

図3：水銀の蓄積性

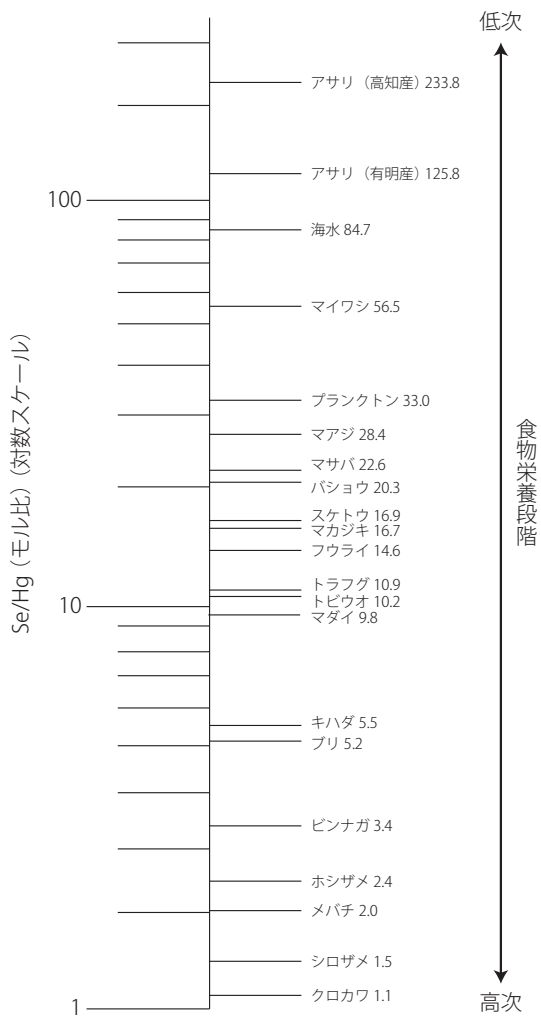


図4：海洋生態系とSe/Hg (モル比)

食物連鎖により水銀蓄積されてゆく過程において、生物生来の自己防御の一つとして体内へセレンの捕捉を行い、1:1のモル比からなるセレン化水銀(HgSe)を生成し(Ganther et al, 1972)、水銀を無毒化することを予察した。

一方で、セレンはすでに必須微量元素として知られており(Schwarz and Foltz, 1957)、さらには過酸化水素分解酵素の一つであるグルタチオンペルオキシダーゼ(GSH-Px)の構成元素として存在することが報告されている(Rotruck et al., 1973)。加えて、筆者等が、魚類血液中にセレンがきわめて高濃度で存在することを、当時国内で初めて報告して(Kai et al., 1988; 甲斐他, 1989)以来、今日までに図5に示されるような様々な機能を有することが報告されて来ている(Fernandez et al., 1999; Nanri et al., 2011; 山下他, 2013)。

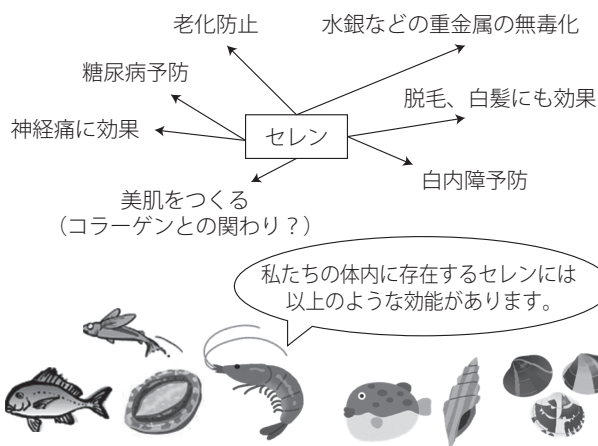


図5：セレンの機能性

前述の研究までは、セレン分析は常法の蛍光分光法で行い、試料の分解から測定に長時間要していた折、平成に入って、電子捕獲(ECD)型ガスクロマトグラフィーによる化学状態別定量がpptレベルで可能となった(Toei and Shimoishi, 1981)。そこで、早速この方法の水圏生物・環境試料分析への応用について、特に下石先生(当時岡山大学理学部化学科)からのアドバイスを賜り、新たに、微量生体関連元素としてのセレンを指標とした、環境・生物分析化学的および微量元素栄養学的視点からの研究を行ってきた。

以下に、校費研究以外に他省庁、国内外の大学および大手企業と行った主なプロジェクト研究の概要を示す。

2.2 環境分析化学的研究

2.2.1 海洋大循環の実態解明と総合観測システムに関する国際共同研究 - 海洋生物による鉛直物質輸送の実態解明-I(1990~1993)とその関連研究(~2000)

1990年度から、当時科学技術庁(現文部科学省)振興調整費による上記総合研究のプロジェクトチームとして、水産大学校初の他省庁主査の研究に参画することができた。具体的には、その小課題において、10機関のワーキンググループとともに、鉛直物質輸送の主役を沈降粒子とすることを共通認識のもとに、北海道道東沖深層(水深1,100mと3,500m)から捕集した沈降粒子および同海域で採取した海水ならびに浮遊懸濁物のセレンおよびヒ素の化学状態別分析を行った。また、同時に、原子吸光法等による各種無機元素の分析を行い、当該海洋環境を予察した(田川他, 1994; Hanaoka et al., 1995; 1997)。なお、セジメントラップを用いた沈降粒子の捕集方法のポンチ絵を(図6)に示した。

