

令和元年6月4日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B) (特設分野研究)

研究期間：2016～2018

課題番号：16KT0028

研究課題名(和文) 高度な地球化学分析手法を用いた回遊魚類の生息域履歴推定法の確立

研究課題名(英文) Proxy development for fish migratory area using high-end geochemical technique

研究代表者

白井 厚太郎 (Shirai, Kotaro)

東京大学・大気海洋研究所・准教授

研究者番号：70463908

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,200,000円

研究成果の概要(和文)：ネオジウム同位体比による産地判別が可能かを検証することを目的として、ネオジウム同位体比が地理的な分布を示し、それが生体試料に反映されるかを検証するため、日本の様々な地点および中国からムラサキガイを採取し、その殻に含まれるネオジウム同位体比を分析した。その結果、ネオジウム同位体比は採取地点の地質に対応した地理的な勾配を示すことが明らかとなった。また、中国と日本では明確に異なる組成を示した。このことは、貝殻のネオジウム同位体比は採取地点の地質を強く反映し、教師データ無しの産地推定に有用な手法となることを意味している。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で開発したネオジウム同位体比を用いた海産物の産地判別手法は、教師データ無しで産地推定ができる新たな手法であり、原理的には全ての海産物に適用可能である。また、この手法は波及効果が極めて高い事も特徴である。本手法は生物による影響を受けないため、魚類・貝類・甲殻類などの水産物のみならず、動植物・昆虫など、そこで成長する全ての生物に原理的に応用可能である。つまり本研究の成果は食品のトレーサビリティのみならず、水産資源保護・生態系保全・農業管理など多様な分野に応用可能であり、食料循環研究で世界をリードする手法となると期待される。

研究成果の概要(英文)：Geographical traceability of marine bivalves is critical to guarantee their quality and safeguard the interest of both consumers and producers. The neodymium isotopic ratio ($^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$) of the coastal water mainly reflects the geology of its neighboring watershed, displaying the distinct and systematic variability at high level of geographical detail. For the first time, the present study investigated the utility and robustness of $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ archived in mytilid mussel shells for geographical traceability purposes. The distribution and variability of mussel shell $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ patterns were subsequently mapped along the Japanese and Chinese coastal waters. Neodymium isotopes of mussel shells record $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ variations among local regions and between the two countries, which are rather compatible with the ages and lithology of the continental bedrocks. These findings highlight the great potential of $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ for tracing the geographical origin of marine bivalves.

研究分野：地球化学

キーワード：ネオジウム同位体比 ストロンチウム同位体比 ニホンウナギ クロマグロ 産地判別 回遊 トレーサビリティ

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

持続可能な水産資源利用のためには科学的知見に基づいた適切な資源管理が必要不可欠であり、とりわけ資源の加入に貢献する集団がどの海域で生まれ、どのような回遊経路を経て再生産に至るのかを把握する事は管理方策を決定する上で非常に重要である。しかし、海水魚の外洋域での回遊生態に関しては、調査が困難な事からよくわかっていない魚種が多い。回遊行動や集団構造を把握するため、近年、耳石の微量元素・安定同位体組成を分析することで、個体レベルでの回遊経路や産卵集団を判別する手法が広く用いられるようになってきた。しかし、海洋魚類の耳石指標の応用は個体群判別に限られており、回遊経路の特定につながる指標は確立されていない。また淡水魚類の耳石では、ストロンチウム (Sr) 同位体比は生息域を特定できる有用な指標であるが、実用的に応用可能な場所は、狭い範囲で大きく Sr 同位体組成が変化する一部の淡水域に限られていた。

また、食料の持続可能性を考えたときに、トレーサビリティーの確保は重要な課題である。特に産地偽装の防止を目的としたトレーサビリティーのシステムを構築する際には産地判別手法が必要不可欠である。従来の産地判別法は、①遺伝子を用いた判別法、②ストロンチウム同位体比や酸素・水素同位体比を代表とする地理的な組成勾配を持つ元素・同位体比を用いた産地判別法、③さまざまな地域の化学・同位体組成の教師データベースを構築しそれを参照することによる産地判別法、などが主に用いられてきた。しかし海産物については、海域が連続しているため遺伝的な差違が小さい生物が多く①の手が使えないことが多い、陸域で用いられるストロンチウム同位体比や酸素・水素同位体比が均質であり②の手法が使えないことが多い、などの問題があった。また③の手法は教師データベースの構築を必要とするため、データベースに含まれない未知の由来の試料の判別は困難であり、データベースの構築に多大な労力と費用が必要となるため応用が限られる、という根本的な限界を有している。そのため、これらの問題を解決できる新たな海産物の産地判別手法の開発が望まれていた。

