

水銀を含む底質を懸濁させた海水中における魚体への水銀 の蓄積

誌名	日本水産學會誌
ISSN	00215392
著者	多羅尾, 良吉 田畑, 隆徳 安原, 稔
巻/号	42巻12号
掲載ページ	p. 1411-1422
発行年月	1976年12月

水銀を含む底質を懸濁させた海水中における 魚体への水銀の蓄積

多羅尾良吉・田畑隆徳・安原 稔

(1976年6月14日受理)

The Accumulation of Mercury in the Fishes Reared in the Sea Water Contaminated by Suspended Solids Containing Mercury

Ryokichi TARAO*, Takanori TABATA*, and Minoru YASUHARA*

Three species of fishes, red sea bream (*Chrysophrys major*), mejina (*Girella punctata*), and marbled rock fish (*Sebasticus marmoratus*) were reared in three kinds of sea water suspending the muds of Minamata Bay, whose total mercury concentration levels were about 600 and 100 ppm—dry base—, and a reference mud (total mercury concentration: 0.1 ppm—dry base). The mercury in the muds was mainly in the form of insoluble compounds. The relationship between the rearing time in these sea waters and the increase in total and methyl mercury concentrations (T-Hg and M-Hg) of these fishes was traced.

Very small increases of T-Hg and M-Hg were observed during the experiments, although the equilibrium values (y_{∞}) were rather low (maximum value for T-Hg: 0.278 ppm—in mejina—, for M-Hg: 0.144 ppm—in marbled rock fish). There was little difference in the rate or the extent of mercury accumulation from mud suspensions in which T-Hg (nearly insoluble) varied from 600 to 0.1 ppm. When, in a reference experiment, the fishes were reared in aerated sea water irradiated by U.V. light, the y_{∞} values were 0.315 ppm (T-Hg) and 0.171 ppm (M-Hg), which were slightly larger than those values obtained without aeration and U.V. irradiation.

From the results described above, it was concluded that there is little possibility of mercury accumulation into fish from mud suspensions containing the mercury in the form of insoluble compounds to such an extent as to exceed the maximum permissible levels established by the Ministry of Health and Welfare, Japanese Government.

底質の水銀汚染については、付近に生息する魚体に水銀が蓄積する危険性のあることが注目され、これに関連したいくつかの報告が公にされている¹⁻⁷⁾。このうち実験的なものとしては、塩化第二水銀を使用した合成底質を用いた種々の飼育条件下におけるグッピーへの水銀蓄積試験⁶⁾、塩素、ソーダ工場排水口の下流数地点より得られた底質中に存在するメチル水銀の金魚への蓄積試験⁶⁾、メチル水銀水溶液中における鯉への蓄積試験⁷⁾、などがある。しかし、これらの実験はいずれも淡水魚についてのものであり、海水魚の水銀蓄積性に関する知見はきわめて乏しい。

また、高濃度の水銀化合物を含有する底質が海水中に懸濁した場合、水銀が魚類中に蓄積するか否か、また蓄積するならばその程度はどの位であるか等の点はいまだに明らかにされていない。本研究では高濃度の水銀化合物を含有する底質を水俣湾より採取し、これを懸濁させた海水中で、マダイ、メジナ、カサゴの三種の魚を飼育し、魚体中の総水銀 (T-Hg) および、メチル水銀濃度 (M-Hg) の経時変化を追跡した。なお、底質懸濁液に曝気を行いつつ紫外線を照射すると底質中の無機水銀化合物の有機水銀化が非照射時に比較し

* 株式会社環境科学センター (Environmental Research Center Inc, Yokohama, Japan)

て起りやすいことが藤木らによつて報告されているため⁹⁾、曝気と紫外線を照射した対照飼育実験をあわせて行つた。

実験方法

実験材料 実験魚種は、マダイ、メジナ、カサゴの三種とした。体重の範囲は、マダイ 30~159 g/尾 (平均 84 g/尾)、メジナ 80~418 g/尾 (平均 143 g/尾)、カサゴ 25~140 g/尾 (平均 57 g/尾)、また全長 (口吻から尾鰭の先端までの長さ) の範囲はマダイ 12~20 cm (平均 15.7 cm)、メジナ 10~27 cm (平均 19.0 cm)、カサゴ 12~20 cm (平均 14.6 cm) であつた。入手先はいずれも鹿児島県出水市長島町浦田養魚場である。

飼育用海水には、水俣市梅戸港の海水を用いた。

実験用底質は、水俣市百間港水門付近 (A系列実験用)、これから約 50 m 離れた地点 (B系列実験用)

および熊本県芦北郡芦北町女島の海岸 (C系列実験用) の三ヶ所で採取し、それぞれ大きい異物を除いて 50 l プラスチック製容器に入れ、表面に厚さ約 2 cm の海水をはり更に蓋をして冷暗所に保存した。

実験設備 上記 A, B, C 系列および後述の D 系列の飼育実験は装置系統図 (Fig. 1) に示す装置によつて行つた。Fig. 1 の上図は各飼育水槽を、下図は各水槽 ($a_1, a_2, b_1, b_2, c_1, c_2$ は飼育槽, a_3, b_3, c_3 は底質懸濁水調製槽) の配置を示す。また後述の E 系列の飼育実験は Fig. 2 の如き装置によつて行つた。e は魚飼育槽, g は循環懸濁水の紫外線照射を行う水槽であつて遮光膜 (k) で紫外線を外部から遮断している。

