

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 5 月 25 日現在

機関番号：30110

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21590135

研究課題名（和文）安定同位体を用いた天然・養殖マグロの判別、化学物質の蓄積特性と地域差に関する研究

研究課題名（英文）Study of distinction of wild and farmed tuna using stable isotope, characteristic of bioaccumulation and spatial difference of environmental pollutants.

研究代表者

遠藤 哲也（ENDO TETSUYA）

北海道医療大学・薬学部・准教授

研究者番号：10133216

研究成果の概要（和文）：

日本各地で捕獲された天然クロマグロ、キハダマグロおよびビンナガマグロの赤身肉（筋肉）に含まれる安定同位体比（ $\delta^{15}\text{N}$ と $\delta^{13}\text{C}$ ）、水銀および有機塩素系化合物を分析した。これらの結果から、マグロ試料に含まれる安定同位体比、水銀および有機塩素系化合物汚染の地域差（南北差）を明らかにした。同時に日本各地で行われている養殖クロマグロについても同様の比較を行い、天然マグロの場合と比較した。さらに太平洋諸国で収集したキハダマグロでも同様な分析を行い、地域差をさらに検討した。水銀の蓄積特性を検討するため、雌雄で成長速度が大きく異なるアブラツノザメとホシザメを用いて、成長速度と水銀の蓄積度の関係、加齢の影響などを検討し、マグロの場合と比較した。

研究成果の概要（英文）：

We analyzed the stable isotope ratios of $\delta^{15}\text{N}$ and $\delta^{13}\text{C}$, mercury (Hg) and organohalogen compounds in the red meat (muscle) of the wild bluefin tuna caught at different area of Japan and the bluefin tuna farmed at different areas of Japan. We also analyzed those in yellowfin and albacore tuna caught at different area of Pacific Ocean, and investigated the spatial differences in $\delta^{15}\text{N}$ and $\delta^{13}\text{C}$, Hg and organohalogen compounds. Furthermore, we analyzed $\delta^{15}\text{N}$ and $\delta^{13}\text{C}$ and Hg in male and female of spiny dogfish and star-spotted dogfish, and investigated the effects of growth rate and aging on the Hg accumulation and distribution.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,400,000	720,000	3,120,000
2010年度	600,000	180,000	780,000
2011年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野：医歯薬学

科研費の分科・細目：薬学・環境系薬学

キーワード：マグロ、養殖、安定同位体、水銀、PCB

1. 研究開始当初の背景

安定同位体比は食物連鎖網の解析に利用されている。水銀や有機塩素系化合物は食物連鎖により生物濃縮される代表的な環境汚染物質で、食物連鎖の位置を示す $\delta^{15}\text{N}$ と正相関を示す。安定同位体比は地理的要因の影響も受けることから、野生動物の生息域の推定には、安定同位体比と残留性の高い PCBs や DDTs などの環境汚染物質の分析結果が用いられている。

マグロの養殖は世界各国で行なわれている。天然の大型魚はその成長に伴い大きな魚を捕食するが、養殖マグロの場合にはサバやアジなどの給餌された一定の大きさの魚を食べ続けており、自然界で起きている食物連鎖による環境汚染物質の生物濃縮とは様相が異なる。養殖は肥育を目的としていることから、養殖マグロは天然に比べて脂溶性汚染物質を高濃度に蓄積しており、多食による健康被害が憂慮されているが、我が国で行われている養殖マグロの場合には詳細な検討は行われていない。

脂肪の多いマグロのトロは赤身と比べて有機塩素系化合物濃度が高い。脂溶性の高い残留性化合物は脂肪の多い組織に分布することは有名である。一方申請者は水銀は脂肪の多い組織にはあまり蓄積しないことを報告しているが、その詳細は検討していない。

2. 研究の目的

我が国周辺で捕獲されている天然クロマグロ、キハダマグロ、ビンナガマグロに蓄積している水銀と有機塩素系化合物を測定する。さらに安定同位体比と脂肪含量も測定して、捕獲地域による比較を行う。