2. 研究の目的

本研究の最終的な目的は「回遊魚類の生息域履歴の推定法の開発」である。具体的には、脊椎骨のネオジウム (Nd)・鉛 (Pb)・ストロンチウム (Sr) 同位体組成、耳石の放射性炭素濃度、肉の有機汚染物質組成を分析する事で魚類の回遊履歴を推定する手法の確立を目指す。これらの化学組成は地球化学・環境化学の分野で広く分析されているが、分析化学の専門知識と高度な技術が必要であり、化学分析を専門としない研究者が分析を行う事は困難なため、我々の知る限り魚類生態学や水産学を目的とした応用例はほとんど無い。

しかし、この最終的な目的のためには、解決すべき課題が複数の段階で存在する。まず最初の段階として、これらの指標が海域において地理的な勾配をしめし、その組成の地理的な分布が生体試料に反映されていることを明らかにする必要がある。また、その取り込み経路が海水から直接取り込まれるのか、食物連鎖を経て食物経由で取り込まれるのかなどの変動メカニズムを明らかにする必要がある。しかしこのような基礎的な項目を検討するためには、動き回る魚類を研究対象としてしまうと、場所と組成の対応を検討することが困難になる。実際に、まずは生態が良くわかっているマアジを対象にしてネオジウム同位体比による生息域判別の手法を検討した結果、作業仮説とは逆の結果が出て解釈に困る状況になった。そこでまずは、その場で成長する貝類を対象に、これらの組成が地理的な勾配を示すかどうか、つまりネオジウム同位体比による産地判別が可能かを検証することを目的とし、その知見を基に魚類の回遊生態指標としての応用可能性を検討した。

3. 研究の方法

回遊指標としての有用性が期待される上述の化学・同位体組成について、まずは予備的な実験として様々な地域から採取された貝類および魚類の試料の分析を実施した。その結果、ネオジウム同位体比がその中でもっとも有用性が高いと見込まれたのがネオジウム同位体比であったため、まずはネオジウム同位体比を中心に研究を進めた。

まず、ネオジウム同位体比が地理的な分布を示し、それが生体試料に反映されるという仮説を検証するために、日本の様々な地点および中国からムラサキイガイを採取し、その殻に含まれるネオジウム同位体比を分析した。また、産地判別手法が重要となるアサリについても主要な産地から試料を入手し分析を行った。貝殻の表面を洗浄した後、濃硝酸に溶解した。本研究では多量の試料のネオジウム同位体比を分析する必要があったため、放射性ストロンチウムを効率的に分析するための前処理手法を応用することでネオジウム同位体比の前処理の効率化をはかった (Tazoe et al. 2016)。貝殻を溶解した溶液からイオンクロマトグラフィーによりネオジウムを単離した。単離したネオジウム溶液は適切な濃度に調整後に多重検出器型 ICP 質量分析法によりネオジウム同位体比を分析した。

また、予備的な実験として、高知・佐渡・宮古から採取されたマアジの脊椎骨、および日本各地から採取されたニホンウナギの脊椎骨の分析も同様の手法により実施した。

4. 研究成果

ムラサキイガイの殻の採取地点とネオジウム同位体比を図1に示す。図1に見られるように、ネオジウム同位体比は採取地点の地質に対応した地理的な勾配を示すことが明らかとなった。

