魚体からの水銀排出

菊池武昭・本多 均・石川美雪・
山中英明・天野慶之

(1977 年 8 月 30 日受理)

Excretion of Mercury from Fish

Takeaki KIKUCHI^{*1}, Hitoshi HONDA^{*1}, Miyuki ISHIKAWA^{*1},
Hideaki YAMANAKA^{*1}, and Keishi AMANO^{*2}

The possibility of removing mercury from fish heavily contaminated by methyl mercury was examined in two series of rearing experiments using two marine species of fish: conger eel (*Astroconger myriaster*) and sea bream (*Chrysophrys major*).

In the first series, conger eel, caught from Kagoshima Bay, which had natural levels of mercury of 1.0 ppm in the muscle tissue, 0.67 ppm in the spleen, and 1.8 ppm in the liver, were kept in plain sea water and fed with raw fish flesh for seven weeks. The mercury levels were reduced to one-half in 5 weeks for the muscle and spleen, and in 3 weeks for the liver.

In the second series, sea bream were fed for 7 weeks with pellets containing either methyl mercury or mercuric chloride at a level of 1.0 ppm, and subsequently fed with either commercial pellet feed or pellets impregnated by a mixture of cysteine, pectin, and chitosan for another 7 weeks.

The mercury concentrations at the end of the first feeding period were 0.9 ppm in the kidney and 0.25-0.4 ppm in the muscle, liver, brain, and spleen. However, during the subsequent feeding period, the mercury level was reduced to a level less than 0.2 ppm in every tissue examined, with best results in the group fed with the pellets supplemented by the mixture mentioned.

In the case of feeding with pellets containing mercuric chloride, the mercury level in any part hardly reached the level of 0.2 ppm, even after a 7 weeks' period. This may suggest that mercury in this chemical form will excrete readily.

水銀の暫定的規制値を越える魚類は、鹿児島湾をはじめ南西海域や三陸沖などの外洋まで広く分布し、魚種もかなり多い。これらの魚種は規制値によつて食用不適とされ、漁業者にとっては大きな経済的打撃となつていゝる。魚類における水銀蓄積の経緯を知り、また汚染魚から水銀を除く方法を確立することは水産上ならびに食品衛生上重要な問題であるにもかかわらず、未だそれに関する研究はほとんど行なわれていない。

本研究では、自然環境に近い条件で魚体からの水銀排出を調べるため、天然の海産汚染魚（アナゴ）を清浄海水中で生アジを与えて飼育したときの魚体中の水銀減少を観察した^{*3}。また、既報¹⁾に基づいてマダイを水銀添加海水中あるいは水銀含有餌料で飼育して人為的に水銀濃度を高めた後、清浄海水中で健全な餌料を与えて飼育したときの水銀排出を調べた。さらに、餌料中に添加物

（システイン、ペクチン、キトサン）を混合して魚体からの水銀排出促進効果を観察した。

実験方法

試料魚および飼育方法 天然汚染魚としては鹿児島湾奥で採捕された体長40~70 cmのマアナゴ(*Astroconger myriaster*) 75尾を3トン容水槽（鹿児島水試）中で飼育した。飼育中、水槽の注排水量を18トン/日とし、餌として生アジ肉（総水銀0.02~0.04 ppm）を与えた。飼育期間は昭和50年10月27日から12月12日までの7週間である。人為的水銀汚染魚としては体長約20 cmのマダイ(*Chrysophrys major*)を各区40尾ずつ3トン容水槽中で、すなわち、一区は塩化第二水銀（水銀として0.1 ppm）を含む海水中で飼育し、他の二区は清浄海水中で塩化第二水銀またはメチル水銀を含む

^{*1} 東京水産大学 (Tokyo University of Fisheries, Konan 4, Minato-ku, Tokyo).

^{*2} 日本冷凍協会 (Japanese Association of Refrigeration, Sanei-cho 8, Shinjuku-ku, Tokyo).

