

ヨウ化メチル、フッ化スルフルル及びリン化水素くん蒸 に対する野菜類の耐性

内藤浩光・青木美愛子・山田邦彦

横浜植物防疫所調査研究部

Studies on Tolerance of Fresh Vegetables to Methyl Iodide, Sulfuryl Fluoride and Phosphine Fumigation. Hiromitsu NAITO, Mieko AOKI and Kunihiro YAMADA (Research Division of Yokohama Plant Protection Station, 1-16-10 Shin-Yamashita, Naka-ku, Yokohama, 231-0801, Japan). *Res. Bull. Pl. Prot. Japan* **47**: 49-55 (2011).

Abstract: To confirm the quality tolerance of fresh vegetables to methyl iodide, sulfuryl fluoride and phosphine fumigation, seven vegetables were fumigated with methyl iodide at 15°C with 0.1 (0.05) kg/l of loading at 48.5 mg/l for 3 hours, with sulfuryl fluoride at 15°C with 0.1 (0.05) kg/l of loading at 50 mg/l for 24 hours and with phosphine at 15°C with 0.1 (0.05) kg/l of loading at 2 mg/l for 24 hours, respectively. In methyl iodide fumigation, no chemical injury was observed on cauliflower, spinach and brussels sprouts, while clear symptoms of chemical injuries were observed on parsley, string beans and podded peas. In sulfuryl fluoride fumigation, clear symptoms of chemical injuries were observed on all vegetables after seven days of fumigation. In phosphine fumigation, no chemical injury was observed on broccoli, string beans, podded peas and brussels sprouts, and slight injury was observed on cauliflower and parsley. Phosphine has great potential for an alternative to methyl bromide for fresh vegetables.

Key words: fumigation, vegetable, injury, methyl iodide, sulfuryl fluoride, phosphine

緒 言

臭化メチルは、「オゾン層を破壊する物質に関するモントリオール議定書」においてオゾン層破壊物質に指定され、その製造、消費及び貿易が規制されている。検疫用途の臭化メチルの使用については、規制した場合の植物類の国際貿易に与える影響、臭化メチル代替消毒技術の開発状況などを考慮して、規制対象から除外されているものの、国際植物防疫条約の植物検疫措置に関する委員会（CPM-3）において、植物検疫措置における臭化メチル代替消毒技術への転換、臭化メチル使用量の削減等を加盟国の国家植物防疫機関に推奨する勧告が採択されている（IPPC, 2008）。我が国では、検疫用臭化メチルの使用量を削減するため、穀類、木材、木材こん包材等を対象に、ヨウ化メチル、フッ化スルフルル、リン化水素等による臭化メチル代替消毒技術の開発試験を行ってきた。青果物を対象とする開発した消毒技術には、二十世紀ナシ生果実に対する庫外投薬機を使用したリン化アルミニウムくん蒸（松岡ら、2002；相馬ら、2002）、クリに対するヨウ化メチルくん蒸（相馬ら、2005）がある。

相馬ら（2007）は、より広範な臭化メチル代替消毒技術開発の基礎試験として、ヨウ化メチル及びリン化水素による各種の果実類、野菜類の障害発生状況について調査し、リン化水素くん蒸で障害が認められたモモ、イチゴは、ヨウ化メチルくん蒸では障害が認められず、両薬剤を使い分けることで多品目の青果物を対象に臭化メチルの代替消毒

技術となり得る可能性があることを示唆した。

また、フッ化スルフルルについては、これまで穀類害虫、木材害虫を対象としたくん蒸試験は行われているものの、青果物を対象としたくん蒸試験が実施されておらず、青果物に与える影響について調査されていない。

そこで、相馬ら（2007）の調査に追加する形でいくつかの野菜を対象に、ヨウ化メチル及びリン化水素くん蒸が適用できるか調査するとともに、フッ化スルフルルくん蒸による障害の発生状況を調査した。

材料及び方法

1. 供試作物

供試した野菜の品目は、年間の消毒件数が一定以上あり相馬ら（2007）で未調査のもの、年間の消毒件数は少ないがくん蒸に対する耐性が低いと考えられるものとして、カリフラワー（花茎、福岡県産）、パセリ（茎葉、茨城県産）、ブロッコリー（花茎、香川県産）、ホウレンソウ（茎葉、千葉県産）、サヤインゲン（莢果：未成熟、沖縄県産）、サヤエンドウ（莢果：未成熟、鹿児島県産）及びメキャベツ（小球茎、静岡県産）の7品目とし、くん蒸前日に市場から入手した。

