

水俣病究明初期の臍帯中水銀濃度分析に関する論考

中地 重晴

熊本学園大学水俣学研究センター

要約

水俣病の認定、水俣病被害者の救済及び水俣病問題の解決に関する特別措置法の被害認定の参考資料として、水銀ばく露を評価するために重要視されている臍帯中水銀濃度の分析値について、測定者による濃度のばらつきがあることが知られている。特に、1956年の水俣病の公式確認から国が水俣病の原因をチッソの工場排水であると認定し、チッソが水銀を含有する排水の放流を停止した1968年の間に出生した者の臍帯中水銀濃度にばらつきが大きいことが知られている。従来から臍帯血中水銀濃度の低いことが、水俣病認定訴訟等で認定されない大きな根拠に使用されてきた。

ある水俣病認定訴訟の原告の臍帯中メチル水銀濃度が低いことに着目し、1970年代初頭に臍帯中のメチル水銀を分析、報告している研究者の分析方法について、現在の知見から検証した。1970年代初頭に熊本大学藤木氏らが分析した方法は当時の公定法的なものに基づいていないこと、自らの分析結果の妥当性を確認していないことから、分析値に信頼性がないことを論証した。

疫学的視点から臍帯中水銀濃度を評価すべきであり、今後、メチル水銀の胎児期ばく露を評価する際に、水俣病究明初期に分析された臍帯中メチル水銀濃度については、測定者と測定方法を考慮して評価する必要があることを明らかにした。

キーワード：水俣病、メチル水銀、臍帯、胎児期ばく露、水銀分析法

1. はじめに

水俣病認定をめぐる訴訟や行政不服審査において、臍帯中水銀濃度が問題にされている。2009年の水俣病被害者の救済及び水俣病問題の解決に関する特別措置法（以下、特措法）でも水銀ばく露を裏付けるものとして、臍帯が保存されていた場合には、その濃度を測定し、提出することで水銀ばく露の証明に利用されている。

臍帯中の水銀濃度に関しては、『水俣学研究』創刊号で、原田、頼藤が「不知火海沿岸住民の保存臍帯のメチル水銀値」で報告¹⁾しているが、臍帯中水銀濃度^{注1)}の低い者が複数存在している。疫学的に同じ漁村に住み、同じ魚食をしていたのであれば、同じレベルの水銀ばく露があってもおかしくないのだが、臍帯中水銀濃度には、ばらつきがあり、中にはゼロと報告されている例も散見される。

水俣病被害者互助会訴訟（以下、互助会訴訟）弁護団^{注2)}により原告Yさんの臍帯水銀値に関し、「①測定者である藤木素士氏の手法及び当該測定手法が測定結果の信用性にどのような影響を与えるか、②1960年代に水俣市茂道で生活していたYさんについて、臍帯水銀値0.0684という数値があり得るのか及びその理由、③測定結果が信用できるか及びその理由」に関して、意見を求められた。原田、頼藤の報告¹⁾にある臍帯中有機水銀濃度について、水俣病究明初期の水銀分析の信頼性評価の観点から、特に原告Yさんの臍帯中水銀濃度の信頼性評価に焦点を当てて、入手できた関係資料をもとに考察した。

2. 水俣病訴訟での臍帯中水銀値の取り扱いについて

今回、互助会訴訟弁護団が筆者に問合せしてきた背景について、若干説明したい。2004年関西訴訟の最高裁判決以降、水俣病認定義務付けを求める訴訟が多数提訴された。その中で、水俣病認定要件として、国が示している判断基準は、複数の症状の組合せと疫学要件である。

具体的には、1977年環境庁環境保健部長名で出された「後天性水俣病の判断条件について」²⁾では、「1. 水俣病は、魚介類に蓄積された有機水銀を経口摂取することにより起こる神経系疾患であって、次のような症候を呈するものであること。四肢末端の感覚障害に始まり、運動失調、平衡機能障害、求心性視野狭窄、歩行障害、構音障害、筋力低下、振戦、眼球運動異常、聴力障害などをきたすこと。また、味覚障害、嗅覚障害、精神症状などをきたす例もあること。（中略） 2. 1に掲げた症候は、それぞれ単独では一般に非特異的であると考えられるので、水俣病であることを判断するに当たっては、高度の学識と豊富な経験に基づき総合的に検討する必要があるが、次の（1）に掲げるばく露歴を有する者であって、次の（2）に掲げる症候の組合せのあるものについては、通常、その者の症候は、水俣病の範囲に含めて考えられるものであること。」と規定している。

その中で、疫学要件ともいえる有機水銀のばく露歴については、「（1）魚介類に蓄積され

た有機水銀に対する曝露歴」を有し、「曝露状況を判断するに当たっては、次のアからエまでの事項に留意すること。ア. 体内の有機水銀濃度（汚染当時の頭髮、血液、尿、臍帯などにおける濃度） イ. 有機水銀に汚染された魚介類の摂取状況（魚介類の種類、量、摂取時期など） ウ. 居住歴、家族歴及び職業歴 エ. 発病の時期及び経過」と規定されている。

水俣病の認定を申請する者の中には、茂道や湯堂等の漁村で生まれ育ち、漁師の家族が多く、親族に認定患者がいること等から、魚食による有機水銀摂取の可能性は疫学的に明白だと考えられる。しかし、近年の義務付け訴訟では、国は水俣病公式確認以後の魚食による水銀摂取の可能性については、水俣病を発症しないために、水俣湾周辺で獲れた魚を食べることは忌避されていたはずで、魚食による水銀摂取の可能性は少ないと主張し、その証拠に、臍帯中有機水銀濃度の測定結果が低いことを理由にする場合が散見される。

前述した互助会訴訟の原告Yさんの場合では、漁師の家庭に育ち、両親、兄弟と、現在に至るまで同じ生活を行ってきて、水俣湾周辺の魚を食べていたと主張してきた。しかし、被告である熊本県は、科学的根拠として示された臍帯中水銀濃度が極端に低いことで、疫学要件を満たしていないと主張し、訴訟の争点の一つになっているとのことである。

