

高知県室戸岬沖室戸海丘産キンメダイにおける 耳石中微量元素組成

堀井善弘¹、櫻井四郎²、世良耕一郎³、後藤祥子⁴、細川貴子⁴

¹東京都三宅支庁
100-1202 東京都三宅島三宅村伊豆 642

²大妻女子大学社会情報学部環境情報学専攻
206-8540 東京都多摩市唐木田 2-7-1

³岩手医科大学サイクロトロンセンター
020-0603 岩手県滝沢市留が森 348-58

⁴日本アイソトープ協会滝沢研究所
020-0603 岩手県滝沢市留が森 348-1

1 はじめに

本研究はキンメダイの耳石を種類、産地で分類して、微量元素分析を行い、元素組成や各元素濃度の差から回遊経路の可能性について検討するものである。

キンメダイ属にはキンメダイ *Beryx splendens*、ナンヨウキンメ *Beryx decadactylus*、フウセンキンメ *Beryx mollis* の3種が知られており、日本周辺海域ではこの3種すべてが水深200~800m前後の深海に生息している^{1,2}。そのうち、キンメダイは漁獲量が多く、水産上重要な魚種となっており、ナンヨウキンメとフウセンキンメも漁獲量自体は大きくないが、各地域で利用される水産資源となっている。日本周辺におけるキンメダイの主な操業海域は、八丈島周辺を含む伊豆諸島海域、四国沖、鹿児島から沖縄にかけての薩南海域となっており、各漁場間で700 km以上離れており、漁場間での回遊や遺伝的交流などはほとんど解明されていない。

硬骨魚類の耳石は、内耳に含まれる炭酸カルシウムが主成分となる組織で、アラゴナイト結晶内に生息環境水中の微量元素を取り込み、その元素を蓄積保存する特性がある。この微量元素を分析することで、対象となる魚類の生活履歴を推定する試みが多く報告されている^{3,4}。中でも耳石中のストロンチウム (Sr) は含有濃度が高く、環境水中のSr濃度、塩分、水温などの変化に応じてその濃度が変化する⁴ことから、多くの魚類の生活履歴や回遊履歴の研究で分析対象とされている。ニシン⁵やキンメダイ⁶では、耳石のSr/Ca比の分析結果から、成長に伴い、生息水深帯を徐々に深めていくという報告があるが、研究例は少ないのが現状である。

そこで、筆者らは硬骨魚類の耳石が生息環境の微量元素を取り組む特性に着目し、産地別にキンメダイ耳石を収集し、PIXE法により微量元素組成の結果から、元素組成や各元素濃度の差から海