2. くん蒸剤及びくん蒸条件

使用したくん蒸剤は、ヨウ化メチル（ CH_3I 、以下「MI」）、フッ化スルフルル（ SO_2F_2 、以下「SF」）及びリン化水素（ PH_3 、以下「PH」）とし、対照として臭化メチル（ CH_3Br 、

以下「MB」を使用した。

試験区のくん蒸条件は、MIは48.5mg/l、3時間、PHは2mg/l、24時間、SFはこれまでの貯穀害虫、木材害虫に対する殺虫試験の結果から、卵を除き多くの害虫を殺虫できると考えられる50mg/l、24時間とした。対照として行ったMBは、青果物に対する輸入検疫処理基準である48.5mg/l、3時間とした。くん蒸温度は15℃、収容比はパセリのみ0.05kg/l、その他の野菜は0.1kg/lとした。

3. くん蒸

入手した野菜類は、くん蒸前日から15℃に設定したくん蒸実験室で保管し、温度順化した後くん蒸に供試した。くん蒸は、くん蒸実験室に設置した内容積約30ℓの亚克力製くん蒸箱（ガス投薬孔、ガス採取孔、かく拌用小型ファン、ガス排出孔及び温度測定装置装備）を用い、供試作物を約3kg（パセリのみ約1.5kg）収容し、MIはバイアルビンに入った純度99%以上の液体を、SFはボンベに充填された濃度99.5%のガス体を、PHはボンベに充填された濃度約10%（窒素充填）のガス体を、MBはバイアルビンに入った純度99%以上の液体からガス体を所定量採取して、くん蒸箱に注入することにより行った。

くん蒸中、MI、MB及びSFはかく拌用小型ファンによりくん蒸箱内をかく拌し、PHは投薬30分後にくん蒸箱の上下に配管、接続した小型の空気環流ポンプにより3分程度くん蒸箱内の混合ガスを循環し、かく拌した。くん蒸中のガス濃度は、MI及びMBは投薬15、30分後、1、2及び3時間後（開放時）にガスクロマトグラフ（FID装備GC-2014島津製）により、SF及びPHは投薬1、2、4及び24時間後（開放時）にガスクロマトグラフ（TCD装備GC-2014島津製）により測定した。くん蒸中の温度は、自動温度記録装置（Hybrid Recorder AH、チノ製）により測定した。

所定のくん蒸時間が経過した後、ガス排出装置に接続したガス排出孔から1時間排気した。

4. 障害調査

排気終了後、供試作物をキムワイブを敷いたプラスチック製容器に収容し、上面もキムワイブで覆い、10℃、60% RH、全暗で保管した。

障害調査は、MI及びMBの3時間くん蒸においては、くん蒸翌日を1日後、SF及びPHの24時間くん蒸においては、くん蒸終了日を1日後とし、外観調査（変色、斑点、萎凋、腐敗）、重量測定を1、3及び7日後に、食味調査を3日後に、切開調査（内部の変色）を3及び7日後に行った。

外観調査及び切開調査の結果は、対照区と比較して、障害の発生が認められないもの（○）、軽度の障害の発生が認められたもの（△）、中程度の障害の発生が認められたもの（▲）、重度の障害の発生が認められたもの（●）の4つに分けた。

食味試験は、3点識別法により行い、対照区と比べ有意差のなかったもの（○）、有意差のあったもの（▲）とした。

結果及び考察

1. くん蒸中のガス濃度、ガス残存率及びガス収着量

4品目について、MB及びMIでくん蒸した場合のガス濃度の経時変化をFig. 1.に、SF及びPHでくん蒸した場合のガス濃度の経時変化をFig. 2.に示した。また、くん蒸終了時のガス残存率及びくん蒸中のガス収着量をTable 1.に示した。なお、サヤインゲンのSF及びPHくん蒸では、ガスクロマトグラフが不調であったため24時間後のガス濃度を測定することができず、ハウレンソウのSF及びPHくん蒸では、所定の投薬量であることが確認できなかった。