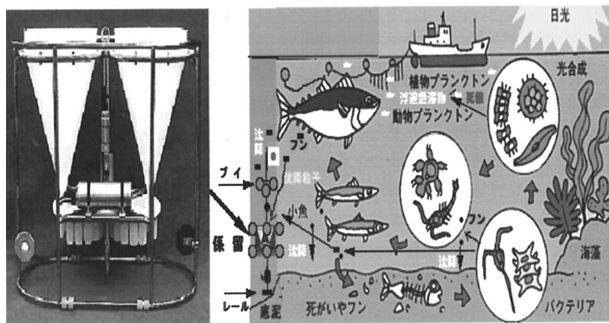


図6：セジメントトラップを用いた捕集方法のイメージ図

沈降粒子の具体的な捕集方法を、以下のように概略する。

当時水産庁北海道水産研究所（2016年から国立研究開発法人水産研究・教育機構北海道水産研究所）調査船により、北海道道東沖に係留（図6：右）した自作のセジメントトラップ（図6：左）（ダブルコーン型、開口部直径および面積は各々0.60 mおよび0.124 m²）により捕集した。係留期間としては、一期間40日（最終日のみ26日間）、全八期間（計306日間）とした。各期において、2つのセジメントトラップには、約500 ml容のポリエチレンベッセルに防腐剤を添加したものと添加していないものにそれぞれ分けて、あらかじめコンピュータ制御した下部の捕集部位に装着し、初年度は水深約1,100 m位置で、翌年度は水深3,500 m位置でそれぞれ係留し、約1年間沈降してくる粒子を経目的に捕集した。

捕集方法の原理は、きわめてシンプルであり、図6（右）で示されるように、セジメントトラップの固定フレーム最下部に切り離し装置を装着したレール（重りの代わりとして廃棄処分された鉄道用のもの）を海底に留め、約1年間の係留期間終了後ほぼ同海域の海上から、調査船によりマイクロ波を送り、切り離し装置を解くことにより、係留パイの浮力によって海上まで浮上させた上、目視により捕集するものであった。

このように、きわめてリスクの大きな実験ではあったが、当時の海洋化学の分野でのフィールド実験では、常法であった。しかしながら、このような実験は初めての経験であり、特に水深3,500 mでの約1年間の係留には、多くの予測できない海中障害（係留期間に大規模な釧路沖地震あり）等で回収できない可能性が大であったが、何とか回収に成功し、貴重な試料を得た。

この研究を皮切りに、1993年度には、本校練習船「耕洋丸」世界一周航海を利用して、様々な海域で採取した海水および浮遊懸濁物中のセレンの状態別分布を明らかにし（甲斐他, 1993; 1994; Kai et al., 2000）、1999年度には、同船の遠洋航海を利用して、南太平洋大学との共同調査海域であるフィジー諸島近海の海水および底泥におけるセレンの化学状態別分析を行い、これまで知られていなかった当該海域環境を環境化学的視点から予察した。

一方、2000年1月には、九州大学農学部との共同研究により、本校練習船「天鷹丸」の調査航海を利用して、対馬海峡における有機スズの汚染状況を調査した。この研究を機に、九州大学農学部チームが実施する「有機スズの二枚貝に及ぼす影響」に関する研究とその関連研究の共同研究者の一人となった

(Inoue et al., 2006; 2007; 大嶋他, 2008)。

2.3 生物分析化学・微量元素栄養学的研究

2.3.1 魚類組織の脂質過酸化に及ぼす高濃度セレン含有飼料酵母（商品名：トヨコーボ）の抑制効果（1991～1995）とその関連研究（～2006）

一般に、食餌によって生成する活性酸素による生体内過酸化に対して図7のような防御機構がはたらくことが知られている。養殖魚は、天然魚と比較して餌由来の脂質が蓄積しやすいことから、結果として脂質過酸化が進行し、死に至る（菊川, 1994; 井岡・大島, 2002）。

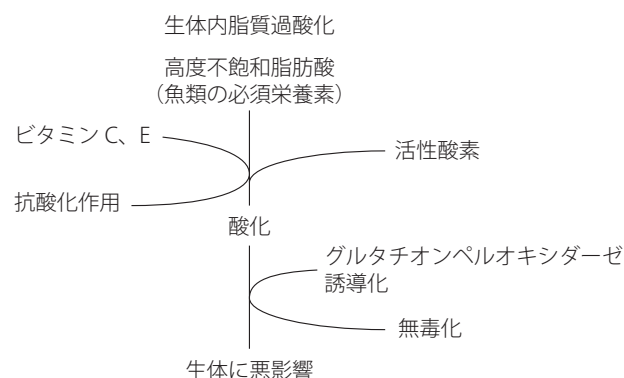


図7：脂質過酸化に対する生体内防御機構

そこで、この脂質過酸化を抑えるための飼料の開発のため、1991～1995年度まで、(株)旭化成受託研究費による標記の共同研究チームとして宮崎大学農学部とともに参画した。酵素抗酸化剤の一つであるグルタチオンペルオキシダーゼ（GSH-Px）がセレンを必須成分としていることから、有機セレンを高濃度に含有する酵母の飼料への補足が、魚体内の抗酸化システムに対し、GSH-Px活性との関連でどのような作用をしているかを明らかにすることを目的とした研究であった。具体的には、当該酵母を投与後の種々の魚類組織におけるセレンの分析、GSH-Px活性測定等から、魚類における微量セレンの摂取が明瞭な肝機能促進をもたらすことを明らかにした（Murata et al., 1991; 1992; 1993; 1994）。