紫外線照射ランプは、東芝製理化学水銀ランプ (SHL-100 UV, 75 W, 輝き 1500 cd/cm², 最強スペクトル 546 nm, 放射限界 250 nm) を用い水面上 60 cm の高さに保持した。

飼育方法 飼育用海水 (各水槽 1000 l) は、A, B, C 系列実験については懸濁物質 (SS) 濃度が 50 ± 5 ppm になる様に前述の底質を懸濁させた。SS の測定は JIS の方法によつた⁹⁾。別に底質 4 kg (湿重量) を径 50 cm の容器に入れたものを各水槽の底に静置した。

なお、マダイについては対照実験として、底質を加えず海水のみの中で飼育する実験 (D 系列)、および T-Hg の最も高い A 系列底質を用い、曝気し紫外線を照射した海水での飼育実験 (E 系列) を行つた。

飼育用海水の温度は蒸気で間接的に $20 \pm 2^\circ\text{C}$ に調節した。換水方法は、A, B, C, E 系列については 1 日 2 回、800 l ずつ換水した。D 系列

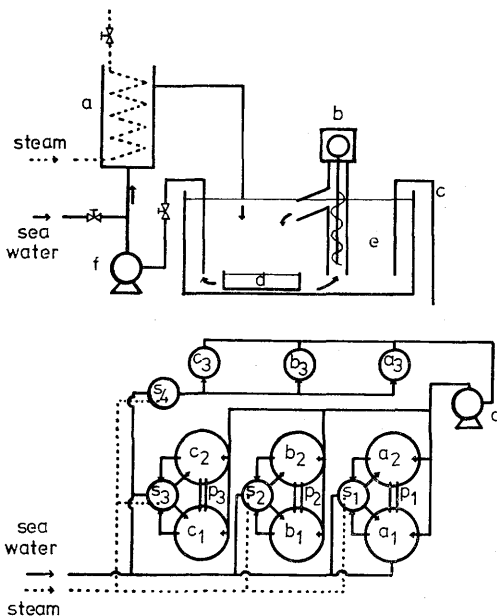


Fig. 1. Experimental apparatus for series A, B, C and D.

upper: Detail of each rearing tank. a: steam heat exchanger, b: agitating pump, c: drain, d: mud vessel, e: fish rearing tank (1,000 l), f: circulating pump.

lower: Layout of the apparatus. a_1, a_2 : fish rearing tanks containing mud suspension (T-Hg 600 ppm, SS 50 ppm), a_3 : mud suspension preparation tank (for a_1 and a_2), b_1, b_2 : fish rearing tanks containing mud suspension (T-Hg 100 ppm, SS 50 ppm), b_3 : mud suspension preparation tank (for b_1 and b_2), c_1, c_2 : fish rearing tanks containing mud suspension (T-Hg 0.1 ppm, SS 50 ppm), c_3 : mud suspension preparation tank (for c_1 and c_2), $s_1 \sim s_4$: steam heat exchangers, $p_1 \sim p_3$: siphons, d: slurry pump.

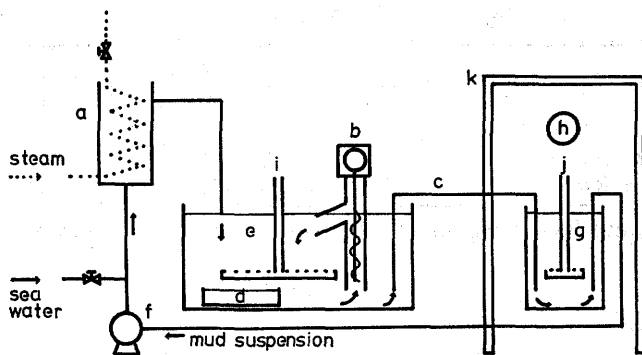


Fig. 2. Experimental apparatus for series E.

a: steam heat exchanger, b: agitating pump, c: siphon, d: mud vessel, e: fish rearing tank (1,000 l), f: circulating pump, g: U.V. light irradiation tank (200 l), h: U.V. light source, i, j: aeration tubes, k: U.V. light screen.

については常時海水を給水した (10 l/min).

餌は市販完全配合飼料 (マダイ 2号) を 5g/尾/日の割合で朝夕 2回にわけて給餌した。水底にたまる汚物は海水交換時に清掃した。水中の溶存酸素は 5~6 ppm, アンモニア濃度は 1 ppm 以下に保つ様管理した。

実験に際しては入手した魚類 (マダイ, メジナ, カサゴ) を 1 m³ のプラスチック水槽にそれぞれ入れて海水への馴化と餌付けを 10~20 日間行つた後, 健康な魚各 100 尾 (カサゴ) ~180 尾 (マダイ, メジナ) を各系列水槽に入れて SS 濃度 50 ppm の懸濁状態で飼育した。

実験はマダイの A, B, C 系列が 1974 年 1 月 25 日, D 系列が 3 月 31 日, E 系列が 4 月 23 日, メジナ (A, B, C 系列) が 2 月 13 日, カサゴ (A, B, C 系列) が 4 月 5 日に開始された。

