

諸磯湾における船艇の許容係留数の試算

—船底塗料の毒性評価による方法—

早 川 康 博

(東京大学海洋研究所)

An Estimate of the Permissible Limits of the Number
of Boats Moored in Moroiso Cove—A calculation based on the evaluation of acute toxicity
of the anti-fouling paint—

Yasuhiro HAYAKAWA

(Ocean Research Institute, University of Tokyo, Tokyo)

Abstract

There had already been such an increase of yachts in Moroiso Cove, southwest of the Miura Peninsula, Kanagawa Pref., that some limits should have been set to the number of these vessels, when this study was begun in 1972, aiming at estimation of their permissible number in this cove.

1) After bio-assay method using *Caprella penantis* LEACH, *Leander serrifer* STIMPSON, and *Atherion elymus* JORDAN et STARKS as test animals, acute toxicity of the anti-fouling bottom paint was evaluated. Toxicity was expressed in terms of TLM (median tolerance limits) which was denoted by the painted surface area per water volume, i. e., m^2/m^3 , and estimated by graphical inter-, or extra-polation. For example, 24 hr. -TLM of the paint for *Caprella*, *Leander*, and *Atherion* was 0.22 m^2 , 1.59 m^2 , and 2.00 m^2 of the surface area per $1 m^3$ of sea water, respectively.

2) Some chemical substances on the painted plate after soaking were observed with scanning electron microscope. By quantitative determination of Zn^{++} and Cu^{++} released from the plate, relatively small amounts of these ions were found. Thus it seemed likely that main cause of acute toxicity of the bottom paint was attributed to not inorganic metals, but organic chemicals.

3) Tidal exchange of the sea water in this cove was estimated. Chlorinity distributions were drawn to calculate the water volume (V_i) that was surrounded by the same isohaline curve at each tide level i . According to calculation, the water volume around the mouth increased at flood tide and decreased at ebb tide following the change of tide level. But near the head the situation was reversed; increase in volume at ebb tide and decrease at flood tide. Then, the followings were assumed:

If increase in volume at tide level i , there is only inflow (W) of more saline water into the former water volume (V_{i-1}), and if decrease at the next tide level $i+1$, only outflow (U) of fresher water from V_i , giving simple equations,

$$W = V_i - V_{i-1}, \text{ and } U = V_i - V_{i+1},$$

on account of negligible volume of river discharge that has importance, however, to the chlorinity distribution.

In the water mass, complete mixing is in process and outflow never returns, therefore, exchange rate is the ratio of the outflow to the water volume (U/V_i).

The same exchange pattern is repeated as long as wind drops.

4) Considering both TLM and the exchange rate in this waters, the permissible limits of the painted surface area of yachts' bottom, or number of yachts in this cove were estimated.

1. はしがき

神奈川県三浦半島の諸磯湾水域は、以前からヨットの係留が漸増する傾向にあったが、近年、この水域に大規模なヨットハーバーの建設が計画され、生物相の保護の観点から、建設による生物への影響を検討する必要が生じた。

Fig. 1 は諸磯湾および油壺湾におけるヨット係留の概況を示す。図に示されるような現在のヨット係留、及びヨットハーバー建設による更に密集した係留は、付着生物による汚損から船体を保護するという船底塗料本来の目的を逸脱して、この海域の生物相全般に対して害作用を及ぼす可能性が大きい。

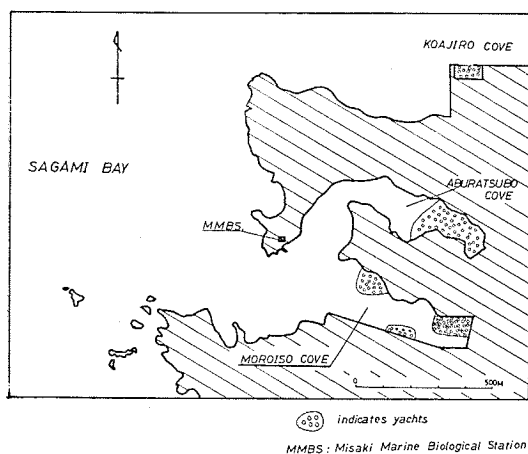


Fig. 1. Map showing yachts moored in Moroiso Cove and the adjacent waters.

ヨットハーバー建設は、その後、実施されずに現在に至っているが、本研究は以上のようなきっかけから出発し、船底塗料の生物に対する有害塗付面積と湾内の海水交流を考慮し、諸磯湾における許容(限界)塗付面積、及びこれに基づいた許容数を試算する目的で行った。

2. 船底塗料の毒性評価

1) 塗料の TLm について

各種化学物質の海産生物に対する毒性は、半数致死濃度(TLm: median tolerance limits)を以って評価することが広く行われ、実際には、DOUDOROFF 他¹⁾の図表法¹⁾を用いて TLm 値を算出し、mg/l やモル濃度の単位で表示される。しかし、船底塗料の毒性評価に関しては、単なる化学物質として取扱うことのできない特有な性質のために、TLm の概念を広義に解釈した「塗料の TLm」を用いて、毒性評価を実施することが、本研

究の応用的な主旨からも適当であると思われる。船底塗料の特有な性質とは次に挙げるものである。

- イ) 船底塗料に限らず、一般に塗料はゾル状態のものが塗付され、ゲル化することによって塗膜を形成した後、実用に供される。
- ロ) 船底塗料の生物に対する毒性は、含有毒成分とその海中への溶出率による。
- ハ) 船底塗料は種々の化学物質から構成され、含有物組成は塗料製造技術上の進展に伴い一定しておらず、しかも公表されないことが多い。

ロ) については、数多くの塗料板浸漬実験において、防汚性の観点から実証され²⁾³⁾⁴⁾、また、ブラインシュリンプを供試生物とした実験から、塗料の含有毒物の毒性は、各毒物の“濃度”—“致死率”の関係が異なることは勿論、“時間”—“致死率”曲線にも相違があると報告されている⁵⁾。また、銅を毒物とする場合は、溶出率が $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2/\text{day}$ 以上の時に塗料の防汚性が保持されると言われている⁶⁾。

本研究では、イ)~ハ)を考慮し、「船底塗料の TLm」を以下のように定義した。「船底塗料 A の生物 B に対する t 時 TLm とは、船底塗料 A が一定の塗付面積で生物 B の不特定多数と共存した時に、 t 時間後に生物 B の半数が斃死するような船底塗料 A の水量当たりの塗付面積である。」従って塗料の TLm の単位は(面積/体積)となる。一方、塗付量については、塗付面積が一定であれば、塗付量(通常、1 回塗りて $1 \text{g}/\text{cm}^2$ 程度)の差は、急性毒性の評価に際してはほとんど関与しないことが予備実験で示された。なお、止水中で一定の塗付面積が生物と共存すると、毒物の溶出率に応じて、水中の毒物濃度が増加する。たとえば、含有毒物が同一の塗料で溶出率が異なるならば、溶出率大の塗料程、TLm 値は小、すなわち毒性大と評価される。

2) 方法及び結果

船底塗料として、鋼船船底ビニール樹脂塗料 2 号(JIS 規格)を一貫して使用した。これは現在のところ、木船、鋼船の別なく広く船底塗料として用いられているものである。生物による急性毒評価の方法は、標準的な方法⁷⁾に準拠したが、本研究では、供試生物として、マルエラワレカラ (*Caprella penantis* LEACH), スジエビモドキ (*Leander serrifer* STIMPSON), 及びムギイワシ (*Atherion elymus* JORDAN et STARKS)を用いた。

面積が各々 31.2(I), 56.2(II), 100.0(III), 177.8(IV), 312.6(V), 562.3(VI) cm^2 の塩ビ樹脂板に船底塗料を 1 回塗りて塗付した。塗付量は $1.5 \pm 0.3 \text{g}/\text{cm}^2$

諸磯湾における船艇の許容係留数の試算

であった。次に水槽に12lの海水を満たし、供試生物を入れ、エアレーションし、酸素供給と共に、一定の水流を生ぜしめる。予め2時間前に別個の海水中に漬けておいた塗料板I～VIを各々の水槽に浸漬し、以後1時間毎に、供試生物の活動状態と水温を記録し、これを全ての個体が準斃死となるまで続けた。毒性評価に際して準斃死に注目したのは、完全な斃死の判別が困難なためである。また、塗料板は予備実験、本実験を通じて同じものを繰り返し使用したが、浸漬時間の総計は2週間程度であり、この間の溶出率の変化は無視できであろう(本実験は3回繰り返すことを原則にしたが、各々の“時間”―“致死”率曲線に大差なかった)。TLm 値の算出には、塗付面積の対数を横軸に、半数が準斃死となる時間を縦軸に記入し、内挿又は外挿法によって、24, 48, 96時 TLm 値を求めた。更に次式から、安全 TLm を求めた¹⁾。

$$\text{安全 TLm} = \frac{(48 \text{ 時 TLm})^3 \times 0.3}{(24 \text{ 時 TLm})^2}$$

i) マルエラワレカラによる毒性評価

マルエラワレカラは甲殻綱、端脚目、ワレカラ科に属する。

マルエラワレカラは、通常歩脚によって物を把握し、一度水中へ飛泳した後も物体に触れるとこれを把握し、体を安定させる、一種の走触性(Thigmotaxis)が観察される。しかし塗料からの被毒の進行と共に、「通常の把握、又は飛泳」→「立直把握(歩脚だけによる把握)」→「嫌忌的飛泳、又は伏臥把握(歩脚と亜鉗の両方による把握)」→「飛泳行動の消滅」→「歩脚の把握力消失(準斃死)」→「斃死」の過程をたどる。歩脚の把握力の消失した個体は、一般に生命維持に深い関係をもつと思われるその生物独特の行動パターン(この場合走触性)を放棄したことであり、かつ、この状態の個体は清海水中に戻しても蘇生しないため、これをもって準斃死と認定した。

