市販野菜及び果物中の総水銀定量法の改良並びに 総水銀の含有量調査

(平成3年8月15日受理)

田中 健* 青木 喜也* 玉瀬喜久雄*
兔本文昭* 岡山明子* 大林英之*
芋生真子* 佐々木美智子*

Improved Method for Determination of Total Mercury and Its Application to Vegetables and Fruits in Markets

Takeshi TANAKA, Yoshinari AOKI, Kikuo TAMASE, Fumiaki UMOTO,
Hideyuki OHBAYASHI, Masako IMOU and Michiko SASAKI

(Nara Prefectural Institute of Public Health: 57-6, Omori-cho, Nara 630, Japan)

To detect trace amounts of total mercury in vegetables and fruits, the wet digestion-cold vapor atomic absorption spectrometry method was improved.

The recoveries and the coefficients of variation for total mercury added to vegetables and fruits were 94~103% (average 99%) and 2.0~11% (average 5.6%) at 0.5 ppb, and 97~101% (average 99%) and 2.8~6.3% (average 4.1%) at 2.5 ppb. The detection limit was 0.1 ppb in the samples.

The improved method was adapted to the determination of trace amounts of total mercury in 27 kinds of vegetables and fruits (81 samples) collected from markets in Nara Prefecture. The obtained mean amounts of total mercury were less than 0.1 ppb for 10 species, 0.1~1.0 ppb for 12 species and 1.0~2.4 ppb for 5 species. These values are lower by 1~2 orders of magnitude than those reported by other researchers.

(Received August 15, 1991)

Key words: 総水銀 total mercury; 湿式分解 wet digestion; 野菜 vegetable; 果物 fruit; 還元気化原子吸光法 cold vapor atomic absorption spectrometry

緒 言

水銀は、自然界に広く分布し、微量ながら野菜、果物にも含まれているが、魚介類に比べて微量であり、昭和48年に水銀農薬が使用禁止になった以後は測定データの報告例は見あたらない。現在、野菜、果物に水銀農薬は使用されていないが、使用禁止以前に使用していた水銀農薬による影響が今日においても存在する可能性が考えられる。また、水銀のバックグラウンド値はどのくら

いであるかを、正確に把握することは食品衛生上有益である。

水銀の測定における試料の灰化処理には湿式分解法^{1)~8)}、酸素ボンブ燃焼法^{1), 6)}、石英管燃焼分解法^{1), 8), 10)}、加熱気化-金アマルガム法^{1), 6), 11)}などがあるが、一般的には湿式分解法及び石英管燃焼分解法が、又、水銀検出時における水銀の気化には還元気化法^{1)~6), 9)}及び加熱気化法^{1)~3), 6), 8)}が多く用いられている。このうち湿式分解法は試料の多量を処理することができ、また、還元気化法は試験溶液の全量を測定に用いることができることか

* 奈良県衛生研究所: 〒630 奈良市大森町 57-6

ら、微量水銀の測定には、湿式分解-還元気化法が好ましいと考える。先に石英管燃焼分解-加熱気化法による市販鮮魚の水銀について報告^{1), 2)}したが、野菜、果物の水銀は魚介類に比べて微量であることから、従来から行われている硫酸-硝酸分解^{1), 4), 6), 8)}と還元気化法^{1)~10)}を使い、それらに若干の改良を加え、それをうい市販野菜及び果物中の微量水銀を測定したので、その結果を報告する。

実験方法

1. 試薬及び標準液など

(1) 試薬：硝酸、硫酸、過マンガン酸カリウム、塩酸ヒドロキシルアミンは和光純薬工業(株)製の有害金属用または原子吸光用を、塩化第一スズはナカライテックス(株)製原子吸光用を用いた。

(2) 水銀標準液：原子吸光用 1000 $\mu\text{g/ml}$ 標準液 (和光純薬工業(株)製) を希釈して 1 $\mu\text{g/ml}$ 溶液をつくり、標準原液とし、適宜、水で希釈して用いた。

(3) 標準混液：分液漏斗に水約 50 ml, 硫酸 10 ml を加え室温まで放冷後、0.1 $\mu\text{g/ml}$ の水銀標準溶液 1 ml を加えたものを標準混液とした。