水銀の分析 1) 底質; 実験用底質中の総水銀 (T-Hg), メチル水銀 (M-Hg) の分析および溶出試験を環境庁水質保全局の底質調査方法⁹⁾に従つて行つた。その結果底質中の水銀については各 5 検体の平均値 (泥の乾重量換算) が A 系列において T-Hg 628 ppm (σ : 4.5 ppm), M-Hg 0.026 ppm (σ : 0.006 ppm), B 系列において T-Hg 96.7 ppm (σ : 0.8 ppm), M-Hg 0.027 ppm (σ : 0.012 ppm), C 系列において T-Hg 0.1 ppm (σ : 0.0 ppm), M-Hg 0.000 ppm であつた。また底質の溶出試験の結果は溶出液の水銀濃度が T-Hg 1.4 ppb (A 系列), 0.8 ppb (B 系列), 0.0 ppb (C 系列), また M-Hg は A, B, C 系列共 0.00 ppb であり, これら底質中の水銀は非常に難溶性の形態である。

2) 飼料; 分析方法は環乳第 99 号 (昭和 48 年 7 月 23 日) 通達による「魚介類の暫定的規制値について」¹⁰⁾に記された方法によつた。その結果各 4 検体の平均値が完全配合飼料で T-Hg 0.07 ppm (σ : 0.015 ppm), M-Hg 0.05 ppm (σ : 0.000 ppm), 生エビで T-Hg 0.04 ppm (σ : 0.010 ppm), M-Hg 0.005 ppm (σ : 0.0004 ppm) であつた (生エビはマダイで摂餌状態の悪い時 5 日に 1 回, 5g/尾/回の割合で与えた)。

3) 海水; T-Hg: 検水 1 l を分解フラスコに採り, これに硝酸 (超特級) 10 ml および過マンガン酸カリウム (特級) 5g を加えて湿式灰化した後還元気化し, フレームレス原子吸光測定を行い検量線により濃度を求めた¹¹⁾。検量線は検水 1 l に塩化第二水銀 (特級) の一定量を添加し同様に操作して作成した。

M-Hg: 検水 1 l に塩酸 (特級) 50 ml および塩化第一銅 (特級) 1g を加えこれを 3 等分しそれぞれ A, B, および C 液とし以下の方法で M-Hg の抽出を行つた。すなわち A 液をベンゼン (特級) 100 ml で 2 回抽出し, B, C 液についても A 液を抽出したベンゼンにより抽出をそれぞれ 2 回くり返した。そのベンゼン層を合わせ 0.05% グルタチオン水溶液 25 ml で 2 回抽出した。この水層に塩酸 (超特級) 2.5 ml を加えベンゼン 20 ml で 2 回抽出した。このベンゼン層を 0.05% グルタチオン (ベンゼンで精製したもの) 水

Table 1. T-Hg, M-Hg and SS in the experimental sea water

	T-Hg*	M-Hg*	SS
Sea water (before addition of mud)	0.2- 0.3 ppb	<0.002 ppb	2- 3 ppm
A series sea water (after addition of mud)	30 -45	do	50-70
B series sea water (do)	5 - 7	do	do
C series sea water (do)	0.2- 0.3	do	do

* The values include both T-Hg (or M-Hg) dissolved and that suspended as a part of muddy solid.

溶液 10 ml で2回抽出した。

最後に水層に塩酸 (超特級) 1 ml およびベンゼン (残留農薬試験用) 10 ml を加えて抽出した。ベンゼン層をガスクロマトグラフ (ECD⁶³Ni) による M-Hg の測定に供し、検量線より M-Hg 濃度を求めた。検量線は換水 1 l に塩化メチル水銀の一定量ずつを添加したものについて上記と同様の操作を行って作成した。

Table 2. The relation between rearing time (days) and amount of accumulated mercury (T-Hg and M-Hg of the edible part) in red sea bream (A, B, C series)*

Rearing time (days)	0	10	20	30	40	50	70	90
A series								
number of samples (n)	28	5	5	5	5	5	5	2
weight (g)	91	95	77	79	85	92	103	115
fish total length (cm)	16.1	16.4	14.8	14.9	15.5	16.8	16.8	17.5
T-Hg (ppm)	0.113	0.152	0.170	0.190	0.178	0.152	0.172	0.155
" β	0.030	0.060	0.042	0.128	0.038	0.030	0.053	
M-Hg (ppm)	0.010	0.024	0.053	0.022	0.038	0.061	0.039	0.030
" β	0.003	0.020	0.025	0.012	0.015	0.038	0.012	
M-Hg/T-Hg	0.088	0.158	0.311	0.116	0.213	0.401	0.227	0.194
B series								
number of samples (n)	28	5	5	5	5	5	—	—
weight (g)	91	98	77	84	67	70		
fish total length (cm)	16.1	15.8	15.2	15.3	14.3	15.5		
T-Hg (ppm)	0.113	0.076	0.176	0.256	0.166	0.148		
" β	0.030	0.051	0.073	0.062	0.070	0.042		
M-Hg (ppm)	0.010	0.014	0.049	0.101	0.056	0.049		
" β	0.003	0.011	0.018	0.036	0.049	0.025		
M-Hg/T-Hg	0.088	0.184	0.278	0.394	0.337	0.331		
C series								
number of samples (n)	28	5	5	5	5	5	2	4
weight (g)	91	93	81	85	83	93	53	79
fish total length (cm)	16.1	16.2	15.4	15.3	15.3	16.0	15.0	16.0
T-Hg (ppm)	0.113	0.066	0.098	0.130	0.122	0.116	0.210	0.212
" β	0.030	0.033	0.052	0.085	0.043	0.027		0.076
M-Hg (ppm)	0.010	0.010	0.029	0.043	0.038	0.051	0.078	0.055
" β	0.003	0.004	0.026	0.027	0.014	0.020		0.039
M-Hg/T-Hg	0.088	0.152	0.296	0.331	0.311	0.440	0.371	0.259