実験は、塗料板を吊り下げた水槽に、採集したマルエラワレカラを20尾ずつサラン網(10cm×10cm)に把握させて実施した。準斃死の認定は、飛泳した個体については、サラン網を接触させても把握行動を示さないもの、網上に伏臥している個体については、サラン網を揺った時、脱落し、かつ再び網に対する把握行動を示さないものとした。

結果は Fig. 2 に示す。Fig. 2 は、塗料板 II～VI に対して、ワレカラの準斃死個体の合計が時間的に増加していく様子を示した“時間”―“致死率”曲線である。

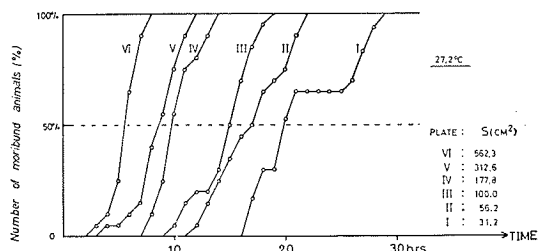


Fig. 2. Cumulative number of moribund skeleton shrimps (*Caprella penantis*) poisoned by each painted plate.

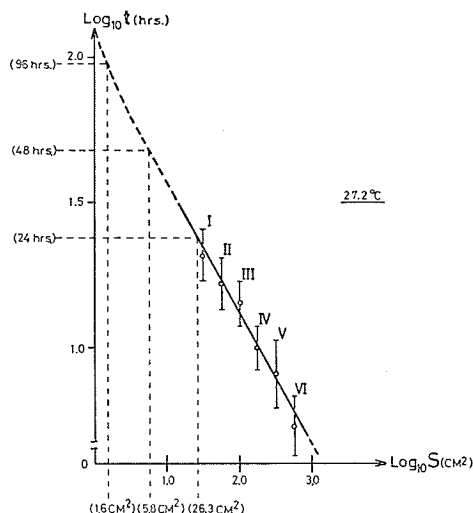


Fig. 3 Estimation of TLm for *Caprella penantis*.

この時、対照の水槽における準斃死個体は皆無であった。Fig. 3 はマルエラワレカラに対する塗料の TLm 値を導くための図である。

ii) スジエビモドキによる毒性評価

スジエビモドキは十脚目、遊泳亜目、コエビ族に属し、潮溜りや波静かな海岸の岩陰に周年みられる。諸磯湾にも多数生息し、これを採集して、塗料板を吊り下げた水槽に10尾ずつ供試した。予備実験から、被毒の進行に伴い、「通常の遊泳」→「不規則な跳躍を伴う遊泳」→「体の白濁化」→「横臥を混じえた遊泳」→「横臥(準斃死)」→「斃死」の過程をたどる。遊泳力を消失して横臥したままの個体は、清海水中でも蘇生することではなく、準斃死とみなした。

結果は Figs. 4, 5 に示す。なお、対照の準斃死、共喰いは皆無であったが、塗料板 I, IV, VI では脱皮後に共喰いされる個体や、同じく脱皮後に突然、準斃死や斃死する個体がみられ、これらは図から削除してある。

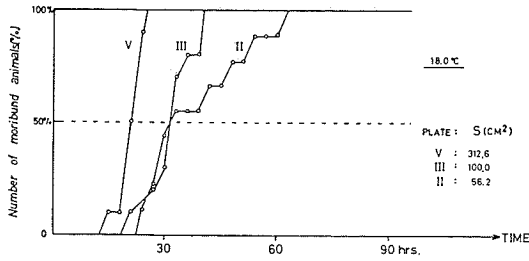


Fig. 4. Cumulative number of moribund cup shrimps (*Leander serrifer*) poisoned by each painted plate.

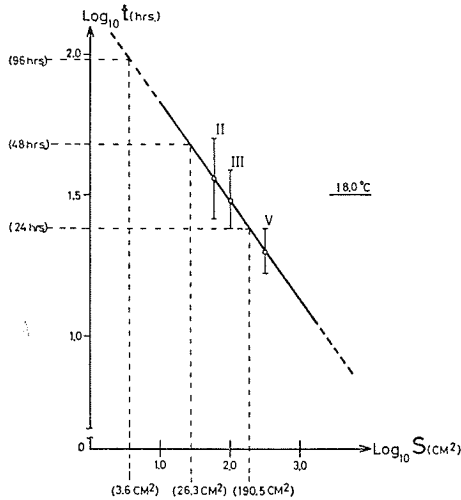


Fig. 5. Estimation of TLm for *Leander serrifer*.

iii) ムギイワシによる毒性評価

ムギイワシはトウゴロウイワシ科に属し、主に沿岸部を回遊している。諸磯湾でも、夏から初冬の夜間、岸辺の浅所に群集し、昼は湾内一帯で見受けられる。これを夜間採集して、20尾ずつ供試した。塗料板は水槽の底に沈め、遊泳の妨害となることを避けた。予備実験から被毒の進行と共に、「通常の群泳（体色は水槽の色調に順応した明色）」→「過敏な群泳」→「体色暗化」→「群泳から脱落する個体の増加」→「横臥を混じえた遊泳」→「横臥（準斃死）」→「斃死」の過程をたどる。横臥した個体は、清海水中で蕨生せず、準斃死とみなした。

結果は Figs. 6, 7 に示す。なお、対照の準斃死は皆無であった

iv) TLm 値のまとめ

TLm 値は（塗付面積）/（水量）で表示されるため、Figs. 3, 5, 7 の数値を水量 12l で割った値となる。前述の式から安全 TLm を算出し、結果を Table 1 に示

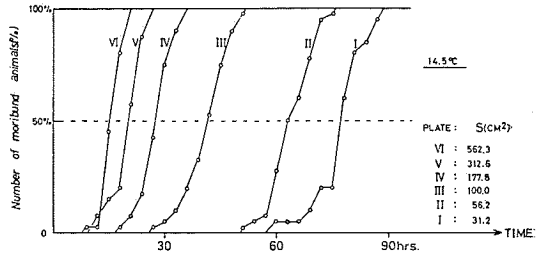


Fig. 6. Cumulative number of moribund fishes (*Atherion elymus*) poisoned by each painted plate.

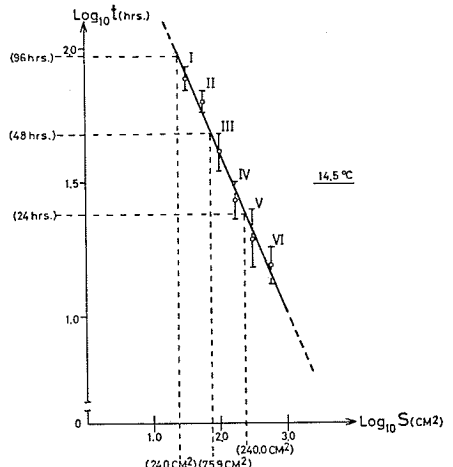


Fig. 7. Estimation of TLm for *Atherion elymus*.

Table 1. TLm of the bottom paint for each test animal. (M²/M³)

Test animals	Length Weight	Temp	24 hr-TLm	48 hr-TLm	96 hr-TLm	Safe-TLm
Caprella	3-6 mm	27.2 °C	0.22	0.048	0.013	0.007
Leander	2.5±0.5 cm 0.15±0.08 g	18.0 °C	1.59	0.219	0.030	0.013
Atherion	3.5±0.4 cm 0.33±0.10 g	14.5 °C	2.00	0.633	0.200	0.190

した。温度条件が異なるが、毒物に対してマルエラワレカラが最も鋭敏である。たとえば、24時 TLm では、マルエラワレカラの場合、水量 1 トン当たり塗付面積 0.22 m²、スジエビモドキでは 1.59 m²、ムギイワシでは 2.00 m² である。

3. 船底塗料膜面における毒物の溶出

1) 船底塗料の含有成分について

本研究で使用した船底塗料のたまかな含有物組成を Table 2 に示す。

Table 2. Contents of Vinyl Chloride Resin Coatings for Steel Ships' Bottom (no. 2) used in this study.

