

臭化メチルくん蒸における穀類の 臭素残留量に関する調査

I. 薬量, 収容比及び被くん蒸物のガス収着性と臭素残留量

相馬 幸博・赤川 敏幸・三角 隆*・藪田 重樹
土肥野利幸・横山 亨**・加藤 利之

横浜植物防疫所調査研究部調査課

Total Bromide Residues in Cereal Grains Fumigated with Methyl Bromide. 1. Sorption and Total Bromide Residues for the Load Capacity and Dose. Yukihiro SOMA, Toshiyuki AKAGAWA, Takashi MISUMI, Shigeki YABUTA, Toshiyuki DOHINO, Tohru YOKOYAMA and Toshiyuki KATO. (Research Division, Yokohama Plant Protection, 1-16-10, Sinyamashita, Naka-ku, Yokohama 231, Japan). *Res. Bull. Pl. Prot. Japan* 30: 11-18 (1994).

Abstract: Grain of wheat, maize, buckwheat, rye and barley were fumigated with methyl bromide (MB) for 48 hours at the temperature of 15°C under several different dose (g/m^3) and loading capacities. After fumigation treatment, they were put in paper bag for 24 hours for the aeration and were successively analyzed bromide residues with the method prescribed in Food Sanitation Law which is so-called incineration-titration method. Buckwheat of US and Canada is of more sorption and contains more bromide residues followed by maize and buckwheat of China. Sorption of wheat, rye and barley are less and their bromide residue contains less. The less of loading capacity and the more of dose, the more of the amount of sorption and bromide residues. Buckwheat is of more amount of methyl bromide sorption and in addition less amount of its desorption that causes more bromide residues.

Key words: fumigation, residues, methyl bromide, bromine

はじめに

臭化メチル (以下 MB) でくん蒸した穀類の臭素残留量に対する基準値が, 平成5年5月1日に食品衛生法 (昭和22年法律第233号) 第7条第1項の規定に基づく「食品, 添加物等の規格基準」の一部改正により, これまでの小麦のみからすべての穀類に対して設定された。これに対応し, 植物検疫で実施されている MB くん蒸後の穀類の残留臭素量について, その実態を把握するとともにくん蒸諸条件が与える影響について調査することが必要となった。

検疫くん蒸における臭素残留量に及ぼす要因には, 被くん蒸物の種類, 薬量, 収容比, くん蒸温度, くん蒸時間等が考えられる。これまで川本ら(1973), 秋山ら(1974), 安友ら(1980)が穀類, 豆類等について調査し, 被くん蒸物の種類やくん蒸条件によって残留量

が異なることを報告しているが, 個々の要因に関する調査はなされていない。

本報告では, これらの要因の中から, 薬量, 収容比及び被くん蒸物のガス収着性と臭素残留量の関係を調査するため, 主な穀類を薬量及び収容比別に MB くん蒸し, くん蒸中の MB ガス濃度から MB ガス収着量を測定して臭素残留量との関係を調査した。

材料及び方法

1. 供試穀類, 薬量及び収容比

供試穀類 (試料) は, 平成4年1~12月に輸入された未くん蒸の小麦 (3種類), 大麦 (1種類), ライ麦 (1種類), トウモロコシ (2種類) 及びソバ (3種類) の5品目10種類で, MB 薬量は $24 \text{ g}/\text{m}^3$ (小麦, 大麦及びライ麦のサイロ検疫くん蒸薬量), $32 \text{ g}/\text{m}^3$ (トウモロコシのサイロ検疫くん蒸薬量) 及び $58 \text{ g}/\text{m}^3$ (ソバのサイロ検疫くん蒸薬量) を用い, またくん蒸試料の収容比は 0.1, 0.3 及び $0.5 \text{ t}/\text{m}^3$ に設定した。

* 現在, 横浜植物防疫所川崎出張所

** 現在, 横浜植物防疫所業務部国際第一課

2. くん蒸

15°C に調整した試料を、約 1.2 ℓ のガス投薬用セブタム付きガラス製くん蒸ビンに各収容比毎に一定量入れて密封し、バイアルビンに詰められた MB をガス化させながら一定薬量を注射器で採取して投薬した。くん蒸時間は 48 時間で、ガス濃度は投薬 10, 20, 30 分及び 1, 2, 3, 6, 24, 48 時間後にガスクロマトグラフ (FID GC-8A 島津製作所製) を用いて測定した。くん蒸終了後はドラフト内でくん蒸ビンの蓋を開封し、1 時間以上通風した後試料を紙封筒に収容した。