(4) 5% 過マンガン酸カリウム溶液：過マンガン酸カリウム 50 g をひょう取し、水約 800 ml を加え加熱溶解後、水で 1 L とした。

(5) 10% 塩酸ヒドロキシルアミン溶液：塩酸ヒドロキシルアミン 20 g をひょう取し、水を約 150 ml 加えて溶解し、さらに水を加えて 200 ml とした。

(6) 20% 塩化第一スズ溶液：塩化第一スズ二水塩 30 g を水及び硫酸 9 ml で溶かして 150 ml とした。

2. 装置

(1) 原子吸光装置：(株)島津製作所製 MERCURY ANALYZER UV-201

3. 試料

1991 年 1 月~2 月に奈良県内都市に流通している野菜 21 種類 63 検体、果物 6 種類 18 検体を試料とした。

4. 測定方法

(1) 試料溶液の調製：野菜、果物の可食部をよく細断し、100 ml 共栓付き三角フラスコに 20 g をひょう取した。直径約 7 mm のガラスビーズ 2~3 個、硝酸 20 ml, 硫酸 10 ml を順次加え、ガラス製冷却管 (内径 6.5 mm, 長さ 60 cm) を取り付け、ホットプレートの表面温度 180°で、1 時間加熱した。冷却管をはずした後、さらに、2~2.5 時間加熱し硝酸を気化させ、濃縮分解を行った。その後、約 10 ml の水、5% 過マンガン酸カリウム溶液 10 ml を順次加え、約 120°で 20 分間加熱し試料溶液とした。

(2) 原子吸光測定：室温まで放冷した試料溶液に、10% 塩酸ヒドロキシルアミン溶液 8 ml を加え、過剰の過マンガン酸カリウムを分解した後、100 ml 分液漏斗に約 30 ml の水で洗い移した。この溶液を水で約 80 ml

Fig. 1. Effect of sulfuric acid concentration on reduction of mercury

One ml of mercury solution (0.1 $\mu\text{g/ml}$) was added to each of sulfuric acid solution, which contains 0, 1, 3, 5, 8, 10, 15 ml of sulfuric acid.

After being made up to 80 ml with distilled water. 5 ml of 20% tin(II)-chloride dihydrate solution was added and total mercury concentration was measured by cold vapor atomic absorption spectrometry.

とし、手で激しく振り気泡を抜き、次いで、20% 塩化第一スズ溶液 5 ml を加え 5 分間振とう後、あらかじめ 2 L/min で空気を吸引排気させている空気ポンプに分液漏斗の先端を接続し空気流量がゼロになるまで数秒間おいた後、分液漏斗の活栓を開き水銀蒸気を空気と共に吸収セルに送り波長 253.7 nm で測定した。

結果及び考察

1. 水銀の還元気化条件の検討

水銀の還元気化に影響する原因として溶液温度¹³⁾及び使用する試薬量^{13), 14)}が考えられる。そこで、使用する試薬の影響を調べた。

(1) 硫酸量：分液漏斗に水約 50 ml と硫酸を段階的に 0~15 ml 加え、室温になるまで放置した後、0.1 $\mu\text{g/ml}$ の水銀標準溶液 1 ml 及び水を加え約 80 ml とした。次に 20% 塩化第一スズ溶液 5 ml を加え、水銀の還元気化に及ぼす硫酸量の影響を調べた。硫酸を添加しない場合の原子吸光スペクトルのピーク高を 1 とし、それに対し硫酸を加えた場合のピーク高の比を Fig. 1 に示した。硫酸量が 0~15 ml の間では硫酸量の増加に伴い吸光度も大きくなり、硫酸量 15 ml では無添加の場合と比較して約 1.5 倍の値を示した。しかし、硫酸量 10 ml で測定感度も十分なことから硫酸量は 10 ml とした。また、5% 過マンガン酸カリウム溶液 10 ml と 10% 塩酸

Fig. 2. Effect of tin(II)-chloride dihydrate on reduction of mercury

Experimental conditions were same as Fig. 1, except for volume of sulfuric acid (10 ml).

Fig. 3. Effect of potassium permanganate concentration on reduction of mercury

Experimental conditions were same as Fig. 1, except for 10 ml of sulfuric acid and 8 ml of 10% hydroxylamine solution.