3. 藤木素士氏の分析手法に関する検討

① 藤木氏の「分析値ゼロ」の不自然さ、不確かさについて

原告Yさんの臍帯メチル水銀値の測定について、データの正確さの担保や、精度管理が行われたものであるかを、根拠論文や当時の分析方法を示した書籍等から検討した。

ここで問題になっている水俣病被害者の臍帯水銀濃度¹⁾は、「不知火海沿岸住民の保存臍帯のメチル水銀値」(2009)でまとめられている。原田医師が水俣病患者や家族から集めた臍帯（へその緒）の臍帯中メチル水銀濃度の測定を複数の研究者に依頼したものを取りまとめたものである。測定数の多い藤木、東衛、赤木、坂本の4名の研究者について、測定値を比較した。東衛については東京都衛生研究所の西垣進氏に分析を依頼したことが152ページに記述されている。

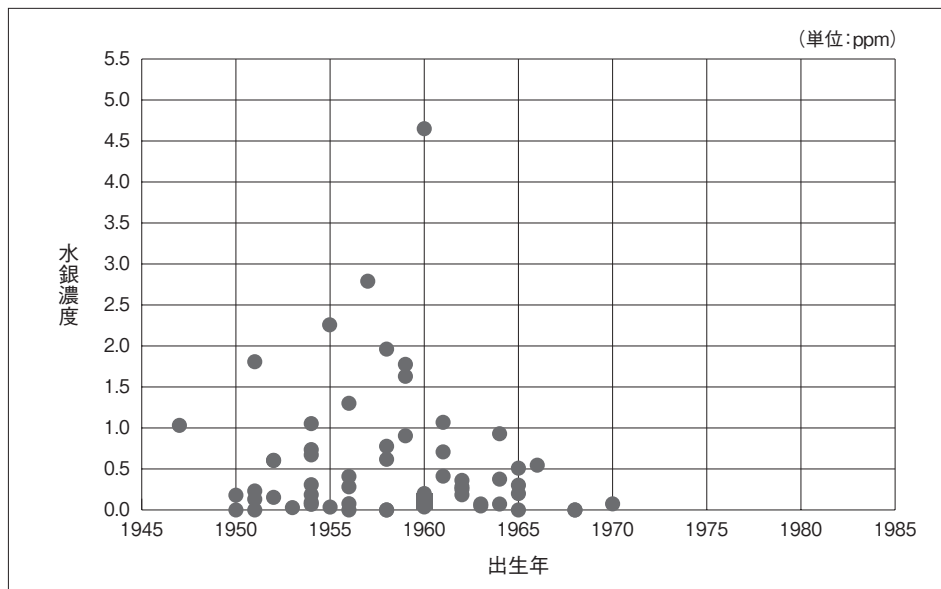
測定者ごとに測定値をグラフ化すると図1～図4のようになる。測定者によって、測定年代、測定方法に違いがあるが、疫学的に不知火海沿岸で生活し、汚染魚を摂取したとすれば、測定結果は同じ傾向を示すはずである。

あわせて、測定者別の測定結果の濃度範囲の度数分布を表1に示す。測定値が0.000と表記しているのは藤木氏だけであることがわかる。

さらに、藤木氏の測定結果（図1）について、最も水俣湾の水銀汚染がひどかったと考えられる時期（水俣病が公式確認された1956年からチソが排水放流を停止した1968年）に測定しているにもかかわらず、臍帯中のメチル水銀値がゼロである検体試料が多いことが分かる。測定結果が0.000であった住民の出生年は1950年、1951年、1956年、1965年が各1名、1958年、1968年が各2名、合計8名であった。他の3名（図2～図4）の測定結果では、ゼ

口を示す検体試料はない。測定値としては小さいが、測定できているといえる。

4人の測定者中、坂本氏及び赤木氏は国立水俣病研究センター（後に、環境省国立水俣病総合研究センター）の研究員時代に測定を依頼されたと考えられるので、国立水俣病研究セ



