

## 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

堀井善弘<sup>1</sup>、櫻井四郎<sup>2</sup>、伊原希実<sup>2</sup>、世良耕一郎<sup>3</sup>、後藤祥子<sup>4</sup>、高橋千衣子<sup>4</sup>

<sup>1</sup> 東京都三宅支庁

100-1202 東京都三宅島三宅村伊豆 642

<sup>2</sup> 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

<sup>3</sup> 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

<sup>4</sup> 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<sup>1,2</sup>。そのうち、キンメダイは主に太平洋南岸での漁獲高が多く、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限られ、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。

一般的に、硬骨魚類の回遊履歴を推定するためには、生息している海洋環境の微量元素を炭酸カルシウムのアラゴナイト結晶内に取り込み生涯にわたって蓄積依存される性質がある耳石における微量元素の分析が、有効的であると考えられる<sup>3,4</sup>。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<sup>4</sup>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<sup>5</sup>やキンメダイ<sup>6</sup>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ものの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、伊豆諸島須美寿島の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 2013 年 9 月に伊豆諸島須美寿島周辺海域で八丈島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キンメダイ 39 個体、青ヶ島海域で漁獲された 31 個体、沖ノ鳥島海域で漁獲された 20 個体の合計 90 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。

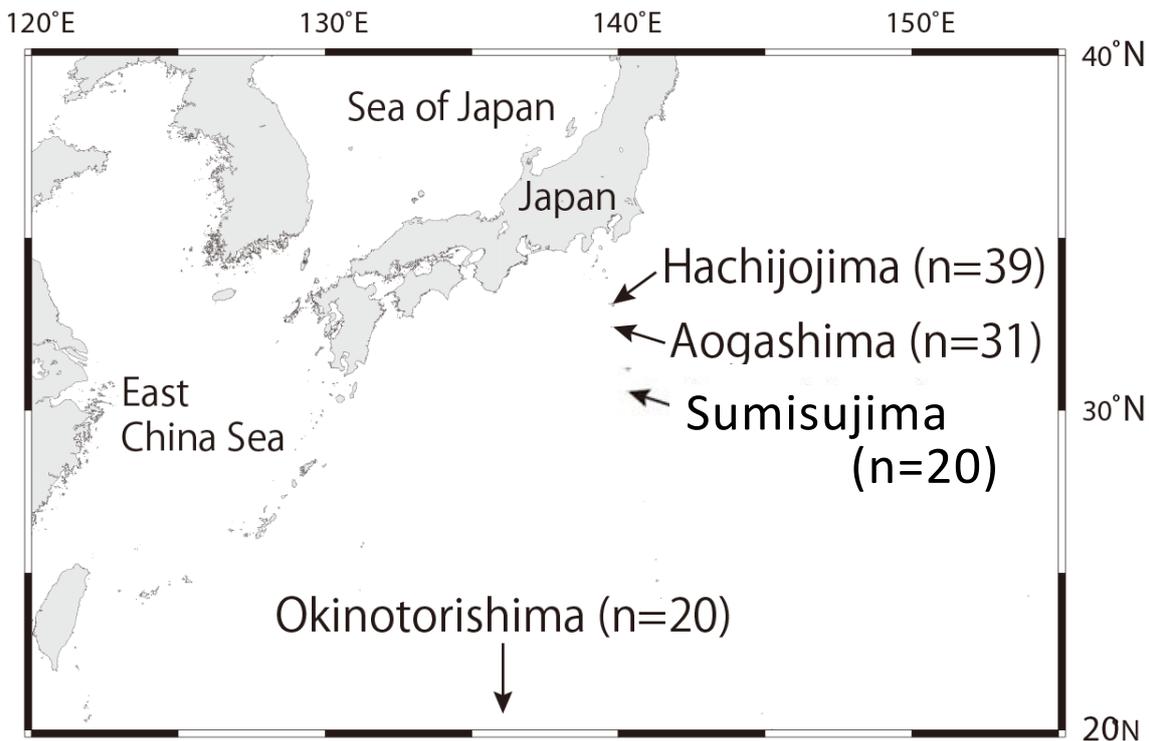


Fig.1 Sampling area and number of Alfonsino, *Beryx splendens*

### 2.2 試料調製

キンメダイ 90 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 法で行った。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<sup>7-9</sup>。内部標準法は、全てのサンプルを均一にして、ハロゲン分析のために使用した。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℃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 1mg 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  $\mu\text{L}$  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 $\gamma$ 線スペクトロメトリー

