

イシル(魚醤油)中のポリアミン含量について

道畠俊英, 加藤大亮*, 矢野俊博*, 榎本俊樹*[§]

石川県工業試験場

* 石川県立大学

Contents of Polyamines in ISHIRU (Fish Sauce)

Toshihide Michihata, Daisuke Kato*, Toshihiro Yano* and Toshiki Enomoto*[§]

Industrial Research Institute of Ishikawa, 2-1, Kuratsuki, Kanazawa, Ishikawa 920-8203

*Ishikawa Prefectural University, 1-308, Suematsu, Nonoichi, Ishikawa 921-8836

Fish sauces made from Japanese common squid internal organs (IKA-ISHIRU) or whole sardines (IWASHI-ISHIRU), have been produced in Noto peninsula of Ishikawa prefecture. Seven kinds of polyamines i.e. histamine(Him), tyramine(Tym), putrescine(Put), cadaverine(Cad), agmatine(Agm), tryptamine (Tpm) and spermidine(Spd) in commercial ISHIRU were analyzed, and changes in the composition of these polyamines during the processing of ISHIRU were also investigated. The major polyamines of both commercial ISHIRU were Him, Spd, Tym and Put, and IWASHI-ISHIRU contained larger amount of Him than IKA-ISHIRU. When the both ISHIRU are experimentally fermented, the contents of Cad, Agm and Spd decreased in IKA-ISHIRU during the fermentation and reached the steady states over about 8 month. Other polyamines of IKA-ISHIRU showed the same levels during the fermentation. In the case of IWASHI-ISHIRU, although histamine increased slightly during the fermentation until 6 month, other polyamines kept the same levels during the fermentation. From these results, it is presumed that the contents of polyamines in ISHIRU were related with a freshness of raw materials and ingredients, and that the microorganisms like histamine-producing bacteria were hardly concerned in the formation of polyamines in ISHIRU.

(Received Sep. 30, 2005 ; Accepted Mar. 28, 2006)

石川県能登地方には、イシルと呼ばれるイカの内臓やイワシを原料とした魚醤油が古くから造られている¹⁾²⁾。著者ら³⁾⁴⁾はこれまでにイシルの一般成分、呈味成分および香気成分などについて検討し、イシルは多量の遊離アミノ酸やオリゴペプチドを含む独特の風味をもった伝統的調味料であることを報告してきた。しかし、イシルは伝統的手法で製造されているため、1~2年間と非常に長い生成期間を必要としている。この生成過程に原料である魚肉タンパク質がアミノ酸へと分解され、生成したアミノ酸がさらに酵素的脱炭酸によってポリアミンを生じることが予想される。

一般に、ポリアミンは食品などが腐敗する際に生成されるが、チーズ、ビール、ワイン、味噌および醤油など多くの発酵食品中に含まれていることが報告されている^{5)~9)}。ポリアミンのうちヒスタミン(Him)やチラミン(Tym)などを多く含む食品はそれらを摂取することにより、アレルギー様食中毒、高血圧、偏頭痛の症状を引き起こすことも知られている¹⁰⁾。また、抗結核剤、抗鬱剤および降圧剤

の中には体内臓器中のモノアミン酸化酵素(MAO)の作用を阻害するものがあり、これらの薬剤を服用していた患者が多量のTymを含む食品を摂ったことにより重篤な症状に陥った例⁶⁾¹¹⁾もある。また、プロテシン(Put)、TymなどはHimの毒性を高めるとの報告^{12)~14)}もあり、様々な食品中のポリアミン量を把握しておくことは重要である。

佐藤ら¹⁵⁾¹⁶⁾、Brillantesら¹⁷⁾、船津ら¹⁸⁾、中里ら¹⁹⁾により国内外の多くの魚醤油についてポリアミンの報告を行っているが、イシルに関してはほとんど報告されていない。そこで本研究では、市販されているイシル中のTym、Him、Put、カダベリン(Cad)、アグマチン(Agm)、トリプタミン(Tpm)およびスペルミジン(Spd)の7種類のポリアミンについて分析を行った。さらに、イカやイワシを原料とするイシルの試験を実際にを行い、生成過程におけるこれらポリアミンの変動についての検討も行った。