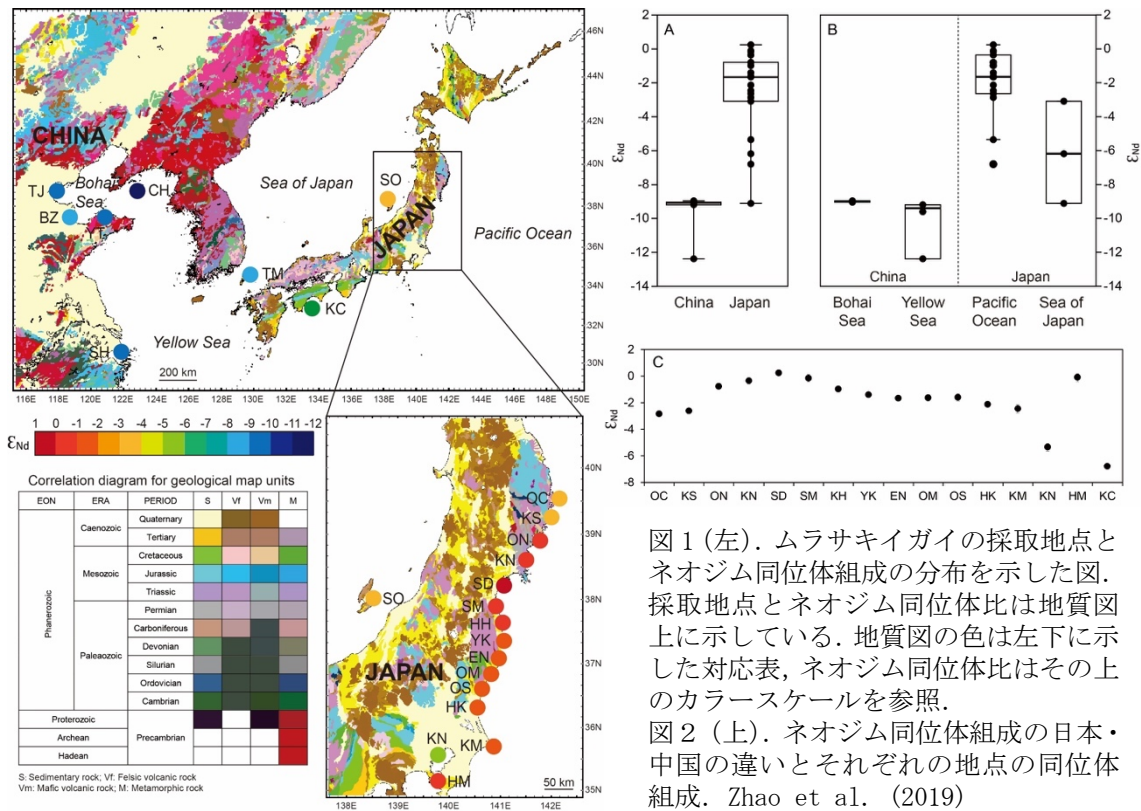


図1 (左). ムラサキイガイの採取地点とネオジウム同位体組成の分布を示した図. 採取地点とネオジウム同位体比は地質図上に示している. 地質図の色は左下に示した対応表, ネオジウム同位体比はその上のカラースケールを参照.
 図2 (上). ネオジウム同位体組成の日本・中国の違いとそれぞれの地点の同位体組成. Zhao et al. (2019)

また、中国と日本では明確に異なる組成を示した。また、アサリの殻のネオジウム同位体比もムラサキイガイと同様に、採取地点の地質を反映した組成を示した。しかし、同じ地点から採取されたアサリとムラサキイガイの殻の組成を比較した場合、両者は概ね類似した値を示すものの、ムラサキイガイの方がアサリよりも周囲の海水のネオジウム組成に若干近い値を示したことから、埋在性二枚貝であるアサリは付着性二枚貝であるムラサキイガイを比較して堆積物もしくは間隙水由来のネオジウムの影響を強く受ける可能性を示唆していると考えられる。これらの結果から、貝殻のネオジウム同位体比は採取地点の地質を強く反映することが示されたと言える。このことは、貝殻のネオジウム同位体比は教師データ無しの産地推定に有用な手法となることを意味している。

一方、予備的な実験としてマアジやニホンウナギの脊椎骨のネオジウム同位体比分析も実施した。マアジの脊椎骨のネオジウム同位体比の分析は貝殻試料に先立って実施したが、佐渡から採取した個体は高知から採取された個体よりも高い値を示した。研究開始当初の作業仮説は脊椎骨のネオジウム同位体比は周囲の海水組成を反映するという予想であり、日本海は太平洋よりも低い同位体組成を示すと予想していたが、実際に得られた結果は作業仮説とは反対のものであった。しかし、その後実施した貝類のネオジウム同位体比の結果は、沿岸域の二枚貝は海水よりもむしろ採取地点の地質を強く反映するという結果であり、二枚貝においても佐渡は高知よりも高い値を示していた。本研究で用いたマアジは体調から判断すると着底してあまり回遊せずに成長した個体だと推測され、生息域のネオジウムを取り込んでいるとすれば、佐渡が高知よりも高い値を示したことは生息域の地質と整合的であると解釈でき、ネオジウム同位体比が魚類の生息域の有用な指標となる可能性を示している。一方、ニホンウナギの脊椎骨の分析も試みたが、個体によってネオジウム濃度に差があることが明らかとなり、濃度が薄い個体については分析に必要な量を採取することが困難であることもわかった。これらの結果から、ネオジウム同位体比は魚類の回遊経路推定に有用と期待されるが、その応用には分析技術の向上などさらなる研究が必要であることが示された。

本研究で開発したネオジウム同位体比を用いた海産物の産地判別手法は、教師データ無しで産地推定ができる新たな手法であり、原理的には全ての海産物に適用可能である。また、この手法は波及効果が極めて高い事も特徴である。本手法は生物による影響を受けないため、魚類・貝類・甲殻類などの水産物のみならず、動植物・昆虫など、そこで成長する全ての生物に原理的に応用可能である。つまり本研究の成果は食品のトレーサビリティのみならず、水産資源保護・生態系保全・農業管理など多様な分野に応用可能であり、食料循環研究で世界をリードする手法となると期待される。