この研究と前後して実施してきたマグロ・カジキ類、養殖ブリ等の海産魚やコイ、ティラピア等の淡水魚血液におけるセレン（酸化状態別）、総水銀の分析（Kai et al., 1992; 2002; 甲斐他, 2004）に加え、GSH-Px活性を測定することにより、両元素の分布とGSH-Px活性の関連性を考察した（Kai et al., 1995; 1996; Nagai et al., 1999）。ここで特筆すべきこととして、魚類血液のGSH-Px活性測定は、当時国内外で初めての試みであったことを申し添える。

この当時の勤務先を取り巻く情勢は非常に多難であり、全国の大学校の民営化等が騒がれる中、独立法人化（2001年4月）が決定した。さらには、その第一期中期研究期間半ばでの講座改組（資源理化学講座から食品安全学講座へ配置換え）もあったが、これまでの研究をもとに、新たに食品としての安全性（Safety）を出発目標として、その基礎となる精密分析用機器（超純水製造装置、全元素（CHONS）分析装置、ガスク

ロマトグラフィー (ECD) (セレン化学種別分析)、マイクロ波湿式分解装置 (MULTI WAVE) およびフローインジェクションを連動した冷原子吸光法 (FIAS-CV-AAS) (水銀分析) (Aduna de Paz et al., 1997)、ICP) を駆使して、新たな側面から水銀およびセレン両元素の挙動解明の研究に着手した。

初めに、生体内でのセレンの状態別分布と代謝を明確にするため、異なった棲息環境下でのセレンの化学状態変化について実施した。結果として、自然環境下の水棲生物種には、概ね低酸化状態のセレン (主に-2価の有機体セレン) 化学種が高酸化状態のセレン (6価セレン) 化学種より優位に存在する一方で、飼育環境下の生物種体内のセレン分布は真逆であり、さらに両環境下に棲息する同種間においても、同様なセレン分布の差が認められた (Kai et al., 2004; 2006; 2007; 2008; 2009; 2010; 2011; 2012)。

以上の結果と他研究者の研究結果 (Gasiewicz and Smith, 1978; Cappon and Smith, 1981) をもとに、生体内におけるセレンの代謝について図8に概略した。すなわち、この図は、生体内に取り込まれたセレンが、6価セレン (Se^{6+}) \rightarrow 4価セレン (Se^{4+}) \rightarrow -2価セレン (Se^{2-}) (最終生成化学種: H_2Se) へと還元代謝され、生体維持のためにGSH-Pxの構成成分 (セレンシステイン) として生体内に存在し、また、一方で生体防御のためセレンタンパク (後にセレノネイン (図9) として命名、Yamashita et al., 2013) が水銀等の重金属と直接結合し、水銀毒性を無毒化の上、排出されることを示している。

すなわち、棲息環境が異なると、同種でも生体内でのセレンの還元代謝速度が異なり、定期的に一定量の餌料を摂食している飼育環境下の生物種の方が、その速度が速く、言い換えると水銀と結合したセレンは排出されやすいことが伺え、結果として生体内では、高酸化状態のセレン (6価セレン) 化学種が低酸化状態のセレン (主に-2価の有機体セレン) より優

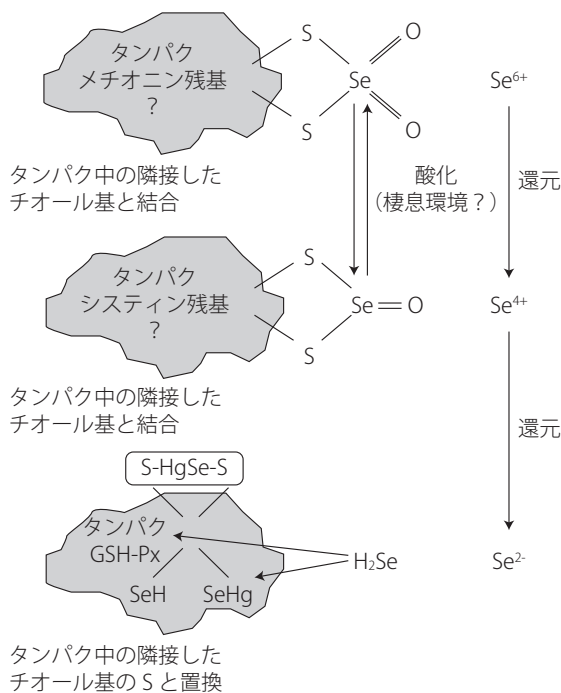


図8：生体内におけるセレンの代謝

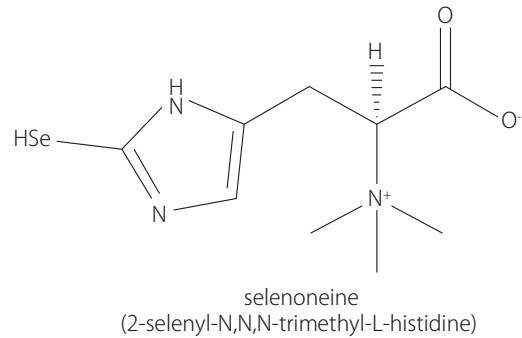


図9：セレノネインの化学構造

位に存在することを結論づけた。さらに、既に報告した海洋におけるセレンの挙動 (甲斐他, 1993; 1994; Kai et al., 2000) をもとに、海洋生態系におけるセレンの挙動について総括的に図10を提案した (甲斐他, 2000; 高橋他, 2001)。

このように、水圏環境における主に水銀およびセレンの動態に的を絞ったフィールド研究の経験とその後の食品機能学講座への再度の配置換えがあったことを踏まえ、2014年に大分大学に転出して以来、今日まで大分県が臨む豊後水道を含む水圏環境はいうまでもなく、食・生活環境における水銀についてはその安全性の確認とともに、セレンについては特に非可食部からの有効利用を目的とした基礎研究を行った。