試料および実験方法

1. 試 料

市販のイシルは、1999年4月~2000年3月に生産地で販売されていたイカを原料としたイカイシル5検体(SQ-

〒920-8203 石川県金沢市鞍月2-1

* 〒921-8836 石川県石川郡野々市町末松1-308

[§]連絡先 (Corresponding author), enomoto@ishikawa-pu.ac.jp

1～SQ-5), イワシを原料としたイワシイシル 5 検体 (SA-1～SA-5) を購入し, 2002 年 1～2 月に分析に用いるまで -50°C で凍結保存した。また試釀イシルは、原料に冷凍のスルメイカの内臓またはマイワシ丸ごとを解凍し、それぞれの原料 18 kg に対し 3.6 kg の食塩を加えてポリプロピレン製タンク (容量 20 L) に仕込み、イカイシルは 1998 年 11 月から 20 カ月間、イワシイシルは 1999 年 12 月から 12 カ月間室温で発酵させ、経時に各試料の諸味を分取し、分析した。なお、分取した諸味は分析に用いるまで -50°C で凍結保存した。

2. 分析方法

イシルからのポリアミンの抽出は、過塩素酸法²⁰⁾により行った。すなわち、市販イシル 20 ml または試釀イシルの諸味 10 g を秤量後、5% 過塩素酸 35 ml を加えホモジナイズを行い、4°C, 7830×g で 15 分間遠心分離後の上清を回収した。次に、沈殿に対し 5% 過塩素酸 35 ml を加え同様に抽出を行い、遠心分離後上清と合して 100 ml に定容後、メンブランフィルター (0.45 μm) でろ過したものを分析用試料とした。

7 種類のポリアミンの HPLC による定量は山中らの方法²⁰⁾に準じて行った。すなわち、移動相は A 液 : 10 mM オクタノンスルホン酸ナトリウムを含む 0.1 M リン酸緩衝液 (pH 4.3), B 液 : 5 mM オクタノンスルホン酸ナトリウム、50% メタノールを含む 0.05 M リン酸緩衝液 (pH 4.2) を用いた。ポリアミンの溶出は、B 液の割合を 20% から開始し、10 分までイソクラティック溶出を行い、次いで 15 分後までに B 液を 30% に高め、その後リニアグラジェントで 35 分後に 60% に高め、55 分後まで 60% に維持するというプログラムを行った。使用カラムは shim-pack CLC-ODS (25 cm × φ4.6 mm 島津製作所製) を用い、流速を 1.3 ml/min, カラム温度を 50°C とした。ポリアミンは、発色試薬として 0.4% オルトフタルアルデヒドおよび 0.1% 2-メルカプトエタノールの混合液を流速 0.2 ml/min でカラム通過液と反応させ、反応物を励起波長 348 nm, 蛍光波長 450 nm で検出した。

試釀イシル中のヒスチジン (His) の定量は、諸味 10 g を秤量後、N/50 塩酸 35 ml を加えホモジナイズを行った。次に 4°C, 7830×g で 15 分間遠心分離し上清を回収し、残りの沈殿に N/50 塩酸 35 ml を加え同様に抽出を行い、遠心分離後上清を合わせて 100 ml に定容した。この抽出液を 20 倍希釈後、メンブランフィルター (0.45 μm) でろ過したものを、アミノ酸分析計 (L-8500 日立製作所製) により定量した。

なお、市販品のイシルのポリアミン濃度は諸味との比較のため、100 g 当たりの重量で算出した。また、すべての分析値はそれぞれの試料 3 回の測定結果の平均値 ± 標準偏差で示した。

実験結果および考察

1. 市販イシルのポリアミン量

市販イワシイシル (SA-4) の HPLC のクロマトグラムを Fig. 1 に示す。7 種類のポリアミンは良好に分離できており、市販試料においても Tym の溶出時間以前にポリアミン以外の物質がほとんど溶出され、ポリアミンの定量には影響を及ぼさない良好なクロマトグラムが得られた。

市販イシルのポリアミン量の測定結果を Table 1 に示した。イカイシルのポリアミンは Spd が 19.0～37.8 mg/100 g, Him が 13.1～37.5 mg/100 g といずれの試料にも共通して多く含まれていた。Tym は ND～44.9 mg/100 g, Put は 6.4～40.1 mg/100 g, そして Agm が ND～31.4 mg/100 g と製品間にかなりのばらつきがみられ、Cad (ND～9.0 mg/100 g) と Tpm (ND～1.3 mg/100 g) は低いレベルで共通していた。一方、イワシイシルでは、Him が 33.6～120.0 mg/100 g, Tym が 20.1～48.8 mg/100 g とイワシイシルのポリアミンの大部分を占めており、次いで Spd (14.5～16.8 mg/100 g), Put (4.4～12.3 mg/100 g), Cad (ND～8.2 mg/100 g), Agm (2.4～5.4 mg/100 g), Tpm (ND～5.4 mg/100 g) の順であった。また、イワシイシルの場合はイカイシルに比べ、製品間のポリアミン量のばらつきが少なかった。イカイシルに比べイワシイシルで Him が多く含まれていたことについては、マイワシには原料の時点で遊離の His が多く含まれている²¹⁾。そのため、イワシの体表や腸管、あるいは海水中の *Photobacterium*, *Staphylococcus*, *P. morganii* などの Him 生成菌²²⁾²³⁾ の作用を受け、Him が多く存在するものと推定される。