Vinyl varnish	c. 40%	(Cuprous oxide (Cu ₂ O) Ziram (bis(dimethyl-dithiocarbamate)zinc) TBTO (bis(tri-n-butyl tin)oxide) others)
Resin varnish	c. 17%	
Colors	c. 22%	
Toxic materials	c. 16%	
Solvents	c. 5%	

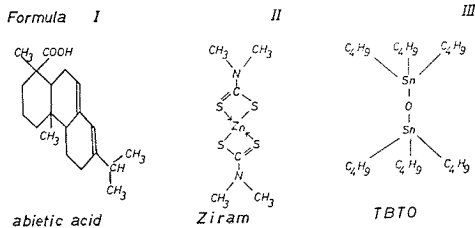
ビニールワニス：塩化ビニール・酢酸ビニール共重合体とその溶媒から成る。

ロジンワニス：ロジンと硬化剤 (ZnO, Ca(OH)₂等), 又はロジンのグリセリンエステルにボイル油 (乾燥剤として Mn, Pb, Co の酸化物や塩類を含む) を加えたもの。ロジンはアビエチン酸とその異性体であるピマール酸を主成分とする。アビエチン酸は構造式 (I) で示され、カルボキシル基や共役 2 重結を有するため、ビニールワニスの顔料に対する親和性を改良すると共に、ビニール共重合体の相互に橋かけ結合をもたらして塗膜を強化するが、海水中では塩を形成して溶出する⁷⁾⁸⁾¹⁰⁾¹¹⁾。

顔料：通常ベンガラ (酸化第 2 鉄 Fe₂O₃) 等を含む。

溶媒：いわゆるシンナーであり、酢酸エチル, n-ブチルアルコール, トリエン等の混合物である。

有毒成分：亜酸化銅 (Cu₂O) は従来から用いられてきた無機毒物の主役の一つである。Ziram [ビス (ジメチルジチオカルバメート) 亜鉛] は構造式 (II) で示される有機亜鉛化合物である。従来、ゴム製造の際の硫化促進剤や微防止剤として使用されてきたが、近年、船底塗料の毒物としても使用される。TBTO [ビス (トリブチル錫) オキシド] は構造式 (III) で示される有機錫化合物である。樹脂の熱安定剤, 微防止剤, 船底塗料の毒物として使用されているが、塗料毒物としては使用廃止の方向にある。その他の毒物として、種々の農薬や硫化促進剤等が各々の塗料に応じて含有されている。



2) 毒物の溶出機構と溶出率の測定について

本研究で使用した塗料板について、海水中への浸漬前

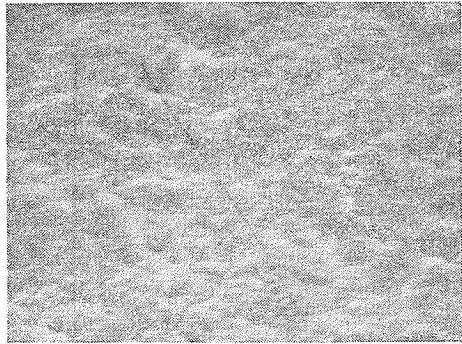


Fig. 8, a. A surface of the painted plate before soaking. ×2000

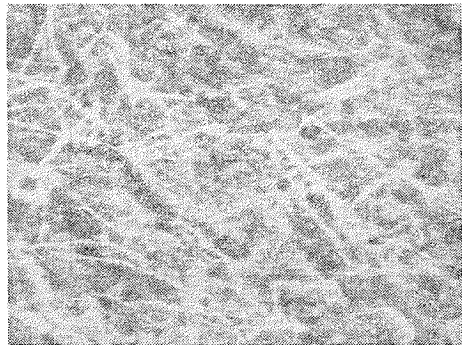


Fig. 8, b. A surface of the above plate after soaking. (appearance of white substance) ×2000

と浸漬後の塗膜面を観察すると、浸漬後、塗膜面に白色物質が浮き出すのが肉眼で認められる。これらの走査電顕像を Fig. 8 a, b に示す (金蒸着, HITACHI MINI-SEM. を使用)。浸漬後は、明らかに樹脂状、又は結晶状の白色物質が浮き出しているのが観察される。この白色物質は浸漬を繰り返した塗料板では浮出する量が減少する。しかも、その UV スペクトルのピークがロジン、又は Ziram のものと類似することから、本塗料板においても、一般に考えられているように、塗膜中のロジン溶出に伴って、毒物も塗膜面に露出し、順次溶出していくか、物理的に塗膜から脱離しているものと考えられる。塗膜から出る有機毒物の詳細な追跡には、UV スペクトルのみならず、IR スペクトル, 核磁気共鳴スペクトル, 質量分析等による同定、或いは、ラベルした同位体の追跡が必要であるが、溶出した重金属イオンは定量分析が比較的容易である。従って、海水中への溶出が考えられる銅, 亜鉛イオンについて、溶出率を測定した。

予め、海水に 3 時間漬けておいた塗料板 VI を、6 l の

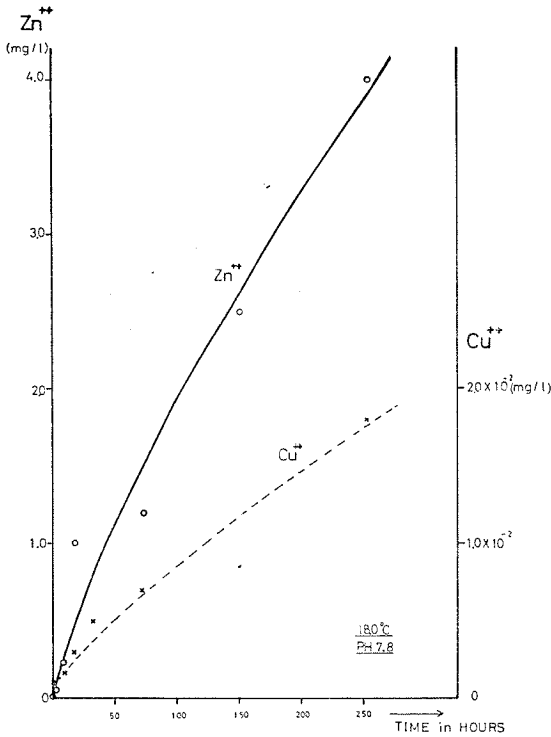


Fig. 9. Time rate of Zn⁺⁺ and Cu⁺⁺ released from the plate VI.

浜過海水中へ浸漬し、生物による毒性試験と同じエアレーションで一定の水流を生ぜしめた。以後0~252時間の間に200 ml ずつ7回採水し、これをジチゾン法(混合色法)に従って分析した。採水による海水水量の減少を補正した結果を Fig. 9 に示す。銅、亜鉛の溶出率は各々、 $1.4\sim 3.2 \times 10^{-2} \mu\text{g}/\text{cm}^2/\text{day}$, $2.9\sim 6.4 \mu\text{g}/\text{cm}^2/\text{day}$ であり、亜鉛は銅の約200倍の溶出率を示す。また、溶出率は大体において一定であると考えて良いであろう。

3) 船底塗料の急性毒物質について

銅、亜鉛の溶出率からみて、先に得た塗料の TLm は、どの程度の銅、亜鉛濃度に匹敵するかを検討した。他の報告と比較するため、24時 TLm 値を適用すると、マルエラワレカラ、スジエビモドキ、ムギイワシは各々、0.22, 1.59, 2.00 (mg/m³) であり、亜鉛の溶出率を $6.4 \mu\text{g}/\text{cm}^2/\text{day}$ とすると亜鉛の濃度は最初 0 (mg/l) から時間と共に大体において直線的に増加し、24時間後に各生物の半数が準致死に至った時、各々水槽中の濃度は 0.014 mg/l, 0.102 mg/l, 0.218 mg/l に達していたと推算される。ところが、亜鉛の有害濃度は通常 $5\sim 15 \text{ mg}/\text{l}^{13)}$, 24時致死濃度は $0.5\sim 20 \text{ mg}/\text{l}^{14)}$ の範囲である。

従って、亜鉛イオンの毒性が、単独に、船底塗料の急性毒の主因であるとは考えられない。同様に銅イオンの濃度は、24時間後に各々の生物に対して、 $0.07 \mu\text{g}/\text{l}$, $0.51 \mu\text{g}/\text{l}$, $0.64 \mu\text{g}/\text{l}$ に達しているが、通常の有害濃度 $0.1\sim 0.8 \text{ mg}/\text{l}^{13)}$, 24時致死濃度 $0.1\sim 2 \text{ mg}/\text{l}^{14)}$ の範囲であって、銅イオンも急性毒の主因ではない。従って本塗料では、有機毒物である Ziram, 又は TBTO に急性毒作用の原因を帰すことができるであろう。前述のように Ziram は微防止剤として用いられてきた有機亜鉛剤であり、TBTO は脂質可溶性の有機錫剤であって、TBTO は特に生体の脳、皮膚、呼吸器、消化器に侵入することが可能で、同種のジブチル錫、テトラブチル錫化合物より毒性が大であるとされる。TBTO の48時 TLm はオヤビッチャで $0.04 \text{ mg}/\text{l}$, クサフグで $0.17 \text{ mg}/\text{l}$ であり、魚類では短時間で斃死に至ること、しかるに、毒性は供試生物によって大きく異なることがあると報告されている¹⁵⁾。従って、本研究で使用した船底塗料の急性毒は、Ziram, TBTO を主とし、銅、亜鉛は副次的に、又は協同的に毒性を発揮しているものと推定される。