ヒドロキシルアミン溶液 8 ml を加えた場合も同様の傾向を示し、その影響はなかった。

(2) 塩酸ヒドロキシルアミン量: 標準混液に 10% 塩酸ヒドロキシルアミン溶液を段階的に 0~15 ml 加え、水を加えて、80 ml とし、20% 塩化第一スズ溶液 5 ml を加えて、水銀の還元気化に及ぼす塩酸ヒドロキシルアミン量の影響を調べた。0~15 ml の範囲では、ピーク高にほとんど変化は認められなかった。そこで、過マンガン酸カリウムの分解に十分な 8 ml の塩酸ヒドロキシル

Fig. 4. Effect of nitric acid concentration on reduction of mercury in the presence of hydroxylamine and potassium permanganate

●—●: nitric acid, ×---×: nitric acid, 8 ml of 10% hydroxylamine solution, ○.....○: nitric acid, 10 ml of 5% potassium permanganate solution and 8 ml of 10% hydroxylamine solution.

Experimental conditions were same as Fig. 1, except for 10 ml of sulfuric acid.

アミン溶液を加えることにした。

(3) 塩化第一スズ量: 標準混液に 20% 塩化第一スズ溶液を段階的に 0~10 ml 加え、水を加えて 80 ml とし、水銀の還元気化に及ぼす塩化第一スズ量の影響を調べた。その結果、Fig. 2 に示すとおり 20% 塩化第一スズ溶液 1~10 ml の範囲ではピーク高は添加量の増加に伴わずかに高くなる傾向が見られるが、5 ml 前後ではほとんど変化がないことから 20% 塩化第一スズ溶液の添加量は 5 ml とした。

(4) 過マンガン酸カリウム量: 標準混液に段階的に 5% 過マンガン酸カリウム溶液 0~15 ml 及び 10% 塩酸ヒドロキシルアミン溶液 8 ml を加え、水を加えて 80 ml とし、ついで 20% 塩化第一スズ溶液 5 ml を加えて、過マンガン酸カリウム量の影響を調べた。その結果、Fig. 3 に示すとおり 5% 過マンガン酸カリウム溶液 0~15 ml の範囲ではピーク高は添加量の増加に伴わずかに低くなる傾向が見られるが、10 ml 前後ではほとんど変化がないことから 5% 過マンガン酸カリウム溶液の添加量は 10 ml とした。

(5) 硝酸量: 標準混液に硝酸を段階的に 0~15 ml 加え、水を加えて 80 ml とし、次いで 20% 塩化第一スズ溶液 5 ml を加え硝酸量の影響を調査した。また、標準混液に 10% 塩酸ヒドロキシルアミン溶液 8 ml を加え

Table 1. Recovery of Total Mercury from Vegetables and Fruits*

	Sample weight (g)	Hg added (ppb)	Hg mean (ppb)	C.V. (%)	Recovered (ppb)	Recovery ratio (%)
Chinese cabbage	20	0	0.28			
	20	0.5	0.75	11	0.47	94
	20	2.5	2.70	2.8	2.42	97
Radish	20	0	0.06			
	20	0.5	0.53	6.5	0.47	95
	20	2.5	2.47	3.2	2.41	97
Cucumber	20	0	0.02			
	20	0.5	0.53	2.0	0.51	102
	20	2.5	2.53	3.9	2.52	101
Apple	20	0	0.17			
	20	0.5	0.68	3.0	0.52	103
	20	2.5	2.69	6.3	2.53	101

*: Average of 3 trials

たものと、5% 過マンガン酸カリウム溶液 10 ml 及び 10% 塩酸ヒドロキシルアミン溶液 8 ml を加えた場合と比較した。その結果を Fig. 4 に示した。硝酸のみでは 0～15 ml の範囲では影響はみられなかった。しかし、塩酸ヒドロキシルアミンを加えた場合には硝酸量と共に吸光度の低下がみられた。又、過マンガン酸カリウムと塩酸ヒドロキシルアミンの存在下では、硝酸 8 ml までは水銀測定に影響はなかったが、硝酸量はなるべく少量であることが望ましいことから残存硝酸量は 5 ml 以下とした。

2. 試料溶液の調製法と検討

試料の湿式分解において器具からの水銀汚染や加熱による水銀の揮散が考えられることから、以下のことを調べた。

(1) ガラス器具からの汚染: 微量水銀の測定では器具からの水銀の溶出や汚染が測定に影響を与えることも考えられるので、特に加熱分解に用いる三角フラスコ及び冷却管は水で薄めた硫酸、硝酸の混液で一度煮沸したものを使用した。酸洗浄した器具を使用して試料分析と同じ操作を行ったブランク値は 0.025 ppb 未満であり測定に支障はなかった。