イカイシルの SQ-4 と SQ-5 では、Tym, Put が多く Agm が少ないという他の 3 試料と異なる傾向を示した。この SQ-4, SQ-5 は既報³⁾で、乳酸量が多く、遊離アミノ酸組成も他と異なることから、乳酸菌などの微生物の関与が推定された試料と一致している。従って、ポリアミンの生成においても何らかの微生物の作用により他のイカイシルとは異なった組成を示したものと推察される。また、SA-3 において Him が他のイワシイシルよりも高い値を示している。この理由は通常、イワシ丸ごとを原料として用いるが、SA-3 のメーカーではイワシの頭や内臓などイワシの加工品の残渣を原料として利用しているため、イシルに仕込まれるまでに Him 生成菌の作用をより多く受け、製品中に多く Him が含まれていたものと考えられる。

今回の分析値を大豆醤油の分析例⁵⁾⁷⁾ と比較してみると、大豆醤油では平均値で Tym が 39.3～48.4 mg/100 g, Him が 15.2～20.3 mg/100 g, Put が 5.36～31.6 mg/100 g などであり、イシルの Him 量が大豆醤油よりも高い傾向がみられたが、他のポリアミンはほぼ同レベルにあると考えられる。他の魚醤油との比較では、藤井ら²⁴⁾ によるショットでは Him は 0.2～16.57 mg/100 ml, Tym は 0.18～13.1

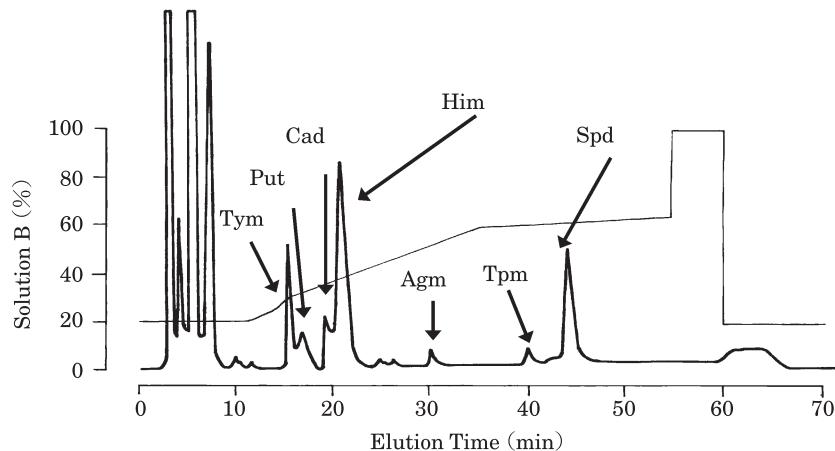


Fig. 1 HPLC chromatograms of fluorescent derivatives of polyamines in IWASHI-ISHIRU (SA-4) and gradient elution program (Solution B% in Solution A and Solution B)

Tym, tyramine ; Put, putrescine ; Cad, cadaverine ; Him, histamine ;
Agm, agmatine ; Tpm, tryptamine ; Spd, spermidine.

Table 1 Polyamines of commercial ISHIRU (mg/100 g)

Polyamine	IKA-ISHIRU					IWASHI-ISHIRU				
	SQ-1	SQ-2	SQ-3	SQ-4	SQ-5	SA-1	SA-2	SA-3	SA-4	SA-5
Tym	6.0±0.2	2.4±0.2	ND	44.9±0.5	29.6±1.0	47.5±0.5	32.8±0.9	20.1±1.0	37.8±0.8	48.8±0.9
Put	7.0±0.1	6.4±0.3	6.6±0.3	40.1±0.2	32.6±0.4	9.7±0.1	7.7±0.2	4.4±0.2	11.5±0.4	12.3±0.4
Cad	3.5±0.2	4.2±0.1	3.8±0.1	ND	9.0±0.2	6.6±0.1	8.2±0.1	ND	4.4±0.2	ND
Him	13.1±0.5	22.4±0.4	22.8±0.8	37.5±0.5	24.8±0.6	59.2±0.6	33.6±0.3	120.0±1.7	63.7±0.5	42.9±0.9
Agm	31.4±0.7	11.5±0.6	13.3±0.4	5.9±0.2	ND	3.9±0.1	5.4±0.2	4.9±0.2	2.4±0.1	5.1±0.2
Tpm	ND	1.2±0.1	ND	1.0±0.1	1.3±0.1	ND	3.0±0.1	5.4±0.2	4.6±0.1	3.4±0.1
Spd	22.8±0.4	19.0±1.0	20.8±0.9	24.9±0.2	37.8±0.2	14.8±0.4	16.8±0.5	16.4±0.3	14.5±0.5	14.7±0.4

Data are presented as mean±S.D. values (n=3).