* Throughout Tables 2-6, weight, fish total length, T-Hg, M-Hg and M-Hg/T-Hg are mean values of n samples.

$$\beta = t(\Phi, 0.05)\sigma/\sqrt{n}$$

Table 3. The relation between rearing time (days) and amount of accumulated mercury (T-Hg and M-Hg of the edible part) in mejina (A, B, C series)

		Rearing time (days)													
		0	10	20	30	40	50	60	70	80	90	100	110	114	
A series															
number of samples (n)		26	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	
weight (g)		123	171	131	161	169	155	153	196	168	175	149	141		
fish total length (cm)		18.3	19.9	18.4	19.1	20.2	17.0	19.2	20.8	20.4	19.8	18.6	18.3		
T-Hg (ppm)		0.115	0.136	0.156	0.134	0.146	0.164	0.212	0.230	0.242	0.212	0.212	0.200		
"	β	0.011	0.019	0.047	0.041	0.006	0.038	0.007	0.037	0.037	0.030	0.052	0.052		
M-Hg (ppm)		0.045	0.042	0.045	0.058	0.064	0.040	0.054	0.054	0.056	0.063	0.081	0.089		
"	β	0.004	0.007	0.011	0.022	0.006	0.010	0.010	0.026	0.013	0.014	0.018	0.022		
M-Hg/T-Hg		0.391	0.309	0.288	0.433	0.438	0.244	0.255	0.235	0.231	0.297	0.382	0.445		
B series															
number of samples (n)		26	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	8	
weight (g)		123	147	131	143	158	158	169	214	136	198	148	143	166	
fish total length (cm)		18.3	19.2	17.4	18.8	19.2	19.4	20.0	21.4	18.4	20.8	18.9	18.4	17.9	
T-Hg (ppm)		0.115	0.132	0.136	0.116	0.132	0.156	0.192	0.180	0.138	0.154	0.182	0.176	0.160	
"	β	0.011	0.032	0.026	0.030	0.041	0.022	0.027	0.015	0.020	0.019	0.021	0.040	0.021	
M-Hg (ppm)		0.045	0.045	0.046	0.063	0.068	0.044	0.053	0.056	0.040	0.060	0.075	0.076	0.069	
"	β	0.004	0.015	0.007	0.014	0.010	0.006	0.006	0.022	0.006	0.013	0.026	0.019	0.010	
M-Hg/T-Hg		0.391	0.341	0.338	0.543	0.515	0.282	0.276	0.311	0.290	0.390	0.412	0.432	0.431	
C series															
number of samples (n)		26	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	4	
weight (g)		123	146	113	166	119	163	129	141	112	127	163	108	99	
fish total length (cm)		18.3	18.8	17.4	20.6	18.2	19.4	18.8	19.0	17.4	18.8	19.8	17.1	17.6	
T-Hg (ppm)		0.115	0.129	0.142	0.136	0.118	0.212	0.162	0.146	0.130	0.140	0.188	0.202	0.180	
"	β	0.011	0.100	0.045	0.015	0.036	0.131	0.027	0.007	0.029	0.019	0.045	0.032	0.065	
M-Hg (ppm)		0.045	0.056	0.042	0.061	0.050	0.042	0.061	0.042	0.050	0.050	0.069	0.125	0.092	
"	β	0.004	0.058	0.015	0.013	0.015	0.005	0.014	0.004	0.014	0.014	0.019	0.055	0.022	
M-Hg/T-Hg		0.391	0.434	0.296	0.449	0.424	0.198	0.377	0.288	0.385	0.357	0.367	0.619	0.511	

実験に供した海水の分析値は Table 1 に示す通りであつた。

4) 実験魚; 各系列について経日的に1回5尾ずつの魚を大きさの分布(大, 中, 小)が毎回ほぼ等しくなるようにとり, 体重, 体長を記録後可食部重量を求め, 可食部をホモジネートし T-Hg, M-Hg の測定に供した。測定方法は環乳第 99 号(昭和 48 年 7 月 23 日)通達による「魚介類の暫定的規制値について」* において明示された方法により, 一尾を 1 検体として行つた。

Table 4. The relation between rearing time (days) and amount of accumulated mercury (T-Hg and M-Hg of the edible part) in marbled rock fish (A, B, C series)

Rearing time (days)	0	20	40	60	63
A series					
number of samples (<i>n</i>)	15	5	5	5	8
weight (g)	51	71	47	57	51
fish total length (cm)	13.7	16.2	13.8	14.7	14.4
T-Hg (ppm)	0.176	0.184	0.250	0.224	0.218
" β	0.022	0.049	0.036	0.103	0.079
M-Hg (ppm)	0.059	0.046	0.060	0.078	0.096
" β	0.008	0.020	0.030	0.016	0.028
M-Hg/T-Hg	0.335	0.250	0.240	0.348	0.440
B series					
number of samples (<i>n</i>)	15	5	5	5	9
weight (g)	51	72	50	70	64
fish total length (cm)	13.7	14.0	13.8	15.8	15.2
T-Hg (ppm)	0.176	0.310	0.228	0.166	0.154
" β	0.022	0.251	0.024	0.053	0.014
M-Hg (ppm)	0.059	0.089	0.052	0.058	0.070
" β	0.008	0.082	0.021	0.028	0.015
M-Hg/T-Hg	0.335	0.287	0.228	0.349	0.455
C series					
number of samples (<i>n</i>)	15	5	5	5	10
weight (g)	51	61	51	72	73
fish total length (cm)	13.7	15.0	14.2	15.6	15.5
T-Hg (ppm)	0.176	0.220	0.168	0.138	0.170
" β	0.022	0.083	0.006	0.047	0.031
M-Hg (ppm)	0.059	0.066	0.048	0.067	0.070
" β	0.008	0.043	0.014	0.021	0.015
M-Hg/T-Hg	0.335	0.300	0.286	0.486	0.412