2.3.2 水産物非可食部からのセレンの有効利用の可能性に関する研究 (2011～現在)

具体的には、大分県でブランド化されている天然の特産魚としてのマアジ (関アジ)、マサバ (関サバ)、タチウオおよびハモを対象とした研究を実施した。(図11、図12)

図11から、セレンレベルについては、すべての種で普通筋と比較して鱗、外皮および内皮でほぼ同レベルかやや高い結果が得られた。一方、水銀レベルはその真逆であり、特にマアジ鱗およびマサバ外皮で著しく低いレベルであった。さらに図12から、水銀レベルに対するセレンレベルのモル換算比 (Se/Hg) は、すべての種で普通筋より、有意に高く、特にマアジ鱗およびマサバ外皮で著しく高いことが判明した。すなわち、これら特産魚についても、プランクトンフィーダーとしてのマアジ鱗およびマサバ外皮にこれまでと同様な傾向が認められ (Kai et al., 2013; 2014)、水銀の安全性とともに (Storelli and Marcotrigiano, 2002; Kehrig et al., 2009)、これら非可食部からのセレンの有効性が期待された (Kai et al., 2013; 2014; 2019)。一方で、貝類 (二枚貝、巻貝) および甲殻類 (エビ類) 非可食部としての中腸腺および外骨格にはセレンの有効性は認められなかった (Kai et al., 2017; 2018) ことを付記する。

以上のように、転出後における「大分県特産魚非可食部からのセレンの有効性」の研究結果も含め、魚類非可食部からのセレンの効能を利用した健康食品の開発の基盤が創れた。一方で、普段廃棄されがちな鱗、外皮等を有効利用することで、地域の食・環境問題の改善にも繋がることが期待された。