我が国の各地で行われている養殖クロマグロに蓄積している水銀と有機塩素系化合物を測定する。さらに安定同位体比と脂肪含量も測定し、養殖地域による比較を行う。養殖マグロに蓄積している環境汚染物質が主に餌由来なのか、あるいは海水由来なのかを検討する。またこれらの結果を天然マグロの場合と比較する。

環境汚染物質と安定同位体比による捕獲地域（養殖地域）の特定について検討する。

脂肪蓄積と水銀蓄積との関係を、肝臓に多くの脂肪を蓄積しているアブラツノザメとあまり脂肪を蓄積しないホシザメとで比較する。これらのサメの雌は雄より魚体が顕著に大きい（成長速度が速い）ので、水銀蓄積における性差と加齢の影響を検討する。

3 研究の方法

天然のクロマグロ、キハダマグロ、ビンナガマグロおよび養殖クロマグロは日本各地の小売店から鮪種と産地などの表示が信用できるものを購入した。和歌山県では近接し

た2カ所で別々の業者がクロマグロの養殖を行っているが、給餌する魚の種類と産地が異なるのでIとIIとに分類して調査した。さらに天然クロマグロは台湾(台北)から、天然キハダマグロは太平洋の諸国からも購入した。アブラツノザメとホシザメの筋肉と肝臓は青森市のサメ専門店から購入した。

総水銀は湿式分解後、還元気化法で分析した。メチル水銀と PCBs などの有機塩素系化合物は GC-ECD にて分析した。安定同位体比 ($\delta^{15}\text{N}$ と $\delta^{13}\text{C}$) の分析は京都大学生態学研究所の共同利用施設にて分析した。

4. 研究成果

天然クロマグロの赤身中の水銀濃度は南の地域で捕獲されたものほど高い傾向を示し、一方有機塩素系化合物である PCBs、*p,p'*-DDE および *trans-nonachlor* は低い傾向を示した(図1)。しかし天然由来の 3,3',4,4',5,5'-heptachloro-1-2'-bipyrrrole (Q1) には一定の地域差が認められなかった。HEL は南の地域で $0.94 \pm 1.39\%$ 、北の地域では $1.39 \pm 1.19\%$ で、北の地域ほどやや高い傾向が認められた。これは海水温を反映した結果と考えられる。結果を示さないが、天然のキハダマグロとビンナガマグロの場合でも総水銀、有機塩素系化合物および HEL の分析結果は天然マグロと同じ傾向を示した。しかし、いずれの分析値もクロマグロの場合より低値であった。

天然クロマグロ、キハダマグロとビンナガマグロの安定同位体比の結果を図2と図3にそれぞれ示す。クロマグロの場合では北の地域ほど $\delta^{15}\text{N}$ が低く、一方キハダマグロとビンナガマグロでは高い値を示した。一般に $\delta^{15}\text{N}$ は高緯度で捕獲された魚ほど高い値を示すことが知られている。クロマグロの場合に認められた予想外の傾向は、大きな南北の回遊中に餌が変化したことが原因と考えられる。

沖縄、鹿児島、高知、長崎、和歌山 (I と II) 及び高知で養殖したマグロの赤身とトロの総水銀濃度と HEL を図4に示す。総水銀濃度は和歌山と三重産を除くと南の地域で養殖したものほど高い傾向が認められた。この傾向は天然クロマグロ(図1)や歯クジラ(Endo et al., 2003)でも認められたものである。和歌山 (II) の水銀濃度が顕著に高値を示し、近接の和歌山 (I) より高かった。この原因は餌に含まれている水銀濃度の違いによると思われる。

赤身の脂肪量 (HEL) は和歌山と三重産を除くと北の地域ほど高く、これは天然マグロの場合と同じく海水温を反映した結果と思われる。トロの HEL は赤身に比べて極めて高く、トロの場合では地域差が認められなかった。赤身の HEL は天然クロマグロに比べて顕著に高く、天然との識別が可能と思われる。

