粒状農産物のマイコトキシン検査におけるサンプリング法に関する統計学的考察

山本 勝彦^{*1}

Statistical Consideration of Sampling Plan for Mycotoxin Test of Granular Agricultural Products

Katsuhiko YAMAMOTO

(Food Department, Nagoya City Public Health Research Institute:
1-11, Hagiya-cho, Mizuho-ku, Nagoya, Japan)

1. はじめに

世界の食用農産物のおよそ 25% はマイコトキシンによって何らかの影響を被っていると FAO が推定しているように、主要な穀類、豆類、種実類などは、ことごとくカビ汚染の前に晒されている。アフラトキシン（以下、AF と略す）の驚異的な発がん性の強さが明らかにされて以来、食品や飼料のマイコトキシン汚染に関する品質管理及び人畜などのマイコトキシンによる暴露状況の把握などは最も重要な課題の一つとして認識された。そして、これらのマイコトキシンに対する許容基準の設定、それに前後して幾多の分析法の開発及び改善がなされてきた。今日、マイコトキシンの中でも特に AF に対しては、世界で 50 に上る諸国が、食品及び飼料に何らかの規制を設けている。

しかし、一方では何十トンといった多量のロット（母集団）から構成される農産物のマイコトキシン汚染レベルを正確に把握するには、非常に難しい問題が残されている。

粒状の農産物のマイコトキシンは、同一のロット内でもごく少数の粒に非常に不均一に分布する。この不均一性は、サンプルの測定値からロットの汚染濃度を推定する際に、大きな変動を来す原因となることが知られている。したがって、このような農産物の生産者にとっては、適正なサンプリング法を定めることが基本的な課題となった。本格的には、世界の穀倉地帯といわれるアメリカ合衆国において取り組まれた。1971 年、ちょうど我が

国が初めて輸入の落花生とその加工品の AF 規制を設けた時期には、既に、多量のロットを検査する際のサンプリング法を統計学的に評価する研究が進められていた。

Whitaker らは、剥き身落花生^{1)~3)}及び脱穀したトウモロコシ⁴⁾の粒ごとの AF 濃度の出現率が、確率分布法則の一つである負の二項分布法則に従うことを見いだした。この負の二項分布法則から誘導した検査特性曲線（Operating Characteristic Curve; OC-曲線）を用いて、マイコトキシン検査の際のサンプリング法を評価する方法を考案した。著者は、彼らの報告と、それに呼応する諸国の研究者の報告に接するうちに、各国の検査法を一つのテーブルの上で、同じ物差しで比較することは、統計学上の考え方を一層理解しやすくなることに気づいた。

さらに、著者は、粒状の穀類、豆類及び種実類のマイコトキシン検査の際に必要なサンプルサイズを二項分布法則を用いて検討してきた。特にサンプル中の汚染粒の混在率（以下、汚染粒率と呼ぶ）とマイコトキシンを検出できる確率（以下、検出確率と呼ぶ）を想定して、必要なサンプル量を試算した。

ここでは、主としてマイコトキシンの各種農産物での粒汚染状況を述べ、これら二つの確率統計理論に基づいて、マイコトキシン検査の際のサンプリングの評価という観点から解説したい。

2. 豆類、穀類及び種実類のマイコトキシンの粒汚染状況

剥き身落花生における AF の粒汚染：表 1 に剥き身落花生の粒ごとの AF 汚染事例を示した。ロット 1 は

^{*1} 名古屋市衛生研究所：名古屋市瑞穂区萩山町 1-11

表 1. 不良品として選別された剥き身落花生粒中のアフラトキシン B₁ 量の分布

	ロット 1* ¹	ロット 2* ²	ロット 3* ³
全粒数 (%)	20 (100%)	330 (100%)	100 (100%)
AF 不検出粒数 (%)	8 (40.0%)	255 (77.3%)	78 (78.0%)
【AFB ₁ 量 X の検出範囲】			
A. $X \leq 0.5 \mu\text{g}/\text{粒}$			
検出粒数 (%)	1 (5.0%)	5 (1.5%)	14 (14.0%)
平均±標準偏差 $\mu\text{g}/\text{粒}$	0.174	0.273 ± 0.103	0.069 ± 0.052
範囲 $\mu\text{g}/\text{粒}$		0.117~0.397	0.008~0.164
B. $0.5 \mu\text{g} < X \leq 10 \mu\text{g}/\text{粒}$			
検出粒数 (%)	5 (25.0%)	25 (7.6%)	4 (4.0%)
平均±標準偏差 $\mu\text{g}/\text{粒}$	1.18 ± 0.42	4.46 ± 2.34	2.01 ± 0.73
範囲 $\mu\text{g}/\text{粒}$	0.50~1.5	0.64~7.89	1.20~3.00
C. $10 \mu\text{g} < X \mu\text{g}/\text{粒}$			
検出粒数 (%)	6 (30.0%)	45 (13.6%)	4 (4.0%)
平均±標準偏差 $\mu\text{g}/\text{粒}$	161 ± 150	55.8 ± 63.9	39.7 ± 33.9
範囲 $\mu\text{g}/\text{粒}$	18.9~418	11.2~341	13.4~97.0
比率: $\frac{C}{B+C}$	$\frac{1}{1.8}$	$\frac{1}{1.6}$	$\frac{1}{2}$

*¹: 文献 5); *²: 文献 6); *³: 文献 8) より引用

Cucullu⁹⁾らの報告によるもので、汚染ロットから選んだ 20 粒中 12 粒から AF が検出され AFB₁ の汚染量は $0.174 \mu\text{g}/\text{粒}$ (300 ppb)~ $418 \mu\text{g}/\text{粒}$ (1100 ppm) と広範囲に変動している。ロット 2 は、著者らが^{6), 7)}市販の落花生加工品の行政検査で見つけたスーダン産小粒種のものである。同一ロットの原料豆から不良粒を選別し、その 330 粒中 75 粒から AF が検出され、AFB₁ 汚染量は $0.117 \mu\text{g}/\text{粒}$ (390 ppb)~ $341 \mu\text{g}/\text{粒}$ (1140 ppm) の範囲にわたり、Cucullu の結果と一致している。ロット 3 は東京都衛生局の調査⁸⁾によるもので、100 粒の測定で 22 粒から AF が検出され、AFB₁ 汚染量は $0.008 \mu\text{g}/\text{粒}$ (1 粒を 0.4 g として、20 ppb)~ $97.0 \mu\text{g}/\text{粒}$ (243 ppm) と前の 2 ロットよりは汚染濃度は 1 桁低かったが、測定値の広がりはいずれも 5 桁にわたった。なお、表 1 には粒あたりの AFB₁ 汚染量 (X) 分布を $X \leq 0.5 \mu\text{g}$ 、 $0.5 \mu\text{g} < X \leq 10 \mu\text{g}$ 及び $10 \mu\text{g} < X$ の 3 区分に分けて示したが、これは後に述べる AF の定性分析評価のためのものである。