ND, not detected ; Tym, tyramine ; Put, putrescine ; Cad, cadaverine ; Him, histamine ; Agm, agmatine ; Tpm, tryptamine ; Spd, spermidine.

IKA-ISHIRU : ISHIRU from Japanese common squid.

IWASHI-ISHIRU : ISHIRU from sardine.

mg/100 ml, Put は ND~6.0 mg/100 ml, Cad は ND~4.87 mg/100 ml と報告されている。また、船津ら¹⁸⁾は自家製マルソウダ魚醤油と海外の魚醤油について、Him は 24.5~85.1 mg/100 ml, Tym は 0.28~55.9 mg/100 ml, Put は 5.13~115.6 mg/100 ml, Cad は 2.40~85.8 mg/100 ml と報告しており、特に海外の魚醤油中の Him, Tym, Put, Cad 含有量が高いとしている。さらに中里ら¹⁹⁾は海外の魚醤油 41 種類について調べており、Him は ND~31.0 mg/100 g, Tym は 1.1~92.0 mg/100 g, Put は 0.43~63.0 mg/100 g, Cad は 2.1~100.0 mg/100 g と報告している。このように、今回分析したイシルのポリアミン量は海外の魚醤油とほぼ同レベルであったが、ショッフルより高い値を示した。これは、イシルや海外の魚醤油とショッフルを比較すると、塩分濃度は同程度であるが全窒素含量がイシルの 1.42~2.49 g/100 ml (平均 1.98 g/100 ml)³⁾、海外の魚醤油の 0.71~

1.86 g/100 ml (平均 1.38 g/100 ml)²⁵⁾に対し、ショッフルは 0.30~1.60 g/100 ml (平均 0.68 g/100 ml)²⁴⁾ と非常に低いために、イシルのポリアミン量が相対的にショッフルのそれよりも高くなつたと考えられる。また、中里らはイカイシル 3 種、サバイシル 1 種のポリアミンを調べており、Him, Spd, Tym はほぼ同程度であるが、そのうちの 2 種のイカイシルについては、それぞれ Tym が 73.0 と 92.0 mg/100 g, Put が 79.0 と 25.0 mg/100 g, Cad が 280.0 と 78.0 mg/100 g であり、さらにサバイシルにおいて Tym が 170.0 mg/100 g, Put が 160.0 mg/100 g, Cad が 240.0 mg/100 g と、特にサバイシルにおいて非常に多いことを報告¹⁹⁾しており、これらの値は今回の分析値と比較してもかなり差が生じている。中里らのポリアミンの分析法²⁶⁾が異なることから、測定値の違いはイシル製造時の原料魚の鮮度や成分のみならず、分析方法や試料調製方法の違いな

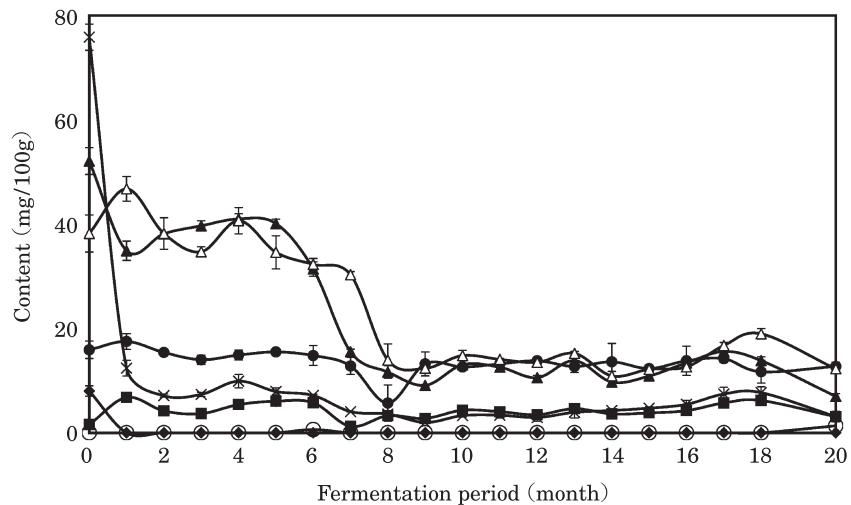


Fig. 2 Changes in polyamines of IKA-ISHIRU during the fermentation at room temperature for 20 month

See IKA-ISHIRU for Table 1.

Vertical bars indicate standard deviation ($n=3$) of means.