Table 5. The relation between rearing time (days) and amount of accumulated mercury (T-Hg and M-Hg of the edible part) in red sea bream (D series)

Rearing time (days)	0	40	70	80	90
number of samples (<i>n</i>)	14	5	5	4	5
weight (g)	76		111	124	
fish total length (cm)	15.4		16.4	16.3	
T-Hg (ppm)	0.148	0.188	0.144	0.145	0.144
" β	0.057	0.063	0.055	0.133	0.043
M-Hg (ppm)	0.030	0.084	0.046	0.055	0.046
" β	0.017	0.044	0.052	0.054	0.016
M-Hg/T-Hg	0.203	0.447	0.319	0.379	0.319

* 厚生省環境衛生局(環乳第 99 号): 魚介類の暫定的規制値について (1973.7.23).

結 果

実験魚における水銀蓄積の推移 実験開始前および実験期間中の可食部における T-Hg, M-Hg の分析データを Table 2 (マダイ A, B, C 系列), Table 3 (メジナ A, B, C 系列), Table 4 (カサゴ A, B, C 系列), Table 5 (マダイ D 系列), および Table 6 (マダイ E 系列) に示す。マダイ A, B, C 系列の場合, A, B 系列では飼育日数の増加につれて T-Hg, M-Hg に顕著な変化はなかつた。

メジナ A, B, C 系列の場合は, 底質中の T-Hg の差に対応して A 系列における水銀蓄積が B 系列におけるそれを凌いでいるが, B 系列と C 系列の間には殆んど差は認められなかつた。

カサゴ A, B, C 系列の場合は, T-Hg については各系列の水銀蓄積の大小の順位が底質中の T-Hg の大小の順位に対応している。M-Hg については A 系列は B, C 系列におけるよりも僅かに大なる蓄積を示す傾向が認められた。なお, 飼育日数と蓄積される T-Hg, M-Hg との相互関係は, 後述するような蓄積曲線を求めることにより, 一層明瞭に把握される。

底質を加えなかつた海水のみの中での飼育実験 (D 系列) ではマダイの飼育期間中水銀濃度は T-Hg, M-Hg 共 40 日値を除いて差は認められなかつた (Table 5)。A 系列の底質を懸濁させ, 曝気と共に紫外線を照射した海水でのマダイ飼育実験 (E 系列) では, 非照射時に比し T-Hg, M-Hg 共に水銀蓄積の程度は大であつた (Table 6)。また A, B, C 系列実験で魚体に蓄積された T-Hg 中の M-Hg はマダイで 10~45%, メジナで 20~60%, カサゴで 20~50%, マダイ (D) で 20~40%, マダイ (E) で 20~45% であつた。なお, 参考資料として一部の試験魚 (40 日目のマダイ) について可食部外 (骨, 内臓, 頭部) をホモジネートしたものの測定値を可食部の値とともに Table 7 に示した。その結果魚体に蓄積される T-Hg, M-Hg は可食部の値と魚全体の値 (可食部の値と可食部以外の値およびそれぞれの重量比より計算) との間に高度の相関性が見出され, 相関係数は T-Hg で 0.930, M-Hg で 0.963 を示した。

T-Hg, M-Hg の蓄積曲線 上述の実験結果を理論的な数式に整理して蓄積曲線の形で各系列実験間,

Table 6. The relation between rearing time (days) and amount of accumulated mercury (T-Hg and M-Hg of the edible part) in red sea bream (E series)

Rearing time (days)	0	20	40	45
number of samples (n)	14	10	10	29
weight (g)	76	79	85	76
fish total length (cm)	15.4	15.4	15.6	15.3
T-Hg (ppm)	0.148	0.241	0.257	0.235
" β	0.057	0.092	0.074	0.029
M-Hg (ppm)	0.030	0.076	0.093	0.105
" β	0.017	0.030	0.038	0.018
M-Tg/T-Mg	0.203	0.315	0.362	0.447

Table 7. Mean values of T-Hg and M-Hg of the edible part, inedible part and the whole body of fish* (red sea bream: rearing time=40 days)

	Edible part	Inedible part	Whole body
T-Hg	0.155 ppm	0.100 ppm	0.123 ppm
σ	0.045	0.029	0.032
β	0.026	0.017	0.019
M-Hg	0.055	0.014	0.031
σ	0.028	0.007	0.013
β	0.016	0.004	0.008

* Number of samples (n)=15.