トウモロコシにおけるマイコトキシンの粒汚染: Shotwell ら⁹⁾によれば、カビ汚染した (主として *A. flavus*) トウモロコシ 140 粒のうち、16 粒に AFB₁+B₂ を 260 ppb~38 ppm 検出し、別の 12 粒からは、*Fusarium* 菌カビ毒であるゼアラレノンを 9.00 ppm~1700 ppm 検出した。さらに、別の調査では¹⁰⁾、51 粒中 42 粒に AF を検出し、それらの AFB₁+B₂+G₁+G₂ (以下、AF_{mix} と略す) 汚染濃度は 2 ppb~18.3 ppm であった。その他、Lee ら¹¹⁾も 198 粒中、62 粒に AFB₁ を 100 ppb~80 ppm の範囲で検出し、また、上村¹²⁾は、輸入の

ポップコーンに *Fusarium* 菌カビ毒であるデオキシニバレノール (以下、DON と略す) を検出し、汚染ロットから分離した 100 粒中、14 粒に DON を平均 8.14 ppm、範囲 0.06 ppm~44.94 ppm と 3 桁にわたって検出した。

小麦におけるマイコトキシンの粒汚染: 上村は¹²⁾、*Fusarium* 菌で汚染した国産の小麦 100 粒の DON の汚染調査をした。本菌で汚染した穂から分離した 59 粒から平均汚染濃度 4.8 ppm を検出し、範囲は 0.08 ppm~33.3 ppm であった。このように、粒ごとの汚染は 3 桁の濃度範囲で変動しているが、本事例のように汚染粒率が 59% と高いこと、一定重量試料中の粒数が落花生やトウモロコシの 20~30 倍になっていることなど、サンプルから見た汚染の不均一性は、同じ重量を比較すれば落花生よりは低いものと思われる。

その他粒状農産物の AF 粒汚染: Lee 及び Russel は¹³⁾綿実について調べ、24 粒についての AF 汚染濃度は 0.231 ppm~151.3 ppm の範囲であった。

以上のように、粒状農産物の不均一なマイコトキシン粒汚染事例を示したが、次にマイコトキシン汚染濃度を推定する際に、この不均一性がどのように影響するかを述べる。

3. ロットのマイコトキシン汚染濃度を推定する際の誤差の要因

Whitaker ら¹⁴⁾は、粒状の農産物のマイコトキシン検査のための一般的な分析の過程を、次の 3 段階に分けて、それぞれの過程から生ずる誤差の大きさを検討した。

図1. 剥き身落花生のアフラトキシン分析に伴う誤差の要因
— サンプルの平均値の測定に伴う変動係数の比較—

- (1) ロットからサンプルを分取する (サンプリング誤差).
- (2) サンプルを粉砕して微粒子となし, 粉砕したサンプルからその一部を取って分析用のサブサンプルとする (サブサンプリング誤差).
- (3) サブサンプルからマイコトキシンを抽出し, 分析上の妨害物質を除去した後定量する (分析誤差).

彼らは, 以上の3段階に生ずる誤差を, 29のAF濃度段階(3~111 ppb)の異なる市販の剥き落花生ロットを用いて, サンプルサイズ10,634粒, サブサンプルサイズ280g及び各サブサンプル抽出物の繰り返しAF定量などの条件を設定し, 延べ3,336回の分析を行った. これらの3つの要因のそれぞれについて, ロットのAF平均濃度 $\bar{X}$ に対する分散値(δ^2_x)を, 変動係数($CV\% = \sqrt{\delta^2_x}/\bar{X} \times 100$)に変換して, それぞれの誤差の要因を比較した. 図1に示したように, 汚染濃度の小さいほど, 3成分ともCVは大きくなる. 中でも, サンプリングによる誤差は, ロットが低濃度であるほど極端に大きくなるのが曲線から分かる. 例えば, 20 ppbのAF平均濃度のロットの場合, サンプリングによる変動係数は114%, サブサンプリングでは37%であったのに対して, 分析上の誤差は全濃度を通じて約22%と一定であった. このように, 剥き身落花生のAF汚染の例をあげて, ロットのマイコトキシン汚染を推定する際に, サンプリング誤差が最も大きな要因となることを示した. サンプルの測定値の変動はAF汚染のみならず, 他のマイコトキシンについても同様であることは, 第2節で述べ

た不均一な粒汚染の実態から推察できる. したがって, 検査対象となる品目の粒が大きくて, 一定量のサンプル中の粒数が少ないほど, サンプル中の汚染粒率が低下し, サンプリング誤差を大きくすることが分かる.

4. サンプリングを評価するための確率統計学上の考え方及び検査特性曲線

4.1 負の二項分布

これまでの, マイコトキシンの不均一な粒汚染が, ロットの汚染濃度を推定する際の分析値に極めて大きな変動を与えることを述べた. そこで, この変動が全くデタラメに発生するものではなく, ある一定の規則, 例えば統計学上の確率分布則に関連付けられているのではないかと, もしそうであれば, これらの変動を確率という物差しで評価できる. この変動の確率論から見た研究は, 落花生の大量生産国アメリカにおいて進められた. 後に我が国では, 久井¹⁵⁾がこれを初めて紹介した.

Whitaker らは^{1)~3)}, 20,000 ロットに及ぶ剥き身落花生のAF汚染データを基に, あるロットの落花生の粒ごとのAF汚染濃度(量) χ_a の出現する確立 P_a が, 確率密度関数の一つである負の二項分布法則に従うことを見出した. さらに, χ_a が $\chi_{a1}, \chi_{a2}, \chi_{a3}, \dots, \chi_{aN}$ というように, それぞれが, お互いに独立して出現する時, それらの総和($\chi_{a1} + \chi_{a2} + \chi_{a3} + \dots + \chi_{aN}$)の出現する確率もまた負の二項分布法則に従うとした(独立した事象の加成性). すなわち, このロットに対して($\chi_{a1} + \chi_{a2} + \chi_{a3} + \dots + \chi_{aN}$)は, N 粒から構成されるサンプルの一つに他ならない. そして, サンプル平均値 $\bar{\chi}_a = (\chi_{a1} + \chi_{a2} + \chi_{a3} + \dots + \chi_{aN})/N$ は, $N \cdot \bar{\chi}_a = (\chi_{a1} + \chi_{a2} + \chi_{a3} + \dots + \chi_{aN})$ と変形できるから, $N \cdot \bar{\chi}_a$ もまた負の二項分布に従う. 図2には複数のロット $L_a, L_b, L_c, \dots, L_m, L_n$ について, ロット及びサンプルの一般的な関係を示した. ここで, ロット中の粒の重量がすべて同じであれば χ_a は粒の汚染濃度, $N \cdot \bar{\chi}_a$ はサンプルの汚染濃度として表すことができる.