3. 試料の調整

紙封筒に収容した試料は、15°C に 24 時間保管した後、40~50 メッシュに粉碎し、5 g を秤量してニッケル製ルツボに入れ、モノエタノールアミン・水酸化ナトリウムのアルコール混合溶液を入れて 12 時間以上放置した後分析した。

4. 残留分析

食品衛生法に基づく「食品、添加物等の規格基準」による臭素の分析方法 (灰化・滴定法) を用いた。分析に当たっては、未くん蒸試料、回収率 (未くん蒸試料に臭化カリウムを臭素量で 40 ppm 加えたもの) 及び試薬ブランクを同時に行い、同一試料について 2~3 点の分析を行った。検出限界は 1 ppm である。

5. MB ガス収着量、臭素収着量及び臭素残留率の算出

供試穀類による MB ガス収着率 (%) 及び MB ガス収着量 (ppm) は、くん蒸終了時の容器中の MB ガス濃度により次式で計算した。供試穀類の比重は、体積の水置換法による実測値 (kg/ℓ) を用い、小麦 1.34, 大麦 1.14, ライ麦 1.22, トウモロコシ 1.23, アメリカ産及びカナダ産ソバ 1.08, 中国産ソバ 1.11 で計算した。

供試穀類による MB ガス収着率 (%)

$$= 100 - 100C \times (1 - W/g) / G$$

供試穀類による MB ガス収着量 (ppm)

$$= \{G - C \times (1 - W/g)\} / W$$

G: 薬量 (g/m³)

C: くん蒸終了時のガス濃度 (mg/ℓ)

g: 供試穀類の比重 (kg/ℓ)

W: 供試穀類収容量 (t/m³)

供試穀類による臭素収着量は、MB ガス収着量 (MB 分子量 94.9) に占める臭素量 (臭素原子量 79.9) で、次

式により計算した。

$$\left(\begin{array}{l} \text{供試穀類による} \\ \text{臭素収着量} \\ \text{(ppm)} \end{array} \right) = 0.84 \times \left(\begin{array}{l} \text{MB ガス} \\ \text{収着量} \\ \text{(ppm)} \end{array} \right)$$

また、臭素残留率は、臭素収着量に対するくん蒸由来の臭素残留量 (MB くん蒸により供試穀類中に残留した臭素量) の割合で、次式により計算した。

$$\left(\begin{array}{l} \text{くん蒸由来の} \\ \text{臭素残留量} \\ \text{(ppm)} \end{array} \right) = \left(\begin{array}{l} \text{くん蒸後の} \\ \text{臭素残留量} \\ \text{(ppm)} \end{array} \right) - \left(\begin{array}{l} \text{くん蒸前の} \\ \text{臭素含有量} \\ \text{(ppm)} \end{array} \right)$$

臭素残留率 (%)

$$= \frac{100 \times \text{くん蒸由来の臭素残留量 (ppm)}}{\text{臭素収着量 (ppm)}}$$

結果及び考察

1. くん蒸終了時の MB ガス濃度と供試穀類によるガス収着性

くん蒸終了時における MB ガス濃度、供試穀類による MB ガス収着量及び MB ガス収着率について、薬量及び収容比別に第 1 表に示した。

穀類の種類別に供試穀類 1 kg 当たりの MB ガス収着量を比較すると、麦類 (大麦、小麦及びライ麦) の収着量が最も少く、次いでポップコーン及びイエローコーンで、イエローコーンは小麦の約 1.1~1.6 倍の収着量を示した。ソバは収着量が最も多く、アメリカ産ソバは小麦の約 1.2~2.2 倍の収着量を示し、収着量の差は収容比が小さいほど顕著であった。穀類の種類別に MB ガス収着量の経時変化 (薬量 32 g/m³, 15°C, 収容比 0.5 t/m³) を示すと第 1 図のとおりで、アメリカ産ソバはくん蒸開始後急速に MB ガスを収着した。