各魚種間の蓄積状態の差異を直観的にとらえやすくすること、および平衡値、生物学的半減期 (B.H.) の算出などを目的として蓄積曲線を求めた。

なお、理論式としては寺本ら⁷⁾、および喜田村¹¹⁾の方法に準じて次式を用いた。

$$y = y_0 + K(1 - e^{-\lambda t}) = y_\infty - Ke^{-\lambda t}$$

ただし、 y : 飼育開始後 t 日目の魚体中の T-Hg または M-Hg 濃度。

y_0 : 飼育開始時の魚体中の T-Hg または M-Hg 濃度。

λ : 排泄速度定数 (/日)。

K : 定数。

y_∞ : 飼育開始後 ∞ 日目の魚体中の T-Hg または M-Hg 濃度 (平衡値 $= y_0 + K$)。

上式の K と λ は最小二乗法で決定した。その結果を y_0 , y_∞ , B.H. ($= \ln 2 / \lambda$) と共に Table 8 に示し、求めた各魚種、各系列実験の蓄積曲線を Fig. 3~6 に示した。

A, B, C 系列における平衡値 (y_∞) はマダイで T-Hg 0.210 ppm (B)~0.105 ppm (C), M-Hg 0.068 ppm (B)~0.037 ppm (C), メジナで T-Hg 0.278 ppm (A)~0.200 ppm (C), M-Hg 0.133 ppm (A)~0.105 ppm (B), カサゴで T-Hg 0.252 ppm (A)~0.154 ppm (C), M-Hg 0.144 ppm (A)~0.060 ppm (B) の範囲にあつた。

マダイ D 系列では、 y_∞ は T-Hg 0.139 ppm, M-Hg 0.060 ppm であり y_0 と余り変らなかつた。マダイ

Table 8. Estimated parameters calculated for accumulation curve

No.			K	λ	y_0	y_∞	B. H. (days)
1	Red sea bream	A T-Hg	0.076	0.032	0.110	0.186	21.7
2	"	B "	0.100	"	"	0.210	"
3	"	C "	-0.005	"	"	0.105	"
4	"	mean "	0.062	"	"	0.172	"
5	"	A M-Hg	0.032	0.058	0.010	0.042	12.0
6	"	B "	0.058	"	"	0.068	"
7	"	C "	0.027	"	"	0.037	"
8	"	mean "	0.037	"	"	0.047	"
9	Mejina	A T-Hg	0.163	0.010	0.115	0.278	69.3
10	"	B "	0.088	"	"	0.203	"
11	"	C "	0.085	"	"	0.200	"
12	"	mean "	0.112	"	"	0.227	"
13	"	A M-Hg	0.088	0.004	0.045	0.133	173
14	"	B "	0.060	"	"	0.105	"
15	"	C "	0.075	"	"	0.120	"
16	"	mean "	0.074	"	"	0.119	"
17	Marbled rock fish	A T-Hg	0.076	0.020	0.176	0.252	34.7
18	"	B "	0.008	"	"	0.184	"
19	"	C "	-0.022	"	"	0.154	"
20	"	mean "	0.020	"	"	0.196	"
21	"	A M-Hg	0.085	0.004	0.059	0.144	173
22	"	B "	0.001	"	"	0.060	"
23	"	C "	0.002	"	"	0.061	"
24	"	mean "	0.037	"	"	0.096	"
25	Red sea bream	D T-Hg	0.010	0.020	0.129	0.139	34.7
26	"	D M-Hg	0.034	0.030	0.026	0.060	23.1
27	"	E T-Hg	0.186	0.022	0.129	0.315	31.5
28	"	E M-Hg	0.145	0.014	0.026	0.171	49.5

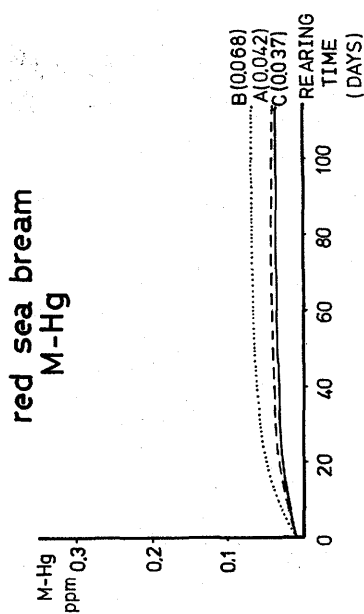
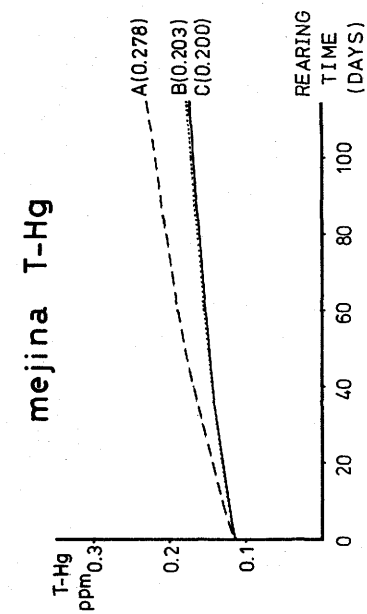


Fig. 3. Accumulation curve of red sea bream (Throughout Fig. 3-6, the figures in the parentheses express y_{∞}).