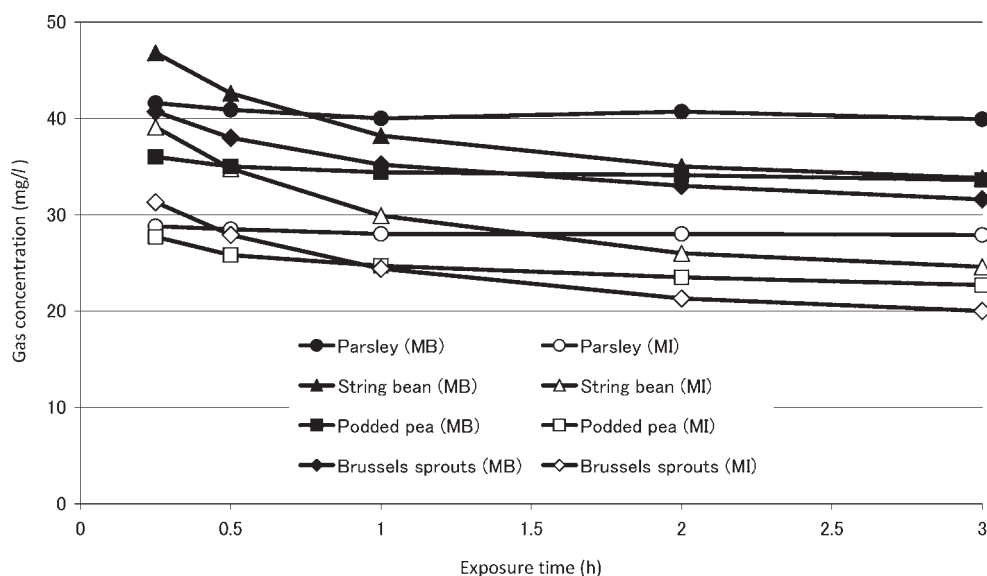


Fig. 1. Progressive gas concentration for fresh vegetables fumigated at 48.5mg/l of methyl iodide and methyl bromide for 3 hours at 15℃ with 0.1 kg/l and 0.05 kg/l (parsley only) loading.