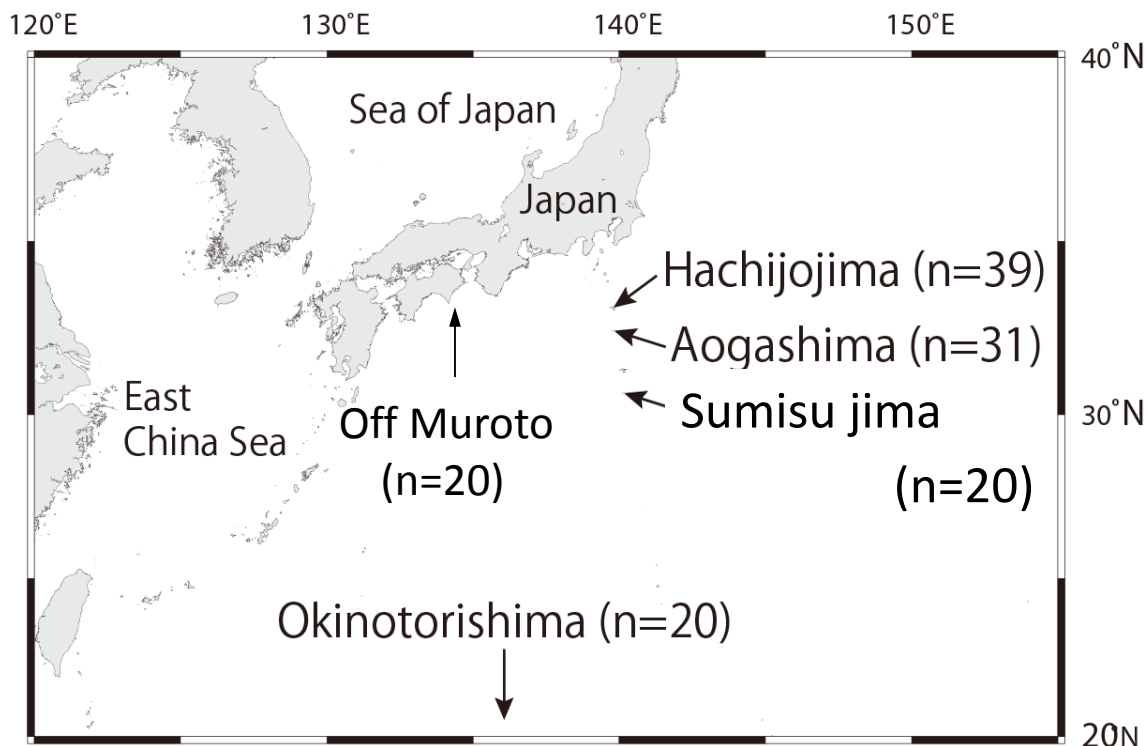


Fig.1 Sampling area and number of Alfonsino, *Beryx splendens*

域差の把握および回遊経路解明の可能性について検討している。本研究では、新たに高知県室戸岬沖漁場（室戸海丘）で漁獲されたキンメダイサンプルを新たに入手し、PIXE分析を実施するとともに、これまでに得られた海域別データと併せて比較し、地域差を把握することを目的とした。

2 測定方法

2.1 前処理

耳石試料は2014年11月に高知県室戸岬沖室戸海丘で高知県漁業協同組合所属漁船により漁獲された20個体についてPIXE分析を実施した。また、比較試料として、2008～2012年に八丈島周辺海域で漁獲された39個体、青ヶ島海域で漁獲された31個体、須美寿島海域で漁獲された20個体、沖ノ鳥島海域で漁獲された20個体の合計110個体の分析データを用いた（Fig.1）。キンメダイの耳石は、魚体測定後直ちに取り出し、蒸留水中で超音波洗浄30分3回実施し、恒温乾燥機により40℃で24時間以上乾燥させたものを分析用試料とした。

2.2 試料調製

キンメダイ110個体分の耳石サンプルの定量分析を、仁科記念サイクロトロンセンターでPIXE法にて行った。サンプルは粉末状にし、内部標準法と化学灰化法の両方法によって分析した⁷⁻⁹。

内部標準法は、全てのサンプルを均一にして、ハロゲンを分析するために使用した。この方法は、サンプルを液体窒素で乳鉢内において微粉末にし、均一化したものを 105°C で 15 時間乾燥させ、さらに均一化する。この場合パラジウムカーボン粉末を内部標準値として使用。最後に約 1 mg の細かい粉末をバックリングフィルムの上に置き、希釈したコロジオンで接着させて分析した。一方、化学灰化法では、サンプルは均一にした後に硝酸と共に圧力容器に入れ、乾燥して重量を計測した。その後マイクロウェーブで灰化し、3 分間加熱し完全に溶解。最後にサンプルの約 5 μ L をバックリングフィルムの上に垂らしてから乾燥させた。フッ素を含むハロゲンの大部分は、化学灰化の過程で消失するので、化学灰化する前に少量のサンプルを処理した。

2.3 γ 線スペクトロメトリー

γ 線スペクトロメトリーは世良らが開発した方法にて行った^{10,11}。

3 結果

高知県室戸海丘海域産キンメダイ耳石 20 個体分の耳石から、今回の分析により、キンメダイの耳石からナトリウム Na、マグネシウム Mg、アルミニウム Al、ケイ素 Si、硫黄 S、塩素 Cl、カルシウム Ca、鉄 Fe、銅 Cu、クロム Cr、亜鉛 Zn、臭素 Br、ストロンチウム Sr、合計 13 種類の元素が検出された。

室戸海丘海域産キンメダイ耳石中元素の検出率を Fig. 2 に示した。耳石の基質となる Ca の他に、S, Sr はすべての個体で検出された。また、検出率が 80% を超える元素は、Na、Si、Cl、Zn の 4 元素であった。