^{*3} 茂野邦彦（鹿児島水試）：汚染魚からの水銀排出に関する予備実験がある（私信による）。

Table 1. Breeding condition of Sea bream

No.	Breeding condition			
	Hg accumulation period, 7 weeks		Hg excretion period, 7 weeks	
	Sea water	Feed	Sea water	Feed
1	Control, plain sea water	Ordinary pellet	Plain sea water	Ordinary pellet
2	Contg. 0.1 ppm HgCl ₂	"	"	"
3	"	"	"	Pellet contg. additives*
4	Plain sea water	Pellet contg. 1 ppm HgCl ₂	"	Ordinary pellet
5	"	"	"	Pellet contg. additives*
6	"	Pellet contg. 1 ppm MeHg	"	Ordinary pellet
7	"	"	"	Pellet contg. additives*

* Additives: Cysteine-HCl, pectin and chitosan.

ペレット (水銀として 1 ppm) を与えて飼育し、人為的に水銀を魚体内に移行させた。7 週間後、各区ともアナゴの場合と同様に流水式にかえ、餌に市販ペレット (総水銀 0.02 ppm, メチル水銀 0.01 ppm) を与えてさらに 7 週間飼育を続けた。別に、システイン、ペクチン、キトサンを加えたペレットを用いての飼育も行なつた。飼育条件をまとめると Table 1 の通りである。また、餌料ペレットは次のような製法に従つた。まず、塩化第二水銀ペレットはフィッシュミール 650 g にグルテン 100 g, 小麦粉 200 g を混合する際に塩化第二水銀 1 mg を加え、常法に従つてペレットに成型した。総水銀 1.09 ppm, メチル水銀 0.06 ppm である。次に、メチル水銀ペレットは鹿児島湾奥産のオオメハタ (*Malakichthy griseus*) 650 g を原料としてグルテン 100 g, 小麦粉 200 g を混合してペレットに成型した。総水銀 1.0 ppm, メチル水銀 0.85 ppm である。さらに、添加物混合ペレットはフィッシュミール 650 g, グルテン 100 g, 小麦粉 200 g の他、塩酸システイン、ペクチン、キトサンの 3 種の等量混合したものを全量の 1% (重量) になるように混合し、ペレットに成型した。総水銀は 0.17 ppm, メチル水銀 0.03 ppm である。水銀含有海水、塩化第二水銀ペレットまたはメチル水銀ペレットで飼育開始後 0, 1, 2, 4, 7 週間および飼育水、餌料を換えた後の 1, 3, 5, 7 週間各区から 3 尾ずつをとりあげ、凍結して分析用試料とした。凍結試料は解凍後、筋肉、肝臓、脳、脾臓、腎臓の各部について総水銀ならびにメチル水銀を測定した。

水銀の測定法 総水銀は 501 型日立ゼーマン原子吸光水銀分析計を用い、またメチル水銀は FDA 法に基づくガスクロマトグラフ法で測定した。

結果と考察

天然汚染アナゴからの水銀排出 高水銀アナゴを清浄海水中で、生アジを与え、7 週間飼育した場合の筋肉、

肝臓、脾臓の総水銀およびメチル水銀量を Fig. 1~3 に示した。筋肉では飼育開始 3 週間まではほぼ当初の濃度 (1.0 ppm) を保つが、以後減少が顕著になり、5 週間ではほぼ 1/2 になった。その後は漸減した。メチル水銀も総水銀とほぼ同様の減少傾向を示した。肝臓では飼育開始後 3 週間で当初の濃度 (1.8 ppm) の 1/2 まで顕著に減少し、以後漸減の経過を辿つた。メチル水銀もほぼ同様な減少が観察されたが、肝臓の試料は少なく測定回数が制限されたため数値の変動がみられた。脾臓も飼育開始 5 週後に当初の濃度 (0.67 ppm) のほぼ 1/2 になった。

人為的汚染マダイからの水銀排出 塩化第二水銀含有海水 (0.1 ppm) 中で飼育し、魚体内の水銀濃度を高めた後、清浄海水中に移して水銀排出を観察した結果を

Fig. 1. Excretion of mercury from the muscle of conger eel kept in plain sea water by feeding raw fish flesh. --- one-half of the initial level.