ンターの設立が1978年であることから、臍帯中の水銀濃度を測定した時期は、1980年代以降であると考えられる。

本稿では、なぜ、藤木氏の測定結果だけ、ゼロを示したのか、1960年代に藤木氏が行った

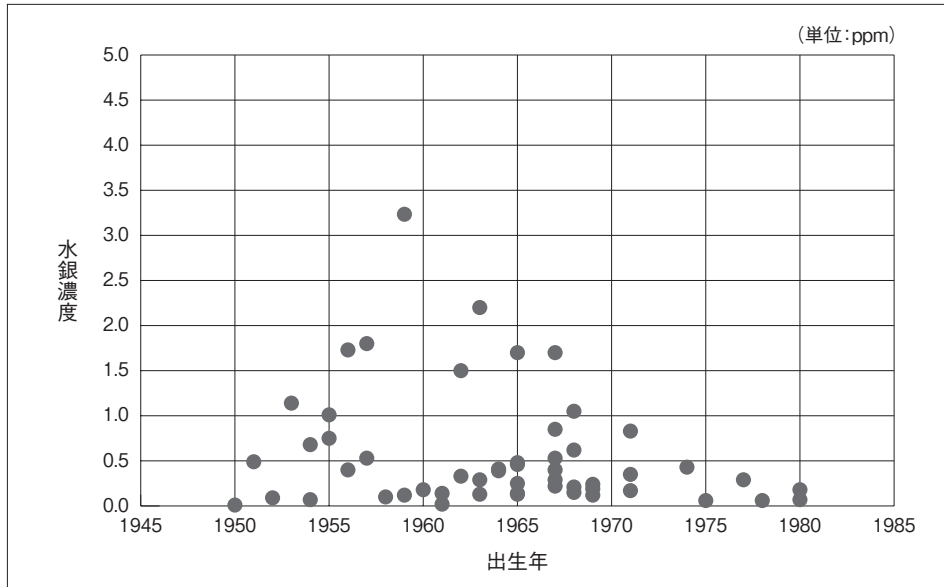


図3 坂本氏の測定結果

出典：文献1)より作成

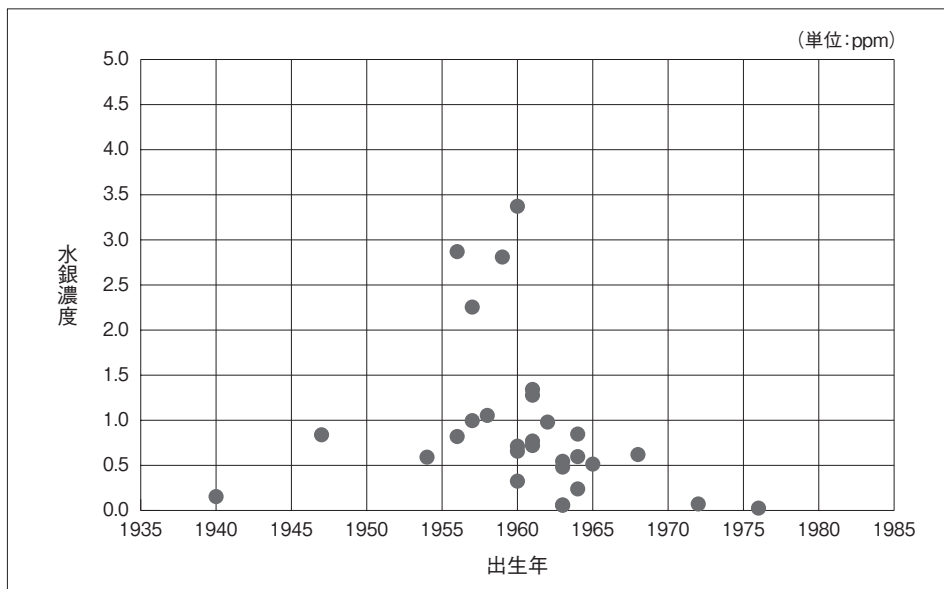


図4 赤木氏の測定結果

出典：文献1)より作成

表1 測定者別臍帯中水銀濃度の度数分布

測定者	水銀濃度 (ppm)							
	0	<0.5	<1	<2	<3	<4	<5	5<
藤木	8	28	11	8	2	0	1	0
東衛	0	18	2	2	9	0	0	1
坂本	0	36	8	7	1	1	0	0
赤木	0	9	13	3	1	1	0	0

出典：文献1) より作成

測定方法について、詳細に検討した。

② 当時の公定法とクロスチェックの実施について

環境分析において、誰が測定しても同じ結果が出るように、公定法が定められている。また、複数の分析者が同じ試料を用いて測定するクロスチェックを実施し、測定結果が正しいかどうか確認することが行われている。ここで検証している1960年代の水銀分析について、公定法について、資料から検討した。藤木氏が原告Yさんの臍帯中水銀を分析した時点では、公定法が定められていない。

ア. 公定法の制定の経過

訴訟の争点になっている藤木素士氏の用いた水銀分析方法の信頼性について検討する前に、水銀分析方法として定められた公定法の設定について整理した。

水銀に限らず有害物質の健康影響を評価するためには、食物や飲み水、呼気（大気）等の有害物濃度を測定し、その体内への有害物の摂取量（ばく露量）を推定、評価する。また、ばく露した証拠として、生体試料と呼ばれる血液、尿、毛髪、臍帯などに存在する濃度を測定し、評価する。

正しく評価するためには、環境試料であれ、生体試料であれ、より正確な値を測定する必要がある。環境試料や生体試料中の有害物質濃度の測定にあたって、だれが分析しても、同じ値を示す必要があり、そのために公定法が定められている。公定法の採用にあたっては、使用される分析手技についての知識、理科系の高等教育を受けていれば誰でもできることや使用する分析機器が普及していることを考慮して設定されている。

代表的な公定法としては、工場排水の水質分析のための標準規格である日本工業規格JIS K 0102³⁾は、1964年に初めて制定された。ただし、最初から水銀分析法が掲載されていたかは未確認である。

日本における水銀分析の公定法の中で、魚介類にあっては、「魚介類の水銀の暫定的規制値について」⁴⁾ (1973) に示されている。水質試料については、「水質汚濁に関する環境基準」⁵⁾ (1971) 付表1に掲げる方法、大気試料に関しては、「有害大気汚染物質測定方法マ

マニュアル」⁶⁾ (1999)、土壌試料にあつては、「土壌の汚染に係る環境基準」⁷⁾ (1991) に示す方法によって定められている。それぞれの関連法令で、環境基準を超えたと判断する際には、公定法で定められた方法で測定し、環境基準値と比較し、評価することになる。

たとえば、水質環境基準、健康項目については、別表1で環境基準値を示し、総水銀の分析方法は付表2、メチル水銀の分析方法は付表3で示している。

一方、生体試料については、公定法は2004年3月に、環境省が発表した「水銀分析マニュアル」⁸⁾ で初めて示されたといえる。水銀分析マニュアルの策定は、「発刊にあたって」に述べられているように、2003年2月にUNEP（国連環境計画）の管理理事会で、「世界水銀アセスメント」が公表され、水銀の排出抑制に向けて今後国際的にとるべき行動に関する決議が採択されたことを受け、国内外での確なりリスク評価のために、総水銀及びメチル水銀をより高精度に分析する技術が求められていることから策定された。

今まで述べてきたように、最も早い水質試料における公定法であっても、1971年12月に定められたものである。

従来から、医学部、薬学部での生体試料、環境試料の成分分析では、日本薬学会が編集している『衛生試験法』をもとに、環境試料や生体試料を分析する場合が多い。現在出版されている最新の『衛生試験法・注解』⁹⁾ では、該当する生体試料中の水銀分析方法では、喜田村らの『水銀』が参考文献¹⁰⁾ の筆頭に挙げられており、1960年代には公定法と呼ばれる水銀分析方法はなかったと考えるのが妥当である。