5. 主な発表論文等 [雑誌論文] (計 10 件)

- Tazoe, H., Obata, H., Yamagata, T., Nagai, H., & Yamada, M. (2016). Determination of strontium-90 from direct separation of yttrium-90 by solid phase extraction using DGA Resin for seawater monitoring. *Talanta*, 152, 219-227.
- Tazoe, H., Obata, H., Tomita, M., Namura, S., Nishioka, J., Yamagata, T., ... & Yamada, M. (2017). Novel method for low level Sr-90 activity detection in seawater by combining oxalate precipitation and chelating resin extraction. *Geochemical Journal*, 51(2), 193-197.
- Mizukawa, K., Hirai, Y., Sakakibara, H., Endo, S., Okuda, K., Takada, H., Murakami-Sugihara, N., Shirai, K. & Ogawa, H. (2017). Spatial distribution and temporal trend of anthropogenic organic compounds derived from the 2011 East Japan Earthquake. *Archives of environmental contamination and toxicology*, 73(2), 185-195.
- Amano, Y., Kuwahara, M., Takahashi, T., Shirai, K., Yamane, K., Kawakami, T., ... & Otake, T. (2018). Low-fidelity homing behaviour of Biwa salmon *Oncorhynchus* sp. landlocked in Lake Biwa as inferred from otolith elemental and Sr isotopic compositions. *Fisheries science*, 84(5), 799-813.
- Shiao, J. C., Shirai, K., Tanaka, K., Takahata, N., Sano, Y., Sung - Yun Hsiao, S., ... & Tseng, Y. C. (2018). Assimilation of nitrogen and carbon isotopes from fish diets to otoliths as measured by nanoscale secondary ion mass spectrometry. *Rapid Communications in Mass Spectrometry*, 32(15), 1250-1256.
- Shirai, K., Otake, T., Amano, Y., Kuroki, M., Ushikubo, T., Kita, N. T., ... & Valley, J. W. (2018). Temperature and depth distribution of Japanese eel eggs estimated using otolith oxygen stable isotopes. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 236, 373-383.
- Shirai, K., Koyama, F., Murakami-Sugihara, N., Nanjo, K., Higuchi, T., Kohno, H., ... & Sano, M. (2018). Reconstruction of the salinity history associated with movements of mangrove fishes using otolith oxygen isotopic analysis. *Marine Ecology Progress Series*, 593, 127-139.
- Shirai, K., Kubota, K., Murakami-Sugihara, N., Seike, K., Hakozaiki, M., & Tanabe, K. (2018). Stimpson's hard clam *Mercenaria stimpsoni*; A multi-decadal climate recorder for the northwest Pacific coast. *Marine environmental research*, 133, 49-56.
- Sakamoto, T., Komatsu, K., Shirai, K., Higuchi, T., Ishimura, T., Setou, T., ... & Kawabata, A. (2019). Combining microvolume isotope analysis and numerical simulation to reproduce fish migration history. *Methods in Ecology and Evolution*, 10(1), 59-69.
- Zhao, L., Tanaka, K., Tazoe, H., Iizuka, T., Kubota, K., Murakami-Sugihara, N., & Shirai, K. (2019). Determination of the geographical origin of marine mussels (*Mytilus* spp.) using $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ ratios. *Marine environmental research*.

〔学会発表〕（計 0 件）

〔図書〕（計 0 件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計 件）

○取得状況（計 0 件）

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：田副博文

ローマ字氏名：TAZOE Hirofumi

所属研究機関名：弘前大学

部局名：被ばく医療総合研究所

職名：助教

研究者番号（8桁）：60447381

研究分担者氏名：水川薫子

ローマ字氏名：MIZUKAWA Kaoruko

所属研究機関名：東京農工大学

部局名：農学研究科

職名：助教

研究者番号（8桁）：50636868

研究分担者氏名：北川貴士

ローマ字氏名：KITAGAWA Takashi

所属研究機関名：東京大学

部局名：大気海洋研究所

職名：准教授

研究者番号（8桁）：50431804

研究分担者氏名：横内一樹

ローマ字氏名：YOKOUCHI Kazuki

所属研究機関名：国立研究開発法人水産研究・教育機構

部局名：中央水産研究所

職名：研究員

研究者番号（8桁）：50723839

(2)研究協力者

研究協力者氏名：飯塚毅

ローマ字氏名：IIZUKA Tsuyoshi

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。