Fig. 2. Excretion of mercury from the liver of conger eel. — one-half of the initial level (T-Hg).

Fig. 3. Excretion of mercury from the spleen of conger eel. — one-half of the initial level.

Fig. 4 に示した。水銀の移行は腎臓・脾臓>肝臓>脳>筋肉の順に高く、最高値は腎臓、脾臓における 30 ppm 以上、肝臓、脳で 10~20 ppm、筋肉では 0.5 ppm と低かった。これを清浄海水中で市販ペレットを与えて 3 週間飼育を継続すると、腎臓、脾臓では約 20 ppm、肝臓、脳では約 10 ppm まで減少した。とくに、水銀蓄積量の多い腎臓、脾臓からの顕著な減少がみられた。添加物を混合したペレットを与えた場合もほぼ同様な水銀減少がみられ、排出促進の効果は観察されなかった。これは水銀がやや高濃度なため魚が不活発になり、摂餌量が少なかったためと考えられる。なお、3 週間以降は餓死したため観察の継続が不可能となった。

Fig. 4. Mercury accumulation and excretion in sea bream. Fish were kept in sea water containing 0.1 ppm HgCl_2 for 7 weeks, and then transferred to plain sea water and fed with either ordinary pellets or pellets containing cysteine, pectin and chitosan for 3 weeks.

次に、塩化第二水銀ペレット (1 ppm) で飼育した場合は、Fig. 5 に示すように、腎臓にやや高い蓄積がみられたが、筋肉、肝臓、脳、脾臓はいずれも 0.2 ppm 以下であった。経口的に塩化第二水銀の形でとり込まれた水銀は排出が速いため魚体内の蓄積が進まなかったものと推定される。魚体各部の水銀蓄積量が低く、添加物混合ペレットを与えて飼育したときの水銀排出効果を観察するには不十分であった。

次に、メチル水銀ペレット (1 ppm) で飼育したマダマの水銀蓄積は Fig. 6 に示すように、腎臓に高く 0.7 ppm に達し、脾臓、筋肉では 0.3 ppm、肝臓、脳では 0.25 ppm であった。これを清浄海水中で添加物混合ペレットを与えて飼育すると各部位とも水銀量が減じ、3 週後に 0.2 ppm 以下になった。とくに、高濃度に蓄積

Fig. 5. Mercury accumulation and excretion in sea bream. Fish were fed with pellets containing 1 ppm HgCl_2 for 7 weeks, and then feeds were changed to pellets containing additives for another 7 weeks.

Fig. 6. Mercury accumulation and excretion in sea bream. Fish were fed with pellet containing 1 ppm methyl mercury for 7 weeks, and then feeds were changed to pellet containing additives for another 7 weeks.

した腎臓からの排出が顕著であつた。筋肉では餌料を換えた後3週間 0.35 ppmを保つたのが特徴的であつた。脾臓では1週後に水銀の減少が目立つた。また、脾臓にはかなりの量の血液が含まれるので、仮に脾臓の水銀量で血液の水銀量を想定すると、血液中の水銀が暫時筋肉に移行し、筋肉が3週間水銀濃度を保持した後減少したとみることもできる。

メチル水銀ペレットで水銀を蓄積後、市販ペレットおよび添加物混合ペレットに換えて飼育したマダイ各部の

水銀量の変化を部位別に Fig. 7~11 に示した。筋肉では、市販ペレット (総水銀 0.02 ppm) に換えて流水中で飼育した場合、水銀量は7週後も 0.5 ppm 程度を保つのにに対し、添加物混合ペレットを与えた場合は 0.15 ppm まで減少した。肝臓、脳でも同様に、餌料を市販ペレットに換えた場合にいずれも 0.3 ppm を保つのにに対し、添加物混合ペレットでは5週後 0.1 ppm 以下に

Fig. 7. Excretion of mercury from the muscle of sea bream.

Fig. 8. Excretion of mercury from the liver of sea bream.

Fig. 9. Excretion of mercury from the brain of sea bream.

Fig. 11. Excretion of mercury from the kidney of sea bream.