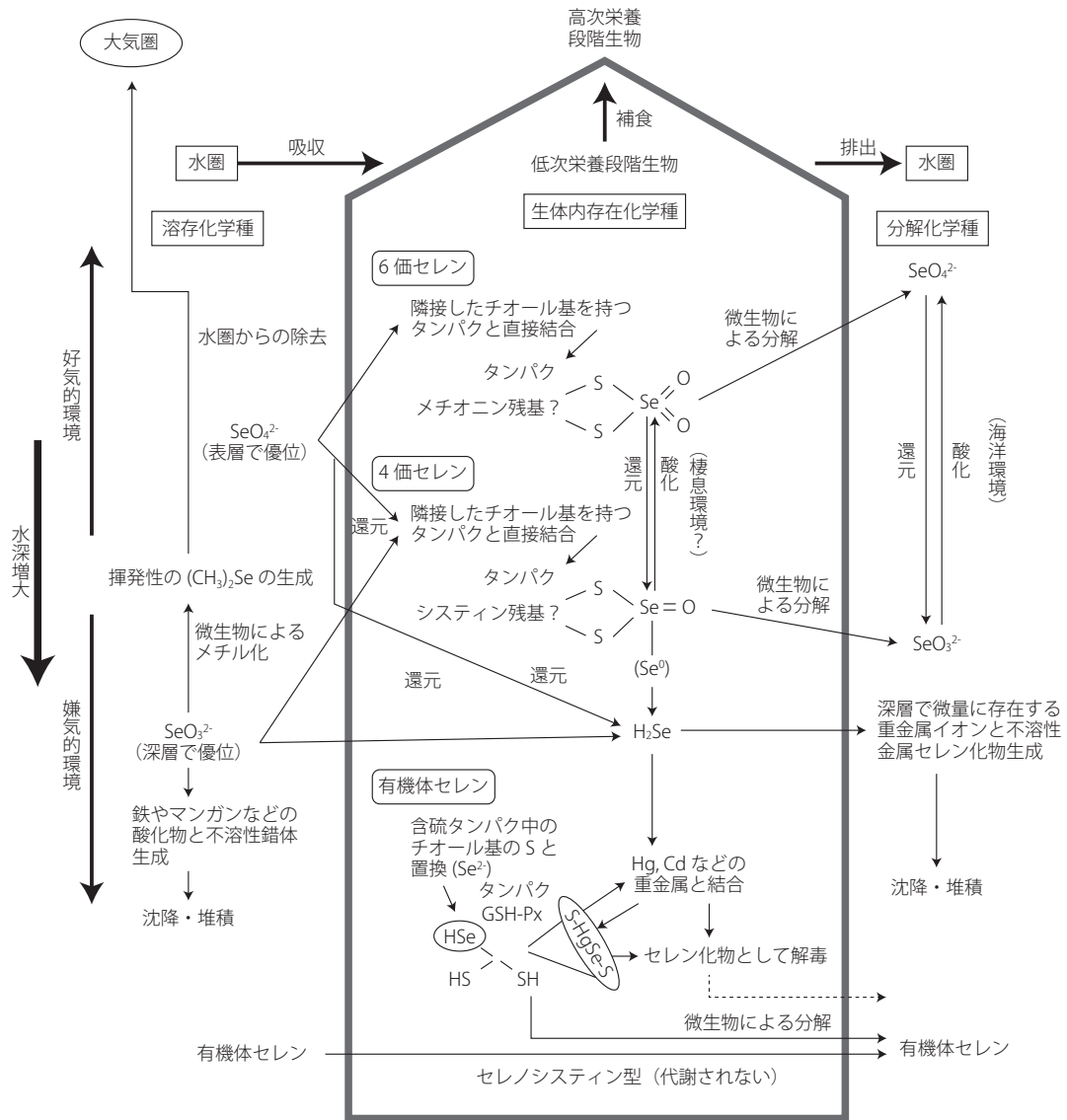


図10：海洋生態系におけるセレンの挙動

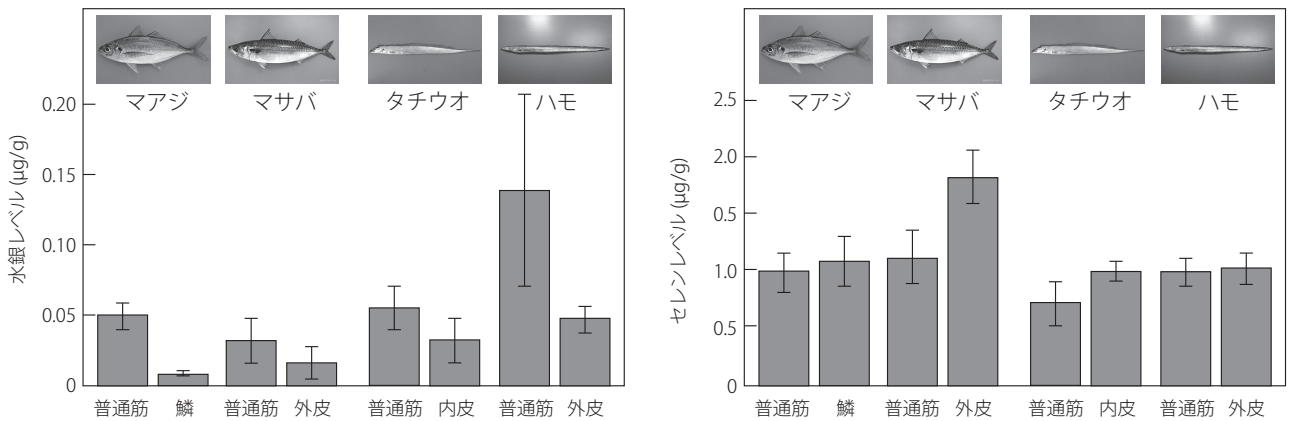


図11：大分県特産魚における水銀とセレンレベル

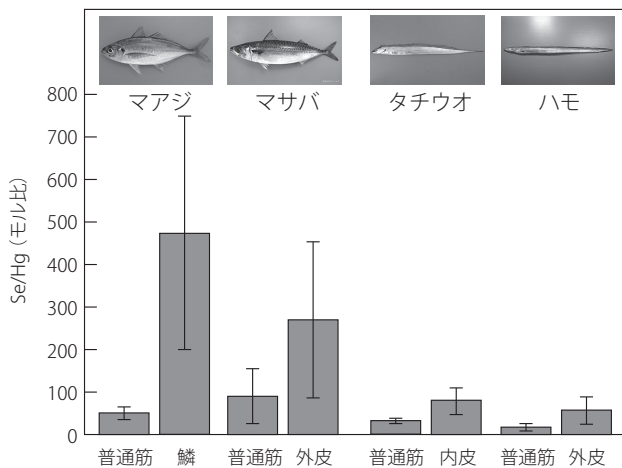


図12：大分県特産魚におけるSe/Hg（モル比）

3. おわりに

本総論で、これまで関わった主なプロジェクト研究の概要と今後の展望について紹介した。なお、他の関連研究として、2003年度に入り、財団法人やまぐち産業振興財団研究助成金によるヤーコンビネガーの製法研究と商品化の一環として、(株)三井ヘルプのヤーコンジュース製造特許、山口県産業技術センターの所有する酢製造技術および前勤務先の栄養成分評価技術の組合せで山口県の特産品化を図ることを目的とした基礎研究を行った。水銀およびセレン分析の結果、実験室製造品については有用成分としてのセレンおよび毒性成分としての水銀濃度は、いずれも検出限界（1 ppb）かそれ未満であった。一方、工場製造品については、前者が 2.60 ± 0.15 ppbであり、後者は検出限界かそれ未満であった。さらに、安全性の指標としてのSe/Hg（モル比） $\gg 1$ により、原料由来あるいは製造過程における水銀等の重金属汚染ほとんど認められない上、食品の安全性が確認された。

また、2010年度に入り、いなば食品(株)より、近々にもペットフードに使用されるマグロ中の水銀レベルに国からの規制がかかる可能性があるとの提示があった。会社存続の危機もあるとして、これに対し、これまでの研究成果をもとに、セレンによる水銀の無毒化機構とその安全性について、ペットフード協会有志とともに文書化（甲斐他，2012）して出版した上で、会社側関係者とともに農林水産省および厚生労働省担当官への説明を行った。結果として、ペットフード中の水銀については、基準値を設けるのではなく、行動規範を作成する方向で両省庁と意見が一致する見通しとなった。

一方、上記研究と並行して、1994年以来、前勤務先において、田上保博教授（2015年3月退職）との間で「天然色素および生理活性化合物」関連研究および永井毅助手（在職当時、2004年転任）との間で「食品とその機能性」関連研究の共同研究者の一人として参画した。

なお、現在、大分大学からの退職を前にして、山形大学農学部 永井毅教授との間で「地域食材を生かした食品開発」関連の共同研究者の一人として参画している。

引用文献

Aduna de Paz, L., Alegria, A., Barbera, R., Farre, R., and Lagarda, M.

J. (1997). Determination of mercury in dry-fish samples by microwave digestion and flow injection analysis system cold vapor atomic absorption spectrometry. *Food Chemistry*, Vol. 58, Nos. 1&2, 169-172.

Cappon, C. J. and Smith, J. C. (1981). Mercury and selenium content and chemical form in fish muscle. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, Vol. 10, 305-309.