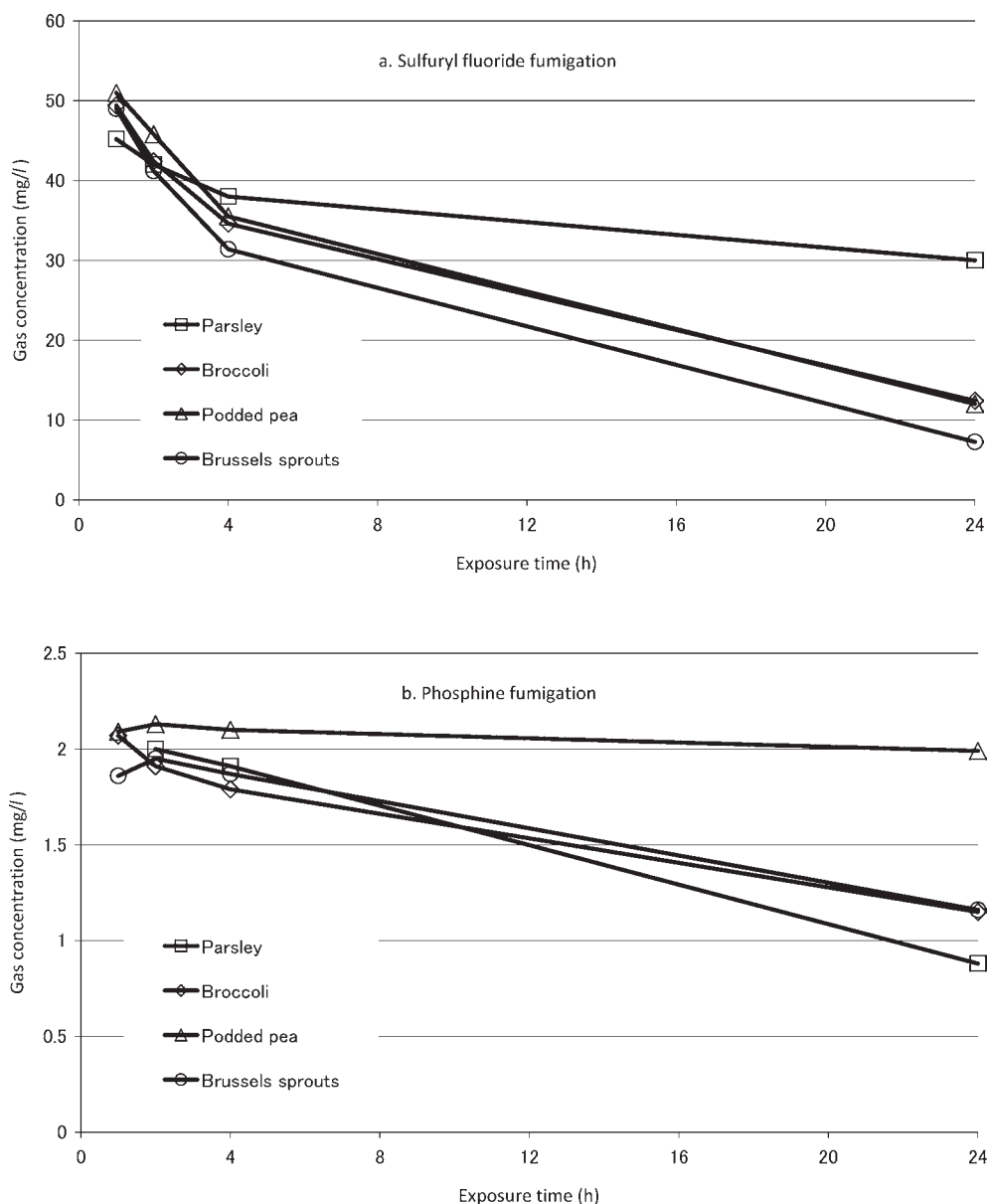


Fig. 2. Progressive gas concentration for fresh vegetables fumigated at 50 mg/l of sulfuryl fluoride and 2 mg/l of phosphine for 24 hours at 15°C with 0.1 kg/l and 0.05 kg/l (parsely only) loading.

くん蒸中のガス濃度をみると、MB及びMIによるくん蒸 (Fig. 1.) では、全体的にMIのガス濃度が低く、両薬剤の品目ごとのガス濃度の減衰傾向はほぼ同じであり、減衰曲線は平行となった。サヤインゲン、投薬15分後のガス濃度がMB、MIとも7品目中でも最も高くなり、MBで投薬量の約96%、MIで約80%のガス濃度を示し、その後減衰した。メキャベツは、くん蒸15分後のガス濃度が、MBで投薬量の約84%、MIで約65%とサヤインゲンよりも低く、その後減衰した。サヤエンドウは、投薬15分後のガス濃度がMBで投薬量の約75%、MIで約57%と最も低くなったものの、その後のガス濃度の減衰は少なかった。パセリは、収容比を他の品目の半分としたが、投薬15分後のガス濃度がMBで投薬量の約85%、MIで約60%とサヤインゲンより低く、その後はサヤエンドウと同様ガ

ス濃度の減衰は少なかった。くん蒸中ガス濃度が減衰するのは、くん蒸ガスが被くん蒸物に収着するためである。この「収着」は、くん蒸初期にくん蒸剤が被くん蒸物の表面に引きつけられ薄い膜となって存在し平衡状態となる「吸着」と、くん蒸中、被くん蒸物内部に浸透したくん蒸剤が継続的に化学変化を起こす「吸収」の両者からなる。したがって、MIはMBに比較して、くん蒸初期の吸着が多いものと考えられる。

SFによるくん蒸 (Fig. 2a.) では、収容比0.1 kg/lでくん蒸したブロッコリー、サヤエンドウ及びメキャベツではほぼ同様の変化を示し、投薬1時間後のガス濃度は約49～51 mg/lと投薬量とほぼ同じであったが、その後減衰を続け、くん蒸終了時約10 mg/lとなった。収容比0.05 kg/lでくん蒸したパセリは、投薬1時間後で投薬量の約90%と低

Table 1. Residual gas ratios, gas sorption ratios, and CT values in methyl iodide, methyl bromide, sulfuryl fluoride and phosphine fumigation at 15°C.

Commodities	MB 48.5 mg/l·3 hrs		MI 48.5 mg/l·3 hrs		SF 50 mg/l·24 hrs		PH 2 mg/l·24 hrs	
	Residual gas ratio ¹⁾ %	Gas sorption ratio ²⁾ mg/kg/h	Residual gas ratio ¹⁾ %	Gas sorption ratio ²⁾ mg/kg/h	Residual gas ratio ¹⁾ %	Gas sorption ratio ²⁾ mg/kg/h	Residual gas ratio ¹⁾ %	Gas sorption ratio ²⁾ mg/kg/h
Cauliflower	68.0	51.7	45.2	88.7	50.8	10.3	75.0	0.21
Parsley	82.3	57.3	57.5	137.3	60.0	16.7	45.0	0.93
Broccoli	66.6	54.0	43.5	91.3	24.8	15.7	60.0	0.35
Spinach ³⁾	65.4	56.0	47.2	85.3	—	—	—	—
String beans ⁴⁾	69.7	49.0	50.7	79.7	—	—	—	—
Podded peas	69.3	49.7	46.8	86.0	24.0	15.8	100.0	0.00
Brussels sprouts	65.2	56.3	41.2	95.0	14.5	17.8	58.0	0.35