負の二項分布関数(確率密度関数)は次式で表される.

$$f(r) = \frac{\Gamma(r+Nk)}{r! \cdot \Gamma(Nk)} P^{Nk} \cdot Q^r \quad (1)$$

ただし,

$$P = \frac{k}{M+k}, \quad Q = 1-P$$

とする.

ここで,

$\Gamma(\)$ = ガンマ関数

M = ロットの真の平均濃度(量)

k = ロットごとに見られる個々の粒のAF濃度(量)に関する変動係数(M によって左右される),

Whitaker らは, 実験的に $k = (2.0886 + 2.3898 M) \times 10^{-6}$ なる関係式を得た.

N = サンプル中の粒数

$r = N \cdot \bar{\chi}$ (サンプル中のAF濃度(量); サンプルごと

ロット ロットの真のAF 粒中のAF濃度(量) N粒から成るサンプル中のAF濃度(量)
平均濃度(量)

L_a	M_a	x_a	$x_{a1} + x_{a2} + x_{a3} + \dots + x_{aN} = N \cdot \bar{x}_a$
L_b	M_b	x_b	$x_{b1} + x_{b2} + x_{b3} + \dots + x_{bN} = N \cdot \bar{x}_b$
L_c	M_c	x_c	$x_{c1} + x_{c2} + x_{c3} + \dots + x_{cN} = N \cdot \bar{x}_c$
$\vdots$	$\vdots$	$\vdots$	$\vdots$
$\vdots$	$\vdots$	$\vdots$	$\vdots$
L_m	M_m	x_m	$x_{m1} + x_{m2} + x_{m3} + \dots + x_{mN} = N \cdot \bar{x}_m$
L_n	M_n	x_n	$x_{n1} + x_{n2} + x_{n3} + \dots + x_{nN} = N \cdot \bar{x}_n$

図2. 負の二項分布に従う剥き身落花生の粒及びサンプル中のアフラトキシン濃度(量), ロット並びにロットの真の平均濃度の関係
 $\bar{x}$ = サンプルの平均AF濃度(量)

図3. 剥き身落花生のサンプルサイズの変化に伴う負の二項分布による確率密度曲線への影響
 $\bar{X}$: 規制値
 M_c : 平均汚染濃度
 N : サンプルサイズ

に変動する)

$\bar{x}$ = サンプルの全粒の平均濃度(量)

ここで, ガンマ関数など数学的な解説は, 著者の専門でないので, 剥き身落花生のAF分析に関連した説明をする。

4.2 負の二項分布関数から見たサンプリグサイズとAF規制値

前述の式(1)について, 剥き身落花生のサンプルサイズ(粒数)を変化させた場合, サンプルの測定値の出現率とAF規制値との関係を述べる。

今, 真の平均汚染濃度 M_c をもつロットから, 異なったサンプルサイズ, $N=1, 100, 1,000$ 及び $10,000$ 粒を各サンプルサイズについてそれぞれ繰り返し取り出し分析すると, サンプルの測定値の出現率は図3に示したようなグラフが描かれる。1粒ずつ取り出すと出現率は0付近に極めて多く集中し, 高い濃度の出現率は急速に減

少するが, 確率は0にはなかなか達しない。 $N=100$ 粒のサンプリグでは, 0付近に見かけ上のピークがあるが, 汚染濃度が増すにつれて, 広い範囲にわたって徐々に出現率が減少する。したがって, この程度のサンプル量からは, 全く偶然にしか M_c に近い測定値は得られない。100粒といった少数のサンプルでは, サンプル中に取り込まれるAF汚染粒の絶対数が減少し, 汚染粒を全く抜き取らない確率の増加と, 低濃度に汚染した粒だけを取り出す確率の増加により0付近の確率が高まる。粒数を1,000粒に増すと, サンプルの測定値は M_c を中心に分布するようになる。しかし, この程度の少数では, その変動幅は4桁にも達する。10,000粒でも時には, 2桁の変動幅の見られることがある。サンプルサイズの多いほど, 変動幅は狭くなって, 正確なロットの汚染濃度の推定ができる。これらの実測例としては, Knutti 及び Scatler らの剥き身落花生のAF汚染¹⁰⁾, ならびに上村の小麦のDON汚染に関する報告¹²⁾がある。

次に確率密度曲線とAF規制値との関連について述べる。

【ロットの真のAF平均汚染濃度が規制値 $\bar{X}_{s1}$ を越えている場合: $M_c > \bar{X}_{s1}$ 】

本来, このロットは, すべて拒否されるべきものであるが, 例えば, $N=100, 1,000$ 及び $10,000$ で描かれる確率密度関数と, 規制値 $\bar{X}_{s1}$ について横軸上に立てた垂線との交点A, B及びCよりも左側(AF濃度の規制値 $\bar{X}_{s1}$ より低い側)に相当する曲線の部分は, これらのサンプルサイズで, サンプルの分析値が $\bar{X}_{s1}$ より低く出現する確率を意味するから, そのロットが誤って受け入れられる確率となる。すなわち, 交点A, B及びCより左側の確率密度曲線と横軸の間に挟まった面積が, 誤って受け入れられる確率といえる。このことを消費者リスクと言う。原則的には $N=100 > N=1,000 > N=10,000$ の順に消費者リスクが大きい。

【ロットの真の平均AF汚染濃度 M_c が規制値 $\bar{X}_{s2}$ を越

図4. 検査特製曲線 (OC-曲線) と消費者リスク及び生産者リスク

えていない場合: $M_c \leq \bar{X}_{s2}$ 】

図3において、規制値 $\bar{X}_{s2}$ から立てた垂線と $N=100, 1,000$ 及び $10,000$ のサンプルサイズの確率密度曲線との交点を D, E 及び F とすると、その交点より右側 (AF の高濃度側) の曲線部分が、このサンプルサイズで測定する時、規制値 $\bar{X}_{s2}$ を越えたかのように出現する確率であり、 $\bar{X}_{s2}$ を越えたこれらの曲線部分と横軸との間に挟まった面積の割合が誤って拒否される確率の総和に相当する。このことを生産者リスクと言う。図3は説明のために単に曲線が重ならないように図案化してあるので、図から得られる絶対値は真の数字とは違って描かれている。