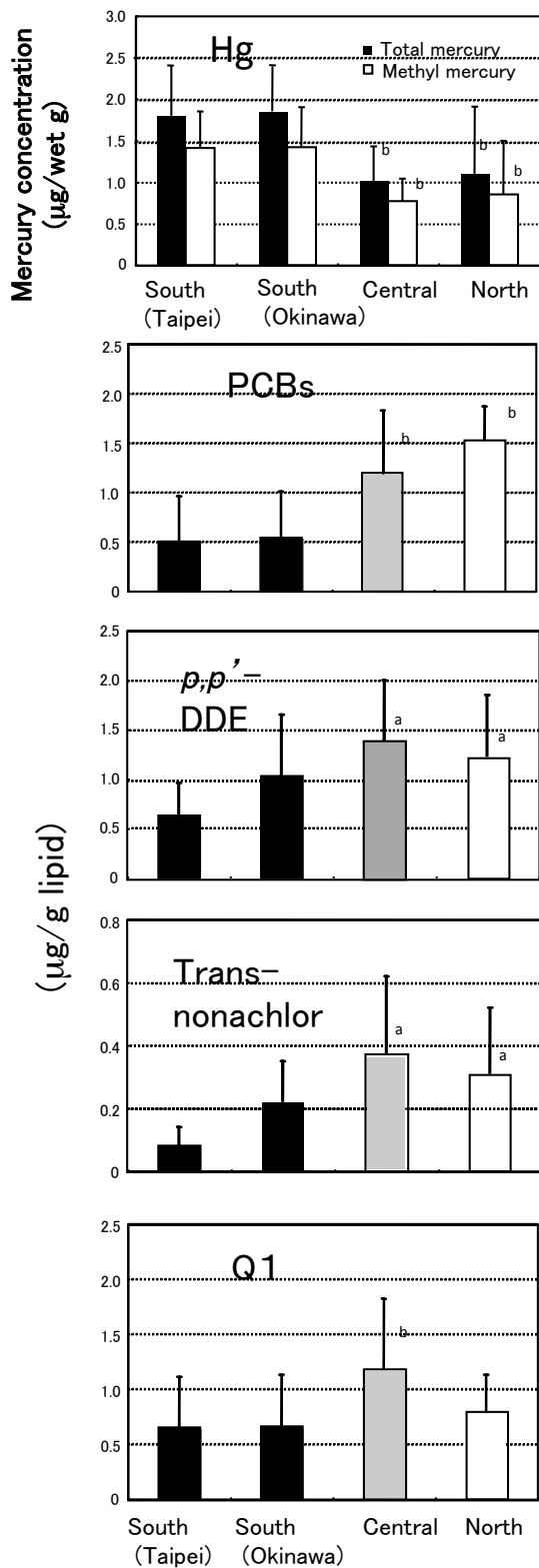


図1. 天然クロマグロに蓄積している水銀と有機塩素系化合物の地域差
^asignificantly different from Taipei, ^bsignificantly

different from southern (Okinawa), central and northern regions.