(2) 加熱による水銀の揮散: 本法では、硝酸が多く残ると測定値が低くなる恐れがあるので、ホットプレートの表面温度約 180° で 2 時間冷却管をはずして硝酸を気化させた。この濃縮分解の操作では水銀が揮散する恐れがあるので、共栓付き三角フラスコに 0.01 µg/ml 水銀標準溶液の 0, 0.5, 1.0, 3.0, 5.0 ml を分取し、水で 20 ml とし、硝酸 20 ml、硫酸 10 ml を加え約 180° で 3 時間加熱濃縮し水銀の揮散を調べた。この濃度範囲では回収率 90～109% (平均 100%) で検量線と同様良好な直線を示した。このことから水銀は 180° で 3 時間加熱濃縮した場合でも揮散せず、冷却管は必要ではないことが分

かった。しかし、今回の実験では加熱濃縮において激しく反応するためあふれだすことや、突沸する試料もあるので、沸石 2～3 個を加え、激しく反応する間は冷却管を使用した。なお、特に有機物含有量の多いしめじ、バナナ、キウイなどは冷却管を取った後、2 時間の加熱濃縮の途中で硝酸を 2～5 ml 加えると過マンガン酸カリウムの消費量も 10 ml で十分であった。

3. 検量線

0.01 µg/ml 水銀標準溶液の 0, 0.5, 1.0, 3.0, 5.0 ml を、あらかじめ蒸留水約 50 ml に硫酸 10 ml を加えたものに添加し、過マンガン酸カリウムの色が付くまで 5% 過マンガン酸カリウムを加えさらに 2～3 滴加えて、水で約 80 ml とした。測定の前に過マンガン酸カリウムの色が消えるまで塩酸ヒドロキシルアミン数滴を加え以下試料と同様に測定した。0～0.8 µg の範囲では良好な直線を示した。

4. 添加回収実験

白菜、大根、きゅうり及びびりんに水銀を 0.5 ppb 及び 2.5 ppb となるように添加した場合の回収率及び変動係数を Table 1 に示した。0.5 ppb 添加の場合、回収率は、94～103% (平均 99%)、変動係数は、2.0～11% (平均 5.6%)、同様に 2.5 ppb 添加の場合、97～101% (平均 99%)、2.8～6.3% (平均 4.1%) であった。また、本法の定量下限値は試料 20 g を用いた場合 0.1 ppb であり、低濃度でも回収率及び精度も良好に測定することができた。

5. 野菜及び果物中の総水銀含有量

市販の野菜 18 種類 (サニーレタス、大根、キャベツ、みずな、白菜、ねぎ、玉ねぎ、ブロッコリー、かいわれ、きくна、ピーマン、ほうれんそう、みつば、なす、にんじん、しめじ、きゅうり、トマト) 54 検体、いも 3 種類 (さといも、長いも、じゃがいも) 9 検体、果物 6 種類

Table 2. Total amounts of Mercury in Vegetables and Fruits

	Content of total mercury			Mean (ppb)
	(ppb-Wet weight)			
Lettuce	0.2,	<0.1,	0.3	0.2
Radish	<0.1,	<0.1,	<0.1	<0.1
Cabbage	0.2,	<0.1,	<0.1	0.1
Mizuna	1.9,	2.9,	2.6	2.4
Chinese cabbage	0.2,	0.3,	<0.1	0.2
Welsh onion	0.5,	0.4,	0.4	0.4
Onion	0.5,	<0.1,	<0.1	0.2
Broccoli	2.6,	0.4,	<0.1	1.0
Kaiware radish	0.6,	0.2,	0.1	0.3
Kikuna	1.2,	1.2,	0.6	1.0
Sweet pepper	<0.1,	<0.1,	<0.1	<0.1
Spinach	1.0,	1.8,	2.4	1.7
Japanese horwort	0.5,	0.4,	0.7	0.5
Eggplant	<0.1,	<0.1,	<0.1	<0.1
Carrot	0.4,	0.3,	0.3	0.3
Simeji	1.3,	2.5,	1.9	1.9
Cucumber	0.2,	<0.1,	<0.1	<0.1
Tomato	<0.1,	<0.1,	<0.1	<0.1
Taro	0.6,	0.8,	0.2	0.5
Yam	0.8,	0.1,	<0.1	0.3
Potato	<0.1,	<0.1,	<0.1	<0.1
Strawberry	0.1,	<0.1,	<0.1	0.1
Apple	0.2,	<0.1,	<0.1	0.1
Kiwi fruit	<0.1,	<0.1,	<0.1	<0.1
Tangerine	<0.1,	<0.1,	<0.1	<0.1
Lemon	<0.1,	<0.1,	<0.1	<0.1
Banana	<0.1,	<0.1,	<0.1	<0.1