$\gamma$ 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<sup>10,11</sup>。

## 3 結果

須美寿島産キンメダイ耳石 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、チタン Ti、バナジウム V、鉄 Fe、銅 Cu、クロム Cr、亜鉛 Zn、臭素 Br、ルビジウム Rb、ストロンチウム Sr、水銀 Hg、鉛 Pb、ニオブ Nb、ジルコニウム Zr、合計 21 種類の元素が検出された。

キンメダイ耳石中元素の海域別検出率を Fig. 2 に示した。耳石の基質となる Ca の他に、Na、Mg、Si、S、Fe、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、Al、Cl、Zn の 2 元素であった。

次に、須美寿島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 10 ppm 前後を示した。

また、須美寿島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  $r = 0.5846$ 、決定係数  $r^2 = 0.3434$  と比較的高い相関が確認された。

さらに、須美寿島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。須美寿島産キンメダイの体長と耳石中の Si 含有量は、相関係数  $r = 0.2821$ 、決定係数  $r^2 = 0.0796$  と低い相関関係となったが、体長が大きいほど Si 含有量が高くなる傾向が確認された。

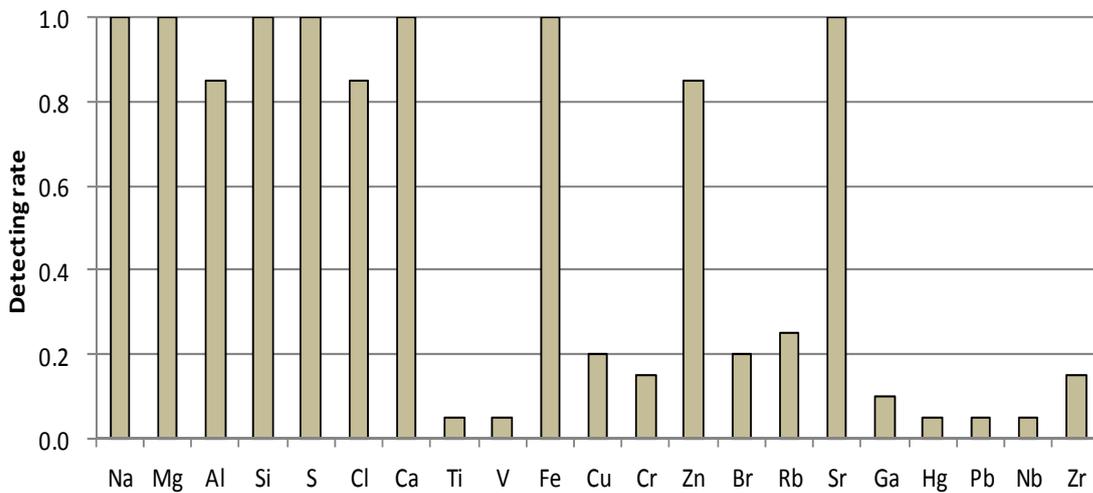


Fig. 2 Detecting rate of elements in otolith of Alfonsino caught around Sumisu-jima, south of Izu islands area by PIXE method

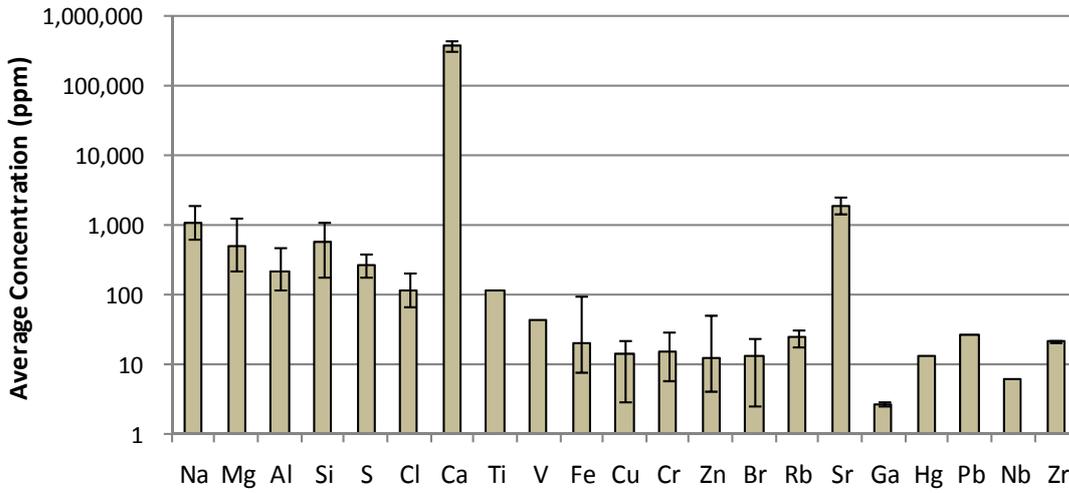


Fig. 3 Average concentrations of elements in otolith of Alfonsino caught around Smith island, south of Izu islands area by PIXE method