4. 諸磯湾における海水交流

1) 諸磯湾の概況

諸磯湾は三浦半島の西南側に位置して、油壺湾と共に相模湾に面する小さな入江である。周辺では夏期は南西風、冬期は北西風が卓越するが、諸磯湾内の風向は周囲の地勢上、湾の長軸に沿ってはほぼ平行となる (Fig. 10)。又、海陸風の発達も顕著である。最大満潮時の面積約7

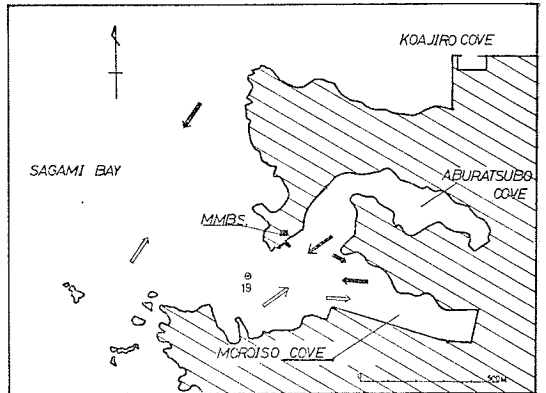


Fig. 10. Wind direction.

white arrows: south-westerly wind prevailing in summer.
black arrows: north-easterly wind prevailing in winter.

諸磯湾における船艇の許容係留数の試算

万 m², 容積約 23 万 m³, 平均水深 3.3 m, 平均幅 140 m, 奥行き 500 m の長方形に近い小湾である。Fig. 11 の地点 Sw からは湾内水を汲み上げて貝類の蓄養に使用した後, 約 45 ton/hr で放水しており, 地点 Ri からは家庭廃水を含む小河川が 20~30 ton/hr で流入し, これが唯一の淡水流入である。なお, 湾奥部の底質は硫化水素臭を放つ泥であるが, 湾口部の南岸 (Fig. 11 の定点 3, 4 の付近) は砂地で, 一帯にアマモが繁茂する。

一般に湾内の海水交流には, 淡水流入, 潮汐, 風, 沖合水の流入, 地形等の要因を考慮しなければならない。従来, 海水交流に関する研究は多く, 流速, 塩分濃度分布, 潮位等から議論され¹⁶⁾¹⁷⁾¹⁸⁾¹⁹⁾²⁰⁾, 上記の要因の取扱いが最も重要な問題点である。そこで, 諸磯湾における交流の概況を知るために予備調査を行った。

T.S. 自記流向流速計による湾口部における 25 時間の

流速測定 (1972 年 7 月 20 日) によると, 大部分が 5 cm/sec 以下の微流速であった。

塩素量分布を調査した (1973 年 5, 7, 9, 11 月) 採水点は Figs. 10, 11 の定点 1~19 である。湾内の縦断面の基線上では (定点 2, 5, 7, 16, 19), 表層下の 0.2 m, 海底上 1.0 m とその中間点の 3 層から, それ以外の定点では中間点を省いた 2 層から北原式採水器で採水した。結果を Figs. 12~15 に示す。

1973 年 5 月 17 日: 小雨下の満潮時, 風力 1 の湾口へ向う風がある。低塩分水は表層を流出し, 高塩分水が底層に侵入する典型的なパターンである (Fig. 12)。

1973 年 7 月 4 日: 干潮時, 湾奥へ向う風力 2 の風がある。表層水は北岸から流出し, 外海水が南岸寄りに侵入する (Fig. 13)。

1973 年 9 月 6 日: 満→干の中間時, 終日風であった。

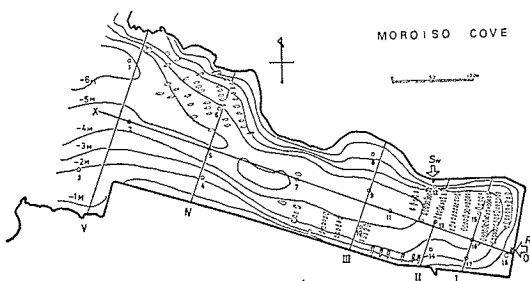


Fig. 11. Sampling locations and details of Moroiso Cove.
Ri: small river inflow (20-30 t/hr)
SW: inflow of the sea water pumped up for clam culture (45 t/hr)
O-X: base line of longitudinal section
I~V: base line of each transverse section

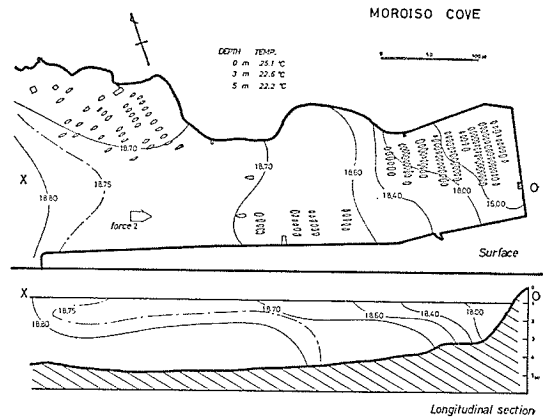


Fig. 13. Chlorinity distribution (July 4, '73, Low water, westerly wind, fine).

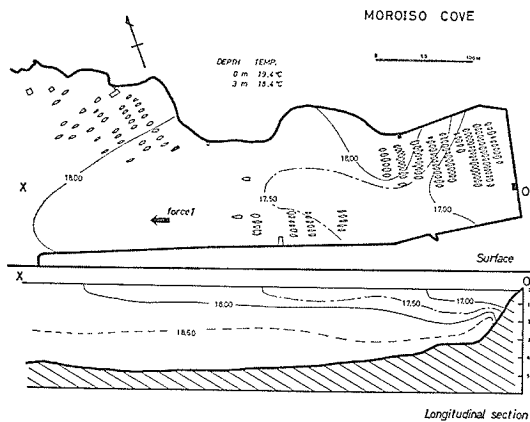


Fig. 12. Chlorinity distribution (May 17, '73, High water, easterly wind, drizzle).

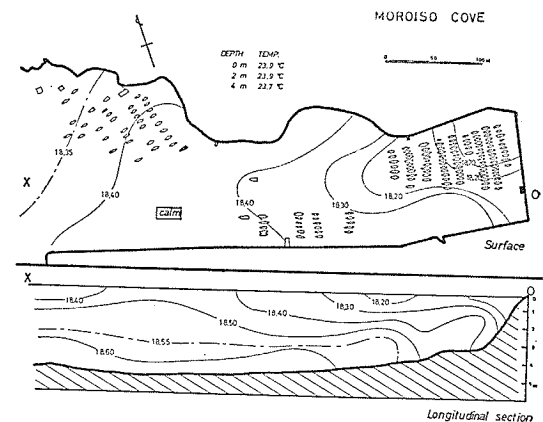


Fig. 14. Chlorinity distribution (Sept 6, '73, Ebbing tide, calm, cloudy).

湾奥部の北岸に高塩水が孤立している。縦断面図が示すように、等塩素量曲線の褶曲が顕著であって、混合の盛んなことを示唆する (Fig. 14)。

1973年11月23日：満→干の初期、湾奥へ向う風力2の風があるため、前図と異なり高塩水の圧倒的な侵入がある (Fig. 15)。

次に、漲潮時、及び落潮時の表層水の動きを知るために、漂流瓶を放流した。漂流瓶はビール瓶に海水を入れ、密栓し、先端のみ海面上に出るように浮力を調整した。漂流瓶の投入は湾奥、湾中、湾口部で各々10本ずつとし、干（満）潮時に投入した場合は、約6時間後の満（干）潮時に回収を試みた。

結果は Fig. 16 に示す。漲潮時 (A) の漂流瓶は北西風の影響を強く受け、湾口へ移動した後、南岸へ吹き寄せられた。落潮時 (B) は風となったが、この時の漂流瓶の平均移動距離は湾奥部で投入したものについては 256 m、湾中部のものは 352 m、湾口部では 321 m である。従って平均速度は各々、1.2、1.6、1.5 cm/sec となる。

以上の予備調査から、諸磯湾では風と潮汐の影響が大

きく、水深が浅いことから沖合水の影響も直接的ではないと考えられる。更に、本研究の目的である船底塗料の許容塗付面積の推算という立場から見て、海水交流の最

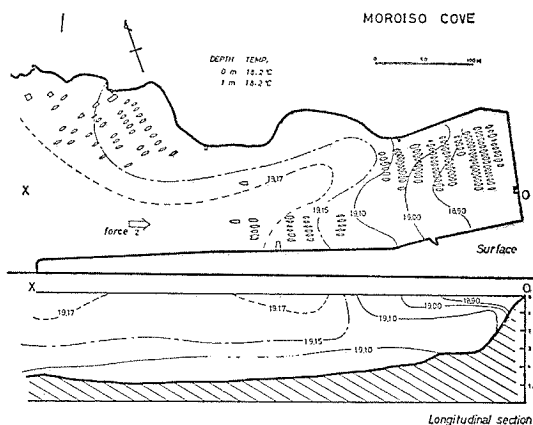


Fig. 15. Chlorinity distribution (Nov. 23, '73, Ebbing tide, westerly wind, fine).