(いちご, りんご, キウイ, みかん, レモン, バナナ) 18 検体について測定した結果を Table 2 に示した。野菜及び果物 27 種類の中で 10 種類が 0.1 ppb 未満で, 12 種類が 0.1~1.0 ppb の範囲にあった。みずな, ブロccoli, きくな, ほうれんそう, しめじの 5 種類が 1.0~2.4 ppb と 1 ppb 以上であった。しかし, 18 種類の野菜, 3 種類のいも, 6 種類の果物の平均濃度はそれぞれ 0.6 ppb, 0.3 ppb 及び 0.1 ppb 未満であった。

昭和 63 年国民栄養調査成績の概要¹⁵⁾では野菜類 249 g, いも類 66.6 g, 果実類 125 g が一日に摂取されていると述べていることから, 水銀の一日摂取量は野菜類から 0.149 μ g, いも類から 0.020 μ g, 果物類から 0.013 μ g 未満, 計 0.182 μ g 以下であった。この値は奈良県民の一日摂取量¹⁶⁾の 0.9% 以下にすぎない。また, WHO では 1 週間の摂取量を総水銀として 0.3 mg 以下であれば問題の無い量であるとしている¹⁷⁾。喜多村ら¹⁸⁾は水銀農薬を使用していた昭和 35~36 年の水銀濃度は, りんごの果肉で 0.06~0.13 ppm, 平均 0.08 ppm, 無散布で

0.01~0.03 ppm, また他の野菜, 果物では平均でみかんの果肉 0.02 ppm, 白菜 0.03 ppm, ほうれんそう 0.05 ppm, にんじん 0.06 ppm, 大根 0.05 ppm であり, 当時の果実の水銀量は平均的に 0.04 ppm 程度であったと報告している。また, 水銀農薬の散布中止後の市販農作物の水銀含量として, 根菜類であるじゃがいもは 0.003~0.02 ppm (平均 0.015 ppm), 同様に, さつまいも 0.02~0.04 (0.03), さといも 0.003~0.04 (0.02), そ菜類である白菜は 0.002~0.18 (0.02), 同様にキャベツ 0.002~0.08 (0.02), ねぎ 0.009~0.06 (0.02), 玉ねぎ 0.004~0.03 (0.01), 大根 0.004~0.14 (0.03), にんじん 0.003~0.08 (0.040), きゅうり 0.002~0.02 (0.01), なす 0.004, ビーマン 0.008 ppm であったと報告¹⁸⁾している。また, Wiersma ら⁵⁾はレタス 0.5~11 ppb (平均 2 ppb), 同様にトマト 0.1~8 (1.3), きゅうり 0.1~1.5 (0.3), ほうれんそう 0.1 未満~29 (5), にんじん 0.6~5 (2), じゃがいも 0.1 未満~17 (3), りんご 0.4~3 (1) ppb であったと報告している。本調査での平均値はレタス 0.2 ppb, トマト 0.1 ppb 未満, きゅうり 0.1 ppb 未満, ほうれんそう 1.7 ppb, にんじん 0.3 ppb, じゃがいも 0.1 ppb 未満, りんご 0.1 ppb 未満であり, 前述の報告値^{5), 18)}と比較して, その濃度は水銀農薬の散布中止後の市販農作物の水銀含量に対し 1~2 桁低く, Wiersma ら⁵⁾の報告値に対しても, ほうれんそうで約 1/3, きゅうりで 1/3 以下, レタス, トマト, にんじん, じゃがいも, りんごでは 1 桁低い値であった。