¹⁾ Residual gas ratio=100×gas concentration at the end of fumigation (mg/l)/applied dose (mg/l)

²⁾ Gas sorption ratio=(1-residual gas ratio)×applied dose (mg/l)/loading ratio (kg/l)/fumigation period (h)

³⁾ Targeted dose was not obtained in sulfuryl fluoride and phosphine fumigation.

⁴⁾ Residual gas ratio and gas sorption ratio were not able to be calculated because of missing gas concentration at the end of fumigation in sulfuryl fluoride and phosphine fumigation.

かったものの、くん蒸終了時は30 mg/lと他の品目より高かった。ほぼ同じ投薬量のMBとSFのガス濃度の減衰状況を比べた場合、MBの1時間後のガス濃度が投薬量の約70～80%なのに対し、SFの1時間後のガス濃度は投薬量の約90%以上であり、SFはMBよりも野菜類に対するくん蒸初期の吸着が少ないと考えられる。ただ、SFの4時間後とMBの3時間後のガス濃度がいずれも投薬量の60～80%と同程度であることを考えると、その後の収着はMBよりもSFが多い可能性がある。

PHによるくん蒸 (Fig. 2b.) では、最初の2回の測定値 (投薬1及び2時間後) でばらつきが見られるが、これは投薬後30分に行った空気環流ポンプによるガスのかく拌状況の差が影響したものと考えられた。投薬2時間後以降のガス濃度は、サヤエンドウであまり減衰がみられなかったのに対し、パセリ、ブロッコリー、メキャベツではガス濃度の減衰が続いた。パセリは、他の品目の半分の収容比にもかかわらず、ブロッコリー、メキャベツとほぼ同じガス濃度を示したことから、PHを収着しやすいものと考えられた。また、PHは、4時間後でもガス濃度が投薬量の約90%以上となったことから、SFよりも野菜類に対する収着が少ないと考えられた。

くん蒸終了時のガス残存率をみると (Table 1.)、3時間くん蒸のMIとMBでは、収容比の小さいパセリを除けばMIで約40～50%、MBで約65～70%とMIで低くなり、品目ごとではあまり変わらなかった。24時間くん蒸のSFとPHのガス残存率は、SFで約14～60%、PHで約45～100%であり、MI及びMBに比べてばらつきが見られた。相馬ら (2007) では、MI 48.5 mg/l、3時間及びPH 2 mg/l、24時間、15°C、0.1 kg/lの条件で野菜類をくん蒸した場合、ガス残存率が最も低かったのは、MIのオクラで50.1%、PHのアスパラガスで73.0%であったが、今回

MIではカリフラワー、ブロッコリー、ハウレンソウ、サヤエンドウ、メキャベツで、PHではパセリ、ブロッコリー、メキャベツで、これを下回った。これは、相馬ら (2007) では主に果菜類を供試したのに対し、今回は葉茎菜類を供試したため、被くん蒸物の表面積が大きく、くん蒸ガスの収着が多くなったためと考えられる。SFについても葉茎菜類を供試したことからの収着が多かったことが考えられるが、メキャベツでSFのガス残存率が14.5%と低いものの、PHではガス残存率58.0%となるなど、SFとPHで異なる傾向を示した。

各くん蒸剤のガスの収着量 (mg/kg/h) を計算したところ (Table 1.)、MBでは49.0～57.3 (mg/kg/h) と野菜の種類により大きな差はなかったのに対し、MIでは79.7～137.3 (mg/kg/h) となり、パセリの収着量が多かった。SFの収着量は10.3～17.8 (mg/kg/h) となり、カリフラワーで少なく、PHの収着量は0.00～0.93 (mg/kg/h) となり、パセリの収着量が多かった。

以上の結果、MI、SF、PHの野菜類に対する収着性は、MIがMBよりも高く、SFがMBより低く、PHは、4種くん蒸剤の中で最も低いことが確認された。また、パセリは、MI及びPHを収着しやすいものと考えられた。

2. MI及びMBくん蒸による障害の発生状況

MI及びMBくん蒸による障害調査の結果をTable 2.に示した。

MIくん蒸区では、カリフラワー、ハウレンソウ及びメキャベツでは7日後まで外観、内部とも障害の発生はなかった。一方、ブロッコリーでは3日後まで外観、内部とも変化はなかったが、7日後に茎葉部に萎凋が認められた。パセリは、3日後から刈り取った茎の切断面の褐変が多数みられた。サヤエンドウは、3日後一部の莢果の表面

Table 2. Chemical injuries of fresh vegetables fumigated with methyl iodide and methyl bromide at 15°C¹⁾.