4.3 検査特性曲線

今、 M なる AF 平均濃度をもつロットに対し、サンプルサイズ N 及び AF 規制値 $\bar{X}_s$ の条件で検査をすると、ロットを受け入れる確率の総和は、確率密度関数 $f(r)$ を 0 から $\bar{X}_s$ までの間について積分した累積確率に等しい。この累積確率を $P(M)$ で示すと、 $P(M)$ は $f(r)$ の確率分布関数として式 (2) で表される。

$$P(M) = \sum_{r=0}^{N\bar{X}_s} f(r) \quad (2)$$

ここで、 M については、 $0 \sim \infty$ まであらゆるロットを想定して、段階的に $M=1, 2, 3, 4, \dots, \infty$ というようにシミュレートし、順次 $P(1), P(2), P(3), \dots, P(M_\infty)$ をコンピューターで計算する。縦軸に $P(M)$ 値を横軸に M 値 (ロットの真の平均汚染濃度) をプロットすると図4のようなシグモイド曲線が描かれる。この確率分布曲線のことを検査特性曲線 (OC-曲線) と呼んでいる。そして、 N 及び $\bar{X}_s$ は、検査の条件として定められるから、 M を $0 \sim \infty$ までシミュレートすることによって、その試験法

に特有の OC-曲線が求められる。ここで $M=0$ であれば、そのロットは当然全部受け入れられるから、 $P(M)=1$ (または 100%) となる。ロットの M が 0 から規制値 $\bar{X}_s$ までの間、すなわち、あるロットの真の AF 平均濃度 M_c が $M_c \leq \bar{X}_s$ (M は真の AF 平均濃度の一般的な総称で、 M_c はそのうちある特定の値を指す) の範囲であれば、すべて受け入れられるはずであるが、そのロットから分取したサンプルの測定値から合否を判定するので、ある確率で規制値 $\bar{X}_s$ を越えたとして拒否されてしまう。この誤った判定、すなわち生産者が良い品物を悪いと判定されて受ける経済的損失を、生産者リスクと呼んでいる (図4の左半分の斜線を引いた部分の確率に相当する)。一方、 M_c が規制値 $\bar{X}_s$ を越えている場合、これらのロットはすべて拒否されるべきであるが、ある確率で受け入れられ、消費者が食することによって肉体的な損害を被る危険性がある。この誤って受け入れられる確率を消費者リスクと呼んでいる (図4の右半分の斜線の部分の確率に相当する)。OC-曲線は、規制が厳しくなればなるほど ($\bar{X}_s$ の値が小さくなる) 0 濃度の方向に移動し、また、サンプルサイズが多くなるほど曲線がシグモイド (S) から垂直なクランク型 (L) へと変化する (誤った判定をされる確率、両リスクに相当する面積が小さくなる)。

4.4 検査特性曲線を用いたサンプリング法評価のための統計指標

存在する全ロット L が、定められた規制値 $\bar{X}_s$ とサンプルサイズ N の条件で検査を受けると、受け入れられる確率は式 (2) で求められる。

ここで、あらかじめ真の AF 平均濃度 M を持つロットの比率を $f(M)$ とすると、 L のうち真の平均値 M を持つロット数は、 $L \cdot f(M)$ となる。実際に、 $f(M)$ は、サンプルサイズ N を数万粒というように大きくした場合に、非常に多くのロットの実態調査の積み重ねによって近似値的に得られる。 N 粒の検査で規制値 $\bar{X}_s$ 以下として受け入れられるロット数は、 $L \cdot f(M) \cdot P(M)$ であるから、 M があらゆる濃度 $0 \sim \infty$ を取り得ることから、 L のうち受け入れられるロット数 L_a は、式 (3) で表される。

$$L_a = \sum_{M=0}^{\infty} L \cdot f(M) \cdot P(M) \quad (3)$$

この L_a の中には、真の AF 平均濃度が規制値 $\bar{X}_s$ を越えたものも一部受け入れている。

L_a のうち、ロットの真の AF 平均濃度 M_c が規制値 $\bar{X}_s$ を越えていない範囲 ($M_c \leq \bar{X}_s$)、すなわち、良いロットが良いとして受け入れられるロットの総数 (GL_a) は、式 (4) で表される。

$$GL_a = \sum_{M=0}^{M_s} L \cdot f(M) \cdot P(M) \quad (4)$$

また、悪いロットが良いとして受け入れられる消費者リスクに相当するロット数 (BL_a) は、式 (5) で表される。

$$BL_a = \sum_{M_c + \Delta}^{\infty} L \cdot f(M) \cdot P(M) \quad (5)$$

ここで Δ は、 M_c をわずかに上回る AF 濃度で $M_c + \Delta$ が規制値 $\bar{X}_s$ を越えるとして検出可能な最小の値を意味する (図 3 では $M_c + \Delta$ は $\bar{X}_{s1}$ 及び $\bar{X}_{s2}$ のわずかに右側にあることを意味する)。

拒否される良いロット数 (GL_r)、すなわち生産者リスクに相当するものは、式 (6) で表される。

$$GL_r = \left[\sum_{M=0}^{M_c} L \cdot f(M) \right] - GL_a \quad (6)$$

ここで

$$\left[\sum_{M=0}^{M_c} L \cdot f(M) \right]$$

は、存在するすべての良いロット数を表す。

ある真の AF 平均濃度 M を持つロットのうち、検査結果から受け入れられるロットの数にそれぞれのロットに対応する M 濃度を乗ずると、受け入れられるロットの AF 濃度が推定される [式 (7)]。

$$M \cdot L \cdot f(M) \cdot P(M) \quad (7)$$

ここで、 M の取り得る値 $0 \sim \infty$ について積分すると、受け入れられるロット L_a の総 AF 量 (AF × ロットの総合したもの) が求められる。これを受け入れられる全ロット L_a で除すると、受け入れられる全ロットの AF 平均濃度 A が得られる [式 (8)]。

$$A = \sum_{M=0}^{\infty} M \cdot L \cdot f(M) \cdot P(M) / L_a \quad (8)$$

この A について、検査前と検査後と比較することによって、その検査法の効果が明らかとなる。

5. 各国の AF 検査のためのサンプリング法の評価

5.1 サンプリング法の評価に用いる AF 汚染落花生モデル

1989 年に Whitaker らは、30,000 ロットから構成されるアメリカの剥き身落花生の AF 分布モデルを J. of A.O.A.C. に報告した¹⁷⁾。それまで、それぞれの国で自国の検査法の評価は行われていたが、ここでは、同じ AF 汚染落花生モデルを用いて、一つのテーブルでの比較を試みた。本モデルは、USDA で実施された剥き身落花生の AF 検査のためサンプルサイズ 21.6 kg を 3 回測定という多量のサンプルから得られた測定データを基にしている。十分信頼性のあるモデルである。