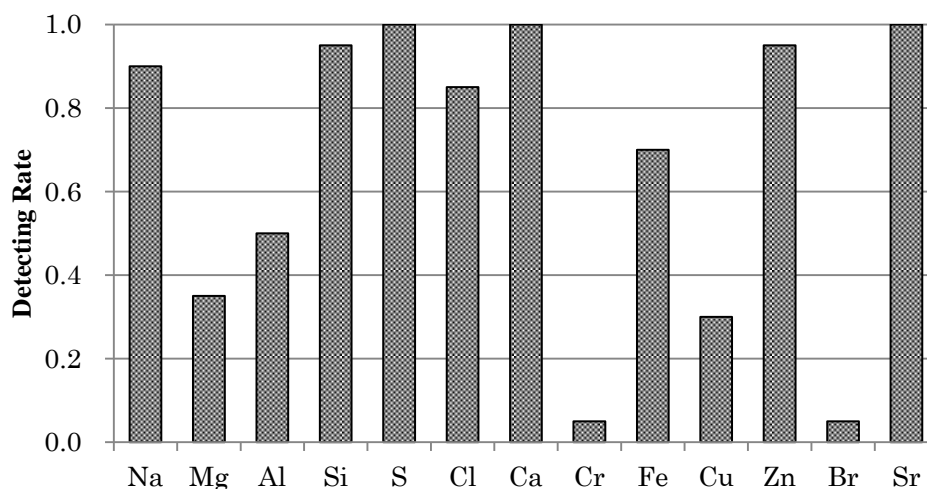


Fig. 2 Detecting rate of elements in otolith of Alfonsino caught around Muroto knoll off Muroto cape, Kochi Prefecture, by PIXE method

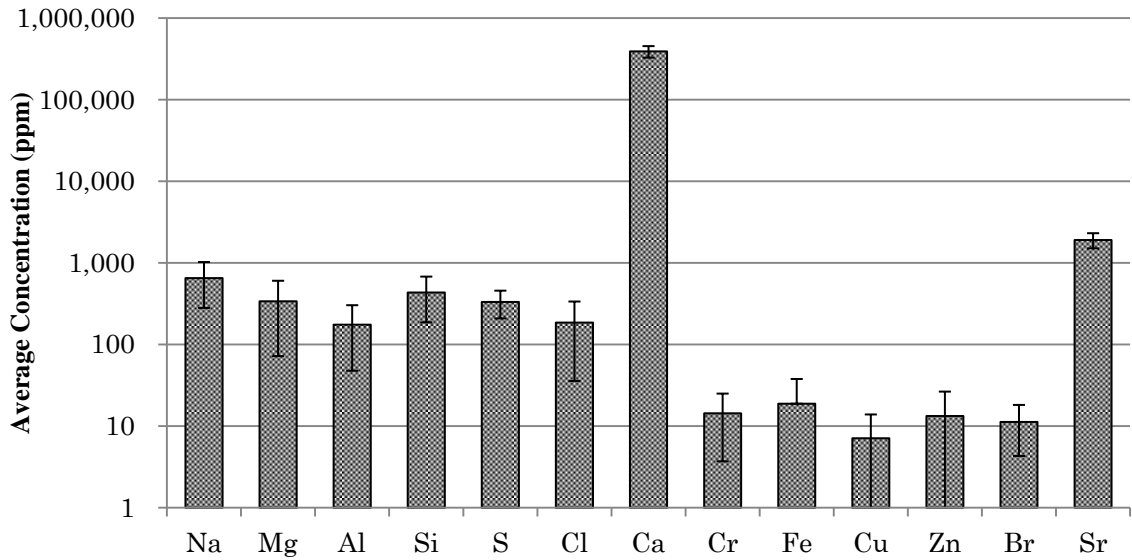


Fig. 3 Average concentrations of elements in otolith of Alfonsino caught around Muroto knoll off Muroto cape, Kochi prefecture, by PIXE method