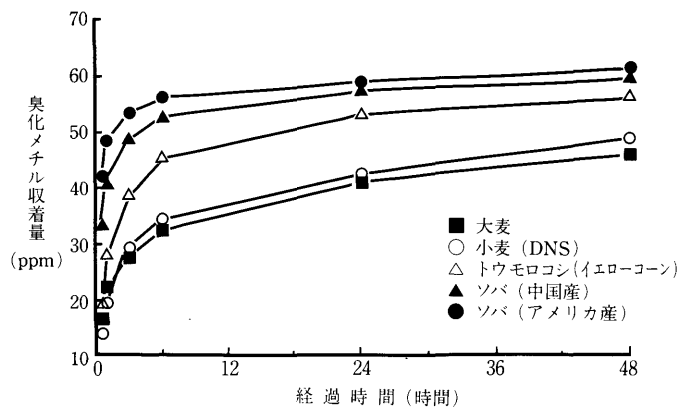
収容比別に供試穀類 1 kg 当たりの MB ガス収着量を比較すると 0.5 t/m³ で収着量が最も少なく、0.5 t/m³ に比較して 0.3 t/m³ では約 1.3~1.5 倍、0.1 t/m³ では約 1.9~3.2 倍の収着量を示し、収容比が小さくなるにしたがって収着量は増加した。すなわち、同一薬量下では収容比が小さいほど収着量が多いと言える。収容比別に MB ガス収着量の経時変化の一例 (小麦, 薬量 32 g/m³, 15°C) を示すと第 2 図のとおりである。

薬量別に供試穀類 1 kg 当たりの MB ガス収着量を比較すると、薬量の多いほどガス収着量が多いが、薬量に対するガス収着率で比較すると 24 g/m³ 区が最も高く、薬量が多くなるにしたがってやや収着率は低下した。このことは、薬量を 2 倍にしても収着量は 2 倍

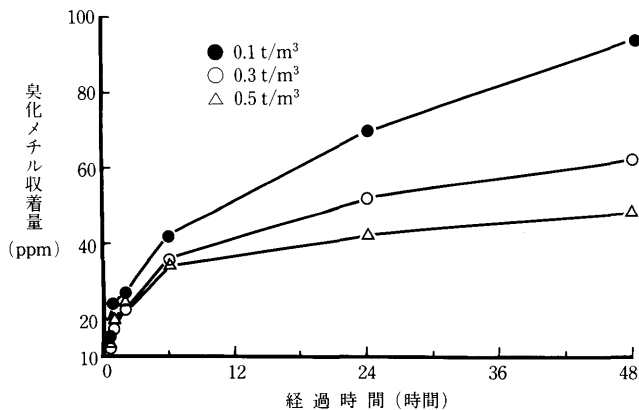
第1表 各種穀類を15°C, 48時間の基準で臭化メチルくん蒸したときの葉量及び収容比別くん蒸終了時のガス濃度, ガス収着量及びガス収着率

植物名	種類	産地	葉量 g/m ³	くん蒸終了時ガス濃度 mg/ℓ			ガス収着量 ppm (ガス収着率%)		
				0.1 t/m ³	0.3 t/m ³	0.5 t/m ³	0.1 t/m ³	0.3 t/m ³	0.5 t/m ³
小麦	DNS	アメリカ	24	17.5	11.8	8.4	78.1(32.5)	49.5(61.9)	37.5(78.1)
			32	24.4	16.9	12.3	94.2(29.4)	62.9(59.0)	48.6(75.9)
			58	45.6	—	—	158.0(27.2)	—	—
	HRW	アメリカ	32	—	—	15.8	—	—	44.2(69.1)
	WW	カナダ	32	—	—	10.8	—	—	50.5(78.9)
大麦	—	オーストラリア	32	27.5	—	16.3	69.1(21.6)	—	45.7(71.4)
ライ麦	—	ドイツ	32	23.6	—	12.3	103.3(32.3)	—	49.5(77.3)
	ポップコーン	アメリカ	32	—	—	8.7	—	—	53.7(83.9)
トウモロコシ	イエローコーン	アメリカ	24	14.0	7.1	4.3	111.4(46.4)	62.1(77.6)	42.9(89.4)
			32	19.2	10.2	6.7	143.6(44.9)	81.0(75.9)	56.0(87.5)
			58	35.7	—	—	252.0(43.4)	—	—
	—	中国	32	—	—	4.3	—	—	59.3(92.7)
ソバ	—	アメリカ	24	9.8	3.5	—	151.1(63.0)	71.6(89.5)	—
			32	13.9	5.4	2.9	193.9(60.6)	93.7(87.8)	60.9(95.2)
			58	26.3	10.9	6.5	341.4(58.9)	167.1(86.4)	109.0(94.0)
	—	カナダ	32	—	—	2.9	—	—	60.9(95.2)
			58	—	—	6.0	—	—	109.6(94.5)