5.2 OC-曲線の作成

USDA 法 (United States Department of Agriculture Plan): アメリカ合衆国における食品の AF の許容濃度は、 AF_{mix} として 20 ppb 以下とされている。剥き身落花生のサンプルサイズは、1 ロット当たり 45 トン以内とし、4 袋につき 1 袋を対象とし、合計 65 kg, 21.8 kg を 3 回サンプリングする。分析はサンプル全粒粉砕法を用い、初めの第 1 サンプルを検査し、 AF_{mix} として 12 ppb 以下なら受け入れ、60 ppb を越えていたら拒否す

る。その間の場合は、第 2 のサンプルを分析し、第 1 と 2 のサンプルの平均値が 17 ppb 以下なら受け入れ、30 ppb を越えていれば拒否する。その間ならば第 3 のサンプルを分析し、3 サンプルの平均値が 20 ppb 以下なら受入、越えていれば拒否する。このように全ロットの 70% 以上を占める非汚染品や低濃度汚染品を 1 回の検査で終了させ、汚染の疑いのあるロットについて第 2 及び第 3 のサンプルで詳しく検査する。OC-曲線は報告の中から引用した。

オランダ法: De Koe¹⁸⁾ の報告によれば、一般食品の規制値は AFB_1 として 5 ppb とされており、特に輸入の落花生に対しては AFB_1 3 ppb 以下としている。サンプルサイズは、1 ロット 25 トン以内とし、大粒種 (1 オンス 60 粒以下) は 10 kg を 4 回、小粒種 (1 オンス 60 粒を超えるもの) は 5 kg を 4 回それぞれサンプルとする。分析はサンプル全粒粉砕法を用い、4 回の検査すべてが AFB_1 3 ppb 以下の時受け入れる。本法による OC-曲線の作成は、Whitaker の報告に示された $P(M)$ 表を使用した。その際、アメリカの落花生 AF 分布モデルが AF_{mix} の濃度で表されているので、 AFB_1 3 ppb 以下の規制値を、 AF_{mix} 5 ppb 以下としての規制値に変換した (De Koe の示した回帰式: $AF_{mix} = AFB_1 \times 1.76$ から AF_{mix} 5.3 と計算した)。サンプルサイズは $N=12,500$ 粒 (小粒種として 5 kg) とし、Whitaker の報告から $P(M)$ を算出し、4 サンプルが同時に $AF_{mix} < 5$ ppb となる同時生起確率 $[P(M)]^4$ を計算した。

TPI 法 (Tropical Products Institute Plan): Jewers¹⁹⁾ によれば、イギリスの剥き身落花生の AF 検査法は、1 ロットを 20 トン以内とし、3.5 kg を 3 回サンプリングする。許容基準は AF_{mix} 30 ppb 以下とされている。 $P(M)$ の算出は、サンプルサイズ 10.5 kg (小粒種 26,520 粒とし)、Whitaker の $P(M)$ 表から計算した。

我が国の方法: 麻袋入りロットの 90 袋から 1 kg をサンプリングし、50 g を分析する。検出限度 AFB_1 として 10 ppb の分析法で、検出しなければ受け入れる。

OC-曲線の作成は、厚生省 STAC 研究班の報告²⁰⁾の $P(M)$ 表から計算した。サンプルサイズは、1 kg 全粒粉砕しその 50 g を分析する方法 (以下 1 kg 粉砕分析法と呼ぶ) に対しては $N=2,500$ (小粒種)、粒のまま 50 g を 1 回だけ分析する方法 (以下 50 g 粒分析法と呼ぶ) は 125 粒とした。AF 規制値は、 AF_{mix} として 16 ppb 以下とした (同研究班の報告、回帰式 $AF_{mix} = 1.281 \times AFB_1 + 3.658$ より、 AF_{mix} 16.5 を算出)。

以上の四つの方法の検査特性曲線を図 5 に示した。単に規制値のみから見かけ上の厳しさを見ると、オランダ法 (AFB_1 3 ppb) > 日本法 (AFB_1 10 ppb) > USDA 法 (AF_{mix} 20 ppb) > TPI 法 (AF_{mix} 30 ppb) の順である。OC-曲線から見た厳しさはオランダ法 > USDA 法 > TPI 法 > 日本法の順となる。特に我が国の方法は、他の国の

図5. 各国の剥き身落花生のアフラトキシン検査のための検査特性曲線

方法に比べ極めてサンプルサイズが小さいので、汚染ロットを受け入れる確率が高い。例えば、真の平均濃度 60 ppb のもので、50 g 粒分析法では 91.2% を受け入れ、1 kg 粉碎分析法では、49.3% を受け入れる。TPI 法は 16.4% を、USDA 法は 0.2% を受け入れるが、オランダ法は 30 ppb のものでも全く受け入れない。

5.3 各国の AF 検査法に対する統計指標とその評価

表 2 には、4.4 で述べた統計指標を示した。アメリカの 30,000 ロットの検査前の平均 AF_{mix} 汚染濃度は 6.55 ppb であった。USDA 法では、93.5% (L_a) を受け入れ、消費者リスク (BL_a) は 1.8%、生産者リスクは 1.4% となった。両リスクはバランスが保たれている。受け入れられる全ロットの平均 AF 濃度は AF_{mix} で 3.06 ppb となり、検査前の 53.3% が減毒される。

オランダ法は全ロットの 68.6% が受け入れられ、消費者リスクは 1.3%、生産者リスクは 7.7% と大きく消費者保護に傾いている。受け入れられる全ロットの平均 AF_{mix} は 0.63 ppb となり、90.4% が減毒される。

イギリスの場合、95.8% が受け入れられ、消費者リスクは 1.3%、生産者リスクは 1.9% となり、受け入れられる全ロットの平均 AF_{mix} 濃度は 3.81 ppb で、41.8% が減毒される。

我が国の場合、50 g 粒分析法では (表 2; 日本 I) 99.1% が受け入れられ、消費者リスクは 9.1%、生産者リスクは 0.4% と生産者保護に偏っている。受け入れられる全ロットの平均 AF_{mix} 濃度は 4.99 ppb となり、23.8% が減毒される。1 kg 粉碎分析法は (日本 II)、94.9% が受け入れられ、消費者リスクは 6.7%、生産者