Fernandez, E., Chatenoud, L., La Vecchia, C., Negri, E., and Franceschi, S. (1999). Fish consumption and cancer risk. *The American Journal of Clinical Nutrition*, Vol. 70, 85-90.

Ganther, H. E., Goudie, C., Sunde, M. L., Kopecky, M. S., Wagner, P., Oh, S-H., and Hoekstra, W. G. (1972). Selenium relation to decreased toxicity of methylmercury added to diets containing tuna. *Science*, Vol. 175, 1122-1124.

Gasiewicz, T. A. and Smith, J. C. (1978). Properties of the cadmium and selenium complex formed in vivo and in vitro. *Chemico-Biological Interactions*, Vol. 23, 171-178.

Hanaoka, K., Tagawa, S., Kai, N., and Kaise, T. (1995). De-gradation of arsenobetaine by the microorganisms occurring in the sinking particles collected by sediment trap. The 1995 AAAS Annual Meeting and Science Innovation Exposition, Atlanta.

Hanaoka, K., Tagawa, S., Kai, N., and Kaise, T. (1995). Arsenobetaine-decomposing ability of the marine micro-organisms occurring in the particles collected at depths of 1,100 and 3,500 m. The 1995 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, Honolulu.

Hanaoka, K., Kaise, T., Kai, N., Kawasaki, Y., Miyasita, H., Kakimoto, K., and Tagawa, S. (1997). Arsenobetaine-decomposing ability of marine microorganisms occurring in particles collected at depths of 1,100 and 3,500 meters. *Applied Organometallic Chemistry*, Vol. 11, 265-271.

Imura, H. and Naganuma, A. (1978). Interaction of inorganic mercury and selenite in rabbit blood after intravenous administration. *Journal of Pharmacology*, Vol. 1, 67.

Inoue, S., Oshima, Y., Usuki, H., Hamaguchi, M., Hanamura, Y., Kai, N., Shimasaki, Y., and Honjyo, T. (2006). Effects of tributyltin and/or waterbone exposure on the embryonic development of the Manila clam *Ruditapes philippinarum*. *Chemosphere*, Vol. 63, 881-888.

Inoue, S., Abe, S., Oshima, Y., Kai, N., and Honjyo, T. (2006). Tributyltin contamination of bivalves in coastal areas around Northern Kyushu, Japan. *Environmental Toxicology*, Vol. 21, 244-249.

Inoue, S., Oshima, Y., Abe, S., Hamaguchi, W., Rudolf S. S., Kai, N., and Honjyo, T. (2007). Effects of tributyltin on the energy metabolism of pen shell (*Atrina pectinata japonica*). *Chemosphere*, Vol. 66, 1226-1229.

Inoue, S., Oshima, Y., Usuki, H., Hamaguchi, M., Hanamura, Y., Kai, N., Shimasaki, Y., and Honjyo, T. (2007). Effects of tributyltin on the veliger larvae of the Manila clam *Ruditapes philippinarum*. *Chemosphere*, Vol. 66, 1353-1357.

井岡久・大島敏明 (2002). 養殖ヒラメに及ぼす過酸化脂質の影響. 島根県水産試験場研究報告, Vol. 10, 11-16.

Iwata, H., Matsuoka, T., Kito, H., and Hayashi, M. (1982). De-gradation of methylmercury by selenium. *Life Sciences*, Vol. 31, 859-66.