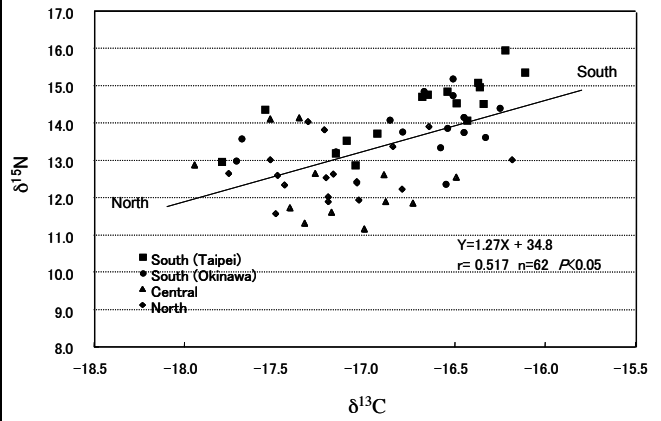


図2. 天然クロマグロの安定同位体比

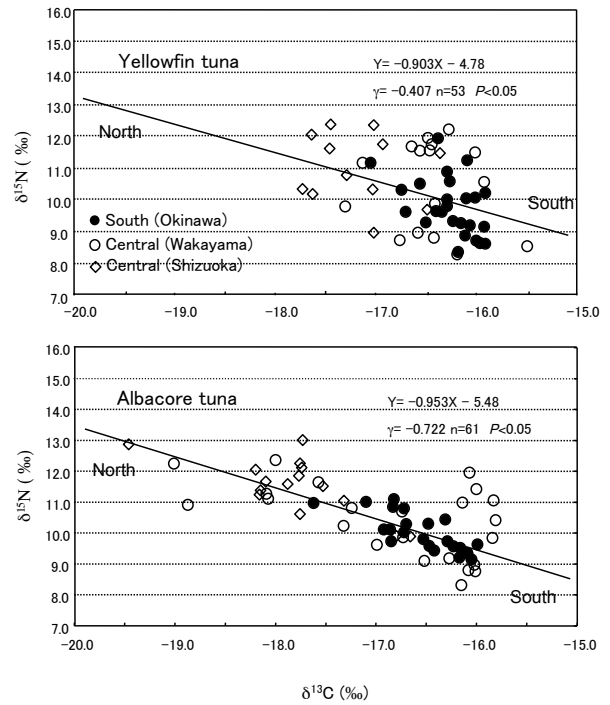


図3. 天然キハダマグロとピンナガマグロの安定同位体比

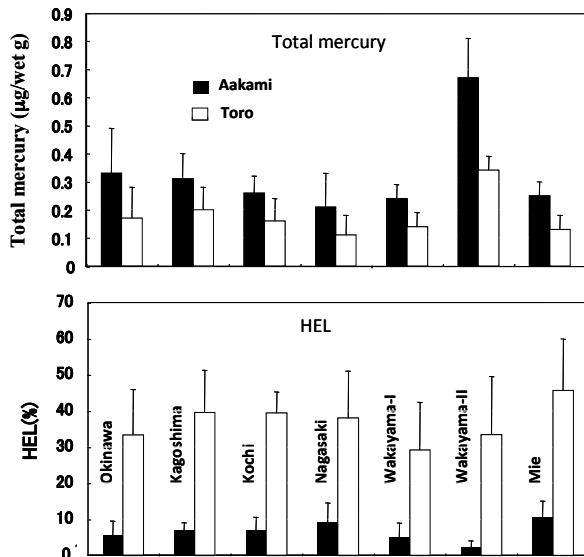


図 4. 養殖クロマグロの水銀濃度と HEL の地域差

養殖マグロの赤身に蓄積していた有機塩素系化合物の分析結果を図 5 に示す。結果を脂質ベースで示したが、*p,p'*-DDE は、和歌山と三重県産を除き、北の地域で養殖したものほど高い傾向を示し、PCBs でも類似の傾向を示し、これらの結果は天然マグロの場合（図 1）と類似していた。Trans-nonachlor は和歌山 (II) で高値を示したが、Q1、tribromoanisole (TBA) および hexachlorobenzene (HCB) には一定の地域差が認められなかった。なお重量ベースで表した場合のこれらの化合物濃度は天然マグロ（図 1）とほぼ同じレベルであった。同様の結果はトロにおいても認められた。

赤身とトロに含まれていた水銀および有機塩素系化合物濃度（重量ベース）と HEL との関係を図 6 に示す。総水銀とメチル水銀は HEL が高いほど低く、一方有機塩素系化合物は高くなる傾向が認められた。養殖マグロの水銀濃度は天然マグロと比べると低い。脂肪含量が高く、成長速度が早く、小型（年齢が低い）なことがその原因と思われる。

現在、小笠原、ハワイ、オーストラリア、ニュージーランドなどで購入したキハダマグロの水銀、有機塩素系化合物および安定同位体比を分析中であるが、これまでの結果から赤道に近い地域で捕獲されたものほど水銀濃度は高く、高緯度ほど低いと思われる傾向が認められた。この傾向を同地域で購入したメカジキなどの試料で確認中である。小笠原および海外で購入したキハダマグロの $\delta^{15}\text{N}$ は沖縄、和歌山、静岡より高く、黒潮流域の $\delta^{15}\text{N}$ は低いとするこれまでの報告と一致した。