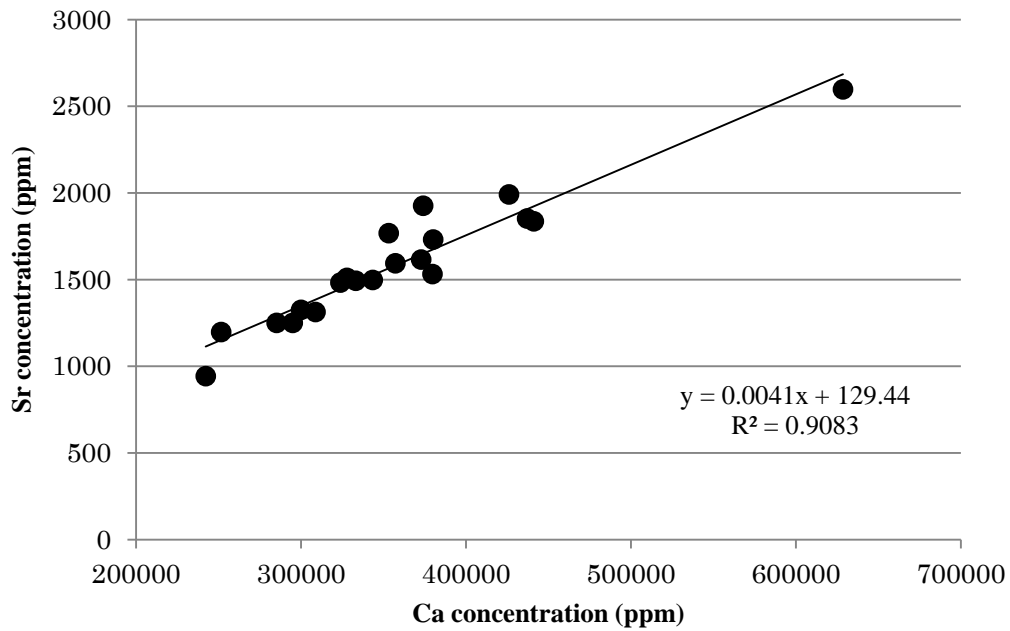


Fig.4 Relationship between Calcium concentration and Strontium concentration in otoliths of Alfonsino caught around Muroto knoll off Muroto cape, Kochi prefecture. Solid lines are regression lines and the regression equations are also shown.

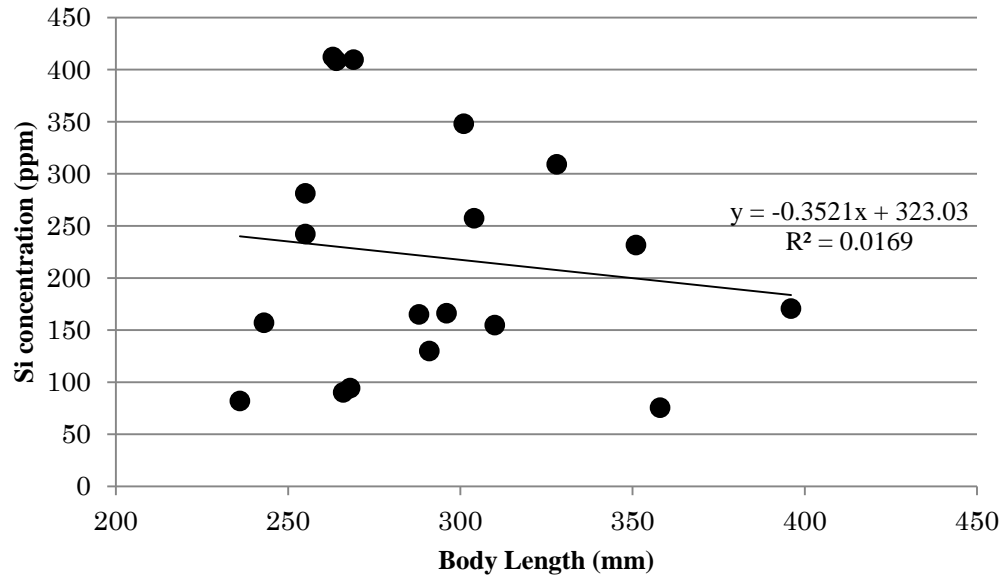


Fig.5 Relationship between body length and the concentration of Si in otolith of Alfonsino caught around Muroto knoll off Muroto cape, Kochi prefecture.