原告Yさんの臍帯メチル水銀濃度の値は、藤木氏らの1972年1月発行の『日本衛生学雑誌』27巻1号¹¹⁾ に掲載されたものである。1ページの手書き原稿なので、日本衛生学会の学会発表の抄録であることが分かる。

論文作成時期は、水質試料の公定法（水質汚濁に関する環境基準）が公布される以前だと考えられる。当然、生体試料における公定法は定められておらず、公定法に基づいたものではないことに留意する必要がある。

また、有害物質によるリスク評価を行うためには、公定法を用いる場合、公定法と異なる分析方法を用いる場合でも、得られたデータについては標準試料を同時に測定するなどして、入念なデータの精度管理（品質管理）ならびに、精度保証（品質保証）が必要である。

イ. クロスチェックの実施について

現在では、一般的には、測定データの精度管理のために、クロスチェックの実施や標準物質を添加する内部標準法の採用などが行われている。

ここでいうクロスチェックとは、同じ試料を複数の測定者が分析し、同じ測定結果を得られるかどうか測定分析することで、測定結果の正しさを確認する作業のことを言う。1996年から1998年にかけて、筆者は原田正純氏らとともにタンザニア、ケニアにまたがるビクトリア湖周辺の金鉱山や漁村での水銀汚染調査を実施し、毛髪及び環境試料の水銀分析を行った。この調査結果を海外の専門誌に投稿した際、論文の掲載の可否を判断する査読者から、毛髪

水銀値の正しさを確認するためのクロスチェックを求められた経験がある。そのため、東京大学の中西準子氏（当時）の研究室にクロスチェックを依頼し、分析結果の正確さを確認したうえで、論文掲載を認められたという経験をしている。

前述した藤木氏の論文にはクロスチェックを行ったという記述はない。

③ 藤木素士氏の分析方法に関する疑問点について

藤木氏が実施した分析方法について、公定法が定まっていな中で、どこに問題があったのかを検討した。

ア. 採用した分析方法について

測定方法として、分析化学ではより正確に測定するための定量分析法¹²⁾として、①絶対検量線法、②内標準法、③被検成分追加法、④面積百分率法、⑤補正面積百分率法などがある。

定量分析の方法を現在の理系の大学生が、実験手技の習得のために、初年次教育として行う分析化学の実験の教科書として採用されている手引書をもとに説明する。

ガスクロマトグラフについて、①の方法（絶対検量線法）は標準試料の一定量を正確に導入し、成分の絶対量とピーク面積または高さとの検量関係を求め、同一条件で試料の一定量を正確に導入し、そのピークの大きさから絶対量を知る方法である。②の方法（内部標準法）は試料中の成分と重ならない標準物質を定量的に添加し、そのピーク面積と被検成分のピーク面積とを比較する方法で、③の方法（被検成分追加法）は被検成分を一定量添加し、添加前後で、そのピーク面積を他のピーク面積と比較する方法¹²⁾（『機器分析のてびき』、化学同人、36ページ）があると記述されている。ここでは、方法についての優劣は述べられていないが、液体クロマトグラフのところで、同様の方法があり、分析精度の最もよいのは②である¹³⁾（同52ページ）と記述されている。

また、一般人向けの入門書¹⁴⁾では、「クロマトグラフの定量方法としては、1) 面積百分率法、2) 修正面積百分率法、3) 絶対検量線法、4) 内部標準法、5) 標準添加法があり、分析目的、対象試料、必要とする分析精度等により選択される」（79ページ）という記述がある。その中で、4) 内部標準法は、「試料前処理操作の影響、試料注入量、分析条件の変動の影響を受けにくいのでクロマトグラフィーでは広く利用されている。」（79ページ）と記述されている。前処理操作の影響をなくすためには、内部標準法を採用するのが分析化学の常法といえるが、藤木氏は用いていないようである。

測定試料中に、目的物質が微量な場合、抽出を伴う前処理操作がある場合などでは、真の値よりも過小評価する可能性が高いので、絶対検量線法よりは、内部標準法や標準添加法を用いることが薦められている。

イ. 藤木氏の定量方法について

前述の藤木論文¹¹⁾から、藤木氏は①の絶対検量線法を用いたことが分かるが、論文からは測定結果の正しさに対する検証を行ったという記述はない。その点について、以下に考察する。

藤木氏の「水俣地方の水銀による汚染の推移」¹¹⁾ (1972) では、分析方法については、「総水銀はジチゾン比色法、メチル水銀は臍帯を10日間1N塩酸に浸漬し、その浸漬液から常法により抽出したのちガスクロマト法により定量した。」と記載があるのみで、測定の確かさを証明する方法は明記されていない。

常法とは何かであるが、1976年6月1日発行の『水銀、講談社サイエンティフィク』という解説書がある。著者は喜田村正次、近藤雅臣、滝澤幸雄、藤井正美、藤木素士の共著である。「3 水銀の分析法」という章があり、「3.2.2 アルキル水銀の分析法」¹⁰⁾ で、メチル水銀分析法について概説するとして、「メチル水銀量とは、検体のメチル水銀化合物の量を、ガスクロマトグラフィー法などで、水銀量 (Hg:200.59) の量として測定した値をいう。現在、次のガスクロマトグラフィー法がよく用いられる。」と紹介されている。

同章では、「測定にあたっては、標準液のピークの高さ H_s が100mm以上となるように機器を装備して行う。」「試料液のピーク及び対照液（ブランク、水銀の含有がゼロ液）の高さをそれぞれ H 、 H_0 とし、測定値の標示は湿重量（新鮮物重量）に対する水銀としてのppm、またはN.D.の記号をもって示す。 $(H-H_0)/H_s$ が H_s の40分の1以上で、かつ20分の1未満の場合はTrの記号で示す。ただし、 $(H-H_0)/H_s$ が20分の1として計算した値を示し、Trが何ppm以下の値を付記する。 $(H-H_0)/H_s$ が1/40未満のばあいをN.D.とする。濃度のppmの標示にあたっては、一応、ニッケル線源で測定した場合、実験値の4けた目を四捨五入で示す。」と記述している。なお、Trとはこん跡のことで、定量下限値以下だが、試料液中には水銀の含有が認められるとのことで、参考値として示す濃度のことである。