Kai, N., Ueda, T., Takeda, M., and Kataoka A. (1986). The levels of

- mercury and selenium in gonad of marlins from the Pacific ocean. *Bulletin of the Japanese Society of Scientific Fisheries*, Vol. 52, No. 3, 553-556.
- Kai, N., Ueda, T., Takeda, M., Takeda, Y., and Kataoka, A. (1986). The levels of mercury and selenium in gonad of yellow-fin and albacore. *Bulletin of the Japanese Society of Scientific Fisheries*, Vol. 52, No. 6, 1049-1053.
- Kai, N., Ueda, T., Takeda, M., Takeda, Y., and Kataoka, A. (1987). Accumulation of mercury and selenium in blue marlin. *Bulletin of the Japanese Society of Scientific Fisheries*, Vol. 53, No. 9, 1697.
- Kai, N., Ueda, T., Takeda, Y., and Kataoka, A. (1988). The levels of mercury and selenium in blood of tunas. *Nippon Suisan Gakkaishi*, Vol. 54, No. 11, 1981-1985.
- Kai, N., Ueda, T., Takeda, M., Takeda, Y., and Kataoka, A. (1992). The levels of mercury and selenium in gonad of big-eyed tuna. *The Journal of Shimonoseki University of Fisheries*, Vol. 40, No. 4, 177-181.
- Kai, N., Ueda, T., and Takeda, Y. (1992). The state of oxidation and its distribution of selenium in the blood of tuna and marlins. *Nippon Suisan Gakkaishi*, Vol. 58, No. 10, 1883-1886.
- Kai, N., Tsuda, T., K., Sakai, T., Murata, H., Hamada, M., Tanoue, Y., and Nagai, T. (1995). Glutathione peroxidase activity in the blood of tunas and marlins. *Fisheries Science*, Vol. 61, No. 5, 867-870.
- Kai, N., Inoue, S., Yamamoto, K., Sakai, T., Murata, H., Hamada, M., Tanoue, Y., and Nagai, T. (1996). The oxidation state and its distribution of selenium in the blood of cultured yellow tail *Seriola quinqueradiata*. *Fisheries Science*, Vol. 62, No. 3, 444-446.
- Kai, N., Hamada, M., Tanoue, Y., and Nagai, T. (2000). The oxidation state and its distribution of selenium in suspended substances. *ITE Letters on Batteries, New Technologies & Medicine*, Vol. 1, No. 3, 38-41.
- Kai, N., Inoue, S., Yamamoto, K., Sakai, T., Murata, H., Hamada, M., Tanoue, Y., and Nagai, T. (2002). The Existing state of selenium in the blood of carp *Cyprinus carpio*. *ITE Letters on Batteries, New Technologies & Medicine*, Vol. 3, No. 3, 57-60.
- Kai, N., Inoue, S., Yamamoto, K., Sakai, T., Murata, H., Hamada, M., Tanoue, Y., and Nagai, T. (2004). The oxidation state and the distribution of selenium in the ordinary muscle of freshwater fish under breeding environment. *ITE Letters on Batteries, New Technologies & Medicine*, Vol. 5, No. 5, 38-40.
- Kai, N., Inoue, S., Ueno, S., Tanoue, Y., and Nagai, T. (2006). The oxidation state and the distribution of selenium in jellyfish under breeding environment. *ITE Letters on Batteries, New Technologies & Medicine*, Vol. 7, No. 5, 45-47.
- Kai, N., Takahashi, Y., Kondo, M., Takeshita, N., Inoue, S., Tanoue, Y., and Nagai, T. (2007). The behavior of selenium and mercury in cultured fish-I: The profile of selenium distribution in cultured olive flounder. *ITE Letters on Batteries, New Technologies & Medicine*, Vol. 8, No. 5, 106-109.
- Kai, N., Takahashi, Y., Kondo, M., Takeshita, N., Inoue, S., Tanoue, Y., and Nagai, T. (2008). The behavior of selenium and mercury in cultured fish-II: The profile of mercury distribution in cultured olive flounder. *ITE-IBA Letters on Batteries, New Technologies & Medicine*, Vol. 1, Nos. 4&5, 431-435.
- Kai, N., Takahashi, Y., Kondo, M., Takeshita, N., Inoue, S., Tanoue, Y., and Nagai, T. (2009). The behavior of selenium and mercury in cultured fish-III: The profile of selenium and mercury distribution in cultured olive flounder using extruder pellet. *ITE-IBA Letters on Batteries, New Technologies & Medicine*, Vol. 2, Nos. 5&6, 38-44.
- Kai, N., Takahashi, Y., Kondo, M., Takeshita, N., Inoue, S., Tanoue, Y., and Nagai, T. (2010). The behavior of selenium and mercury in cultured fish-IV: The profile of mercury distribution in red sea bream. *ITE-IBA Letters on Batteries, New Technologies & Medicine*, Vol. 3, No. 4, 31-35.
- Kai, N., Takahashi, Y., Kondo, M., Takeshita, N., Inoue, S., Tanoue, Y., and Nagai, T. (2011). The behavior of selenium and mercury in cultured fish-V: The profile of selenium distribution in red sea bream. *ITE-IBA Letters on Batteries, New Technologies & Medicine*, Vol. 4, No. 2, 15-20.
- Kai, N., Takahashi, Y., Kondo, M., Takeshita, N., Inoue, S., Tanoue, Y., and Nagai, T. (2011). The behavior of selenium and mercury in cultured fish-VI: The profile of mercury distribution in cultured amberjack. *ITE-IBA Letters on Batteries, New Technologies & Medicine*, Vol. 4, No. 2, 21-24.
- Kai, N., Takahashi, Y., Tanoue, Y., Tanaka, R., Fukushima, H., Maeda, T., Fukuda, Y., and Nagai, T. (2012). The behavior of selenium and mercury in cultured fish-VII: The influence of the fasting upon the mercury and selenium distribution. *Studies in Science and Technology*, Vol. 1, No. 2, 103-105.
- Kai, N., Tanoue, Y., Takahashi, Y., and Nagai, T. (2013). The available utilization of selenium from some inedible tissues of marine products-I: The distribution of selenium in several species of cultured and wild fish. *Studies in Science and Technology*, Vol. 2, No. 2, 127-130.
- Kai, N., Inoue, T., Kurauchi, Y., Kumasako, H., Tanoue, Y., Takahashi, Y., and Nagai, T. (2014). The available utilization of selenium from some inedible tissues of marine products-II: The distribution of selenium in several species of fish at lower trophic level in the marine ecosystem. *Studies in Science and Technology*, Vol. 3, No. 2, 117-120.
- Kai, N., Inoue, T., and Nagai, T. (2017). Effects of boiling treatment upon the distributions of selenium and mercury in short-necked clam. *Studies in Science and Technology*, Vol. 6, No. 1, 31-34.
- Kai, N., Inoue, T., and Nagai, T. (2017). The available utilization of selenium from some inedible tissues of marine products-III: The distributions of selenium in several species of shellfish. *Studies in Science and Technology*, Vol. 6, No. 2, 103-106.
- Kai, N., Inoue, T., and Nagai, T. (2018). The available utilization of selenium from some inedible tissues of marine products-IV: The distributions of selenium in several species of shrimps. *Studies in Science and Technology*, Vol. 7, No. 1, 39-42.
- Kai, N., Inoue, T., and Nagai, T. (2019). The available utilization of selenium from some inedible tissues of marine products-V: The distributions of selenium and mercury in several species of fish as the special marine products from Oita Prefecture. *Studies in Science and Technology*, Vol. 8, No. 1, 45-48.