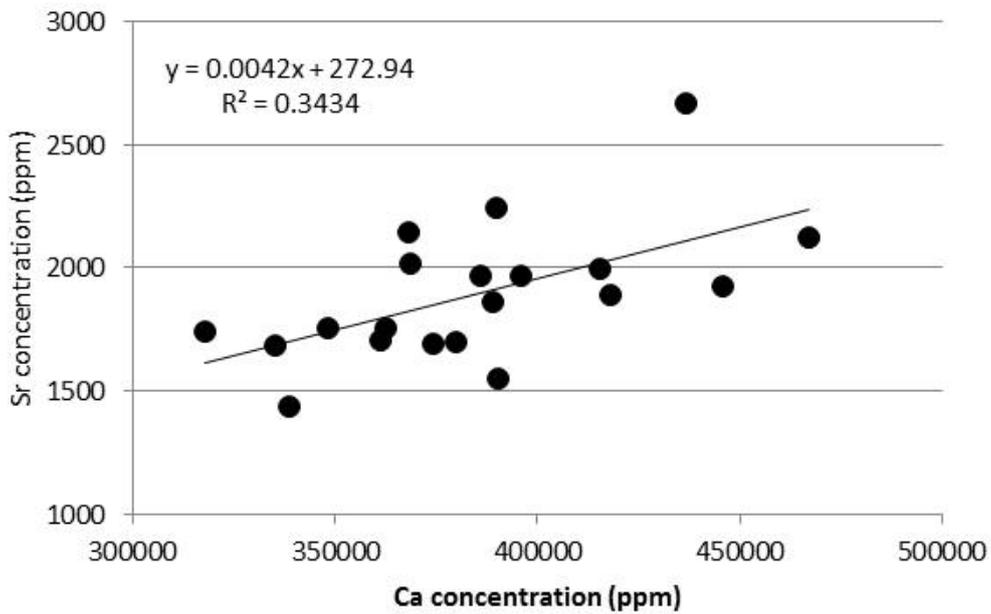


Fig.4 Relationship between Calcium concentration and Strontium concentration in otoliths of Alfonsino caught around Sumisujima, south of Izu islands. Solid lines are regression lines and the regression equations are also shown.

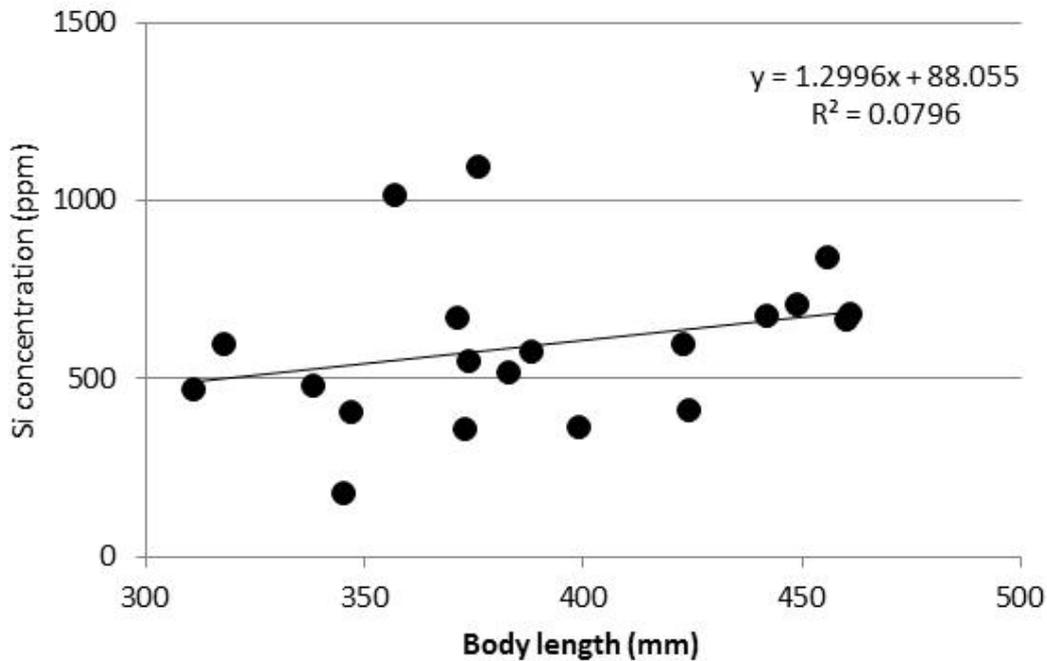


Fig.5 Relationship between body length and the concentration of Si in otolith of Alfonsino caught around Sumisujima, south of Izu islands.