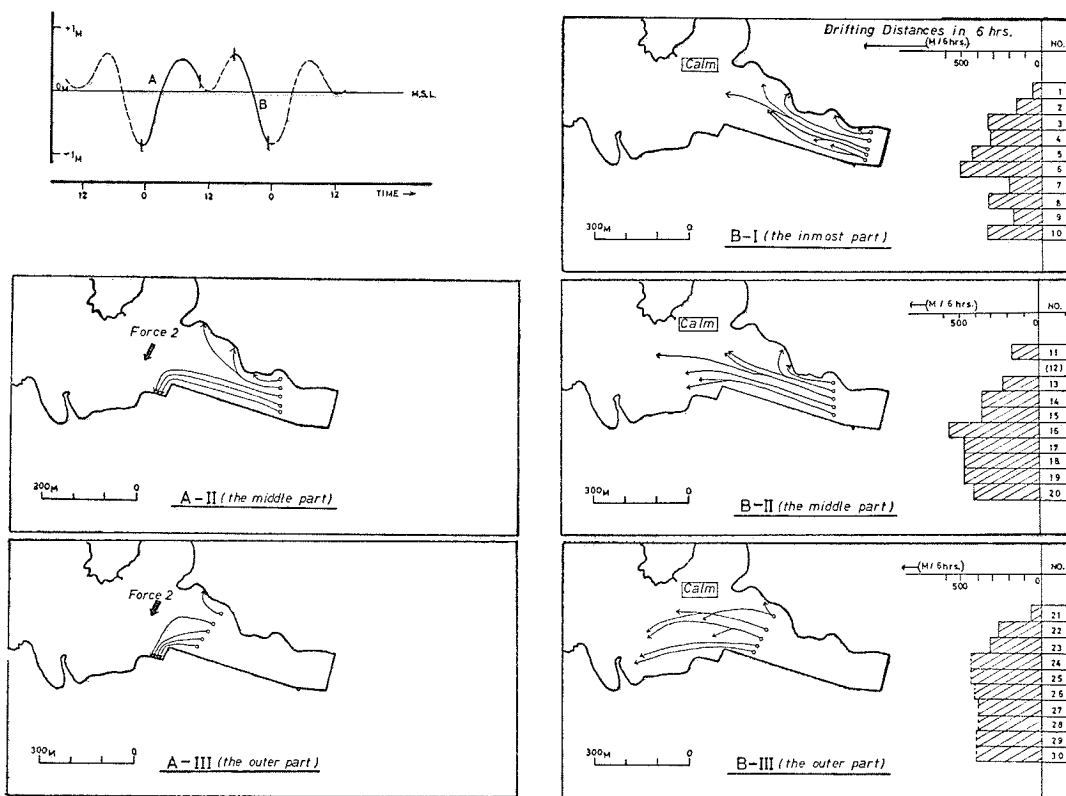


Fig. 16. Tide level during the drift bottle experiments and tracks of drift bottles.

諸磯湾における船艇の許容係留数の試算

小時について、海水の交換率、すなわち船底塗料の急性毒成分の交換又は残留を検討するのが適当である。従って、以下に風の継続期における潮汐のもたらす海水交流、及び交換を検討した。

2) 湾内の海水交換率の算出

淡水流入のある湾においては、海水交流によってもたらされる海水の交換を、水量の連続と塩分量の連続に基づいて考察することが多い。諸磯湾においても、交流量、及び交換率を求めるために、塩素量分布が潮時毎にどのように変化するかを調査した。採水は予備調査と同様である。調査は風の継続していた1973年12月11日の満潮と干潮の各々2回、計4回の潮汐1日周期について実施した (Fig. 17)。

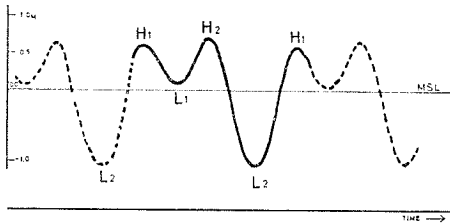


Fig. 17. Tide level on a day cycle.
(H₁→L₁→H₂→L₂)

満潮時 H₁, 干潮時 L₁, そしてその次にくる満潮時 H₂, 及び干潮時 L₂ の塩素量分布を Fig. 18 に示した。

満潮時 H₁ は、最干潮に続く満潮時であり、外海水の北岸寄りの侵入があることや、湾奥部で 19.00% の等塩素量線が底層へ圧迫されていることが特徴である。干潮時 L₁ では、先の H₁ 時の湾奥水 (19.00% 以下の水) であったと思われる水が表層に広がり、湾口へと張り出した後、北岸底層に潜行している (横断面 V)。又、この時湾奥では底層水の加入、及び混合が進行すると考えられる。なお、H₁ 時での北岸寄りの侵入外海水は横断面 IV が示すように 19.04% の水塊として孤立している。総じて、潮差の小さい干潮時の特徴を示している。満潮時 H₂ では外海水の侵入は弱く、同じく潮差の小さいことを反映している。湾中部では L₁ 時の低塩分水が交流混合した状況が認められ、湾奥部には高塩分水の孤立がみられる。干潮時 L₂ では、大きな潮差を反映し、湾内水は大部分が湾口へと移動しており、湾奥部からの低塩分水が広がっている。

ここで、これらの等塩素量曲線の潮時毎の変遷に着目し、わずかず異なる等塩素量曲線によって囲まれる水域の水量の連続を検討した。このような等塩素量曲線で特徴づけられる水塊が、潮時毎にどのような水量の変化

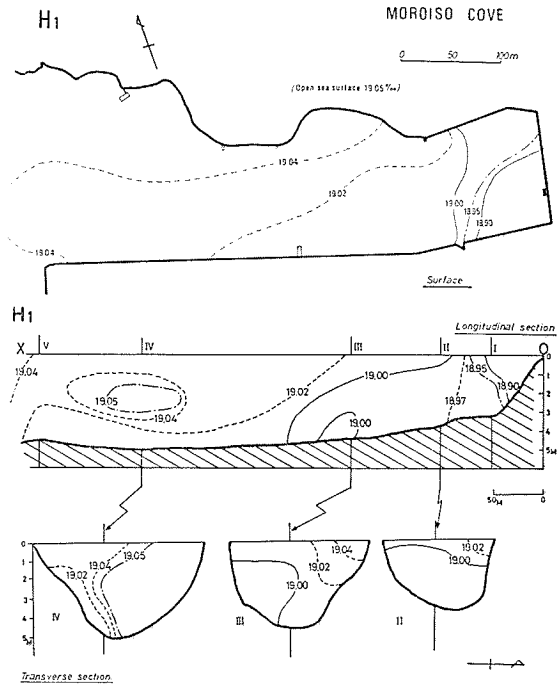


Fig. 18, a. Chlorinity distribution (H₁) (%).

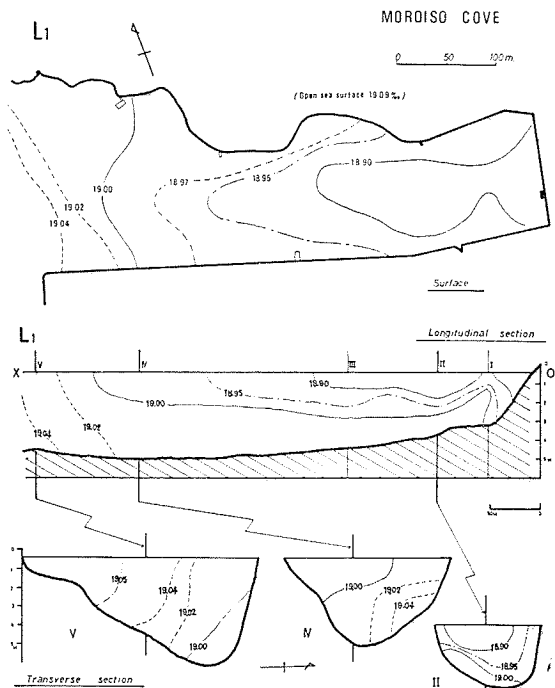


Fig. 18, b. Chlorinity distribution (L₁) (%).