Commodities	MB 48.5 mg/l · 3 hrs						MI 48.5 mg/l · 3 hrs					
	1 day	3 days			7 days		1 day	3 days			7 days	
	Skin	Skin	Pulp	Taste ²⁾	Skin	Pulp	Skin	Skin	Pulp	Taste ²⁾	Skin	Pulp
Cauliflower	○	○	○	○	△	○	○	○	○	○	○	○
Parsley	○	△	—	○	△	—	○	△	—	▲	▲	—
Broccoli	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	△	○
Spinach	○	○	—	○	○	—	○	○	—	○	○	—
String beans	△	▲	△	○	▲	△	△	▲	△	▲	●	▲
Podded peas	○	○	○	○	○	○	○	△	△	○	▲	▲
Brussels sprouts	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○

¹⁾ Chemical injury was evaluated after storing for 1, 3 and 7 days at 10°C.

Degree of chemical injury: ○: no injury △: slight injury ▲: medium injury ●: heavy injury

²⁾ Sensory test was conducted by boiling for 1-2 minutes after storing 3 days at 10°C.

○: not significantly different ▲: significantly different

Table 3. Chemical injuries of fresh vegetables fumigated with sulfuryl fluoride and phosphine at 15°C¹⁾.

Commodity	SF 50 mg/l · 24 hrs						PH 2 mg/l · 24 hrs					
	1 day	3 days			7 days		1 day	3 days			7 days	
	Skin	Skin	Pulp	Taste ²⁾	Skin	Pulp	Skin	Skin	Pulp	Taste ²⁾	Skin	Pulp
Cauliflower	○	△	○	○	▲	○	○	○	○	▲	△	○
Parsley	○	▲	—	○	▲	—	○	○	—	○	△	—
Broccoli	○	△	○	▲	▲	○	○	○	○	○	○	○
String beans	△	△	△	▲	▲	▲	○	○	○	○	○	○
Podded peas	○	△	○	○	●	▲	○	○	○	○	○	○
Brussels sprouts	○	○	○	○	△	△	○	○	○	○	○	○

¹⁾ Chemical injury was evaluated after storing for 1, 3 and 7 days at 10°C.

Degree of chemical injury: ○: no injury △: slight injury ▲: medium injury ●: heavy injury

²⁾ Sensory test was conducted by boiling for 1-2 minutes after storing 3 days at 10°C.

○: not significantly different ▲: significantly different

に斑点症状が現れ、子実の一部にも褐変が認められ、7日後には、表面の斑点症状が進行し全莢果の1/3程度に認められた (Fig. 3)。サヤインゲンでは、1日後から表面の一部に褐色の斑点が認められ、3日後には表面全体に広がり、7日後にはすべての莢果に褐変の症状が出るとともに (Fig. 3)。内部についても3日後以降湯浸症状が認められた。

MBくん蒸区では、ブロッコリー、ホウレンソウ、サヤエンドウ及びメキャベツで、7日後も障害の発生はなかったが、カリフラワーで7日後に茎葉部の黄変、パセリで3日後以降MIくん蒸区と同様刈り取った茎の切断面の褐変が認められた。サヤインゲンでは、1日後一部に褐変が認められ、3日後褐変したものが増加するとともに表面の一部が萎凋したものが認められ、7日後には半分程度の莢果に褐変の症状が出た。なお、1日後から内部に湯浸状の症状を示すものがあった。

食味調査の結果、MIくん蒸区のパセリ及びサヤインゲ

ンで有意差が認められ、特にサヤインゲンでは臭気が味覚に影響したものと考えられた。MBくん蒸区では有意差の認められたものはなかった。

これら障害の発生状況は、MIとMBではほぼ同様の傾向を示したが、サヤインゲン、サヤエンドウの7日後の障害の発生状況は、MBで無～中程度であったのに対し、MIでは中～重度であった。