ガスクロマトグラフによるピークとはどういうものか、ピークの例を図5で示す。

この章の執筆者は目次に掲載されているが、近藤雅臣氏が担当している。公定法が設定されていなかったため、当時、これが常法として採用されていたガスクロマトグラフィー法による定量法だと考えられる。

ウ. 藤木論文の問題点 - 測定値のばらつき、乖離について

藤木論文の測定結果を示す表1では、分析値を有効数字3桁と4桁で示しており、このこと自体が、藤木氏が分析値の精度管理については、無知であることを示している。前述したガスクロマト法の分析結果は4桁の数字で示すことができるが、分析の正確さを考慮しておらず、不検出であれば、定量下限以下として、定量下限値を付記して表すのが、分析化学の表記方法であり、0.000 とは表記しない。この表示自体が、分析化学の知識がないことを示しているといえる。

また、藤木氏は、水銀による汚染が最もひどかった1958（昭和33）年、1959（昭和34）年

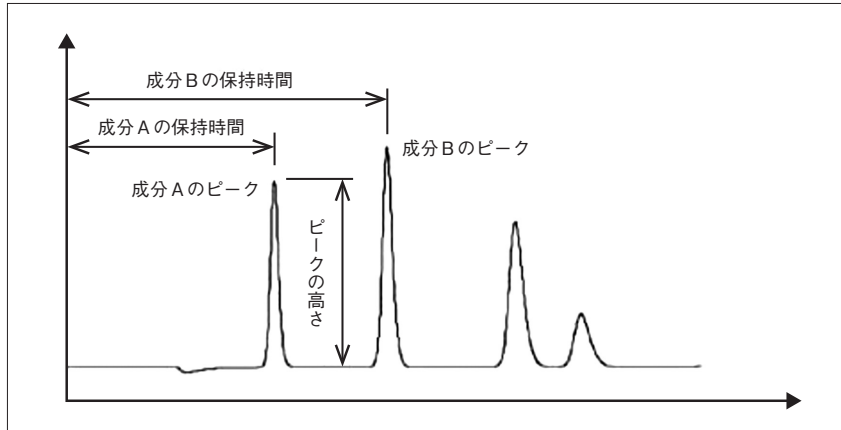


図5 ガスクロマトグラムの例

出典：文献10) より作成

に生まれた8人中2名が0.000であることについて、その理由についての考察はしていない。他の測定結果は、1.962、1.630、1.776、0.777、0.905、0.618と高く、研究者として、自らの測定結果について、測定値のばらつき、乖離について、検討する必要があるといえる。本来なら、この表をまとめる際に、測定値が0.000とされた者が、58名中8名もいることに気づき、分析方法が正しかったかを検討するべきであったと考える。対象地域が濃厚汚染地区であるだけでなく、正常分娩児の全員から総水銀の値が出ているにもかかわらず、0.000の値を示したのが14%にもものぼっているからである。

当時の常法として用いられていたガスクロマト法でも、検出されなかった場合は、N.D.と表記することになっているが、藤木氏はそれを無視して、0.000と表記したために、後述のように、他の者らがこの誤った数値を前提にしたため、誤解を招いたと考えるべきである。

藤木論文の表1では、最高値で2ppm程度なので、その40分の1は0.05ppmである。標準液と試料液とのガスクロマトグラフへの注入（採取）量は2倍から10倍程度にすることを考慮しても、0.05から0.005ppmを不検出、「N.D.」として示すべきところを、「0.000」と表記したと考えるのが妥当である。

また、近藤によると、「こん跡Tr」で示すことができるとしているにもかかわらず、N.D.の2倍の0.1から0.01ppm程度については、「こん跡Tr」として表記されていない。藤木論文の表1中に、測定値として、0.029や0.035ppmまでは、試料液を注入すると、ピークが現れて、定量できたと示している。この値から推定すると、藤木の実施した測定法では、こん跡Trは0.02ppm程度、不検出N.D.は0.01ppm程度であったと推測でき、前述した最高値のピークから推定した不検出N.D.と同じ値になり、ガスクロマトグラフでの定量法については、ピークが現れたものはすべて定量されていることが分かる。

仮に、ガスクロマトグラフのピークが現れなかった場合、分析化学の常法としては、絶対検量線法を用いているのであれば、本当に含まれていないのか、それとも前処理方法で、目

の成分を抽出することができなかったのか、不検出と評価する前に、試料液を調整する前処理方法、ベンゼンによる抽出がきちんと行われたかどうかを検討する必要、標準物質を用いた回収実験等を行って、信頼性を検証する必要があるが、どこまで行ったかは不明である。0.000 という表記からは、このような検討がなされた形跡がないと考えられる。

④ 測定結果のバラツキの原因は抽出操作の不確実性にある

不検出、0.000 と表記する試料が出る原因について、前項までは、ガスクロマトグラフ法による定量分析の不確かさについて論じたが、藤木氏の分析結果から、ガスクロマトグラフに試料を注入する以前の前処理での不確実性が原因と考えるのが妥当である。

前述した近藤雅臣氏による分析方法¹⁰⁾では、「検体10.0 gを計量し、3N塩酸25mlを加えて、十分に均質化し、分液漏斗に入れ、約30分静置する。これにベンゼン20mlを加えて10分間激しく振とうしたのち、水層を別の分液漏斗に移す。・・・水層は、さらにベンゼン10mlずつで2回同様に操作し、各ベンゼン層をはじめのベンゼン層に合わせる。」(93ページ)とベンゼンで抽出する前処理を行うことが記述されている。

藤木論文では、ベンゼンによる前処理の方法の詳細については記載されていないが、常法を用いたとしているので、臍帯中のメチル水銀を分析するために、1N塩酸に10日間浸漬したものに、ベンゼンを加えて、メチル水銀をベンゼン層に移行させ、抽出したものをガスクロマトグラフで定量したと考えられる。