注) DNS: Dark Northern Spring Wheat
 HRW: Hard Red Winter Wheat
 WW: Western White Wheat



第1図 各種穀類を32 g/m³, 15°C, 収容比0.5 t/m³の基準で臭化メチルくん蒸したときのガス収着量の経時変化



第2図 小麦 (DNS) を 32 g/m^3 、 15°C 、48 時間の基準で臭化メチルくん蒸したときの収容比別ガス収着量の経時変化

第2表 各種穀類を 15°C 、48 時間の基準で臭化メチルくん蒸したときの薬量及び収容比別臭素残留量

植物名	種類	産地	分析部位	回収率 %	未くん蒸 ppm	薬量 g/m^3	臭素残留量 ^a ppm			
							0.1 t/m ³	0.3 t/m ³	0.5 t/m ³	
小麦	DNS	アメリカ	全粒	94.8	2.0	24	25.9	20.6	17.6	
						32	30.4	24.8	20.4	
						58	47.7	—	—	
	HRW	アメリカ	全粒	—	5.0	32	—	—	20.0	
	WW	カナダ	全粒	—	5.6	32	—	—	24.0	
大麦	—	オーストラリア	全粒	95.5	7.2	32	—	—	21.8	
ライ麦	—	ドイツ	全粒	90.0	1.3	32	27.2	—	20.2	
トウモロコシ	ポップコーン	アメリカ	全粒	97.8	0.4	32	—	—	26.8	
						24	33.3	23.7	20.0	
						32	40.2	30.9	25.8	
	—	イェローコーン	アメリカ	全粒	90.0	0.0	58	61.7	—	—
	—	中国	全粒	—	—	32	—	—	25.0	
ソバ	—	アメリカ	全粒	94.3	2.2	24	69.1	38.6	—	
						32	79.7	50.0	38.9	
						58	125.9	79.9	60.3	
	—	カナダ	全粒	92.8	2.8	32	—	—	38.5	
						58	—	—	58.8	

注) 臭素残留量: くん蒸終了後 15°C に 24 時間保管後の分析値

にならないことを示している。

2. 供試穀類の臭素含有量及びMBくん蒸後の臭素残留量

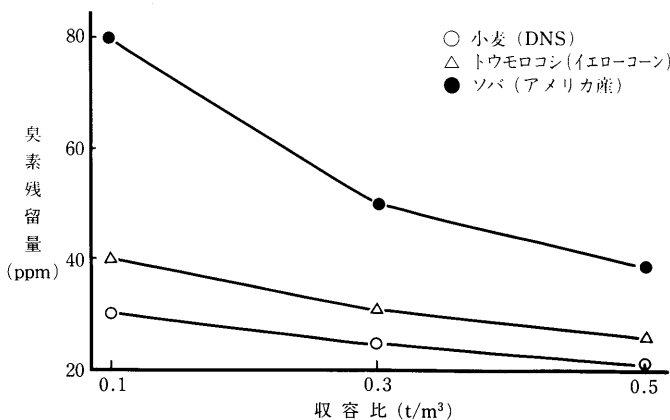
供試穀類（未くん蒸）の臭素含有量及びMBくん蒸後の臭素残留量を薬量及び収容比別に第2表に示した。

MBくん蒸後の臭素残留量は麦類（大麦，小麦及びライ麦）が最も少なく，次いでポップコーン及びイエローコーンで，イエローコーンは小麦の約1.1~1.3倍の残留量を示した。アメリカ産ソバは残留量が最も多く，小麦の約1.9~2.7倍の残留量を示し，MBガス収着量の多いものほど臭素残留量も多かった。