リスクは 2.1% となって、受け入れられる全ロットの平均 AF_{mix} 濃度は 4.13 ppb となり、36.9% が減毒される。なお、我が国が落花生を輸入する場合、輸入時の検査では 50 g 粒分析法が行われ、そこで受け入れられたものが消費地に回ってから、再び地方自治体などの検査でチェックされている。その際、200 g~1 kg のサンプルサイズで分析されているので、最高 1 kg で計算すると、94.2% が受け入れられ、消費者リスクは 6.4%、生産者リスクは 2.6%、受け入れられる全ロットの平均 AF_{mix} 濃度は 4.01 ppb となって、38.8% の減毒効果が得られる。

5.4 トウモロコシ及び落花生の検査における AF 汚染ロットの分布と OC-曲線の比較

表 3 には、Whitaker らの報告^{4), 17)}から、トウモロコシ及び剥き身落花生のアメリカにおける AF 汚染分布モデルの抜粋と、 AF_{mix} 許容濃度 20 ppb、サンプルサイズ 4.54 kg とした時の $P(M)$ 値を示した。トウモロコシでは、1,000 ロットのうち許容濃度 20 ppb を越える 739 ロットが存在するが、真の平均汚染濃度 18 ppb では 100% 受け入れられ、30 ppb のもので 21.9% が受け入れられ、40 ppb では全く拒否されることが示されている。一方、落花生の分布モデルでは、30,000 ロット中 20 ppb のロットが 180 あり、そのうち 64% が受け入れられる。トウモロコシならば拒否されるはずの 40 ppb の汚染ロットでも落花生では 40 ppb の 27 ロットのうち 40.6% が受け入れられる。このように、トウモロコシの方が、落花生よりもサンプリング誤差が少ないことから、第 2 節で述べたように、粒汚染濃度範囲は落花生と同様の変動幅が存在するが、汚染率の低いロットの存在が少ないことがうかがわれ、トウモロコシの方が、落花生より検査結果の不一致が少ないと言える。

6. 二項分布法則によるマイコトキシンの定性分析に必要なサンプルサイズの推定

これまででは、多量から構成されるロット全体の汚染濃度の評価という観点からサンプルサイズを論じてきた。そして、我が国の剥き身落花生などのサンプルサイズ 1 kg は、決してロット全体の汚染濃度を推定するために設定されたものでないことが示された。それでは、1 kg サンプルサイズが、どのような意味を持つか、定性試験という立場から考えてみよう。

6.1 我が国の剥き身落花生 AF 試験法の汚染率から見た検出限度

剥き身落花生は、通常小粒の品種のもので約 0.4 g、大粒種で約 0.85 g である。1 kg 中には、それぞれ 2,500 粒及び 1,176 粒含まれる。第 1 節で述べたように AF 汚染は 1 粒中の汚染レベルが極めて高いものが含まれており、1 粒で何 kg かのサンプルを規制値以上に汚染しているかのように見せてしまう。すなわち、小粒種では、2,500 粒に 1 粒 (0.04%)、大粒種では 1,176 粒に 1 粒

表 2. アメリカの刺き身落花生モデルロットに対するアフラトキシン検査における各国のサンプリングプランの評価

検査実施国 (計画名)	AF 規制値 (ppb)	検査 1 回分の サンプリング量	U.S. モデルロット ロット数 検査前平均 汚染濃度 AF _{mix} ppb	L _a 受け入れ (%)	GL _a 良 品 受け入れ (%)	BL _a 不良品 受け入れ (%)	L _r 拒 否 (%)	GL _r 良 品 拒 否 (%)	BL _r 不良品 拒 否 (%)	L _a 時の AF 平均濃度 AF _{mix} として ppb (減毒率%)
アメリカ 合衆国 (USDA)	AF _{mix} *1 ≤ 20	21.8 kg × 3 (65 kg)	30,000 6.55	93.5	91.7	1.8	6.5	1.4	5.1	AF _{mix} 3.06 (53.3%)
オランダ	AFB ₁ ≤ 3 (AF _{mix} ≤ 5.3*2)	5 kg × 4 (小粒種) 10 kg × 4 (大粒種) (20 または 40 kg)	同 上	68.6	67.3	1.3	31.4	7.7	23.7	0.63 (90.4%)
英 国 (TPI)	AF _{mix} ≤ 30	3.5 kg × 3 (10.5 kg)	同 上	95.8	94.5	1.3	4.2	1.9	2.3	3.81 (41.8%)
日 本 I	AFB ₁ ≤ 10 (AF _{mix} ≤ 16.5*3)	1 kg 中 50 g を 粒のまま分析	同 上	99.1	90.0	9.1	0.9	0.4	0.5	4.99 (23.8%)
日 本 II	同 上	1 kg を粉碎 50 g を分析	同 上	94.9	88.2	6.7	5.1	2.1	3.0	4.13 (36.9%)
日 本 I ⇒ II	同 上	I, II 連続分析	同 上	94.2	87.8	6.4	5.8	2.6	3.2	4.01 (38.8%)

*1: AF_{mix} = AFB₁ + B₂ + G₁ + G₂; *2: De Koe の試算した回帰式 AF_{mix} = 1.76 × AFB₁ による; *3: 久井らの試算した回帰式 AF_{mix} = 1.281 × AFB₁ + 3.658 による

表 3. トウモロコシ及び剥き身落花生のアフラトキシン検査特性曲線

ロットの真の 平均汚染濃度 M AF_{mix} ppb	トウモロコシ (U.S. モデルロット) サンプルサイズ (4.54 kg)			剥き身落花生 (U.S. モデルロット) サンプルサイズ (4.54 kg)		
	分布ロット数	分布率 $f(M)\%$	$P(M)$	分布ロット数	分布率 $f(M)\%$	$P(M)$
0	350	35	1.000	15,000	50	1.000
5	20	2.0	1.000	800	2.7	0.975
10	16	1.6	1.000	430	1.4	0.860
15	13	1.3	1.000	270	0.90	0.710
18	12	1.2	1.000	210	0.70	0.668
20	11	1.1	0.952	180	0.60	0.640
25	8	0.8	0.563	90	0.30	0.536
30	6	0.6	0.219	55	0.18	0.487
35	5	0.5	0.120	36	0.12	0.411
40	3	0.3	0.000	27	0.09	0.404
50	2	0.2	0.000	17	0.06	0.340
全 1,000 ロット				全 30,000 ロット		