次に、室戸海丘海域産キンメダイ耳石中の元素濃度を Fig. 3 に示した。耳石の基質である Ca の含有量が最も多く、次いで Sr が多く、Na、Si、Mg、S の順となった。また、遷移元素である Fe、Cu、Cr、Zn の含有濃度は、いずれも 10ppm 前後を示した。

また、室戸海丘海域産のキンメダイ耳石中 Sr と Ca の含有量の関係を Fig.4 に示した。キンメダイ耳石中の両元素には正の相関が確認され、相関係数 $r = 0.9530$ 、決定係数 $r^2 = 0.9083$ と高い相関が確認された。

さらに、室戸海丘海域産キンメダイの尾又長と耳石中の Si の含有量の関係を Fig. 5 に示した。室戸海丘産キンメダイの体長と耳石中の Si 含有量との関係は一様に分布し、明瞭な相関は確認されなかった。

4 考察

これまでの分析結果^{12,13}より日本周辺海域でのキンメダイ耳石による PIXE 分析の結果、ナトリウム Na、マグネシウム Mg、アルミニウム Al、ケイ素 Si、リン P、硫黄 S、塩素 Cl、カリウム K、カルシウム Ca、チタン Ti、バナジウム V、クロム Cr、マンガン Mn、鉄 Fe、コバルト Co、ニッケル Ni、銅 Cu、亜鉛 Zn、ガリウム Ga、セレン Se、ヒ素 As、臭素 Br、ルビジウム Rb、ストロンチウム Sr、ジルコニウム Zr、ニオブ Nb、モリブデン Mo、水銀 Hg、鉛 Pb の 29 元素が確認されている。本研究では、室戸海丘海域産キンメダイ耳石から 13 元素を検出した一方で、P、K、Ti、V、Mn、Co、Ni、Ga、Se、As、Rb、Zr、Nb、Mo、Hg、Pb の 16 元素は検出されなかった。また、これまでの分析結果では Na、Si、Ca、Zn、Sr の 5 元素の検出率が高く、かつ含有量が高い傾向が確認されているが¹²⁾¹³⁾、室戸海丘海域産キンメダイも同様の傾向であった。