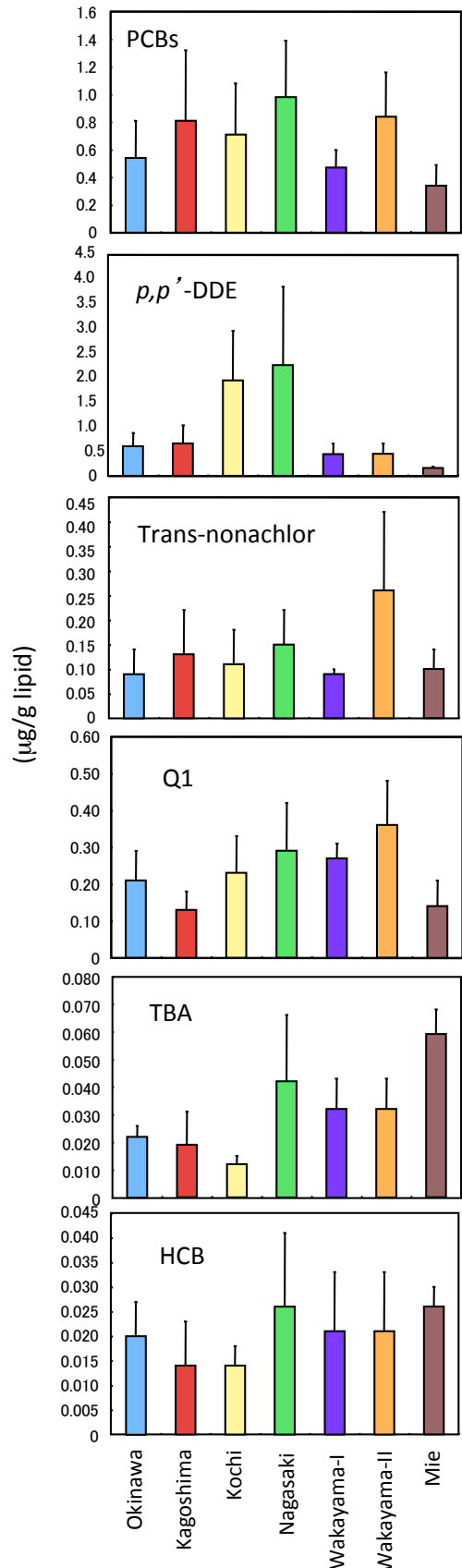


図 5. 養殖クロマグロに蓄積している有機塩素系化合物の地域差

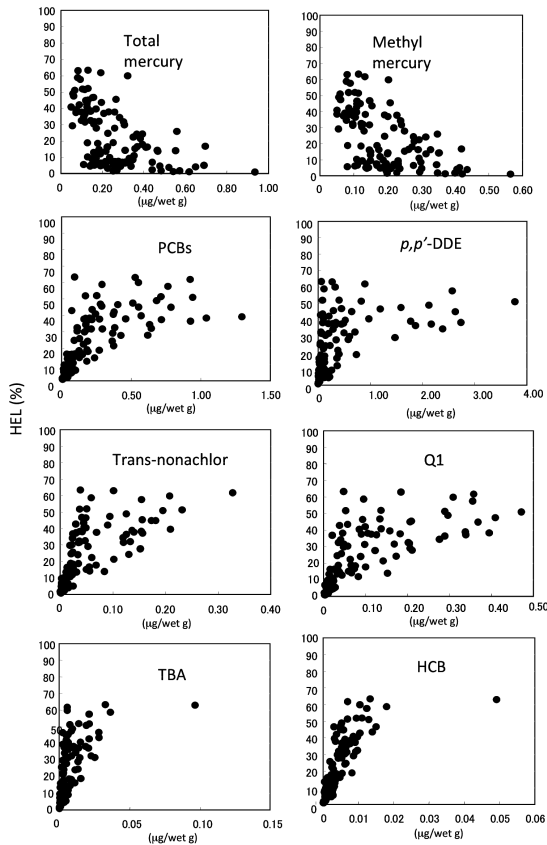


図 6. 養殖クロマグロに蓄積している水銀濃度および有機塩素系化合物濃度と HEL の相関

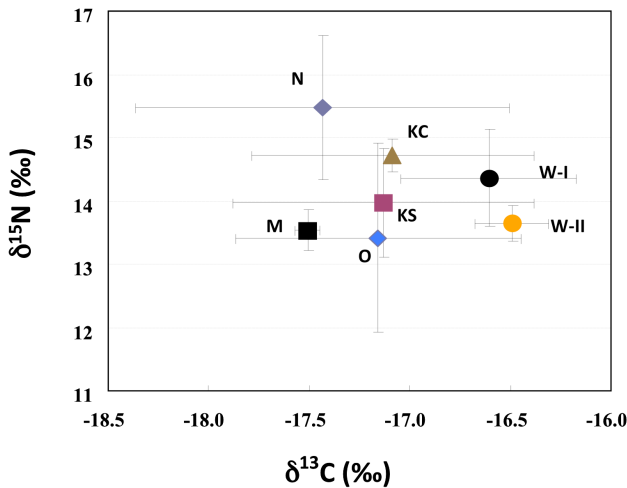


図 7. 養殖クロマグロの安定同位体の地域差

Okinawa (O), Kagoshima (KS), Kochi (KC), Nagasaki (N), Wakayama (-I and -II) and Mie (M).

天然と養殖マグロに比較で示唆された脂肪と水銀蓄積の関係、成長速度と水銀蓄積の関係をさらに検討した。図 8 にアブラツノザメ

メ (Endo et al., 2009) とホシザメ (投稿準備中) のデータをまとめたものである。いずれのサメの場合でも、加齢とともに水銀濃度が増加すること、同じ体長で比較した場合、成長速度の遅い雄が雌より水銀濃度が高い傾向が認められた。アブラツノザメは脂肪に富む大きな肝臓を持っているが、この肝臓には水銀はほとんど蓄積せず、脂肪含量の低いホシザメの肝臓には加齢とともに水銀が蓄積した。これらの結果は天然マグロと養殖マグロとの比較で示唆された先の結果を支持している。

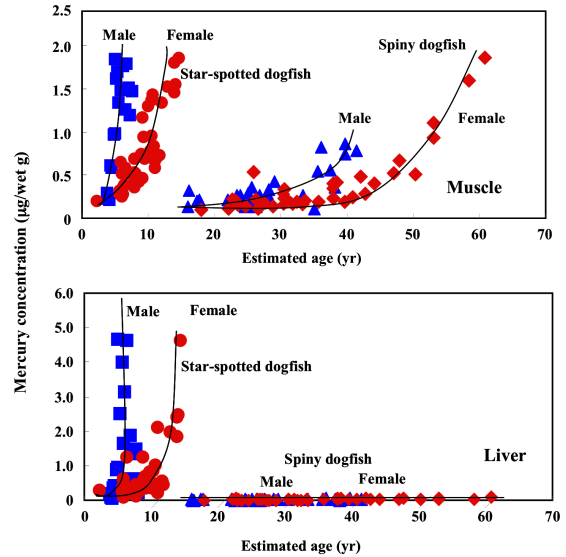


図 8. アブラツノザメとホシザメの筋肉と肝臓の水銀濃度の比較と加齢の影響

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 7 件) すべて査読あり

① Endo, T., Hotta, Y., Hisamichi, Y., Kimura, O., Sato, R., Haraguchi, K., Funahashi, N., Baker, C.S. Stable isotope ratios and mercury levels in red meat products from six baleen whales sold in Japanese markets. *Ecotoxicol. Environ. Saf.* **79**, 35-41, 2012. DOI:10.1016/j.ecoenv.2012.01.020

② Hisamichi, Y., Haraguchi K., Endo, T., Levels of mercury and organohalogen compounds in Pacific bluefin tuna (*Thunnus orientalis*) cultured at different regions of Japan. *Arch. Environ. Contam. Toxicol.* **62**, 296-305, 2012. DOI:10.1007/s00244-011-9696-5

③ Hisamichi, Y., Haraguchi, K., Endo, T. Contamination levels of mercury and

organochlorine compounds, and stable isotope ratios in three tuna species taken from different regions of Japan. *Environ. Sci. Technol.* **44**, 5971-5978, 2010. DOI:10.1021/es1008856

④ Endo, T., Hisamichi, Y., Kimura, O., Haraguchi, K., Lavery, S., Dalebout, M.L., Funahashi, N., Baker, C.S.
Stable isotope ratios of carbon and nitrogen and mercury concentration in 13 toothed whale species from the western Pacific Ocean off Japan. *Environ. Sci. Technol.* **44**, 2675-2681, 2010. DOI: 10.1021/es903534r