ただし、許容濃度を AF_{mix} 20 ppb として計算した

表 4. 我が国における剥き身落花生のアフラトキシン検査における検出確率

サンプル サイズ	汚染粒率	検出できる確率%		汚染粒率	検出できる確率%	
		小粒 (0.4 g/粒)	大粒 (0.85 g/粒)		小粒 (0.4 g/粒)	大粒 (0.85 g/粒)
50 g 粒の まま分析	A			C		
	1 粒中 AFB_1 として 500 ng 以上汚染 されている粒 の比率%			1 粒中 AFB_1 として 500 ng 以上汚染 されている粒 の比率%		
	0.10	11.8	5.7	0.18	20.2	10.1
	0.50	46.6	25.6	0.90	67.7	41.3
1 kg を粉 砕その 50 g を分析	B			D		
	A の時、1 粒 中 AFB_1 と して 10 μ g 以上汚染され ている粒の比 率%			C の時、1 粒 中 AFB_1 と して 10 μ g 以上汚染され ている粒の比 率%		
	0.056* ¹	75.1 (6.4)* ²	48.2 (8.5)	0.10* ¹	91.8 (4.5)* ³	69.2 (6.9)
	0.278* ¹	99.9 (2.1)	96.2 (3.8)	0.50* ¹	100 (1.5)	99.7 (2.4)

*¹: 表 1 の汚染粒率の実測値から、A 及び C は通常 B 及び D の 1.8 倍多く存在するから、A:B=1.8:1、及び C:D=1.8:1 によって補正した。例えば、本表 4 の A における汚染粒率 0.1% は、B の 0.056% に相当する。

*²: それぞれ対応する汚染粒率について、A に対する B の検出できる確率の倍率を示す。例えば、75.1% は 11.8% の 6.4 倍を意味する。

*³: *²の場合と同様に、C に対する D の倍率を示す。

(0.085%) 以上の高濃度汚染粒が存在するかどうか、汚染粒率から見た定性的検出限界となる。

また、粒のまま 50 g を分析してよしとする考え方もあり、この場合では、小粒種で 125 粒、大粒種で 59 粒となって、それぞれ 125 粒に 1 粒 (0.8%) 及び 59 粒に

1 粒 (1.7%) が、汚染粒率から見た検出限界となる。したがって、これら両者のような少サンプルサイズでは、検出でき得るに足る AF に汚染された粒のサンプル中での混在率が重要となり、汚染粒率 (C_p) とサンプルサイズ (N) の関係から、検出できる確率 (P_r) を論ずることがで

きる。

本目的には二項分布法則が適当と考えられるので、 C_p , N 及び P_r に一定の条件を与えて、それらの関係を推計して見よう。

ロット内の粒の重量がすべて同一と仮定し、汚染粒率 (C_p) のロットから N 粒をサンプリングし、その中に汚染粒を k 粒を取り出す確率は式 (9) で表される。

$$P_r\% = \frac{N!}{k!(N-k)!} \times C_p^k (1-C_p)^{(N-k)} \times 100 \quad (9)$$

ここで、サンプル中に 1 粒以上の汚染粒が存在する時、必ず検出できるとすれば、AF が検出される確率は、 k が 1, 2, 3, ..., N 粒まで取り出される確率の総和である。すなわち、検出確率は式 (10) で表される。

$$\sum_{k=1}^N P_r\% \quad (10)$$

本確率式を使用して我が国の剥き身落花生の AF 検査におけるサンプルサイズについて、サンプル中の汚染粒率を基準に、検出確率 (AFB_1 として 10 ppb 以上) を求めた。

50 g 粒分析法では、指定された分析法の量的関係から換算して、500 ng を越えた AFB_1 で汚染した粒を 1 粒以上 50 g のサンプル中に取り出した時、検出するものとした ($AFB_1 > 10$ ppb)。

1 kg 粉砕分析法では、同様の検出限度 ($AFB_1 > 10$ ppb) を得るには、1 粒当たり 10 μ g を越えた AFB_1 で汚染されている必要がある。

同じ汚染粒率という表現をしても、1 粒中の汚染量が 500 ng を越えるものなのか 10 μ g を越えるものなのかを区別しなければならない。500 ng を越える粒といえ、当然 10 μ g を越える汚染粒も含むので、同じロットあるいはサンプル内の汚染粒率を比較すれば、500 ng 超過粒の方が汚染粒率は高くなる。

このことについて第 2 節の表 1 に戻って検討する。同一ロット内で 500 ng を超過する粒の混在比と 10 μ g を超過する粒の混在比を比較すると、三つのロット事例から見ると平均 1.8:1 [(B+C):C] となっている。したがって、500 ng 超過粒の汚染粒率を 0.1% 及び 0.5% とすると、実際には、10 μ g 超過粒の汚染粒率は、1/1.8 を乗じてそれぞれ 0.056% 及び 0.278% 程度になっていると推定される (表 4 の A 及び B)。

この場合、500 ng を超過する粒の汚染粒率が 0.1% (10 μ g 超過粒では 0.056%) で、小粒種では 50 g 粒分析法で検出確率は 11.8% に対して、1 kg 粉砕分析法で 75.1% となって、後者の方が 6.4 倍検出確率が高くなる。大粒種ではそれぞれ 5.7% 及び 48.2% となって、1 kg 粉砕分析法が 8.5 倍検出確率が高い。

同様の考え方で、10 μ g を超過する粒の汚染粒率を 0.1% 及び 0.5% とすると、500 ng 超過粒では、0.18%

表 5. 定性試験に必要な粒状農産物のサンプルサイズ^{*1}

品 目	1 粒の重量 (g)	サンプルサイズ (g)
【穀 類】		
トウモロコシ	0.32	800
ポップコーン	0.13	325
ジャイアントコーン	0.87	2,175
小 麦	0.032	80
大麦, 蕎麦	0.025	62.5
米	0.023	57.5
【種実類】		
アーモンド	1.20	3,000
ピスタチオ		
殻 付	1.0	2,500
可食部	0.55	1,375
【豆 類】		
落花生		
小粒種	0.4	1,000
大粒種	0.85	2,125
小 豆	0.10	450

*1: 全粒粉砕分析法を使用し、各品目の汚染粒率を 0.1% とした場合、1 kg の小粒種落花生の検出確率 91.8% に相当する検出確率を得るに必要なサンプルサイズを言う。

検出確率 91.8% とは、同一のロットから 1,000 回サンプリングを繰り返し分析したとき、918 回は検出するという結果を得る確率を言う。

及び 0.9% に相当する (表 4 の D と C)。

10 μ g を超過する粒の汚染粒率を 0.1% とすると、1 kg 粉砕分析法では、小粒種の検出確率は 91.8%、50 g 粒分析法では 20.2% となり、前者の方が 4.5 倍検出確率が高い。大粒種では、1 kg 粉砕分析法が 69.2%、50 g 粒分析法が 10.1% となって、前者の方が 6.9 倍検出確率が高い。著者の調査では²¹⁾、1974 年～1984 年の全国の衛生研究所などの落花生とその加工品の AF 汚染調査で、1,868 件中 46 件 (2.46%) に、10 ppb を越える AFB_1 を検出している。これらは、ほとんどが 200 g～1 kg をサンプルサイズとし、全粒粉砕して分析しているので、50 g 粒分析法による消費者リスクの部分の捕らえているものと思われる。