3. SFくん蒸による障害の発生状況

SFくん蒸による障害の発生状況を Table 3. に示した。なお、ホウレンソウについては、所定の投薬量であることが確認できなかったため記載しなかった。

カリフラワーは、3日後から可食部に褐変が認められ、花茎に付着する葉も変色萎凋し、7日後まで進行した。パセリは、1日後刈り取った茎の切断面がわずかに変色し、3日後になると変色が進むとともに、茎葉部が萎凋し全体

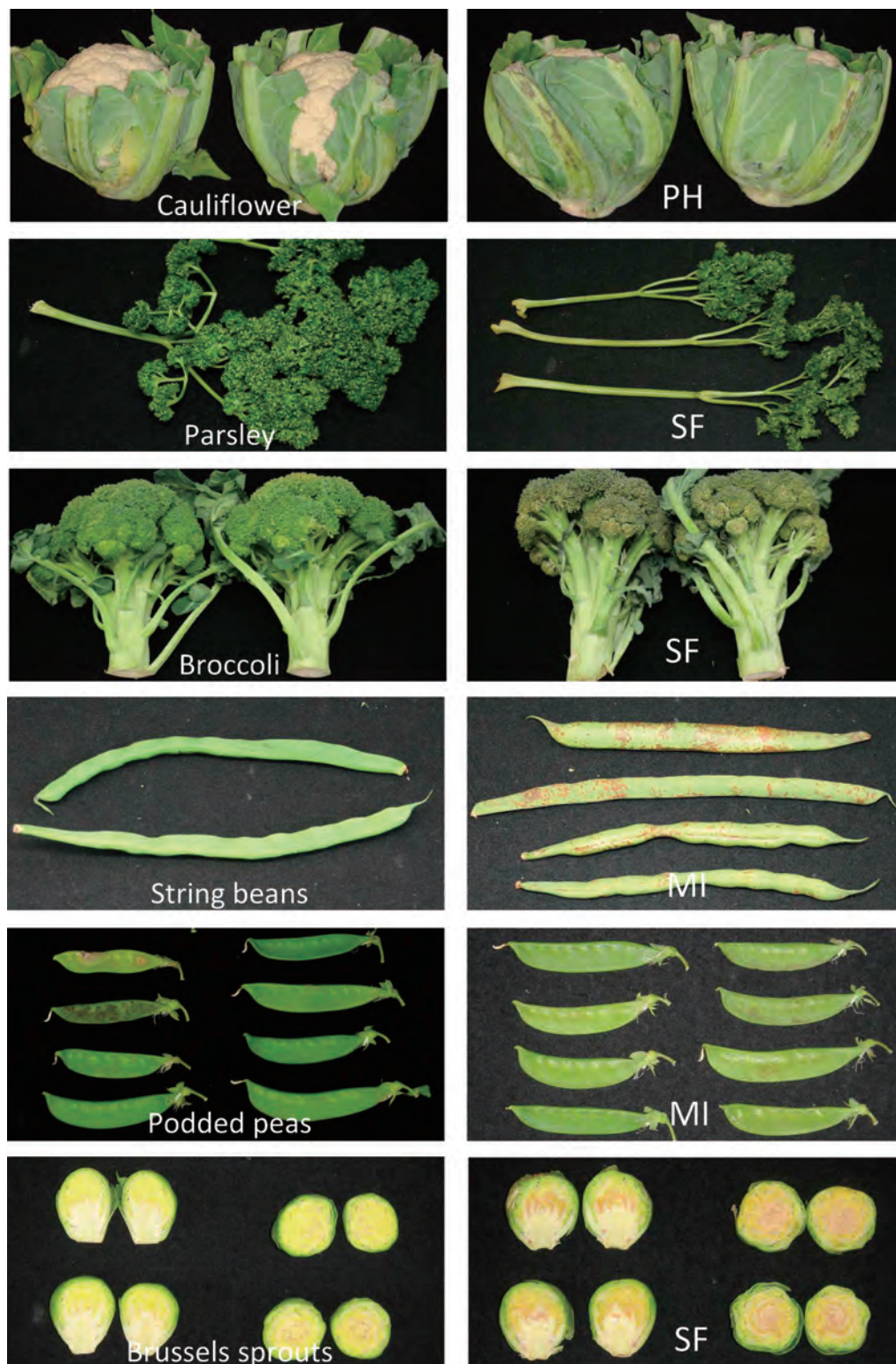


Fig. 3. Chemical injuries to fresh vegetables at 7 days after fumigation.
Left side: Control Right side: Fumigated (MI: methyl iodide SF: sulfuryl fluoride PH: phosphine)