◆, Tym ; ■, Put ; ×, Cad ; ●, Him ; ▲, Agm ; ○, Tpm ; △, Spd

ども関与していることが考えられる。

Him は魚介類を原因とするアレルギー様中毒の原因物質として知られ、その中毒量は個人差があるが 70~1 000 mg とされており、さらに Put, Cad, Spd などが共存すると相乗作用を示し、Him の発症量に影響を及ぼすことが報告されている²⁷⁾。しかし、イシルは高塩分で遊離アミノ酸量の多い調味料であり、調理にイシルを利用する場合には少量しか使用しないため、他のポリアミンが共存してもこれが原因で食中毒を引き起こす可能性は低いと考えられる。また、イシル中には血圧上昇や偏頭痛を起こす原因となる Tym も検出されているが、血圧上昇を起こすためには空腹時で約 500 mg の摂取が必要とされていることから²⁸⁾、今回の検出量からみて、調理に少量を使用する場合、Him と同様に健常者にはとくに問題ではないと考えられる。一方、MAO の作用を阻害する抗鬱剤などを服用している人で、MAO 阻害条件下で 6 mg の Tym を経口摂取すると深刻な血圧上昇をもたらすとの報告がある⁶⁾²⁹⁾。この量は Tym の最高値を示した SA-5 で換算すると 12.3 g となり、比較的少ない量に相当するため、MAO 阻害剤を服用している人へのイシルの使用は十分な注意が必要である。

2. イシルの生成過程におけるポリアミンの消長

今回試釀したイシルの最終的なポリアミン量は、Table 1 に示す市販品とほぼ同レベルのものが得られた。まず試釀したイカイシルのポリアミン量の経時変化を Fig. 2 に示す。仕込み直後の諸味には Cad, Agm, Spd が多く含まれていた。Cad は仕込み 1~2 ヶ月で急激に減少し、その後はわずかな増減はあるものの、ほぼ一定の値を示した。Agm, Spd はいずれも発酵開始から約 8 ヶ月まで経時に減少し、その後はほぼ一定の値を示した。Him は試釀期間

中大きな変動がなく 12 mg/100 g 前後とほぼ一定値を示し、Put は仕込み開始直後わずかに増加するが、その後はほぼ一定となった。Tym, Tpm は試釀期間を通してほとんど検出されなかった。

次に試釀したイワシイシルのポリアミン量の経時変化を Fig. 3 に示す。Him は仕込み直後 48.9 mg/100 g と最も多く含まれており、6 ヶ月間で 62.4 mg/100 g と経時にゆるやかなに増加し、その後はほぼ一定となった。仕込み直後の諸味中には Him > Tym > Spd > Put > Cad > Agm の順で含まれていたが、試釀期間中わずかな増減があるもののいずれもほぼ一定の値を示した。Tpm は試釀期間を通してほとんど検出されなかった。

Fig. 4 に試釀したイカイシルおよびイワシイシルにおける His および対照として Him の経時変化を示す。いずれも発酵開始から経時に His 量は増加し、イカイシルでは約 10 カ月、イワシイシルでは約 6 カ月以後ほぼ一定の値を示し、試釀終了時点までその値を維持した。また、ポリアミンの基質となるチロシン、トリプトファン、リジン、オルニチンについてもイカイシル、イワシイシルいずれも His と同様な挙動を示した。一方アルギニンについては、イカイシルでは His と同様であったが、イワシイシルにおいては発酵開始から 2 カ月まで増加したがその後は減少し、6 カ月以降は痕跡となった。しかしながら、Fig. 3 からイワシイシルにおける Agm の経時的な増加がみられなかつたことから、減少したアルギニンが Agm にはならず、なんらかの微生物により資化されたと考えられる。

従って、Fig. 2~Fig. 4 の結果から判断すると、いくつかのポリアミンで経時的な若干の増減があるものの、発酵中の増加が少なく、とくに Him の基質である His も発酵