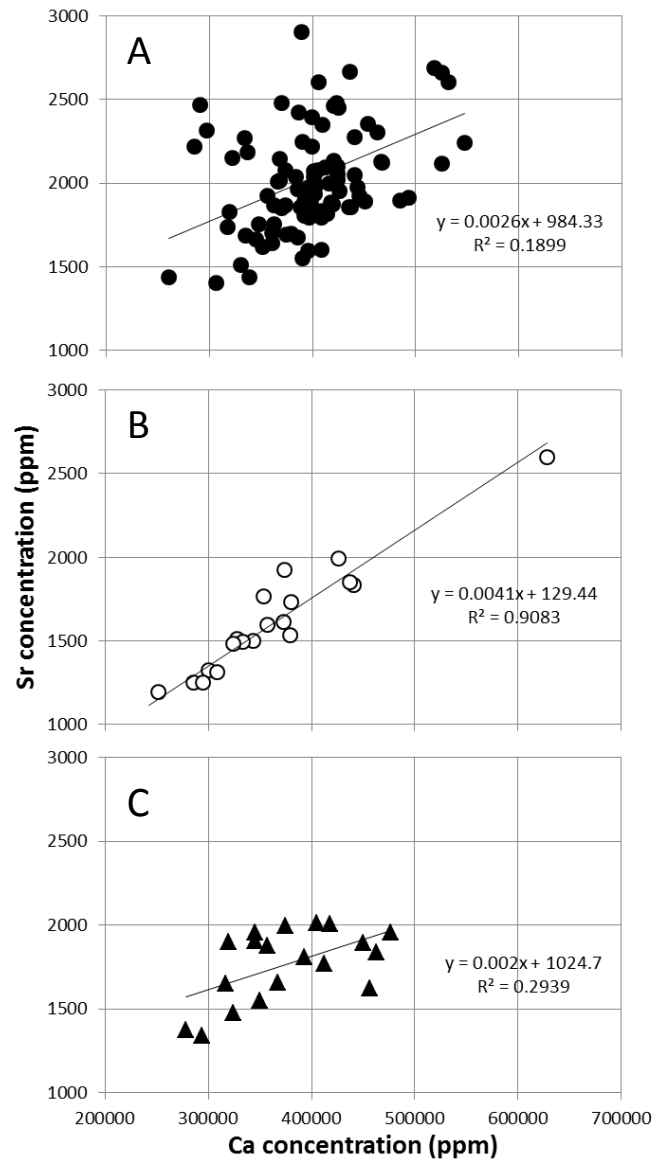


Fig.6 Relationships between Calcium concentration and Strontium concentration in otoliths of Alfonsino from Izu islands area (A), Muroto knoll area (B), Okinotorishima area (C) . Solid lines are regression lines and the regression equations are also shown.

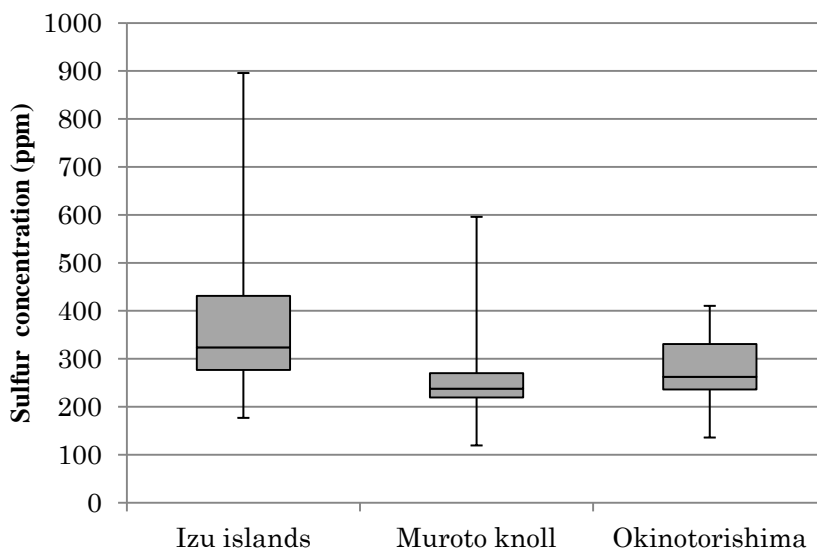


Fig.7 Box plots of sulfur concentration in otoliths of Alfonsino by area, Izu islands area, Muroto knoll and Okinotorishima.

また、本研究での分析結果に加え、伊豆諸島海域、室戸海丘海域、沖ノ鳥島周辺海域の各海域産キンメダイ耳石中の Ca と Sr の関係について Fig. 6 に示した。各海域での回帰直線の傾きは、沖ノ鳥島海域、伊豆諸島海域、室戸海丘海域の順で高くなった。この回帰直線の傾きは、Sr/Ca 比と対応していることから、室戸海丘海域産キンメダイ耳石の Sr/Ca 比が 2 産地の中で最も高く、次いで伊豆諸島海域産で高くなった。魚類耳石中の Sr/Ca 比と生息域の塩分環境についての研究が多く行われており^{3,4,14}、海水中の塩分が高くなるほど Sr 濃度も高くなり、生息域の塩分と Sr/Ca 比に正の相関があることが知られている。このことから、室戸海丘海域産キンメダイの生息環境は他海域産キンメダイよりも高塩分環境に生息していると考えられる。

また、耳石の主成分であるアラゴナイトは、無機実験によりアラゴナイトへの Sr 分配係数と温度との関係式が求められており、その分配係数は温度に対して負相関になることが得られている¹⁵⁻¹⁶。このことから、室戸海丘海域産キンメダイは伊豆諸島海域産のキンメダイよりも低水温環境に生息していると考えられる。