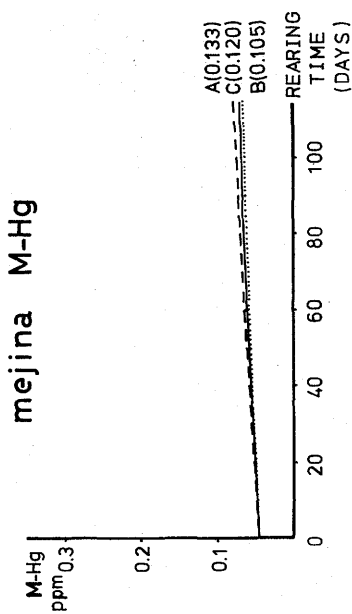
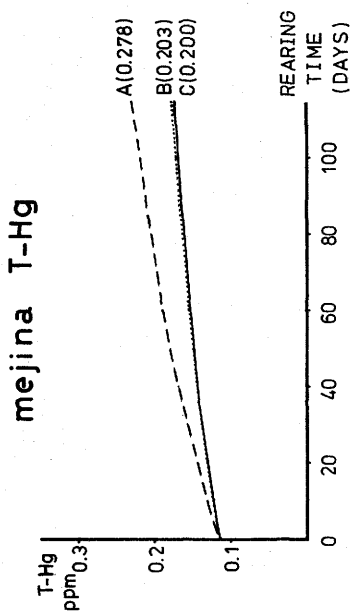


Fig. 4. Accumulation curve of mejina.

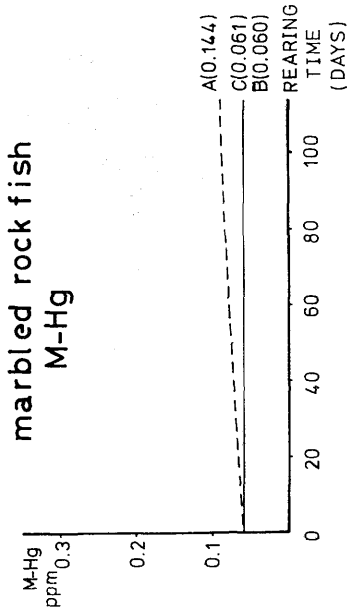
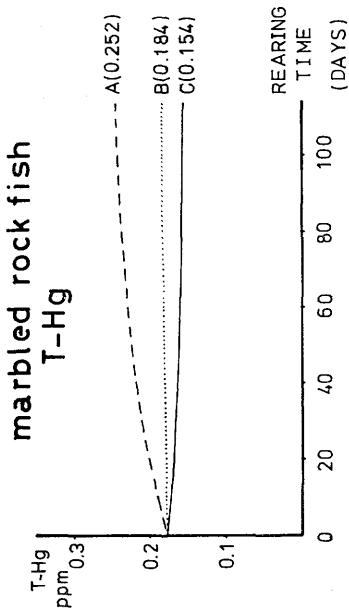


Fig. 5. Accumulation curve of marbled rock fish.

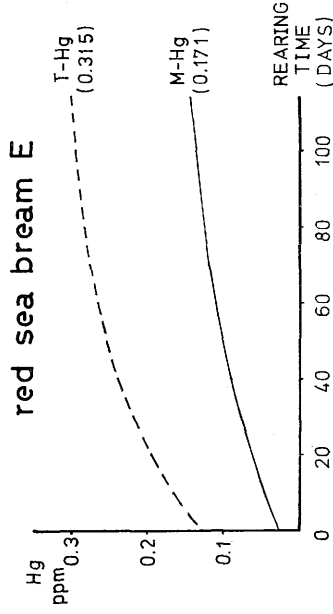
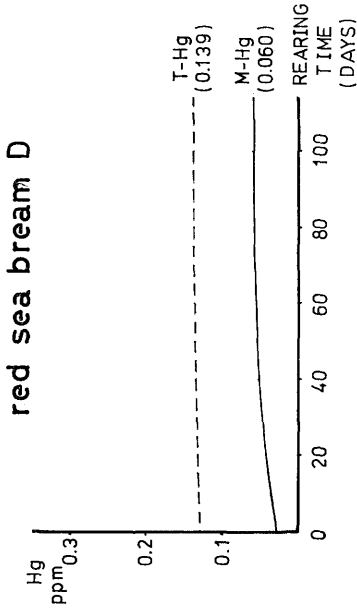


Fig. 6. Accumulation curve of red sea bream under various conditions. upper: without mud, lower: U.V. light irradiation and aeration.

E系列では y_{∞} は T-Hg 0.315 ppm, M-Hg 0.171 ppm となり, A系列に比較して大であつた。

考 察

魚体内水銀蓄積値の経日変化 蓄積曲線によれば, 魚体内水銀値の経日変化が多くの場合僅かに認められ, 飼育日数の増加と共に T-Hg, M-Hg はいくらか増加する。この T-Hg, M-Hg の微増は経日間分析値の有意差検定 (二元配置くり返しの分散分析により, 危険率5%で解析) によると統計的に有意と認められた。それらの平衡値は既述の通り A, B, C系列実験では T-Hg 0.300 ppm, M-Hg 0.150 ppm を下回る値となつている。E系列実験の結果は, 紫外線照射時における T-Hg, M-Hg のふえ方が非照射時に比べて僅かに大きいことを示している。

次に, 水槽系列間の差について有意差検定を行つたところ, 各魚種とも系列間に有意差は認められず, 難溶性水銀化合物を含む底質の場合は T-Hg の差が魚体への T-Hg および M-Hg の蓄積に対して統計的に有意と認められる程の差を与えないことを示した。検定にはマダイについては飼育開始後 90 日迄の値を, メジナについては 110 日迄の値を, カサゴについては 60 日迄の値をそれぞれ使用した。蓄積曲線を見てもその差は顕著ではない (ただ, 蓄積曲線で見られる僅かの差は A系列実験において B, C系列実験よりも高いことが多い)。このように A, B, C三種の底質の T-Hg 値にはかなり距りがあるにもかかわらず, A, B間の蓄積量の差は僅かであり, 更に B, C間には殆んど差を認め難い。いいかえれば底質が難溶性水銀化合物を含む場合には 50 ppm の様な比較的高濃度の底質懸濁下でも魚体への T-Hg, M-Hg の蓄積速度や蓄積量には底質中水銀濃度が 600~0.1 ppm の範囲において変化がないものと考えることが出来よう。