分析化学の手ほどきを受けた研究者であれば、このベンゼンの抽出操作がうまくできたかどうか、事前に、標準試薬を添加し、十分な抽出効率が得られるかどうかを見る添加回収実験などの基礎実験を行い、前処理法が適切であることを確認する作業を行う。あるいは、臍帯試料に標準液を添加して、測定結果から標準液分を差し引いて、測定結果を補正するなどの操作を行う。

参考までに、添加回収実験の例として、広島市衛生研究所で実施、報告された「魚介類のメチル水銀及び総水銀分析法の検証」¹⁶⁾という論文を示す。この論文では、公定法以外の方法で分析する場合、前処理操作で、きちんとメチル水銀を抽出しているかどうか、標準試薬を添加し、回収率を求めて、前処理操作の正しさを確認している。こうした実験を行うのが、分析化学では当然として行われている。前処理は、得られた値の正しさを担保する重要なものだからである。

しかし、藤木氏の論文からは、添加回収実験が行われて分析方法が正しいことを確認していたかは、読み取れない。1970年代初めの藤木氏の研究室で、前処理方法が適切であることを確認していなかったと考える方が妥当である。とにかく、試料を前処理し、ガスクロマトグラフで測定してただけで、分析化学の基本操作、測定方法の妥当性の検証なく、測定結果を出していただくと想像するのが合理的である。

なぜならば、藤木氏は不検出を「0.000」と表記しており、当時の常法とされた分析方法を理解せず、分析化学の手法に無理解であったと推測できる。また、藤木氏は、分析化学の

手ほどきを受けた研究者であれば最低限行うべき数値のばらつきに対する考察も行っていない。そのため、水銀汚染がひどいとされる時期の臍帯試料に不検出が現れること自体、ベンゼンによる抽出操作がきちんと行われたかどうかを検証する必要があるが、藤木氏は検証していないと考えざるを得ないからである。

このように、藤木氏の測定結果については前処理操作でメチル水銀がうまく抽出されなかったために、ガスクロマトグラフで定量しても、ピークが確認されず、0.000 という結果を報告したと考えるのが妥当だと思う。

そのため、藤木氏に臍帯中水銀濃度の分析を依頼、藤木氏から報告された臍帯中水銀濃度 0.000 を正しい値と考えた医師が、その報告値を使って、水俣病の診断を行い、誤った推測をした可能性もある。

⑤ 藤木論文の不確かさの原因

訴訟では、原告 Y さんの臍帯中メチル水銀濃度の値は、藤木氏らが1972年1月発行の『日本衛生学雑誌』27巻1号で発表した測定結果が根拠とされている。論文によると、「方法：水俣湾産ヒバリガイモドキおよびアサリ中の総水銀量の経年変化と、水俣地方住民の臍帯中のメチル水銀量の生年月日による経年変化を比較した。総水銀はジチゾン比色法、メチル水銀は検体を10日間1N塩酸に浸漬し、その浸漬液から常法により抽出したのちガスクロマト法により定量した。」と記述している。

その結果と考察では、「幸いに水俣地方住民の臍帯を入手することができたので、そのメチル水銀を測定したところ、表1および図2に示したような結果が得られた。図2における昭和35年以降の臍帯中のメチル水銀量の変化の傾向と、図1の貝中水銀量の変化の傾向には類似性がみられ、したがって、昭和35年以前の貝中水銀量すなわち水俣湾海域の水銀による汚染状況は、図2の臍帯中のメチル水銀量の変化と同様の傾向を示したであろうことが推察できる。すなわち水銀による汚染は昭和23年頃から始まり、昭和33年頃が最もひどく、以後漸減したものと推察できる。」と報告している。

しかし、前述したように、藤木論文で報告されている分析結果、表1の測定結果は前処理における抽出効率が不明で、個々の分析値が正確とは言えず、そもそも個々の値が正しいかは疑わしい。

⑥ 藤木氏の測定結果の信頼性について

藤木論文は手書きで報告されているが、学会発表の抄録であり、結局、測定結果の妥当性を検討するなどした医学論文としては、まとめられていない。これらの分析結果、測定値について、藤木氏による検討・考察が進められていないのである。

不幸なことに、今まで、水俣病被害の認定、診断にあたってきた医師は、原田正純氏も含め、多くの医師が、臍帯水銀濃度については、報告値をうのみにして、考察してきたといえる。

臨床医には分析化学の知識が乏しく、衛生学や公衆衛生学、病理学で実施される水銀分析を疑う余地はないと考えていたのではないか。水銀をはじめ有害物質の微量定量は技術的に難しく、現在のように微量分析可能な分析機器がなかった時代では、精度管理が不十分な場合、正確な測定値を得ていたと考えるのは難しい。

4. 原告Yさんの臍帯血濃度についての考察

① 原告Yさんの臍帯血水銀分析は不正確

互助会訴訟弁護団から問い合わせのあった「1960年代に水俣市茂道で生活していた原告Yさんについて、臍帯水銀値 0.0684 という数値があり得るのか及びその理由」の回答としては、前述してきたように、藤木氏の臍帯水銀の測定結果は不正確で、そのためにあまりにも低い測定結果を導いたと考えるのが、妥当だと考える。

前項で紹介した『水銀』の「9.3 微量水銀による慢性曝露」の部分では、365ページ表9.23で、滝澤による正常分娩児の臍帯水銀量（総水銀）が示されている。平均値が 0.044ppm、最低 0.011、最大 0.089ppmで、試料数は8名と少ないが、Yさんの臍帯水銀値はこの範囲に入っている。水俣病の影響を受けていない一般人と考えられる正常分娩児8名全員の臍帯中から総水銀が検出されていることと、人体中の水銀はほぼメチル水銀の状態で存在していると考えられることから、原田氏が藤木氏や他の研究者に測定を依頼した水俣市周辺で生まれた人の臍帯中水銀濃度は、測れば定量される程度の水銀が含まれていたと考えられる。