これまでの研究では伊豆諸島海域の八丈島周辺および須美寿島産キンメダイの分析結果から耳石中 Si 濃度が尾又長の大きい個体ほど高くなる傾向が報告されている^{12,13}。しかし、今回分析した室戸海丘産キンメダイでは、耳石中の Si 濃度と体長との相関が認められなかった。海洋中の Si 元素の分布が栄養塩型であること¹⁷、海山域での漁獲調査により大型個体が深所に分布する傾向があることから¹⁸、耳石中の Si 元素含有量も反映すると考えられるが、室戸海丘の場合、これまで分析に供試した伊豆諸島海域および沖ノ鳥島海域と比較して陸域に近い漁場であり、陸域からの Si 元素の供給が多い。また、黒潮流路の北側に属し、低水温域が水深の浅い地点にまで分布していることから、キンメダイの生息水深が海洋中の Si 減衰水深より浅いため、室戸海丘海域産のキンメダイの体長と耳石中 Si 含有量との相関が得られない可能性も考えられる。

また、海域ごとに耳石中の硫黄 (S) 含有量は、伊豆諸島海域産キンメダイで優位に高く、次いで沖ノ鳥島海域産となり、室戸海丘海域産が最も低い結果となった (Fig. 7)。伊豆諸島海域には活動的な海底火山が多く存在し、熱水噴出孔が確認されている海底火山も多い。また、伊豆諸島海域でのキンメダイ漁場はこのような海底火山の頂部付近に多く形成されている。一方で、室戸海丘は南海トラフの陸側斜面にあり、火山活動はないことが知られている。よって、伊豆諸島海域産キンメダイの耳石中 S 含有量は、海底火山に起因して有意に高いと考えられる。

5 まとめ

高知県室戸岬沖室戸海丘海域で漁獲されたキンメダイの耳石から PIXE 分析により 13 元素が検出された。これまでに得られた日本周辺の 3 海域 (伊豆諸島海域、室戸海丘海域、沖ノ鳥島海域) のキンメダイ耳石と比較して、Sr/Ca 比から室戸海丘海域産キンメダイが他の 2 海域よりも高塩分・低水温環境に生息していることが示唆された。また、耳石中の S 含有量が伊豆諸島海域産でも高く、海底火山の多い海域に生息するキンメダイに特徴づけられる結果となった。

謝辞

本研究を進めるにあたり、サンプルの処理について東京都島しょ農林水産総合センター八丈事業所の職員一同にご協力を頂いた。また、室戸海丘海域産キンメダイ試料を収集するに当たり、高知県室戸漁業指導所飯田 新氏にご尽力いただいた。記して謝意を表します。

参考文献

- 1) S. Busakhin, Systematics and distribution of the family Berycidae (Osteichthyes) in the world ocean, *J. Ichthyol.*, 22, 1-21 (1982).
- 2) A. Kotlyar, Age and growth of alfoncino, *Beryx splendens*, *J. Ichthyol.*, 27, 104-111 (1987).
- 3) S. Campana, Chemistry and composition of fish otoliths: pathways, mechanisms and applications, *Mar. Ecol. Prog. Ser.*, 188, 263-279 (1999).
- 4) 新井崇臣 (2002): 魚類の回遊履歴: 解析手法の現状と課題, *魚類学雑誌*, 49, 1-23.
- 5) R. Radtke, D. Townsend, S. Folsom and M. Morrison, Strontium: calcium ratios in larval herring otoliths as indicators of Environmental histories, *Env. Biol. Fish.*, 27, 51-61 (1990).
- 6) 秋元清治・小竹朱・新井崇臣 (2010): 耳石 Sr:Ca 比から推定するキンメダイの生息水深と生活史. 神奈川県水産技術センター
<http://www.agri-kanagawa.jp/suisoken/Sakana/Misc/Kinmedai/>
- 7) K. Sera and S. Futatsugawa, "Quantitative Analysis of Powdered Samples Composed of High-Z Elements" *Int'l Journal of PIXE*, Vol.8, No.2, 3 185-202 (1998).
- 8) J. Itoh, S. Futatsugawa, Y. Saitoh and K. Sera, "Application of a Powdered-Internal-Standard Method to Plant and Seaweed samples" *Int'l Journal of PIXE*, Vol.15, No.1&2, pp.27-39(2005).
- 9) Futatsugawa, S., Hatakeyama, S., Saitou, Y. and Sera, K. "Present Status of NMCC and Sample Preparation Method of Bio-Samples." *Int'l Journal of PIXE* Vol. 3- 4, 319-328 (1993)
- 10) K. Sera, K. Terasaki, S. Muraio, S. Futatsugawa and Y. Saitoh, "A Three-detector Measuring System Using a Pure-Ge Detector," *Int'l Journal of PIXE*, Vol.13, No.1, 2 23-35 (2003).