#### 4 考察

これまでの分析結果<sup>12</sup>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、須美寿島産キンメダイ耳石から 21 元素を検出した一方で、P、K、Co、Ni、Se、As、Mo、Hg の 8 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<sup>12</sup>、須美寿島産キンメダイではこれら 5 元素に加えて Mg で同様の傾向が確認され、須美寿島産キンメダイに特有の傾向であると考えられる。

また、本研究での分析結果に加え、八丈島周辺海域、青ヶ島周辺海域、沖ノ島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、須美寿島周辺海域、青ヶ島周辺海域、八丈島周辺海域、青ヶ島周辺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、須美寿島周辺海域産キンメダイ耳石の Sr/Ca 比が 4 産地の中で最も高く、次いでほぼ同じレベルで青ヶ島周辺海域産が高くなった。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<sup>3,4,13</sup>、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、須美寿島周辺海域産および青ヶ島周辺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。その一方で、これまでに得られた知見<sup>12</sup>と同様に八丈島周辺海域産と沖ノ島島周辺海域産の Sr 濃度と Ca 濃度の相関係数の傾きに明瞭な差はないことから、八丈島周辺海域と沖ノ島島周辺海域のキンメダイの生息域における塩分環境はほぼ同じであることが示唆された。さらに、

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負相関になることが得られている<sup>14,15</sup>。このことから、須美寿島周辺海域産および青ヶ島周辺海域産キンメダイは八丈島周辺海域産と沖ノ鳥島周辺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。このように、Sr/Ca 比から須美寿島周辺海域産と青ヶ島周辺海域産では高塩分、低水温環境グループと八丈島周辺海域産と沖ノ鳥島周辺海域産の低塩分、高水温環境グループの2つに分けられる。八丈島周辺海域には黒潮流域に当たり、沖ノ鳥島周辺海域は黒潮の起源となる北赤道海流の流域に属している。一方で、須美寿島周辺海域及び青ヶ島周辺海域は黒潮と北赤道海流に挟まれた黒潮外側域に属している。この黒潮外側域は海水の蒸発によって、黒潮流域よりも塩分が高くなることが一般的に知られている。その一方で、北赤道海流の流域では水温は高いものの海水の蒸発よりも降水が多く塩分が低くなることが知られている。このようなことから、海洋の物理環境がキンメダイ耳石の元素組成に反映されていることが示唆された。