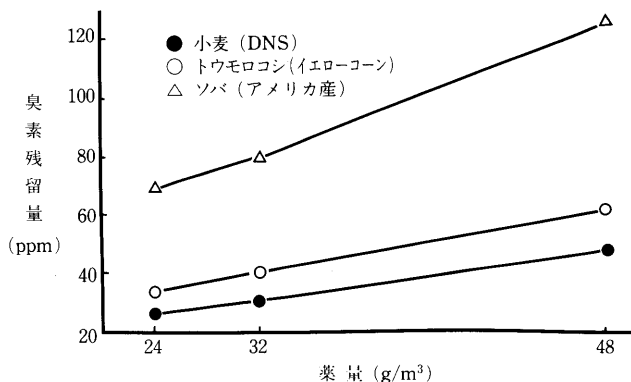
また，臭素残留量は収容比が小さいほど多く，収容比0.5 t/m³に対し，0.3 t/m³では残留量が約1.2~1.3

倍，0.1 t/m³では約1.5~2.1倍の残留量を示した。第3図に収容比と臭素残留量の関係（薬量32 g/m³，15°C）を示したが，残留量の多い穀類ほど収容比の影響が大きい傾向があり，特にアメリカ産ソバは，0.5 t/m³に対し0.1 t/m³では残留量が2倍以上に増加した。

薬量別に臭素残留量を比較すると，薬量の多いほど臭素残留量も多いが，薬量24 g/m³に対し32 g/m³及び58 g/m³では薬量がそれぞれ約1.33倍及び約2.42倍であるのに対し，残留量はそれぞれ約1.16~1.30倍及び約1.82~2.07倍であり，薬量の増加率に対して残留量の増加率はいずれも低い。これらの結果は薬量を2倍にしても残留量は2倍にならないことを示しているが，反対に薬量を半分にしても残留量は半減しないことを示している。第4図に薬量と臭素残留量の関係の一例（15°C，収容比0.1 t/m³）を示した。



第3図 3種穀類を32 g/m³，15°C，48時間の基準で臭化メチルくん蒸したときの収容比と臭素残留量の関係



第4図 3種穀類を15°C，48時間，収容比0.1 t/m³の基準で臭化メチルくん蒸したときの薬量と臭素残留量の関係

3. 臭素吸着量と臭素残留量の関係

3種類の穀類について、MBガス吸着量から臭素吸着量を計算し、これに対するくん蒸由来の臭素残留量(臭素残留量から未くん蒸試料の臭素含有量を差し引いた値)の割合(臭素残留率)を薬量及び収容比別に第3表に示した。

臭素残留率は、3種類の穀類の中でソバが最も高く43.0～71.5%であった。また、トウモロコシ(イエローコーン)及び小麦は、それぞれ29.1～55.4%、34.4～49.4%で、収容比が0.1 t/m³では小麦の残留率が高かったが、0.3 t/m³及び0.5 t/m³ではトウモロコシ(イエローコーン)が高かった。くん蒸中に穀類に吸着さ

れたMBガスはくん蒸終了後脱着するが、その脱着量が少ない(臭素残留率が高い)ほど臭素残留量は多くなる。ソバはくん蒸中の臭素吸着量が多い上に、臭素残留率が高く、このことが残留量を多くしている。トウモロコシ(イエローコーン)は小麦に比較して臭素吸着量が多いが、臭素残留率に大きな差は認められなかった。

収容比別では、0.5 t/m³で臭素残留率が高く、収容比が小さくなるほど低下した。したがって、臭素吸着量は収容比が小さいほど多いが、残留量は吸着量の多いわりには多くならないことを示している。

薬量についても同様な結果で、薬量が多いほど臭素残留率は低くなる傾向にあった。

第3表 3種穀類を15°C、48時間の基準で臭化メチルくん蒸したときの薬量及び収容比別の臭素吸着量、くん蒸由来の臭素残留量及び臭素残留率

植物名	種類	産地	薬量 g/m ³	収容比 t/m ³	臭素吸着量 ^{#1} ppm	くん蒸由来の 臭素残留量 ^{#2} ppm	臭素残留率 ^{#3} %	
小麦	DNS	アメリカ	24	0.1	65.8	23.9	36.3	
				0.3	41.7	18.6	44.6	
				0.5	31.6	15.6	49.4	
			32	0.1	79.3	28.4	35.8	
				0.3	53.0	22.8	43.0	
				0.5	40.9	18.4	45.0	
			58	0.1	133.0	45.7	34.4	
				24	0.1	93.8	33.3	35.5
					0.3	52.3	23.7	45.3
0.5	36.1	20.0	55.4					
トウモロコシ	イエローコーン	アメリカ	24	0.1	120.9	40.2	33.3	
				0.3	68.2	30.9	45.3	
				0.5	47.1	25.8	54.8	
			32	0.1	127.2	66.9	52.6	
				0.3	60.3	36.4	60.4	
				0.1	163.3	77.5	47.5	
			58	0.3	78.9	47.8	60.6	
				0.5	51.3	36.7	71.5	
				24	0.1	287.4	123.7	43.0
0.3	140.7	77.7	55.2					
0.5	91.8	58.1	63.3					