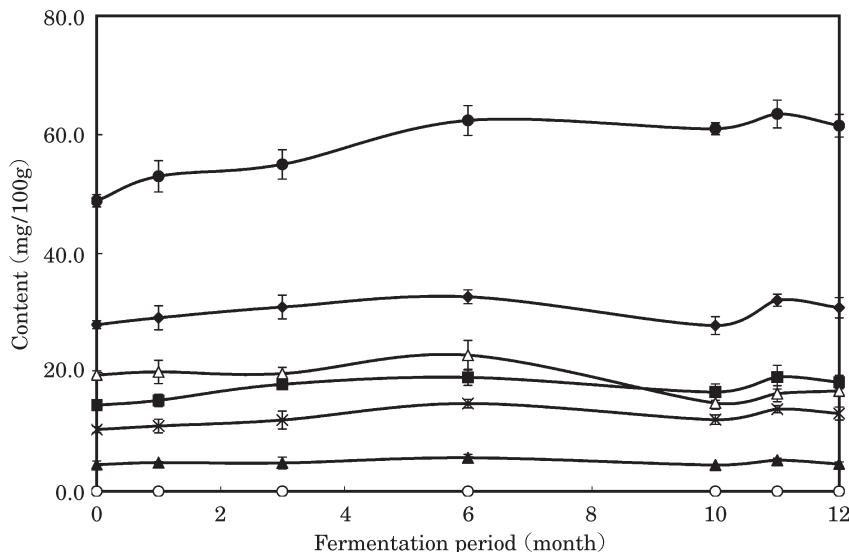


Fig. 3 Changes in polyamines of IWASHI-ISHIRU during the fermentation at room temperature for 12 month

See IWASHI-ISHIRU for Table 1.

Vertical bars indicate standard deviation ($n=3$) of means.

◆, Tym ; ■, Put ; ×, Cad ; ●, Him ; ▲, Agm ; ○, Tpm ; △, Spd

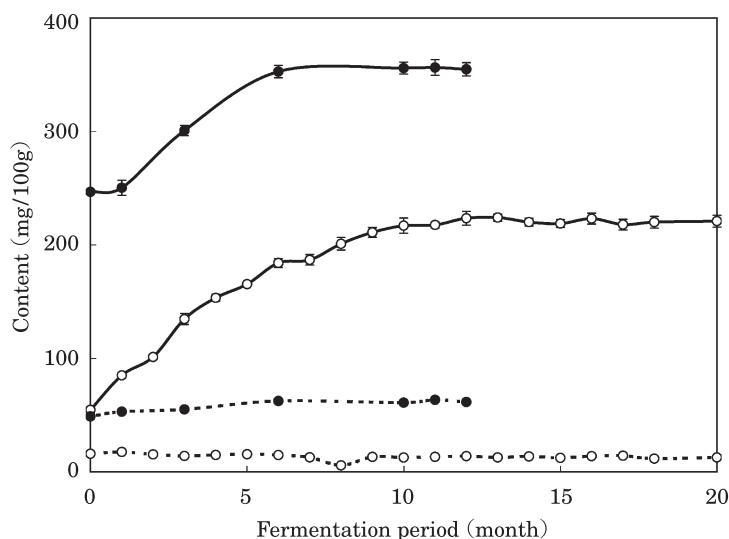


Fig. 4 Changes in histidine and histamine of IKAI-ISHIRU and IWASHI-ISHIRU during the fermentation at room temperature

See IKAI-ISHIRU and IWASHI-ISHIRU for Table 1.

Vertical bars indicate standard deviation ($n=3$) of means.

○, IKAI-ISHIRU ; ●, IWASHI-ISHIRU

— : His, : Him

中の減少がみられなかったことから、イシル中の大部分のポリアミンは原料に由来するポリアミン量がそのまま製品のイシル中に反映されていると考えられる。

佐藤ら²²⁾はイカ塩辛について、4~7週間の生成過程におけるHim量は0.1~5.4 mg/100 g程度と微量であるため、原料における遊離のヒスチジン量が少なく、またHim生成菌がほとんど存在しないためHimが蓄積しにくい水

産加工品としている。また、Cad, Agmが初期段階で多量に検出され、その後減少していくとも報告しており、今回試釀したイカイシルでもほぼ同様の傾向がみられた。また、イカイシルの生成は主として自己消化酵素によるものだが、著者ら³⁰⁾はイカイシルの生成過程におけるプロテアーゼの挙動から、微生物の生産するプロテアーゼも存在することを示唆しており、イカの塩辛と同様にHim生成菌は存

在しないが、*Cad*, *Agm* などの消長には *Acinetobacter* など²⁹⁾ の微生物の関与が考えられる。

佐藤ら¹⁵⁾ はショットの諸味から食塩濃度 10% 以上の環境でも増殖する *Him* 生成菌の存在を確認している。また、八並ら³¹⁾ も市販イワシ糠漬けから 15% 以上の食塩濃度でも十分に発育する *Him* 生産菌を比較的高頻度で検出されることを報告している。しかし、原料に遊離の His を多く含む今回のイワシイシルの試醸において、*Him* 量がわずかに増加した程度であるため、これらの *Him* 生成菌の関与はほとんど無いものと考えられる。Brillantes ら³²⁾ は *Him* 量が 1.3~12.4 mg/100 g と 14.5~37.4 mg/100 g と異なる原料を用いて魚醤油の試醸を行い、12 ヶ月の試醸期間における *Him* の経時変化を調べており、*Him* の少ない方は試醸期間を通して *Him* に変動が無いが、*Him* の多い方は高いレベルまで経時的に *Him* が増加していると報告している。また赤羽ら³³⁾ は、魚肉に 25% の加塩をし、塩蔵するとポリアミンの変動はほとんどみられないと報告している。従って、イカおよびイワシいずれのイシルにおいてもその生成過程でポリアミンに大きな増加がみられず、とくに *Him* は初期段階からほぼ一定の値を示したことから、イシル中のポリアミン量は発酵期間中での *Him* 生成菌などの微生物の関与は少なく、大部分は仕込み以前の原料魚の状態や、仕込み直後の食塩が十分にいきわたらない間に原料中あるいは海水中の *Him* 生成菌などの作用を受けて生成したポリアミンの量に大きく依存していると推察される。今後は、イシル発酵過程の菌相についても検討を進めていきたいと考えている。