6.2 豆類、穀類及びナッツ類の汚染粒率を 0.1% とした時の定性試験に必要なサンプルサイズ

0.1% の汚染粒率を持つ小粒落花生 1 kg 粉砕法の検出確率を 91.8% とし、それぞれの粒状農産物品目のサンプル中に 1 粒以上汚染粒を取り出す検出確率を求めた (表 5)。この場合、各品目のマイコトキシンの粒汚染実態は、落花生ほど詳しく明らかにされていないので、汚染濃度に関する条件付けは行わず、汚染粒を取り出す確率のみに注目した。

本検出確率と同様の効果を期待するには、表 5 に示し

たように、トウモロコシ 800 g、小麦 80 g、アーモンド 3,000 g、ビスタチオ（殻付）2,500 g が必要である。一粒の重量が小さい粒ほど、サンプルサイズは少なく済むようであるが、米や麦のような小さな粒の品目では、繰返し分析のことも考慮して 200～300 g は必要である。

7. おわりに

農産物のマコトキシン汚染濃度を、多量から構成されるロットについて推定する上で、いかにしてロットの性質を正確に代表するサンプルを入手すべきかということが品質管理の面では重要な課題の一つである。単に多くのサンプルサイズを取れば良いかと言うと、技術的及び経済的な制約が存在する。この 20 年間、主にアメリカで取り組まれた成果は、小粒落花生のサンプルサイズとして 1 サンプル当たりおよそ 50,000 粒を 3 回取り、段階的に検査する方法に収束しつつある。本方法は、ロット全体を評価するに適しており、消費者に対しても、あるいは生産者に対しても公正に対処できるとして定着している。一方、貿易上の問題として、世界的に統一した規制を求められる中、非常に厳しい規制を設けているオランダに対しては、J. of A.O.A.C.¹⁷⁾に抗議の意味合いを含めた報告が掲載されている。この点我が国の方法は貿易摩擦を起こすことは有り得ない。

現在、世界の趨勢では、剥き身落花生の AF 検査のためのサンプルサイズは、ロット 1 トンについて 0.5 kg が一般的に認められている²²⁾。この比率から我が国のサンプルサイズを求めれば、1 kg が代表できるロットは 2 トンと算出される。この比率は以前著者が、汚染の予測されるものほど母集団を小さくする必要があると主張した²³⁾ことと一致する。50 g はわずかロット 100 kg を代表するにすぎない。

さて、我が国は、食糧や飼料の多くを外国からの輸入に頼らねばならない。多量のロットを港に保管して時間をかけて詳しく検査するのは現実的ではなく、汚染があるかどうかを迅速に検査することが望まれる。したがって、剥き身落花生 1 kg のサンプルサイズは適当と思われるが、このサンプルサイズは、約 0.1% 程度の汚染粒率を検出限度とする定性分析の意味を持つとも考えられる。0.1% の汚染粒率では、小粒種で 91.8% の検出確率が得られる。すでに、トウモロコシ及びビスタチオについては 1 kg 粉碎分析法が厚生省から指示されている。したがって、1 kg 全粒粉碎しその一部を分析し、分析値がサンプル 1 kg を代表するように改めることがより信頼性を高めるものと考ええる。

謝 辞

本稿をまとめるに当たり、資料の入手にご助力いただきました国立衛生試験所衛生微生物部第三室長 一戸正勝博士に深謝致します。

文 献

- 1) Whitaker, T. B., Wiser, E. H.: J. Amer. Oil Chem. Soc. **46**, 377～379 (1969).
- 2) Whitaker, T. B., Dickens, J. W., Wiser, E. H.: *ibid.* **47**, 501～504 (1970).
- 3) Whitaker, T. B., Dickens, J. W., Monroe, R. J., Wiser, E. H.: *ibid.* **49**, 590～593 (1972).
- 4) Whitaker, T. B., Dickens, J. W.: J. Assoc. Off. Anal. Chem. **66**, 1055～1058 (1983).
- 5) Cucullu, A. F., Lee, L. S., Mayne, R. Y., Goldblatt, L. A.: J. Amer. Oil Chem. Soc. **43**, 89～92 (1966).
- 6) 山本勝彦, 坪内春夫, 久田和夫, 坂部美雄: 食衛誌. **24**, 396～402 (1983).
- 7) 山本勝彦: 環境管理技術 **3**, 576～584 (1985).
- 8) 東京都衛生局: 各種食品におけるカビ及びカビ毒汚染防止対策に関する調査研究実施結果, 149～153 (1989).
- 9) Shotwell, O. L., Goulden, M. L., Bothast, R. J., Hesseltine, C. W.: Cereal Chem. **52**, 687～697 (1975).
- 10) Shotwell, O. L., Goulden, M. L., Hesseltine, J. W., Dickens, J. W., Kwolek, W. F.: *ibid.* **57**, 206～208 (1980).
- 11) Lee, L. S., Lillehoj, E. B., Kwolek, W. F.: *ibid.* **340**～**343** (1980).
- 12) 上村 尚: Fusarium 菌の産生するマイコトキシンに関する研究 (学位論文) 50～55 (1986).
- 13) Lee, L. S., Russel, T. E.: J. Amer. Oil Chem. Soc. **58**, 27～29 (1981).
- 14) Whitaker, T. B., Dickens, J. W.: J. Amer. Oil Chem. Soc. **51**, 214～218 (1974).
- 15) 久井伸治: 公害と対策 **15**, 417～423 (1979).
- 16) Knüttli, R., Schlatter, C.: Z. Lebensm. Unters. Forsch. **174**, 122～128 (1982).
- 17) Whitaker, T. B., Dickens, J. W.: J. Assoc. Off. Anal. Chem. **72**, 644～648 (1989).
- 18) De Koe, W.: J. Assoc. Off. Anal. Chem. **73**, 809～813 (1990).
- 19) Jewers, K.: Res. Soc. Health J. **102**, 114～118 (1982).
- 20) 厚生省 STAC 研究班: 食品の衛生検査における統計的手法の改善に関する研究, 輸入落花生の AF 検査のためのサンプリングに関する研究 (1978).
- 21) 山本勝彦: フードケミカル, **5**, 78～87 (1988).
- 22) Mycotoxins, Economic and Health Risks: Reporting No. 116, Nov., **58** (1989), Council for Agricultural Science and Technology.
- 23) 山本勝彦: マイコトキシン, No. 26, 7～12 (1987).