注1 臭素吸着量 (ppm w/w) : くん蒸により穀類1 kg 当りに吸着された臭化メチル量を臭素量で計算した値。

注2 くん蒸由来の臭素残留量 (ppm) : 臭素残留量から未くん蒸試料の臭素含有量を差し引いた値。

注3 臭素残留率 (%) : 臭素吸着量に対するくん蒸由来の臭素残留量の割合。

第4表 ソバを15°C, 48時間, 収容比0.5 t/m³の基準で臭化メチルくん蒸し, 1日後に分析したときの分析部位別臭素残留量

産地	薬量 g/m ³	分析部位	未くん蒸 臭素含有量 ppm	臭素 残留量 ppm
中国	32	実	1.9	19.8
		殻	—	58.5
アメリカ	32	実	1.0	36.3
		殻	10.6	45.7
	58	実	1.0	53.0
カナダ	32	実	2.8	38.5
		殻	2.8	38.0
	58	実	2.8	53.3
		殻	2.8	93.0

注) ソバの実と殻の比率は約87:13(重量比)。

なお, くん蒸由来の臭素残留量のデータから, 薬量及び収容比別に一次回帰式を求めた結果は次のとおりである。これらは, 残留量を把握する一つの目安にできるものとする。

薬量(X)とくん蒸由来の臭素残留量(Y)の関係
収容比0.5 t/m³の場合

$$\text{小麦} \quad Y=0.35X+7.2$$

$$\text{トウモロコシ} \quad Y=0.72X+2.6$$

$$\text{ソバ} \quad Y=0.82X+10.4$$

収容比0.3 t/m³の場合

$$\text{小麦} \quad Y=0.52X+6.0$$

$$\text{トウモロコシ} \quad Y=0.90X+2.1$$

$$\text{ソバ} \quad Y=1.20X+8.4$$

収容比0.1 t/m³の場合

$$\text{小麦} \quad Y=0.65X+8.1$$

$$\text{トウモロコシ} \quad Y=0.83X+13.4$$

$$\text{ソバ} \quad Y=1.70X+24.9$$

収容比(X)とくん蒸由来の臭素残留量(Y)の関係

薬量24 g/m³の場合

$$\text{小麦} \quad Y=-21X+25.6$$

$$\text{トウモロコシ} \quad Y=-33X+35.6$$

$$\text{ソバ} \quad Y=-153X+82.2$$

薬量32 g/m³の場合

$$\text{小麦} \quad Y=-25X+30.7$$

$$\text{トウモロコシ} \quad Y=-36X+43.1$$

$$\text{ソバ} \quad Y=-102X+84.6$$

薬量58 g/m³の場合

$$\text{ソバ} \quad Y=-164X+135.7$$

4. ソバの分析部位別臭素残留量

臭素の残留分析法では, ソバは殻を除去した実で, その他の穀類は全粒を分析することとなっているが, 試験ではくん蒸中のMBガス収着性と臭素残留量の関係を検討するためすべて全粒で分析した。参考までにソバの部位別臭素残留量は第4表のとおりである。なお, ソバの実と殻の分離には, 胴割測定器を使用した。

アメリカ及びカナダ産ソバは, 薬量32 g/m³では実と殻の臭素残留量に大きな差は見られなかったが, 58 g/m³では殻の残留量が実の約2倍に達した。また, 中国産ソバは, 32 g/m³で殻と実に約3倍の差があった。この原因は, アメリカ及びカナダ産ソバに比較して種実が硬く絞まっており, 実の内部へのガス浸透が悪いためと考えられる(実と殻の比率は重量比で約87:13であった)。

以上の結果から, 一定薬量でくん蒸した場合, 臭素残留量は穀類のMBガス収着性と収容比に大きく影響され, 残留量を軽減するためには収容比をなるべく大きくする必要がある。しかし, 収着性が大きい場合は, 殺虫に要するガス濃度を確保するために薬量を増加させる必要があり, 残留量の軽減とは相反する。特にソバの場合は, 比重が小さいことから収容比は0.6 t/m³程度が限界と考える。