- 11) K. Sera and S. Futatsugawa, “Spectrum Analysis Taking Account of the Tail, Escape Functions and Sub-lines (SAPIX version 4),” *Int'l Journal of PIXE*, Vol.10, No.3, 4 101-114 (2000).
- 12) 堀井善弘、櫻井四郎、蔭山江里、世良耕一郎、後藤祥子、高橋千衣子(2014): 20.日本近海産キンメダイ耳石に含まれる微量元素分析, NMCC 共同利用研究成果報文集, 20, 211-218.
- 13) 堀井善弘、櫻井四郎、伊原希実、世良耕一郎、後藤祥子、高橋千衣子 (2015) : 伊豆諸島須美寿島産キンメダイ耳石に含まれる微量元素分析, NMCC 共同利用研究成果報文集, 21, 232-240.
- 14) R. Kimura, Y. Ozeki and H. Kubota, Up-estuary dispersal of young-of-the-year bay anchovy *Anchoa mitchilli* in the Chesapeake Bay: inferences from microprobe analysis of strontium in otoliths. *Marine Ecology Progress Series*, Vol. 208, 217-227 , (2000)
- 15) D. Kinsman and H. Holland, The coprecipitation of strontium with CaCO_3 IV. The coprecipitation of Sr^{2+} with aragonite between 16 and 96°C *Geochemi. Cosmochim. Acta*, Vol. 33, 1-17 (1969).
- 16) M. Dietzel, N. Gussone and A. Eisenhouer, Co-precipitation of Sr^{2+} and Ba^{2+} with aragonite by membrane diffusion of CO_2 between 10 and 50°C, *Chem. Geol.* Vol. 203, 139-151 (2004).
- 17) Y.Nozaki, Elemental distribution overview. In *Encyclopedia of Ocean Sciences*, Vol. 2, J. Steele, S. Thorpe and K. K. Turekian, eds., p.840, Academic Press, London, (2001).
- 18) P. Lehodey, P. Marchal, R. Grandperrin, Modelling the distribution of alfonso, *Beryx splendens*, over the seamounts of New Caledonia, *Fishery Bulletin*, Vol. 92, p.748-759 (1994)

PIXE analysis of trace elements in otoliths of
the alfonsino, *Beryx splendens*, in waters of
Muroto knoll off Muroto cape, Kochi prefecture

Y. Horii¹, S. Sakurai², K. Sera³, S. Goto⁴ and T. Hosokawa⁴

¹Miyake island Branch Office, Tokyo Metropolitan Government
642 Izu, Miyakejima, Tokyo 100-1201, Japan

²Department of Environment Science, School of Information Studies
Otsuma Women's University
2-7-1 Karakida, Tama, Tokyo 206-8540, Japan

³Cyclotron Research Center, Iwate Medical University
348-58 Tomegamori, Takizawa, Iwate 020-0603, Japan

⁴Takizawa Institute, Japan Radioisotope Association
348-1 Tomegamori, Takizawa, Iwate 020-0603, Japan

Abstract

This study suggests the behavior ecological study of the alfonsino, *Beryx splendens*, by analysis of trace elements in otoliths. We analyzed otoliths extracted twenty individuals of the alfonsino in the water of Muroto knoll off Muroto cape, Kochi prefecture, by PIXE method. Thirteen elements were detected in otoliths of the alfonsino, three elements, S, Ca and Sr, were detected from all sample. Sr/Ca ratio of otoliths from Muroto knoll areas was higher than those from Izu islands and Okinotorishima areas. This result suggests that the alfonsino from Muroto knoll areas have inhabited in higher salinity and lower water temperature area than those from Izu islands and Okinotorishima areas. Sulfur concentration of otoliths from Izu islands area was higher than those from another area. This result suggests that sulfur element are introduced into otoliths by resulting that alfonsino has lived in the waters of volcanic zone.