なお, 今回の実験で得られた平衡値 (y_{∞}) は A, B, C系列の場合は勿論, 曝気と紫外線照射を行つた E系列においても厚生省の定める暫定規制値¹²⁾を下回つている。従つて難溶性水銀化合物を含む底質の場合は底質懸濁液中にマダイ, メジナ, カサゴが生息しても, 暫定規制値を超えるような多量の水銀を底質懸濁液から蓄積する恐れはまずないものと推定されよう。

一方, A, B, C系列実験における水銀蓄積量の差, あるいは飼育日数と水銀濃度の関係, およびデータのバラツキの程度などには各魚種による変化が認められたが, これは, 各魚種により実験開始時存在した水銀濃度 (y_0) がさまざまであつたこと, 単一魚種内でも各個体によつて y_0 がかなりの幅に分布していたことなどによるものと思われる。

生物学的半減期 魚類についての水銀の生物学的半減期 (B.H.) については従来上田等¹³⁾の $^{203}\text{HgCl}_2$, $\text{CH}_3^{203}\text{HgCl}$ の γ 線放射能減衰の測定にもとづくニジマス, コイ, ナマズについての報告 (T-Hg で約 100 日, M-Hg で約 200 日) があるが海産魚の B.H. についてはまだ報告がみられない。

今回の実験は B.H. を正確に求めることを主目的にしたものではないがここできめた λ の値から B.H. を試算することができた。その値は Table 8 に示す通りマダイ (A, B, C) で 22 日 (T-Hg) および 12 日 (M-Hg), メジナで 69 日 (T-Hg) および 173 日 (M-Hg), カサゴで 35 日 (T-Hg) および 173 日 (M-Hg) であり魚種間に大きな差異があることが認められた。

終りに本研究の進行にあたり終始御討論と御指導をいただいた熊本大学理学部附属合津臨海実験所弘田禮一郎教授, 筑波大学医学専門学群藤木素土助教授, および熊本大学工学部江川博明教授に厚く御礼を申し上げます。

要 約

総水銀 (主に難溶性水銀化合物) として泥の乾重量換算濃度約 600, 100 ppm を含む水俣湾低質および対照底質 (総水銀濃度 0.1 ppm) を各々懸濁 (SS: 50 ppm) させた海水中でマダイ, メジナ, カサゴの三種の魚を飼育し, 各魚種ごとに魚体の T-Hg, M-Hg の経時変化を追跡した。その結果飼育日数の経過と共に魚体の T-Hg, M-Hg は微増したが, 平衡値は比較的 low 最大のものでも T-Hg で 0.278 ppm (メジナ),

M-Hg で 0.144 ppm (カサゴ) であつた。また、底質懸濁液から魚体への水銀蓄積の速度や蓄積量は、底質が難溶性水銀化合物を含む場合には、底質中水銀濃度 (600~0.1 ppm) により大きな変化のないことが認められた。一方、対照実験として苛酷な曝気と紫外線照射を行つた条件下においても平衡値は T-Hg で 0.315 ppm, M-Hg で 0.171 ppm にとどまり、非照射時に比べて僅かに大であつた。難溶性水銀化合物を含む底質の場合はその懸濁液中に魚類 (マダイ, メジナ, カサゴ) を給餌飼育した場合厚生省の定める暫定規制値を超えるような多量の水銀を蓄積する恐れはないものと推定される。

文 献

- 1) 藤木素士・田島静子：熊本医学会雑誌，**48**，117-123 (1974).
- 2) 入鹿山且朗・藤木素士・田島静子・大森昭子：日本公衆衛生雑誌，**19**，25-32 (1972).
- 3) 弘田禮一郎・藤木素士・田島静子：本誌，**40**，393-397 (1974).
- 4) 石野紀元：環境創造，**4**，(11)，63-71 (1974).
- 5) L. H. BONGERS and M. N. KHATTACK: U.S. Nat. Tech. Inform. Serv., P.B. Rep. No. 211165 (1972).
- 6) D. G. LANGLEY: *J.W.P.C.F.*, **45** (1), 44-51 (1973).
- 7) 寺本亘二・帯刀俊文・篠原彰男・丸山 博：用水と廃水，**10**，856-860 (1968).
- 8) JIS K0102 10・2・1・1 備考 3 (1974).
- 9) 環境庁水質保全局：官公庁公害専門資料，**9** (2)，67-83 (1974).
- 10) 日本公衆衛生協会編：水質汚濁水域における生物汚染調査，動植物等生物検体金属分析法指針 (第一報)，日本公衆衛生協会，東京，(1970) p. 14.
- 11) 喜田村正次：食品衛生研究，**21**，597-619 (1971).
- 12) 魚介類の水銀に関する専門家会議：官公庁公害専門資料，**8** (4)，93-94 (1973).
- 13) 山中すみへ・上田喜一・吉田多摩夫：日衛誌，**28**，582-587 (1974).