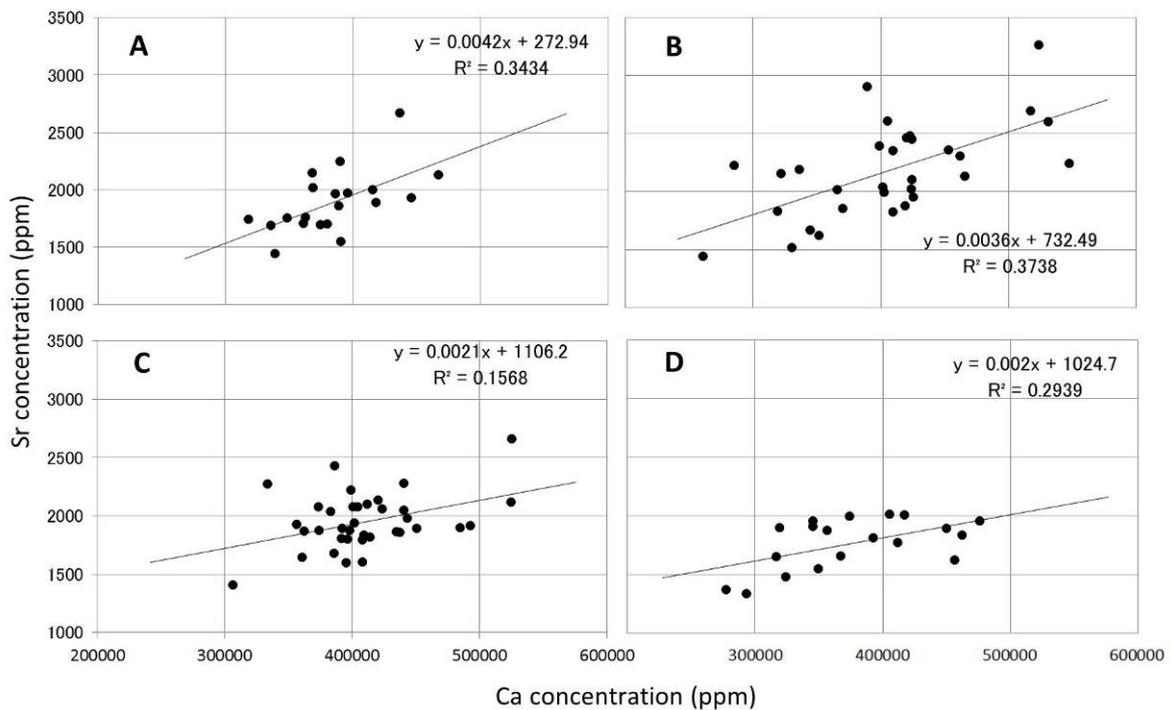


Fig.6 Relationships between Calcium concentration and Strontium concentration in otoliths of Alfonsino from Sumisujima area (A), Aogashima area (B), Hachijojima area (C) and Okinotorishima area (D). Solid lines are regression lines and the regression equations are also shown.

また、八丈島周辺海域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が<sup>12</sup>、須美寿島周辺海域産では相関係数が小さいものの同様の傾向が確認された。海洋中の Si 元素の分布は栄養塩型を示し、珪藻の殻形成のために水深約 200m までの有光層では珪藻類に吸収されるが、有光層以深では急激に増加することが知られている<sup>16</sup>。また、南太平洋ニューカレドニア海域では、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り、成長に伴いキンメダイが深所に移動することが推定されている<sup>17</sup>。よって、須美寿島周辺海域のキンメダイも

八丈島周辺海域産と同様に、耳石中微量元素の含有量の視点から成長に伴い深所に移動していることが示唆された。

## 5 まとめ

伊豆諸島須美寿島周辺海域で漁獲されたキンメダイの耳石から PIXE 分析により 21 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（八丈島周辺海域、青ヶ島周辺海域、沖ノ鳥島周辺海域）のキンメダイ耳石と比較して、Sr/Ca 比から、須美寿島周辺海域産と青ヶ島周辺海域産が含まれる高塩分・低水温環境グループと八丈島周辺海域産および沖ノ鳥島周辺海域産が含まれる低塩分・高水温グループに分けられる。これは、黒潮および北赤道海流に起因する海洋の物理環境が大きく影響していることが示唆された。また、須美寿島周辺海域産キンメダイ耳石の Si 濃度は体長と正の相関が認められ、八丈島周辺海域産と同じ結果が確認され、個体の成長に伴い、水深の深い生息域に移動することを支持する結果となった。

## 謝辞

本研究を進めるにあたり、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多大なるご協力を頂いた。また、須美寿島産試料を収集するに当たり、八丈島漁業協同組合の職員の皆様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. Murao, 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) 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)
- 14) D. Kinsman and H. Holland, The coprecipitation of cations with  $\text{CaCO}_3$  IV. The coprecipitation of  $\text{Sr}^{2+}$  with aragonite between 16 and 96°C. *Geochemi. Cosmochim. Acta*, Vol. 33, 1-17 (1969).
- 15) M. Dietzel, N. Gussone and A. Eisenhouer, Co-precipitation of  $\text{Sr}^{2+}$  and  $\text{Ba}^{2+}$  with aragonite by membrane diffusion of  $\text{CO}_2$  between 10 and 50°C, *Chem. Geol.* Vol. 203, 139-151 (2004).
- 16) 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).
- 17) 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 Sumisujima, Izu islands area

Y. Horii, S. Sakurai<sup>1</sup>, K. Ihara<sup>1</sup>, K. Sera<sup>2</sup>, S. Goto<sup>3</sup> and C. Takahashi<sup>3</sup>

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

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

<sup>2</sup>Cyclotron Research Center, Iwate Medical University  
348-58 Tomegamori, Takizawa, Iwate 020-0603, Japan

<sup>3</sup>Takizawa Laboratory, 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 Sumisujima, Izu islands area by PIXE method. Twenty one elements were detected in otoliths of the alfonsino, seven elements were detected from all sample. Sr/Ca ratio of otoliths from Sumisujima and Aogashima areas was higher than those from Hachijojima and Okinotorishima areas. This result suggests that the alfonsino from Sumisujima and Aogashima areas have inhabited in higher salinity and lower water temperature area than those from Hachijojima and Okinotorishima areas. There were positive correlation between the concentration of Si in otolith and body length in waters of Sumisujima in the same way as those in waters of Hachijojima. This result suggests that habitat areas of alfonsino has moved into deeper waters as alfonsino ages in waters of Sumisujima.