要 約

市販のイカイシルおよびイワシイシルのポリアミン類について分析を行い、更にイカおよびイワシイシルの試醸を行い、その生成過程におけるポリアミン類の消長について検討し、その結果を以下に示す。

(1) 市販のイカイシルでは、*Spd*, *Him* が共通した主なポリアミンであり、*Tym*, *Put* が多いもの、*Agm* が多いものなど製品間にかなりのばらつきがみられた。

(2) 市販のイワシイシルでは、*Him* が最も多く含まれており、この他 *Tym*, *Spd* などが主なポリアミンであり、イカイシルに比べ製品間のばらつきは少なかった。

(3) 試醸したイカイシルでは *Cad*, *Agm*, *Spd* が初期段階で多く含まれており、これらはいずれも 8 ヶ月間前後まで経時的に減少し、その後はほぼ一定となった。その他のものは、経時的な変動はほとんど無く、試醸期間を通してほぼ一定の値を示した。

(4) 試醸したイワシイシルでは、*Him* が 6 ヶ月までわずかに増加するものの、いずれのポリアミンも経時的な変動はみられず、試醸期間を通してほぼ一定の値を示した。

以上のことから、イシル中のポリアミンは、いくつかの

微生物の関与があるものの、他の水産加工品でみられる *Him* 生成菌の関与はほとんど無く、原料に含まれる量にその大部分が依存しているものと考えられた。

文 献

- 1) 佐渡康夫, 魚醤文化フォーラム in 酒田, 石谷孝佑編 (幸書房, 東京), pp. 38~43 (1995).
- 2) 佐渡康夫, 道畠俊英, 伝統食品・食文化 in 金沢, 横山理雄, 藤井建夫編 (幸書房, 東京), pp. 64~72 (1996).
- 3) 道畠俊英, 佐渡康夫, 矢野俊博, 榎本俊樹, イシル (魚醤油) の遊離アミノ酸, オリゴペプチド, 有機酸, 核酸関連物質, 食科工, **47**, 241~248 (2000).
- 4) Michihata, T., Yano, T. and Enomoto, T., Volatile compounds of headspace gas in the Japanese fish sauce *Ishiru*. *Biosci. Biotech. Biochem.*, **66**, 2251~2255 (2002).
- 5) 松永明信, 山本 敦, 関口久義, 清水隆作, 発酵食品中のアミノ酸の酵素的脱炭酸生成物について—高速液体クロマトグラフィーによる同時分析—, 富山衛研年報, **7**, 62~69 (1984).
- 6) 竹葉和江, 村上文子, 松本昌雄, 中澤裕之, 高速液体クロマトグラフィーによるチーズ中のチラミンの分析, 食衛誌, **31**, 137~143 (1990).
- 7) 井部明広, 田村行弘, 上村 尚, 田端節子, 橋本秀樹, 飯田真美, 二島太一郎, 市販味噌及び醤油中の不揮発性アミンの分析法及びその含有量, 衛生化学, **37**, 379~386 (1991).
- 8) Stratton, J.E., Hutzins, R.W. and Taylor, S.L., Biogenic amines in cheese and other fermented foods. A Review. *J. Food Prot.*, **54**, 460~470 (1991).
- 9) 八並一寿, 越後多嘉志, 市販いわし糠漬けの不揮発性アミン含量, 食衛誌, **33**, 310~313 (1992).
- 10) Rice, S.L., Eitenmiller, R.R. and Koehler, P.E., Biologically active amines in food. A Review. *J. Milk Food Technol.*, **39**, 353~358 (1976).
- 11) Blackwell, B., Hypertensive crisis due to monoamine oxidase inhibitors. *Lancet*, **2**, 849~851 (1963).
- 12) Bjeldanes, L.F., Schutz, D.E. and Morris, M.M., On the aetiology of scombroid poisoning : cadaverine potentiation of histamine toxicity in the guinea-pig. *Fd. Cosmet. Toxicol.*, **16**, 157~159 (1978).
- 13) Chu, C.H. and Bjeldanes, L.F., Effect of diamines, polyamines and tuna fish extracts on the binding of histamine to much *in vivo*. *J. Food Sci.*, **47**, 79~81 (1982).
- 14) Hui, J.Y. and Taylor, S.L., Inhibition of *in vivo* histamine metabolism in rats by foodborne and pharmacologic inhibitors of diamine oxidase, histamine N-methyl transferase, and monoamine oxidase. *Toxicol. Appl. Pharmacol.*, **81**, 241~249 (1985).
- 15) 佐藤常雄, 溝井理子, 木村 凡, 藤井建夫, くさや汁中のヒスタミン量と細菌フローラ, 食衛誌, **36**, 490~494 (1995).
- 16) 佐藤常雄, 木村 凡, 藤井建夫, 魚醤油諸味中のヒスタミン量とその関連細菌フローラ, 食衛誌, **36**, 763~768 (1995).
- 17) Brillantes, S. and Samosorn, W., Determination of histamine in fish sauce from Thailand using a solid phase extraction and high-performance liquid chromatography. *Fish. Sci.*, **67**, 1163~1168 (2001).
- 18) 舟津保浩, 川崎賢一, 松永明信, 小長谷史郎, マルソウダ魚醤油中のポリアミン量と重金属, 日水誌, **67**, 306~307 (2001).
- 19) 中里光男, 小林千種, 山嶋裕季子, 立石恭也, 川合由華, 安田和男, 魚醤油中の揮発性塩基窒素及び不揮発性アミン類の分析, 東京衛研年報, **53**, 95~100 (2002).