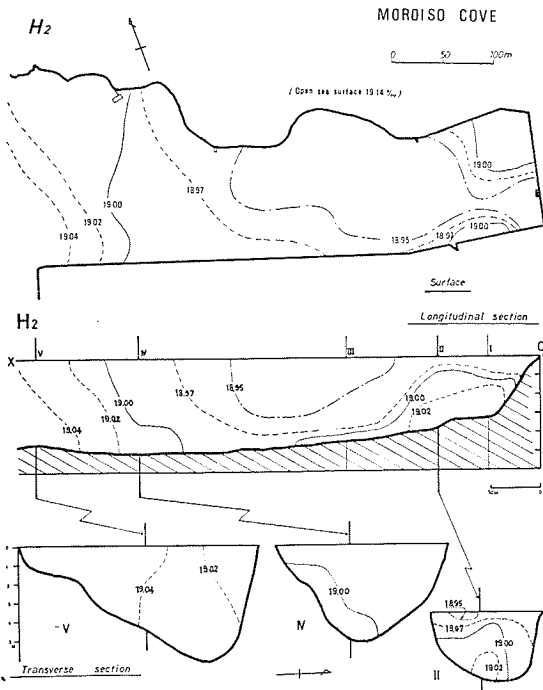


Fig. 18, c. Chlorinity distribution (H_2) (%).

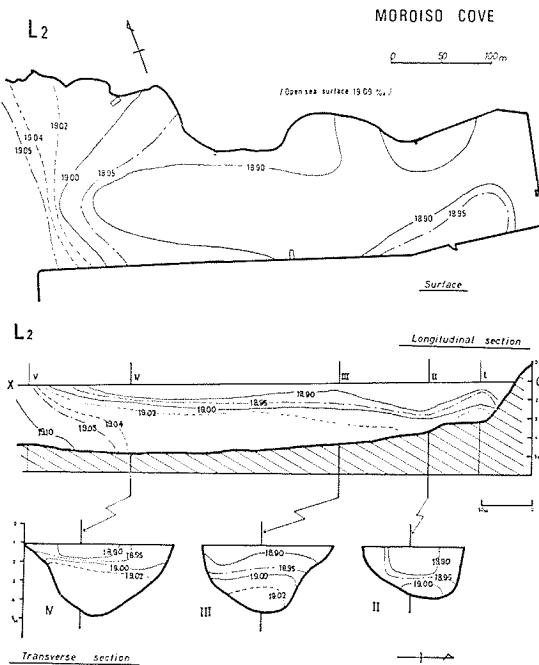


Fig. 18, d. Chlorinity distribution (L_2) (%).

を示すかを求めるのである。交流、及び交換率の推定に関しては淡水流入量に応じた水域を設定する方法¹⁵⁾、潮流による移入水量に応じた水域を設定する方法²⁰⁾、又は水域を全く固定して考える方法(ボックスモデル)等があるが、本研究では等塩素量曲線に視点を定め、これを基準とした交流量の収支を考える方法をとった。

Table 3. Water volume between neighboring isohaline (upper column), and cumulative water volume below the chlorinity given in the top column (lower column) at each tide level (in $10^4 M^3$).

	the mouth	19.04%	19.02%	18.97%	18.95%	18.90%	the head'
H_1	6.48	5.43	6.55	2.94	0.48	0.25	0.26
L_1	225.3	15.96	16.84	3.97	1.04	0.85	0.26
H_2	1.23	2.45	7.75	4.02	0.83	1.88	0.97
L_2	19.70	18.07	15.62	7.66	3.04	2.95	0.97
	1.74	5.47	3.73	5.38	3.53		3.43
	23.28	21.54	16.08	12.34	5.96	3.43	
	1.91	4.40	1.78	1.18	1.14	2.13	2.67
	15.21	13.30	8.91	7.13	5.85	4.01	2.67

Table 3 に等塩素量曲線で特徴づけられる水塊の水量を示した。上段は隣り合う等塩素量曲線で囲まれる水量、下段はその累計、従って、最上段に示した塩素量以下の全ての水量を示している。この値を図示したものが、Fig. 19 である。縦方向に潮時を、横方向に湾奥から湾口までの水量を区切り、その内分けを各等塩素量毎に小区分して示してある。この図によると、湾奥から湾口までの湾全体(地理的に固定した水域)は、当然のことながら潮位に従って増減する。又、塩素量 19.04% 以下の水域(湾全体にほぼ等しい水域)も H_1 から L_1 の場合を除けば、潮位に従った水量変化を示している。しかし、湾奥部の塩素量 18.95% 以下の水域は L_1 から H_2 の場合を除いて、むしろ潮位とは逆に、干潮時の水量増

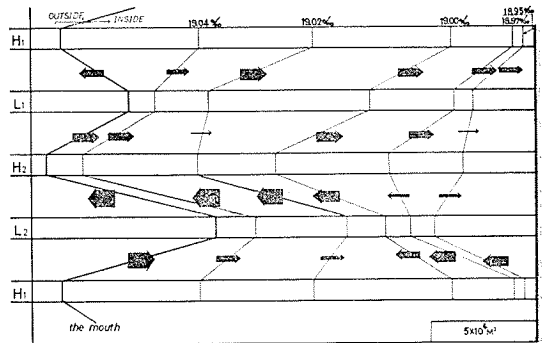


Fig. 19. Change in water volume segmented with isohaline, and assumed movements of the water in Moroiso Cove. (width of arrow in proportion to water volume).

諸磯湾における船艇の許容係留数の試算

加、満潮時の水量減少を示し、結果として湾口部の水域と逆相関の傾向がある。このような水量の変化のパターンをもたらす湾内の海水交流について以下のように考えた。

Fig. 20 に模式化して示すように、今、塩素量 $Cl\%$ 以下の湾奥水の水量を V (m^3)、塩素量 $Cl'\%$ ($Cl' > Cl$) 以下のほぼ湾全体に匹敵する水塊の水量を V' (m^3) とする。塩素量 $Cl'\%$ 以上で示される外海水を高塩水 (図中の黒三角)、塩素量 $Cl'\%$ と $Cl\%$ の間の水塊を中塩水 (黒丸)、塩素量 $Cl\%$ 以下の湾奥水を低塩水 (×) と呼ぶ。図中の黒矢印で連ねた模式図は、等塩素量曲線 Cl

$\%$ 、及び $Cl'\%$ で特徴づけられる湾内の水塊が、満潮1、干潮2、満潮3でどのような水量変化をしているかを示す。これは前述のように、湾口部における潮位に従った水量変化と湾奥部における潮位と逆相関の水量変化を描いている。

ここで、淡水の流入量を R (m^3) とし、 R は落潮時のみ湾内へ放出されるとする (白丸)。従って、半潮時に1回放出されるのであるから、 R は1時間当たりの淡水量に約12を掛けた値となる。更に、水量の増加は他の水塊からの一方的な流入 W (m^3) を意味し、減少は他への一方的な流出 U (m^3) を意味するものと仮定する。ふつ

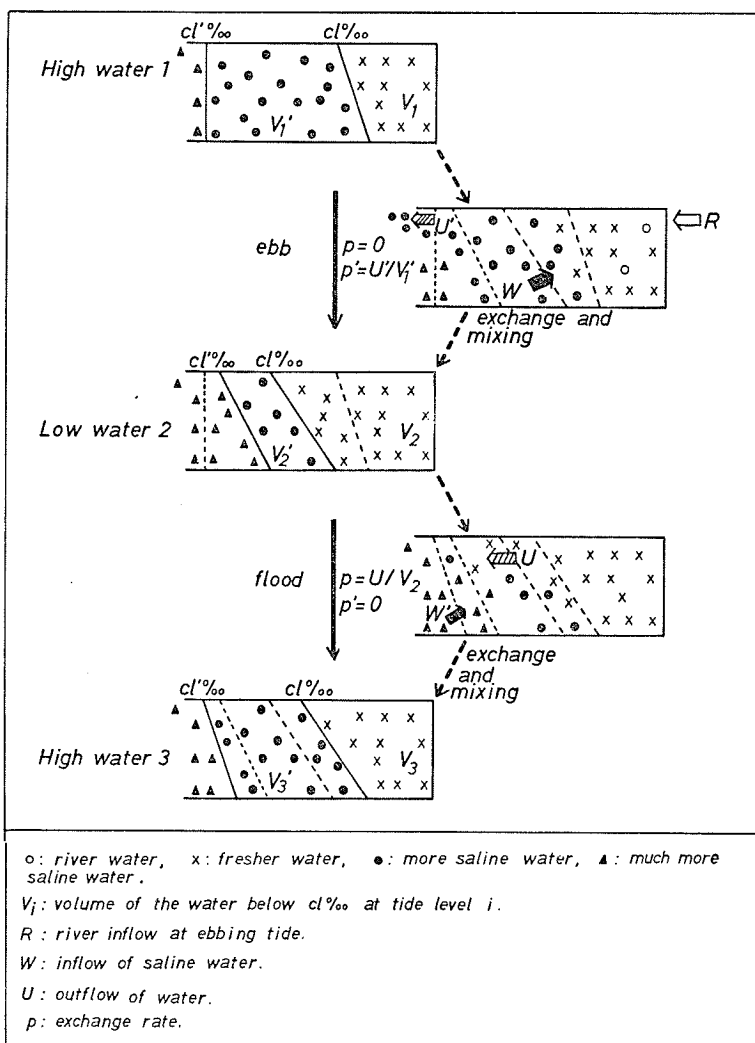


Fig. 20. Exchange of fresher, more saline, and much more saline water in Moroiso Cove.