滝澤論文が発表されたのが、1971年であることから、藤木氏が自らの測定結果を発表する前に、先行研究として、この調査結果と自らの調査結果を比較し、不検出、0.000 という結果があり得るのかどうかを検討するのが、研究者としてとるべき対応だったと考える。

分析化学者、研究者の常識として、滝澤の調査結果と比較し、藤木氏が自らの測定結果の拙さに気が付くべきだったと考えるが、何の検討もせず、測定結果をそのまま論文に掲載したのは、研究者としての能力を疑わざるを得ない。

② 藤木氏の測定結果の信頼性に関する評価

2007年の『日本衛生学雑誌』に掲載された「メチル水銀の胎児期曝露の生体指標としての臍帯水銀濃度の有用性の検討」という総説¹⁷⁾では、次のように述べている。

「1950年から1973年までに水俣市周辺地域で生まれた水俣病患者、精神遅滞者、疾病のない人々のメチル水銀濃度はAkagiら（44）及びHaradaら（46）とも似通っており、集団平均値は胎児性水俣病患者>後天性水俣病患者>精神遅滞者>これら以外の者という順であった（Table4）。しかしながら、いずれの集団においてもメチル水銀濃度のバラツキが大きく重なり合う部分が広いため、患者群と対象者群とを鑑別診断するcutoff値の設定は難しいように思われる。この理由の1つとして、胎児期のばく露レベルが低かったにもかかわらず汚染魚を幼児期に多食したため胎児性水俣病と診断された例、あるいは胎児期に高濃度ばく露を

受けたにもかかわらず病状の発現が遅かったために後天性水俣病と診断された例—すなわち誤分類あるいは選択バイアス—の混入が考えられる。何故なら、これらの対象者の診断の際に水銀ばく露量が測定されておらず、このため臨床症状と病歴のみで診断された可能性が払拭できないからである。この他、メチル水銀に対する感受性が低かったために症状が発現しなかった例もあったかもしれない。」

この記述からは、臍帯メチル水銀値が低く、出生時のばく露がそれほど濃厚でないとしても、その値自体は、出生時での値にすぎず、水俣病における水銀ばく露は、胎児期に始まり新生児期、乳幼児期、少年期と連続するのが特徴であり、いつの時点で発症したのか特定するのが困難であることから、臍帯メチル水銀濃度は決め手にはならないとしている。また、水俣市茂道に生まれ、日常的に魚食をしていた母親から生まれた原告Yさんの臍帯メチル水銀値は高い可能性を示唆している。

また、同論文¹⁷⁾では、「水俣地域以外の日本人で測定された乾燥臍帯組織のメチル水銀濃度は 0.083~0.092 $\mu\text{g/g}$ (平均総水銀濃度 0.072~0.092 $\mu\text{g/g}$) であった (30、34、59、60)。」と記述されており、原告Yさんの臍帯メチル水銀濃度は一般人の平均値以下ということになり、水俣市茂道生まれで、母親は日常的に魚食をしていたことを考慮すると原告Yさんの臍帯メチル水銀濃度の測定結果は経験則上信用性がないと判断するのが妥当だと考える。

本論文で検討した原田、頼藤がまとめた水俣病被害者の臍帯血中水銀濃度¹⁾の測定者として紹介した東衛(西垣氏)及び坂本氏の測定結果の中にも、0.1ppm以下の測定値が認められるが、1950年代、津奈木及び鹿児島県出水生まれの臍帯試料である。チッソが工場排水の放流先を変更した1958年9月以前の出生であるため、汚染が不知火海全域に拡大する前であり、臍帯中のメチル水銀濃度が低い値を示したことは妥当だと考えられる。

それでは、原告Yさんの臍帯メチル水銀濃度については、どの程度だったのかということに関しては、藤木論文では、最高値は 2.258ppm という値を示した試料もある。前処理操作が正常に行われれば、高い値を示した可能性があることが分かる。原告Yさんが、茂道に生まれていること、及び、母親が1995年政治解決での医療手帳(一時金)対象者であることから、日常的に魚食をしていたことを考慮すれば、臍帯メチル水銀値は藤木氏の測定結果の平均値 0.439ppm 程度を示すと考えるのが適当だろう。

藤木氏の測定結果の平均値には、0.000 と示されたものも含まれており、実際はそれ以上の値であったと考えられる。0.000 の 8 名を除いて、定量された 50 名の数値を平均すると、0.511ppm となる。そのため、この程度は最低限含まれていたと考えてもよいといえる。

なお、同論文の総説では、藤木氏の論文について、参考文献にはあげられているが、論文の内容については触れられていない。藤木論文で示されている水俣病発生前後の臍帯組織中メチル水銀濃度と当時の関心事であったアセトアルデヒド生産量との関係については、NishigakiとHaradaの『Nature』に掲載された論文¹⁸⁾での図示を紹介しており、藤木氏の論文には触れられていないことを付記しておく。藤木氏の論文の方が早く発表されているが、測定結果等の信頼性に難があったからだと考えるのが妥当である。

③ 原告Yさんの臍帯中水銀に関するまとめ

原告Yさんの臍帯水銀濃度について、常法によるガスクロマトグラフ法で測定したとする藤木素土氏の測定結果について、ベンゼンを用いた前処理操作に問題があり、測定結果が不正確であるという結論を得た。

原告Yさんの臍帯メチル水銀値に関して、0.0684ppmという測定結果は、一般人の平均値程度であり、水俣市茂道に生まれ育ったこと、藤木氏の分析方法に問題があったことを考えれば、著しく低く、測定結果は正しくないと判断できる。

原告Yさんが水俣市茂道生まれであり、母親が1995年政治解決での医療手帳（一時金）対象者であることから、日常的に魚食していたことを疫学的に勘案すると、原告Y子さんの臍帯メチル水銀値は、藤木氏の測定結果の平均値である 0.439ppm～0.511ppm程度であったと推測するのが妥当だと考える。

