェックのため, 加工品に AF が検出された場合, 関係業態の保蔵品を検査したものである。生の落花生28検体中, 10 ppb を超えた6検体と, 10 ppb 以下の3検体は, AF の検出された加工品の原料として保蔵されていたものであり, スーダン及びブラジル産のスパニッシュ種であった。ナッツ類では, 東京都衛生研究所の調査により, AF 汚染が明らかにされたものと同系統の輸入品と思われるイラン産のピスタチオナッツ1検体に AF が検出された。

サンプリング誤差に関する研究報告は, Whitaker¹²⁾ 及び Knüttli⁹⁾ らの他に, Stoloff^{13,14)}, Timstra¹⁵⁾, Schade¹⁶⁾ らの報告もあるが, Whitaker は負の二項分

Table 3. Analytical Results of Aflatoxin B₁ in Retailed Peanut and Nut Products (1981-1982)

Sample	No. of sample	No. of Aflatoxin positive sample (Range of contamination (ppb) mean value of positive)	
		AF B ₁ > 10 ppb	AF B ₁ ≤ 10 ppb
Peanut			
Raw	28	9 (14.8-482 138)	3 (tr-5.6 3.3)
Processed	75	7 (10.1-1,580 307)	2 (2.0-8.5 5.3)
Nut			
Pistachio nut	15	1 (88.8)	0
Others	26	0	0
Total	144	17	5

Table 4. Distribution of Subsample Weight

Sample	No. of subsample in weight range				
	$x \leq 100$	$100 < x \leq 200$	$200 < x \leq 500$	$500 < x \leq 1000$	$1000 < x \leq 2000$ g
Peanut					
Raw				20	8
Processed	2	35	29	9	
Nut					
Product	9	18	14		
Total	11	53	43	29	8

x : Net weight of subsample

布法則に基づいて、operating characteristic curve (OC 曲線) を作製し、消費者リスク及び生産者リスクを指標として、サンプリングプランの数量関係の評価した。そして、サンプルを大きくすることが、母集団の真の平均値に近づくことを述べている (12,000~35,000 粒について評価した⁶⁾)。我が国では、久井¹⁷⁾によって Whitaker の考え方が、1972~1976年の輸入落花生の検査データを基にして具体的に紹介された。それによれば、AF B₁ の真の母集団平均濃度が 5 ppb の場合、その中には、なお 10 ppb を超す部分 (ロット) が存在し、たとえ 10,000 粒抜き取って検査しても、その部分を 10 ppb 以下と判定する消費者リスクは 5.4% であるという。従って、AF 分布の不均一性が高い程、リスクは避け難い。

我が国では、輸入落花生に対して昭和46年3月、厚生省環食第132号の通達で、また輸入のナッツ類8種に対しては、56年9月環食第202号の通達で各港の検疫所・駐在官あてにサンプリング方法が示された¹⁸⁾。落花生では1ロットにつき1kg (大粒種で約1,000粒、小粒種で約3,000粒) がサンプル量として指定された。この量は、Whitaker らが必要と認めている 10,000 粒以上より少く、現在米国の食品工業界で実施されている48ポンドづつ、汚染段階別に3回サンプリングする方法¹⁹⁾、西ドイツで行われている 5 kg 法¹⁹⁾に比べると母平均を推定するには少な過ぎる。むしろ、定性的に AF 汚染をチェックする方法と理解される。従って、消費者リスクも 10,000粒以上サンプリングに比べて高く現われていると考えられるから、流通段階で再チェックする必要がある。一方、ナッツ類では、ロットの大きさにより、1~4.5 kg の抜き取りを指示しているが、米国で実施されている、ブラジルナッツ及びピスタチオナッツの30~60ポンドサンプリングに比べれば少い。本調査で汚染が明らかとなったロット No. 1, 2 は、この消費者リスクの部分をつめたものであろう。なお汚染ロット No. 3 (Table 2) のピスタチオナッツは、56年9月の規制設定以前の輸入品であった。

なお、理論の項で、200 g (500 粒) を代表例として説

明したのは、市販品では 200 g 前後の包装内容のものが最も多かったからであり、Table 4 に今回調査した検体の、サブサンプルの内容量の分布を示した。

最後に、この調査に用いたサンプリング方法は、落花生、ナッツに限定しなくとも、粒状が一定の重量、体積、形態を持ったものなら適用できるものと考えられる。そして、本研究のサンプリング方法の根拠として、二項分布法則に従ったが、ポアソン分布法則によっても、全く同様の数的評価のできることを確めた²⁰⁾。

本調査研究費の一部は、昭和56年度厚生省ガン研究助成金により行った。

終りに臨み、本研究に当り、御指導賜った国立予防衛生研究所・栗飯原景昭博士並びに国立衛生試験所・一戸正勝博士に深甚の謝意を表明します。なお、本研究の要旨は日本第17回マイコトキシン研究会 (1983年2月、東京) において発表した。

文 献

- 1) 厚生省食品衛生課、乳肉衛生課、食品化学課編：食品衛生研究 21, 564~567 (1971).
- 2) 同上：31, 915 (1981).
- 3) 山本勝彦、田村征男、森山繁隆、坂部美雄、青木良雄：名市衛研報。19, 127~132 (1972).
- 4) 山本勝彦、坪内春夫、久田和夫、坂部美雄：同上。26, 48~51 (1979).
- 5) Whitaker, T. B., Wiser, E. H.: J. Amer. Oil Chem. Soc. 46, 377~379 (1969).
- 6) Whitaker, T. B., Dickens, J. W., Wiser, E. H.: *ibid.* 47, 501~504 (1970).
- 7) Whitaker, T. B., Dickens, J. W., Monroe, R. J., Wiser, E. H.: *ibid.* 49, 590~593 (1972).
- 8) Knüttli, R., Schlatter, C.: Z. Lebensm. Unters. Forsch. 174, 122~128 (1982).
- 9) 依田 浩：“技術者の統計学” p. 81~84 (1961) 宝文館。
- 10) 山本勝彦、田村征男、坂部美雄、森山繁隆：名市衛研報。19, 47~52 (1972).
- 11) Cucullu, A. F., Lee, L. S., Mayne, R. Y., Gold-

- blatt, L. A.: J. Amer. Oil Chem. Soc. **43**, 89~92 (1966).
- 12) Whitaker, T. B., Dickens, J. W.: *ibid.* **51**, 214~218 (1974).
- 13) Stoloff, L., Campbell, A. D., Beckwith, A. C., Nessheim, S., Winbush, J. S. Jr, Fordham, D. M. Jr: *ibid.* **46**, 678~684 (1969).
- 14) Stoloff, L., Dantzmman, J., Wegner, J.: *ibid.* **49**, 264~266 (1972).
- 15) Tiemstra, P. J.: *ibid.* **46**, 667~672 (1969).
- 16) Schade, J. E., King, A. D., Mackey, B. E., Halbrook, W. V., Fuller, G.: *ibid.* **58**, 852~857 (1981).
- 17) 久井伸治: “公害と対策” **15**, 417~423 (1979).
- 18) 厚生省食品衛生課, 乳肉衛生課, 食品化学課編: 食品衛生研究 **31**, 913 (1981).
- 19) Campbell, A. D.: Pure Appl. Chem. **52**, 205~211 (1979).
- 20) 春田三佐夫: 食品検査ニュース **83-No. 1** (1983) 栄研化学(株)発行.