的に水に濡れたような状態になり、7日後までこれらの症状は進行した (Fig. 3)。ブロッコリーは、3日後から全体的に茶褐色に変色し、7日後までこの症状が進行した (Fig. 3)。サヤインゲンは、1日後から湯浸症状が一部に認められ、3日後更にこの症状が進むとともに表面が水に濡れた

ような状態になった。サヤエンドウは、3日後表面の一部に灰色の変色が認められたが、食味調査のため1分間茹でたところ、この変色のみられた部分は茶褐色に変色した。7日後には表面が変色したものが多く、水に濡れたような状態になった。メキャベツは、3日後まで外観、内部とも

変化はなかったが、7日後外側の葉の一部が灰色に変色したものが多くみられ、内部の葉にも桃色から橙色の変色が認められた (Fig. 3.)。ハウレンソウは、投薬量が30mg/l程度と低かったものと考えられたが、1日後から全体的に萎凋し水に濡れたような状態になり、その後この症状が進行した。

SFくん蒸区では、くん蒸1日後から特異な臭気を発するものがあり、食味調査において有意差が認められたブロッコリー及びサヤインゲンでは、この臭気が味覚に影響したものと考えられた。

この結果、今回のくん蒸条件では青果物に対して障害が発生する可能性が高いと考えられた。

4. PHくん蒸による障害の発生状況

PHくん蒸による障害の発生状況を Table 3. に示した。なお、ハウレンソウについては、所定の投薬量であることを確認できなかったため記載しなかった。

ブロッコリー、サヤインゲン、サヤエンドウ及びメキャベツでは、7日間の調査期間中、外観、内部とも障害の発生は認められず、逆に緑色が濃くなり新鮮に見えるものが多かった。パセリは、7日後葉の萎凋の症状で対照区と差が認められた程度であった。カリフラワーは、7日後葉脈の一部に変色部分が認められた (Fig. 3.)。ハウレンソウは、投薬量が1.5mg/l程度と考えられたが、ブロッコリーなどと同様7日間の調査期間中障害の発生は認められなかった。

食味調査においては、カリフラワーで有意差が認められたが、加熱したあとに臭気が感じられ、この臭いが味覚に影響したものと考えられた。

この結果、今回供試した野菜はリン化水素くん蒸に対して耐性があるものと考えられた。

相馬ら (2007) の報告と今回の調査結果から、MIくん蒸に対する野菜類の耐性はMBくん蒸に対する野菜類の耐性と同様の傾向を示すこと、MIくん蒸に耐性の低い野菜でもPHくん蒸に耐性の高い野菜があること、PHくん蒸に耐性の低い野菜でもMIくん蒸に耐性の高い野菜があること、及び、PHくん蒸は多くの青果物に適用できる可能性のあることが改めて示された。この結果、MIとPHを使い分けることで多くの青果物に対して臭化メチル代替消毒技術となる可能性がある。また、SFくん蒸に対する野菜類の耐性は低いものと考えられたが、今回のくん蒸条件 (50mg/l、24時間) が、これまでの貯蔵害虫、木材害虫に対する殺虫試験結果から設定したものであること、SFの特性として卵を除く害虫のステージに対しては殺虫効果が高いことを考えると、対象害虫・ステージを絞り、低薬量、短時間くん蒸とすることで障害の発生を回避することを検討する必要がある。

引用文献

- IPPC (2008) IPPC Recommendation: Replacement or reduction of the use of methyl bromide as a phytosanitary measures. CPM-3 (2008)/REPORT APPENDIX 6
- 松岡郁子・相馬幸博・三角 隆・内藤浩光・川上房男 (2002) リン化水素くん蒸による二十世紀梨の消毒試験. 1. 二十世紀梨の薬害耐性とカンザワハダニの殺虫効果. 植防研報 **38**: 5-8.
- 相馬幸博・松岡郁子・内藤浩光・土屋芳夫・三角隆・川上房男 (2002) リン化水素くん蒸による二十世紀梨の消毒試験. 2. 投薬機を利用したリン化アルミニウム剤によるくん蒸試験. 植防研報 **38**: 9-12.
- 相馬幸博・三角 隆・小川 昇・内藤浩光 (2005) 3種くん蒸剤によるクリシギゾウムシ *Curculio sikkimensis* の殺虫試験. 植防研報 **41**: 9-14.
- 相馬幸博・小川昇・谷川展暁・川上房男 (2007) ヨウ化メチル及びリン化水素くん蒸に対する青果物の耐性. 植防研報 **43**: 1-7.