このことから, 県内都市部に流通している野菜, 果物中の水銀濃度は, 過去に使用した水銀農薬の影響もなく, バックグラウンド値に近い値であると考えられる。

ま と め

1. 本法の水銀の還元気化に影響を及ぼす試薬量について検討したところ, 硫酸及び硝酸の影響が大きく, 特に硝酸は塩酸ヒドロキシルアミン 8 ml の存在下では, 硝酸量の増加に伴い吸光度の大きな低下が認められた。10% 塩酸ヒドロキシルアミン 8 ml 及び 15% 過マンガン酸カリウム 10 ml の存在下では, 硝酸量 8 ml までは水銀測定に影響はなかったが, 残存硝酸量はなるべく少量であることが望ましかった。

2. 水銀を野菜, 果物に対して 0.5 及び 2.5 ppb となるように添加した場合の回収率及び変動係数は, 0.5 ppb 添加の場合, 回収率は, 94~103% (平均 99%), 変動係数は, 2.0~11% (平均 5.6%), 同様に 2.5 ppb 添加の場合, 97~101% (平均 99%), 2.8~6.3% (平均 4.1%) であった。また, 定量下限値は試料 20 g を用いた場合 0.1 ppb であり, 低濃度でも回収率及び精度も良好に測定することができた。

3. 多量の生試料を簡単な前処理で迅速に分解し, 試験溶液の全量を測定に用いるため, 0.1 ppb レベルの低濃度の試料でも試薬や実験中における汚染も少なく, ま

た、測定に要する時間も短いことから本法は、野菜果物中の総水銀の分析方法として有用な方法であった。

4. 本法を用いて奈良県下で市販されていた 27 種類の野菜、果物中の微量水銀について調査したところ、その平均値は 10 種類が 0.1 ppb 未満、12 種類が 0.1～1.0 ppb、5 種類が 1.0～2.4 ppb の範囲にあった。

文 献

- 1) 三島昌夫編：“環境中の微量金属の測定” p. 126～130 (1985) 東京化学同人。
- 2) 並木 博ら編：“詳解 工業排水試験法” p. 459～473 (1987) 日本規格協会(財)。
- 3) 森 五郎編：“工業用水試験方法” p. 182～186 (1979) 日本規格協会。
- 4) 熊谷 洋, 佐伯清子：食衛誌. **17**, 200～203 (1976)。
- 5) Wiersma, D., van Goor, B. J., van der Veen, N. G.: J. Agric. Food Chem. **34**, 1,067～1,074 (1986)。
- 6) 日本薬学会編：“衛生試験法・注解” p. 52～59, p. 566～567, p. 574 (1990) 金原出版。
- 7) 厚生省通達：“魚介類の水銀の暫定的規制値について” 昭和 48 年 7 月 23 日 環乳第 99 号 (1973)。
- 8) Deitz, F. D., Sell, J. L., Bristol, D.: J. Assoc. Offic. Anal. Chem. **56**, 378～382 (1973)。
- 9) 白井文雄, 藤田昌彦, 岩島 清：食衛誌. **24**, 52～56 (1983)。
- 10) 田中之雄, 池辺克彦, 田中凉一, 國田信治：同上 **15**, 386～389 (1975)。
- 11) 宮永昭一, 林 哲生, 角 昭美, 浅野彦二：同上. **25**, 30～34 (1984)。
- 12) 玉瀬喜久雄, 北田善三, 芋生眞子, 蓮池秋一, 佐々木美智子, 谷川 薫：同上 **23**, 388～392 (1982)。
- 13) 昭和 54 年度環境庁委託業務結果報告書：“日本工業規格 (JIS) の改正に伴う水質測定方法の検討試験” 全国公害研協議会 p. 133～140 (1980)。
- 14) 内野栄治, 小西繁樹, 西村雅吉：分析化学 **27**, 457～459 (1978)。
- 15) 厚生省保健医療局健康増進栄養課：“国民栄養の現状 (昭和 63 年国民栄養調査成績)” p. 152 (1990)。
- 16) 田中 健, 岡田 作, 市村國俊, 西川喜孝：奈良県衛生研究所報. **21**, 50～53 (1986)。
- 17) WHO Technical Report Series No. 532, p. 48～49, WHO, Geneva (1973)。
- 18) 喜田村正次, 近藤雅臣, 瀧澤行雄, 藤井正美, 藤木素土編：“水銀” p. 142～207 (1976) 講談社。