⑤ Endo, T., Haraguchi, K.
High mercury levels in hair samples from residents of Taiji, a Japanese whaling town. *Mar. Pollut. Bull.* **60**, 743-747, 2010. DOI: 10.1016/j.marpolbul.2009.11.020

⑥ Endo, T., Hisamichi, Y., Kimura, O., Kotaki, Y., Kato, Y., Ohta, C., Koga, N., Haraguchi, K.
Contamination levels of mercury in the muscle of female and male spiny dogfish (*Squalus acanthias*) caught off the coast of Japan. *Chemosphere*, **77**, 1333-1337, 2009. DOI: 10.1016/j.chemosphere.2009.09.041

⑦ Endo, T., Hisamichi, Y., Kimura, O., Haraguchi, K., Lavery, S., Dalebout, M.L., Funahashi, N., Baker, C.S.
Stable isotope ratios of carbon and nitrogen and mercury concentration in 13 toothed whale species from the western Pacific Ocean off Japan. *Environ. Sci. Technol.* **44**, 2675-2681, 2010. DOI: 10.1021/es903534r

[学会発表] (計 6 件)

① 遠藤哲也, 木村 治, 原口浩一, 加藤善久, 太田千穂, 古賀信幸
ツノザメ類における水銀蓄積について
日本薬学会 132 会、2012 年 3 月札幌

② Endo, T., Hisamich, Y., Kimura, O., Haraguchi, K.
Stable isotope ratios of nitrogen and carbon and mercury concentration in hair of Taiji residents, a Japanese whaling town.
Eurotox 2011, Aug. 28-31, Paris, France

③ 久道洋輔, 原口浩一, 遠藤哲也
養殖マグロに蓄積している水銀および有機塩素系化合物の地域差について
フォーラム 2011 衛生薬学・環境トキシコロジー、2011 年 10 月金沢

④ Endo, T., Hisamichi, Y., Haraguchi, K.
Levels of mercury and organohalogen compounds in Pacific bluefin tuna (*Thynnus orientallis*) cultured at different regions of Japan. Environmental Health 2011, February 6-9, Salvador, Brazil

⑤ 遠藤哲也, 久道洋輔, 原口浩一
マグロ類の水銀汚染と有機塩素系化合物汚染: 種差と地域差について
フォーラム 2010 衛生薬学・環境トキシコロジー、9 月、東京

⑥ 遠藤哲也
招聘講演 「魚介類の水銀汚染と PCB 汚染について、鯨と鮪を中心に」
北見医工連携研フォーラム、2009 年 11 月、北見

⑦ 遠藤哲也, 久道洋輔, 木村 治, 小瀧裕一, 加藤善久, 古賀信幸, 太田千穂, 原口浩一,
日本近海で捕獲したアブラツノザメの水銀汚染の性差について — 体長および安定同位体濃度 (^{13}C と ^{15}N) との相関性—
フォーラム 2009 衛生薬学・環境トキシコロジー、2009 年 11 月、沖縄

[その他]

① 遠藤哲也 北海道文化放送・U 型テレビウイドショー (放射性セシウム生物濃縮について水銀や PCB と比較しての解説) 2011 年 4 月 11 日

② 遠藤哲也 朝日新聞 2010 年 1 月 22 日
研究成果掲載 「毛髪から高濃度水銀・町民 50 人調査・鯨肉食関連か」

③ 遠藤哲也 FM 北海道・Vivid People・メディアカル・コロンブス (食品汚染と健康についての解説) 2009 年 12 月 2, 9, 16, 23, 30 日

6. 研究組織

(1) 研究代表者

遠藤 哲也 (ENDO TETSUYA)
北海道医療大学・薬学部・准教授
研究者番号: 10133216

(2) 研究分担者

木村 治 (KIMURA OSAMU)
北海道医療大学・薬学部・講師
研究者番号: 10418882

(3) 連携研究者

原口 浩一 (HARAGUCHI KOICHI)
第一薬科大学・薬学部・教授
研究者番号: 00258500