- 20) 山中英明, 松本美鈴, 高速液体クロマトグラフィーによる赤身魚中のポリアミン類の同時定量及び鮮度の判定, 食衛誌, **30**, 369-400 (1989).
- 21) 道畠俊英, 佐渡康夫, 榎本俊樹, イシル(魚醤)に関する研究—イワシイシルの生成過程におけるアミノ酸などの消長—, 石川工試研究報告, **47**, 67-72 (1998).
- 22) 佐藤常雄, 溝井理子, 木村 凡, 藤井建夫, イカ塩辛中のヒスタミン量とその関連細菌フローラ, 食衛誌, **37**, 173-178 (1996).
- 23) 和田 俊, 小泉千秋, いわし糠漬け製造工程におけるヒスタミンの消長, 日水誌, **52**, 1035-1038 (1986).
- 24) 藤井建夫, 新国佐幸, 飯田 遙, 市販ショッフルの化学成分と腐敗性, 日食工誌, **39**, 702-706 (1992).
- 25) 三枝弘育, タイ, ベトナム, カンボジアおよび日本で製造された魚醤油の成分比較, 東京都食技センター研究報告, **9**, 33-43 (2000).
- 26) 中里光男, 斎藤和夫, 諸角 聖, 和宇慶朝昭, 石川ふさ子, 藤沼賢司, 守安貴子, 二島太一郎, 田村行弘, 固相抽出法を用いた食品中の不揮発性腐敗アミンの分析法, 衛生化学, **40**, 203-209 (1994).
- 27) 細貝祐太郎, 松本昌雄監修, 「食品安全セミナー, 食中毒」, (中央法規出版, 東京), pp. 216-227 (2001).
- 28) Wunderer, H., 「医薬品と飲食物の相互作用」(江戸清人, 金谷節子監訳), (じほう, 東京), pp. 71-75 (2002).
- 29) 藤原喜久夫, 粟飯原景昭監修, 「食品衛生ハンドブック」,(南江堂, 東京), pp. 805-808 (1992).
- 30) 道畠俊英, 濱中肇幸, 山崎由香里, 矢野俊博, 榎本俊樹, イカを原料とした魚醤油(イシル)の製造過程におけるプロテアーゼ活性の変動とその性質について, 日本農芸化学会2002年度大会講演要旨集, p. 258, 仙台 (2002).
- 31) 八並一寿, 越後多嘉志, 市販いわし糠漬けからの耐塩性ヒスタミン生成菌の分離, 日水誌, **57**, 1723-1728 (1991).
- 32) Brillantes, S., Paknoi, P. and Totakien, A., Histamine formation in fish sauce production. *J. Food Sci.*, **67**, 2090-2094 (2002).
- 33) 赤羽義章, 加納純子, 伊藤光史, 大泉 徹, マサバの塩蔵および発酵時におけるヒスタミンなど数種アミンの挙動, 日本食品科学工学会第49回大会講演要旨集, p. 77, 名古屋 (2002).

(平成17年9月30日受付, 平成18年3月28日受理)