5. 水俣病究明初期の臍帯中水銀分析濃度の信頼性に関するまとめ

今まで本論では、原告Yさんの臍帯中水銀濃度について、生体試料や環境試料の水銀分析に関して公定法が定められていなかった1960年代から1970年代前半に行われてきた分析方法の確かさについて、入手できる資料に基づき評価してきた。生体試料中からメチル水銀を抽出する作業について、生体試料中の有機物を酸で分解後、ベンゼンで抽出し、ガスクロマトグラフィーで定量分析するのが常法として採用されていた。

その際、定量操作の前に行う準備操作である抽出操作で、被検成分であるメチル水銀の抽出がきちんとなされていないと正しい値を示さない可能性があることがわかった。藤木論文では、抽出効率に関する議論がなされていないので、臍帯中水銀濃度の測定結果が過小評価、不確かな可能性があることを指摘できた。

52年判断条件にある疫学要件について、生体試料の有機水銀濃度を用いる場合、汚染された当時の毛髪や臍帯中の水銀濃度で評価することは意義があるが、公定法が定められていなかった水俣病究明初期の分析結果については、その信頼性に難があるので、測定結果をうのみにせず、他の疫学要件も勘案して評価する必要があることがわかった。

謝辞

本論文の一部は平成31年度熊本学園大学学術研究助成「水俣市民の水銀による健康リスクと環境リスクの現状把握の研究」、2021年度科学研究費助成事業（基盤B）「水俣病被害者に対する補償・救済と地域復権に関する総合的研究」の一環として行った。今回の論文をまとめるにあたり、資料等を提供いただいた訴訟関係者に感謝の意を表す。

注)

- 1) 主論文で臍帯中水銀濃度は特に断らないかぎり臍帯中メチル水銀濃度のことを言う。
- 2) 2015年10月15日に熊本地方裁判所に、熊本県に対して、水俣病認定の義務付けを求めて、提訴された訴訟。佐藤英樹さんを原告団長に、7名の胎児性水俣病世代の水俣病患者が参加している。2021年11月26日に結審し、2022年3月30日に判決が申し渡される。

参考文献

- 1) 原田正純、頼藤貴志「不知火海沿岸住民の保存臍帯のメチル水銀値」『水俣学研究』創刊号、2009、pp.151-167。
- 2) 環境庁「後天性水俣病の判断条件について」、昭和52年7月1日付け環保業第262号環境庁企画調整局環境保健部長通知。
- 3) 日本規格協会「日本工業規格JIS K 0102 工場排水試験方法」、2019。
- 4) 厚生労働省「魚介類の水銀の暫定的規制値について」、昭和48年7月23日付け環乳第99号厚生省環境衛生局通知。
- 5) 環境省「水質汚濁に関する環境基準」、昭和46年12月環境庁告示第59号。
- 6) 環境省「有害大気汚染物質測定方法マニュアル」、平成11年3月31日付け環大規第88号。
- 7) 環境省「土壌の汚染に係る環境基準」、平成3年8月23日付け環境省告示第46号
- 8) 環境省「水銀分析マニュアル」、2004（平成16）年3月。
- 9) 日本薬学会『衛生試験方法・注解2020』金原書店、2020、pp.529-532。
- 10) 喜田村正次、近藤雅臣、滝澤幸雄、藤井正美、藤木素士『水銀（講談社サイエンティフィック）』、講談社、1976、pp.93-94。
- 11) 藤木素士ほか「水俣地方の水銀による汚染の推移」『日本衛生学雑誌』27巻1号、1972、p.115。
- 12) 泉美治ほか『第2版機器分析のてびき（2）』化学同人、1996、p.36。
- 13) 泉美治ほか『第2版機器分析のてびき（2）』化学同人、1996、p.52。
- 14) 日本分析機器工業会『よくわかる分析化学のすべて』日刊工業新聞社、2001、pp.75-79。
- 15) 日本分析機器工業会『分析の原理 04クロマトグラフィーの原理と応用』、2011、p.3。
- 16) 松木司、ほか「魚介類のメチル水銀及び総水銀分析法の検証」『広島市衛研年報』35、2016、pp.39-45。
- 17) 村田勝敬、ほか「メチル水銀の胎児期曝露の生体指標としての臍帯水銀濃度の有用性の検討」『日本衛生学雑誌』62、2007、pp.949-959。
- 18) Nishigaki S, Harada M: Methylmercury and selenium in umbilical cords of inhabitants of the Minamata area, *Nature* 258, 1975, pp.324-325.

Discussion on Analysis of Mercury Concentration in Umbilical Cord in the Early Stage of Minamata Disease Investigation

Shigeharu Nakachi

Kumamoto Gakuen University Open Research Center for Minamata Studies

Abstract

Mercury concentration in the umbilical cord has been important to evaluate mercury exposure as reference material for Minamata Disease and its damage certification under the Minamata Disease Relief Special Measures Law. However, it is known that there are variations in the concentration of mercury in the umbilical cord depending on the measurer. Particularly there are large variation in the mercury concentration in the umbilical cord of those who were born between 1956, when the Minamata Disease was officially recognized, and 1968, when the government acknowledged that the cause of Minamata Disease was the factory wastewater of Chisso and stopped the discharge of drainage containing methylmercury. Low levels of mercury in the umbilical cord have been used as a major basis for not being certified in the Minamata Disease certification lawsuits.

Focusing on the low mercury concentration in the umbilical cord of a plaintiff in a Minamata Disease certification lawsuit, we verified the analysis method of researchers who analyzed and reported in the early 1970s from the current findings. The method analyzed by Dr. Fujiki of Kumamoto University in the early 1970s was not based on the official analytical method at that time, and the validity of his own analysis result had not been confirmed, so it is demonstrated that the analytical values were unreliable.

The mercury concentration in the umbilical cord should be evaluated from an epidemiological point of view. it was clarified that in the future when evaluating fetal exposure to methylmercury, it is necessary to consider the measurer and the measurement method with regards to the mercury concentration in the umbilical cord analyzed at the early stage of Minamata Disease investigation.

Key words : Minamata Disease, methylmercury, umbilical cord, fetal exposure,
mercury analysis method