う、水量の増加は他水塊への流出と、それを埋め合わせて余りある流入が生じた結果であると解釈するのが一般的であるが、交換率を過大評価しないために、以上のことを仮定した。従って、満潮1から干潮2に至る過程で、湾奥の低温水について水量連続の式、

$$V_2 - V_1 = W + R \quad \dots\dots(1)$$

同じく、 Cl' % 以下の水塊について、

$$V'_1 - V'_2 = U' - R \quad \dots\dots(2)$$

が成立する。また、塩素量の連続については、湾奥で中塩水の流入 W と淡水の流入 R が、等塩素量 Cl % を維持し、湾口部では高塩水が中塩水の流出 U' とそっくりそのまま交換することで、再び Cl' % の等塩素量曲線が形成されると考えた。続いて、干潮2から満潮3に至る時は、同様に水量連続の式、

$$V_2 - V_3 = U \quad \dots\dots(3)$$

及び、

$$V'_3 - V'_2 = W' \quad \dots\dots(4)$$

が成立し、塩素量の連続については湾奥では中塩水が低塩水 U と交換して Cl % が形成され、湾口部では、交換した低塩水 U と流入した高塩水 W' が Cl' % を形成するものと考えられる。

諸磯湾では淡水流量は $20 \sim 30(\text{m}^3/\text{hr})$ 、すなわち、 R は $0.02 \sim 0.04 \times 10^4(\text{m}^3)$ 程度であって、水量としては無視できる。そこで式 (1)、(2) は各々、

$$V_2 - V_1 \cong W \quad \dots\dots(5)$$

及び

$$V'_1 - V'_2 \cong U' \quad \dots\dots(6)$$

となる。

交換率を P とすると、 P は水量 V に対する流出量 U の割合で表わされる。

(3)~(6)式はいずれも水量の増減が、単純に流出入水量に等しいことを示す式である。これを用いて、各々の水域で潮時毎の流入、流出量を求め、前出の Fig. 19 に矢印で示した。矢印の幅は水量を、矢印の向きは、右方向が流入を、左方向が流出を示す。Fig. 19 の水量変化と流入、流出水量から湾内の交流状況の詳細を知ることができる。

3) 潮汐の繰り返しによる溶出毒物濃度の変化
ある荒天の後、風が始まり、以後風が継続する間は潮

汐による海水の交流交換が Fig. 19 と同じパターンを繰り返すとする。又、溶出毒物は次の潮汐によって再流入しないとする。この場合、塗付面積 $S(\text{m}^2)$ 、毒物の溶出率を $Q(\text{g}/\text{m}^2/\text{day})$ とし、 a を溶出相当日数 (day) とする。塩素量 19.04% 以下の水域について、溶出毒物濃度の変化を例示する (Fig. 21)。 H_1 時からの風を想定する。半潮時後には、 $1/4 \cdot S \cdot Q(\text{g})$ の毒物の溶出がある。次の半潮時に、新たに $1/4 \cdot S \cdot Q(\text{g})$ が加わる。ここまでは図に示すように流出がなく交換率 $P=0$ であるが、次の半潮時は $P=8.3/21.6$ 、従って残留率 $r=1-P=13.3/21.6$ である。毒物は新たに $1/4 \cdot S \cdot Q(\text{g})$ が加わると共に、一部が交換するため、残留する毒物量は $(a_0 + 1/4) \cdot S \cdot Q \cdot r(\text{g})$ となる。次の半潮時で新たに $1/4 \cdot S \cdot Q(\text{g})$ の毒物が加わる。ここで溶出相当日数 a とは、

残留毒物量 $= S \cdot Q \cdot a$ の式を満たすものと定義すれば、 a は数列である。

$n, (n-1/4), (n-1/2), (n-1/4)$ 日後の a を、各々、 $a_{1n}, a_{1n-1}, a_{1n-2}, a_{1n-3}$ と表示し、これを求めると、

$$a_{1n} = a_1 + \frac{a_0 - a_1}{1-r} \cdot (1-r^{n-1})$$

$$a_{1n-1} = a_{1n} - 1/4$$

$$a_{1n-2} = a_{1(n-1)} + 1/2$$

$$a_{1n-3} = a_{1(n-1)} + 1/4$$

である。 $n=1, 2, \dots\dots$ 、について a を求め Fig. 22 に示す。毒物量 $S \cdot Q \cdot a(\text{g})$ をその時の水量 V で割った値が、溶出毒物濃度である。これを、 Cl 19.04% 以下、19.00% 以下、及び 18.95% 以下の水域について求め Fig. 23 に図示した。

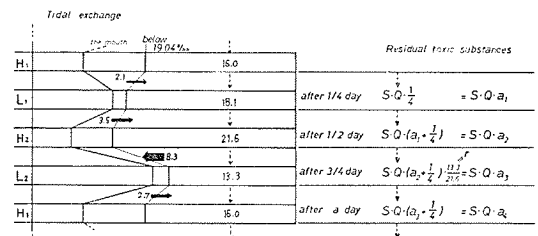


Fig. 21. Residual toxic substances on a day tidal cycle. (a case of waters below 19.04%)
S: the painted surface area (M²)

Q: time rate of toxic substances per surface area (g/m²/day)

a₁: days corresponding to the releasing periods of toxic substances at tide level i

r: residual rate

諸磯湾における船艇の許容係留数の試算

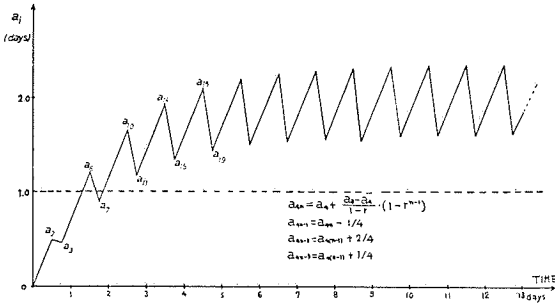


Fig. 22. a_i (days corresponding to the releasing periods of toxic substances at tide level i) in waters below Cl 19.04‰.

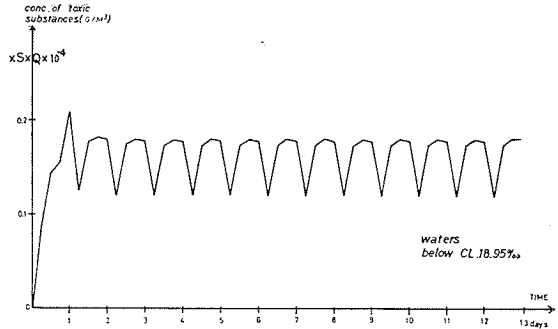


Fig. 23, c. Concentration of residual toxic substances on tidal cycles. Waters below Cl 18.95‰.

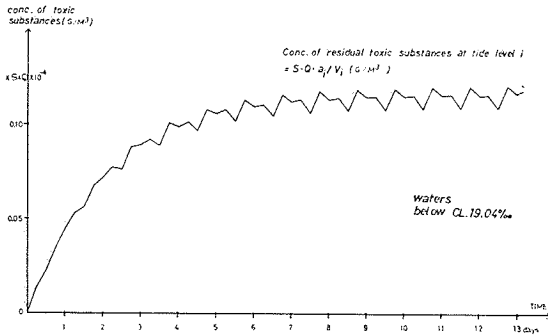


Fig. 23, a. Concentration of residual toxic substances on tidal cycles. Waters below Cl 19.04‰.

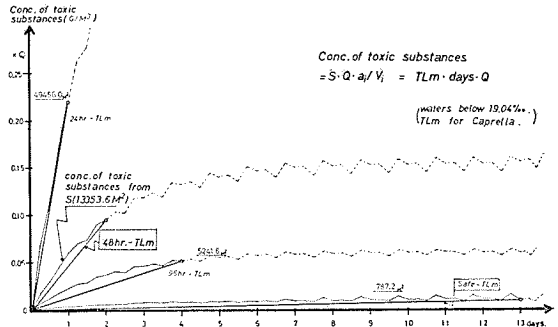


Fig. 24. Estimation of the permissible painted surface area. (calculation of conc. of toxic substances from $S(m^2)$ on tidal cycles equivalent to each TLm.)

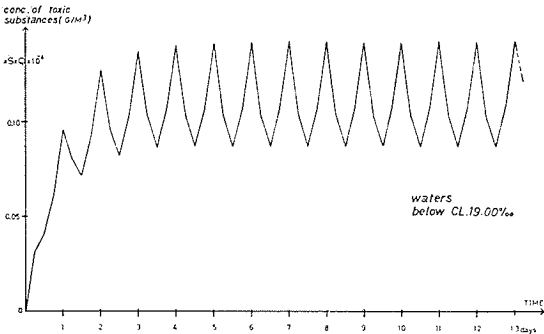


Fig. 23, b. Concentration of residual toxic substances on tidal cycles. Waters below Cl 19.00‰.