Fig. 10. Excretion of mercury from the spleen of sea bream.

低下した。脾臓、腎臓はともに市販ペレットに換えて飼育すると水銀量を減じ、とくに蓄積量の高い腎臓で 0.9 ppm から 7 週後に 0.5 ppm に至る減少が顕著であった。添加物混合ペレットを与えた場合は市販ペレットを与えた場合より水銀減少の著しいことが観察された。

本実験では、魚体への人為的水銀蓄積がほぼ暫定的規制値 (0.4 ppm) となり、天然汚染魚を想定する水銀排出

の観察には当初の目的を達し得た。天然汚染アナゴ (筋肉中の水銀含量 1 ppm) を流水中で生アジを与えて飼育した場合、筋肉中の水銀含量は飼育開始後 3 週間はほぼ同じ値を示すことや人為的にメチル水銀含有餌料で水銀を蓄積させたマダイ筋肉でもほぼ同じ傾向がみられ、筋肉からの水銀排出には肝臓、腎臓と異なる減少パターンを示すことが観察された。ニジマスについての報告であるが、魚体の部位によつてアルキル水銀の滞留時間が異なり、筋肉で 2 週後、肝臓で 20 週後に正常値に低下するのに対し、腎臓では 20 週以上でもなお残留するという報告がある²⁾。しかし、今回のアナゴおよびマダイでの実験では Fig. 1~3, Fig. 6~8 ならびに Fig. 11 に示すように腎臓、肝臓での排出が速く、筋肉の方がむしろ遅いという結果が得られた。

ところで、魚類の水銀蓄積が急速に進むのに対し、一度魚体に蓄積した水銀の排出は遅いといわれている。魚類における水銀の生物学的半減期は、塩化第二水銀で 100 日、メチル水銀で 200 日であり²⁾、マウス 6 日⁴⁾、ヒト 70 日⁵⁾ に比べてかなり長い。

本研究では、高水銀汚染魚を飼養中に比較的短日目のうちに暫定的規制値以下までに水銀濃度を低下させ得ることを観察したが、生物学的半減期を求めるには、より長期間の観察が必要である。

システイン、ペクチン、キトサンを添加した餌料で飼育した場合に魚体中の水銀濃度が顕著に減少する機構は明らかでないが、システインの水銀との結合性がよく知られていること、ペクチンも水銀、カドミウム、銅、鉛

などと結合する事実⁶⁾, また魚類の消化液中にはペクチンを分解する酵素が含まれぬ⁷⁾ ためなどにより水銀排出に役立つものと考えられる。キトサンは水銀の吸着が他の金属に比べて顕著であること⁸⁾ が水銀排出に関与すると推定しうる。排出効果を高めるために, それぞれの添加物の効果, 適正添加濃度などについて今後さらに詳細な検討を行なう必要があろう。

終りに臨み, 本研究を行うに当り飼育実験に終始御協力を賜った鹿児島県水産試験場長茂野邦彦博士, 同垂水増殖センター瀬戸勇場長に深謝する。

文 献

- 1) 菊池武昭・本多 均・森内博之・天野慶之: 食

- 衛誌, **17**, 438-443 (1976).
- 2) R.R. ROBERT and F.A. DONALD: *Progressive Fish-Culturist*, **31**, 197-200 (1969).
- 3) 山中すみへ・上田喜一・吉田多摩夫: 日衛誌, **28**, 582-587 (1974).
- 4) 喜田村正次・早川 清・柴田孝子・飯田幸男・住野公昭: 日衛誌, **26**, 35-39 (1971).
- 5) H. AL-SHAHRISTANI and K.M. SHIHAB: *Arch. Environ. Health*, **28**, 342-345 (1974).
- 6) 天野慶之・菊池武昭・山中英明: 食品衛生化学, 朝倉, 東京, 1977, p. 154.
- 7) 川本信之編: 魚類生理学, 恒星社厚生閣, 東京, 1970, p. 145.
- 8) 夜久富美子: 日本産業技術振興協会技術資料, No. 9, 11-18 (1972).