なお, サイロの実際くん蒸においては, サイロ上部空間部から穀類中へのガス浸透及び拡散が遅れ, 収容比の影響が本試験結果よりも小さくなることが予想されるため, 今後は実際くん蒸時の調査が必要と考える。

MBガスの収着は, 吸着と吸収に大別できるが, 吸着は脱着されやすく吸収は脱着され難いとされている。また, MBガスは, 多孔または小粒の表面積の大きいものに吸着されやすく, 蛋白質や油脂分の多いものに吸収されやすいと言われている。仮に残留率に関係する要因が吸収であるならば, くん蒸後の日数等により残留量を減少させることはあまり望めないものとする。

摘 要

1. 主な穀類を15°C, 48時間の基準で, 薬量及び収容比を変えてMBくん蒸し, くん蒸終了時のガス濃度からMBガス収着量を算出した。くん蒸終了後は試料を15°Cに24時間紙封筒で保管し, 食品衛生法に基づく「食品, 添加物等の規格基準」で定められた方法に

より臭素残留量を分析した。

2. MBガス収着量及び臭素残留量は、アメリカ及びカナダ産ソバが最も多く、次いでトウモロコシ及び中国産ソバが多かったが、麦類（小麦、ライ麦及び大麦）は少なかった。また、薬量が多いほど、収容比が小さいほど多かったが、薬量を2倍にしても収着量及び残留量は2倍に達しなかった。

3. MBガス収着量のうち臭素残留量の占める割合（臭素残留率）は、ソバが43.0～71.5%で最も高く、トウモロコシは29.1～55.4%、小麦は34.4～49.4%であった。すなわち、ソバはMBガス収着量が多い上に、くん蒸後のガス脱着量が少ないことが残留量を高くしている。臭素残留量について、薬量及び収容比別に一次回帰式を求めた。これらは、残留量を把握する一つの目安にできるものと考えられる。

4. ソバを実と殻に別けて分析した結果、アメリカ及びカナダ産ソバは、薬量58 g/m³で殻の残留量が実の約2倍であった。また、中国産ソバでは、32 g/m³で殻の残留量が実の約3倍であった。

5. 以上の結果から、一定薬量でくん蒸した場合、臭素残留量は穀類のMBガス収着性と収容比に大きく影響され、残留量を軽減するためには収容比をなるべく大きくする必要がある。しかし、収着量が多い穀類では、殺虫に要するガス濃度を確保するために薬量を増加させる必要があり、残留量の軽減とは相反する。

引用文献

- LINDGREN D.L., GUNTHER F.A. and VINCENT L.E. (1962) Bromine Residues in Wheat and Milled Wheat Fractions Fumigated with Methyl Bromide. *J. of Econ. Ent.* 55(5): 773-776.
- GIBICH J., and PEDERSEN J.R. (1963) Bromide Levels in Mill Fractions of Unfumigated and Fumigated Wheat. *Cereal Science Today.* 8(10): 345.
- LINDGREN D.L., SINCLAIR W.B. and VINCENT L.E. (1968) Residues in Row and Processed Foods Resulting from Post-harvest Insecticidal Treatments. *Residual Rev.* 21: 1-121.
- 川本 登・楯谷昭夫・星野貴博・荏司宏明・堺 武志・木村 茂 (1973) 臭化メチルくん蒸による3種穀類の残留臭素量. *植防研報* 11: 20-25.
- 川本 登・秋山博志 (1974) 臭化メチルでくん蒸した植物中の残留臭素定量法の検討. *植防研報* 12: 1-5.
- 秋山博志・川本 登・楯谷昭夫・佐伯 聡・村川 昇・相馬幸博・佃由美子・中島 修 (1974) 臭化メチル、臭化エチレンでくん蒸した数種植物の残留臭素量. *植防研報* 12: 42-45.
- 相馬幸博・秋山博志・川本 登 (1978) 植物検疫くん蒸における臭化メチル薬量設定に関する研究（各種植物の臭化メチルの収着に及ぼす温度、収容比、薬量の影響）. *植防研報* 15: 15-22.
- 安友 純・空 雅雄・黒川憲治・川本 登 (1980) 臭化メチルでくん蒸した数種植物中の臭化メチル及び総臭素残留量. *植防研報* 16: 67-72.