5. 諸磯湾における許容塗付面積, 又は許容係数の試算

船底塗料の TLm 値を Table 1 に得たが, これを用いて, 諸磯湾の許容塗付面積を試算する。例として, マルエラワレカラの48時 TLm 値を評価基準とし, Cl 19.04% 以下の水域について考えた時を示す。Fig. 24 に示す

ように, 48時 TLm 値は $0.048(m^2/m^3)$ であるから, 溶出率 $Q(g/m^2/day)$ として, 48時間後(2日後)には, $0.048 \times Q \times 2(g/m^3)$, すなわち, $0.096 \times Q(g/m^3)$ の濃度に, ほぼ直線的に達している。一方, Fig. 23, a より, 塗付面積 $S(m^2)$ から溶出する毒物濃度は2日後には, $0.0718 \times 10^{-4} \times S \times Q(g/m^3)$ となっている。従って48時 TLm に匹敵する塗付面積 S は,

$$0.096 \times Q = 0.0718 \times 10^{-4} \times S \times Q$$

として, $S=13353.6(m^2)$ を得る。換言すれば, この塗付面積は, マルエラワレカラを2日後に半数準斃死に至らしめるのに十分な面積である。従ってこの塗付面積はマルエラワレカラの48 TLm を基準とした場合の, 塩素量 19.04% 以下の水域における許容(限界)塗付面積とすることができる。安全 TLm を基準とした許容塗付面積を安全塗付面積と呼ぶことにすると, 安全塗付面積は Table 1 の安全 TLm と, Fig. 23 の9~13日後の毒物濃度の値を用いて計算したものである。諸磯湾におい

Table 4 Permissible limits of the painted surface area or number of yachts in each of waters of Moroiso Cove.

Permissible Surface area (permissible number of yachts)	nearly all waters below 19.04%			inner waters below 19.00%			inmost waters below 18.95%		
	test animals		Atherion	Caprella		Atherion	Caprella		Atherion
	Caprella	Leander		Leander	Leander				
24hr.-TLM	49400 (2779)	357400 (1745)	449600 (2139)	22800 (1249)	165200 (9127)	207900 (11466)	10500 (50)	76300 (4215)	96000 (532)
48hr.-TLM	13300 (734)	60900 (3264)	178100 (8729)	7500 (414)	34300 (1835)	99300 (5466)	5200 (267)	24100 (1331)	69600 (3845)
96hr.-TLM	5200 (287)	12000 (652)	60500 (4491)	3500 (198)	8500 (469)	56800 (3138)	2900 (150)	6700 (370)	44800 (2475)
Safe-TLM	705 (38)	1400 (77)	14000 (823)	600 (33)	1100 (60)	12000 (652)	500 (27)	900 (49)	9500 (524)

て風が継続する日数は高々9日(冬期),又は13日(夏期)だからである(三崎臨海実験所観測日誌,1967~1973年)。同様の計算で,各供試生物に対するTLMを評価基準として,各水域の許容塗付面積,及び安全塗付面積を求め,Table 4に示した。艇数への換算は1隻当たり,平均船底面積 18.1 m²を用いた。

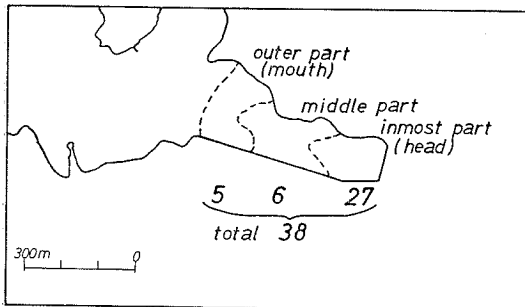


Fig. 25. Safety number of yachts and their arrangement in Moroiso Cove. (criterion: Safe-TLM for Caprella.)

なお,以上の計算は,湾内に生息する生物が風の開始と同時に被毒するものとして計算したものであるが,毒物濃度が定常状態となった時点で回遊してくる生物に対する許容塗付面積は,これより小さくなるであろう。

諸磯湾には1973年12月の時点で,湾奥に102隻,湾中部に20隻,湾口部に34隻のヨットの係留がみられたが,Table 4のマルエラワレカラを評価基準とした安全塗付面積から換算した許容艇数は湾奥部に27隻,湾中部以奥に33隻(すなわち湾中部に6隻),湾全体に38隻(すなわち湾口部に5隻)となった(Fig. 25)。

6. 考 察

1) 急性毒評価に用いられる供試生物として種々の生物が試みられている。マルエラワレカラを供試生物として用いるに当たっては,採集,取り扱いが簡単で,毒性に鋭敏であるという利点と共に,酸素不足に弱い,温度条

件にも鋭敏である等の問題点が挙げられる。

2) 塗膜面からの毒物の溶出率を,急性毒が問題となる短期間では,ほぼ一定であると考えたが,実際の海中でのスライムによる溶出率の変化,或いは有機毒物の溶出率の比較的早い低下等を考慮すべきである。

3) 溶出率,及び生物の被毒に対する水温の影響も考えられる。

4) 溶出毒物の海水中で分解が考えられる。

5) 海水交流に関し,水量の増減は一方向的な流入,流出によると仮定し,交流した水は完全混合するものとしたが,これはあくまで,仮定である。

6) 船底からの毒物溶出は,主に表層に限られるので,特に表層水の交流混合を調べることが必要である。

7) 風の継続期間中は,潮汐だけによる交流混合を繰り返すという定常状態を仮定した。

以上のような問題点,又は今後の課題が列挙される。いずれにしても,船底塗料は,単に船底のみならず,将来は海中構造物一般に,広く使用されるものであろう。従って,毒物が海中へ溶出しないような生物防汚塗料の開発が望まれる。しかし,船底塗料に溶出毒物が含まれる限り,各々の水域における許容塗付面積について考慮することが必要であろう。

謝 辞

本研究は修士論文として,東京大学三崎臨海実験所で1972年~1973年に行った。適切な指導を頂いた東京大学農学部水産学科佐伯有常博士,徳田広博士,桑原連博士,並びに暖かい援助を頂いた三崎臨海実験所職員の方々,また,投稿に際して,適切な校閲と指導を頂いた東京大学海洋研究所平野敏行教授に深謝する次第である。

文 献

- 1) DOUDOROFF, P. et al. (1951) Bio-assay methods for the evaluation of acute toxicity of industrial wastes to fish. *Sewage and Industrial Wastes*, 23, 1380-1397.
- 2) 船舶用軽金属委員会,表面処理委員会(1967) 有機毒物船底塗料について(上). *造船協会誌*, 451, 52-58.
- 3) 船舶用軽金属委員会,表面処理委員会(1967) 有機毒物船底塗料について(下). *造船協会誌*, 452, 119-130.
- 4) 佐野隆一,鈴木荘司(1961) 船底塗料の浸海試験. *色材*, 34, 284-290.
- 5) 馬渡静夫,北村晴男(1970) 船底防汚塗料に関する生物学的研究,1,各種防汚毒物の生物検定. *資源科学研究所彙報*, 73, 67-102.

諸磯湾における船艇の許容係留数の試算

- 6) Woods Hole Oceanographic Institution (1952) Marine fouling and its prevention: chapt. 14, United State Naval Institute, Anapolis, Marlyand, 241-263.
- 7) Wood Hole Oceanographic Institution (1952) Marine fouling and its prevention: chapt. 16, United State Naval Institute, Anapolis, Maryland, 277-301.
- 8) Wood Hole Oceanographic Institution (1952) Marine fouling and its prevention: chapt. 17, United State Naval Institute, Anapolis, Maryland. 302-312.
- 9) 田端健二 (1964) 魚類による産業廃水の急性毒評価法. 水処理技術, 5, 37-44.
- 10) 塗装便覧, 産業図書 K.K., 1657.
- 11) 高分子学会編 (1964) 高分子工学講座, 10, 地人書館.
- 12) 日本化学会編 (1964) 実験化学講座, 14, 地球化学, 丸善 K.K..
- 13) DOUDOROFF, P. and KATZ, M. (1958) Critical review of literature on the toxicity of industrial wastes and their components to fish. Sewage & Industrial Wastes, 25, 802-839.
- 14) 赤築敬一郎 (1964) 工場廃水の魚類に対する毒性に関する研究. 水大研報, 13, 1-53.
- 15) 須藤俊造, 相良順一郎, 小川良徳, 梅林 脩, 荒木公一 (1970) トリブチルティンオキサイド及びジクロロニトロサリチルアニリドの海産生物に対する影響. 水産増殖, 18, 163-176.
- 16) 渡辺競他 (1972) 海水交流改善による松島湾漁場の改良に関する研究. 宮城県水試研報, 6, 167-235.
- 17) 平野敏行, 杉浦健三 (1958) 河川流入のある小内湾の塩分分布について. 東海水研報, 22, 1-15.
- 18) KETCHUM, B.H. (1951) The exchange of fresh and salt waters in tidal estuaries. J. Marine Research, 10, 18-38.
- 19) PRICHARD, D.W. (1955) Estuarine circulation patterns. Am. Soc. Civil Eng., 81, 717-1-717-11.
- 20) 福尾義昭 (1965) 桜島旧瀬戸水道開削による海水の交流. 鹿児島湾調査報告, 水産庁調査研究部, 117-121.