- 甲斐徳久・上田 正・武田道夫・片岡昭吉 (1983). マグロ類の水銀およびセレン含有に関する研究-VIII. インド洋産ビンナガの水銀およびセレンレベル. 水産大学校研究報告, Vol. 31, No. 3, 69-73.
- 甲斐徳久・上田 正・武田道夫・片岡昭吉 (1989). マグロ類血液の水銀およびセレン含有に関する研究-II—マグロ類血液の水銀およびセレンレベルにおける海域間ならびに魚種間の差—. 水産大学校研究報告, Vol. 38, No. 1, 7-10.
- 甲斐徳久・上田 正・武田道夫・片岡昭吉 (1989). マグロ類の水銀およびセレン含有に関する研究-III—メバチ血液と筋肉または諸器官における水銀あるいはセレン含量の比較—. 水産大学校研究報告, Vol. 38, No. 1, 11-16.
- 甲斐徳久・上田 正・長友洪太 (1993). 海洋におけるセレンの酸化状態と分布-I—インド洋表層水におけるセレンの酸化状態とその鉛直分布—. 水産大学校研究報告, Vol. 41, No. 2, 57-60.
- 甲斐徳久・上田 正・長友洪太・武田靖昭 (1993). 海洋におけるセレンの酸化状態と分布-II—太平洋およびベンガル湾におけるセレンの鉛直分布—. 水産大学校研究報告, Vol. 41, No. 2, 61-64.
- 甲斐徳久・津田友秀・貞包弘之 (1994). 海洋におけるセレンの酸化状態と分布-III—南太平洋におけるセレンの酸化状態とその鉛直分布—. 水産大学校研究報告, Vol. 42, No. 2, 97-100.
- 甲斐徳久・浜田盛承・田上保博・永井毅 (2000). 水産物における水銀とセレン—生物無機化学的視点からの概観—. 水産大学校研究報告, Vol. 48, No. 4, 321-327.
- 甲斐徳久・井上英・山元憲一・境 正・村田寿・浜田盛承・田上保博・永井毅 (2004). ティラピア血液におけるセレンの存在状態. 水産大学校研究報告, Vol. 52, No. 2, 79-82.
- 甲斐徳久・石山恒・稲葉敦央・岡山清貴・角館厚信・木村憲行・菅原史侑・土志田茂・出利葉徹・長谷川修・原幸一・三上諭・宮原直樹 (2012). ペットフードに含まれる水産物由来の水銀の安全性 初版. 青葉印刷.
- 菊川清見 (1994). 酸化的ストレスと過酸化脂質. 脂質栄養学, Vol. 3, No. 1, 20-33.
- 喜田村正次・近藤雅臣・瀧沢行雄・藤井正美・藤木素士 (1975). 水銀 初版. 講談社.
- Kehrig, H. A., Seixas, T. G., Palermo, E. A., Baeta, A. P., Castro-Branco, C. W., Malm, O., and Moreira, I. (2009). The relationships between mercury and selenium in plankton and fish from a tropical food web. *Environmental Science and Pollution Research*, Vol. 16, 10-24.
- Murata, H., Sakai, T., and Kai, N. (1992). Effects of dietary organic selenium rich yeast supplementation on in vitro lipid peroxidation in carp fed the diets containing lipid peroxides, 1-12.
- Murata, H., Sakai, T., and Kai, N. (1993). Effects of dietary inorganic selenium supplementation on in vitro lipid peroxidation in carp fed the diets containing lipid peroxides, 1-13.
- Murata, H., Sakai, T., and Kai, N. (1993). Effects of dietary organic selenium rich yeast supplementation on in vitro lipid peroxidation in carp fed the diets or fish meal diets containing lipid peroxides, 1-18.
- Murata, H., Sakai, T., and Kai, N. (1994). Effects of toyo-yeast supplementaion on in vitro lipid peroxidation level and anti-oxidant activities in carp, 1-22.
- Nagai, T., Inada, J., Hamada, M., Kai, N., Tanoue, Y., Kaminishi, Y., Nakagawa, H., Fujiki, K., Nakao, M., and Yano, T. (1999). Distribution of glutathione peroxidase activity in fish. *Fisheries Science*, Vol. 65, No. 4, 665-666.
- Nanri, A., Mizoue, T., Noda, M., Takahashi, Y., Matsushita, Y., Poudel-Tandukar, K., Kato, M., Oba, S., Inoue, M., and Tsugane, S. (2011). Japan Public Health Center-based Prospective Study Group. Fish intake and type 2 diabetes in Japanese men and women: the Japan Public Health Center-based Prospective Study. *The American Journal of Clinical Nutrition*. Vol. 94, 884-891.
- Nishigaki, S. and Harada, M. (1975). Methylmercury and selenium in umbilical cords of inhabitants of the Minamata area. *Nature*, Vol. 258, 324-325.
- 大嶋雄治・堀就英・井上英・橋本伸哉・仲山慶・島崎洋平・甲斐徳久・本城凡夫 (2008). 粉碎脱水法による魚肉からの Co-PCBs の除去. 九大農学芸誌, Vol. 63, No. 1, 41-45.
- Rotruck, J. T., Pope, A. L., Ganther, H. E., Swanson, A. B., Hafeman, D. G. and Hoekstra, W. G. (1973). Selenium: Biochemical role as a component of glutathione peroxidase. *Science*, Vol. 179, 588-590.
- Schwartz, K., and Foltz, C. (1957). Selenium as an integral part of factor 3 against dietary necrotic liver degeneration. *Journal of the American Chemical Society*, Vol. 79, 3292-3295.
- Storeli, M. M. and Marcotrigiano, G. O. (2002). Mercury speciation and relationship between mercury and selenium in liver of *Galeus melastomus* from the Mediterranean sea. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*, Vol. 69, 516-522.
- 高橋幸則・伊丹利明・近藤昌和・宮崎泰幸・幡手英雄・鈴木喜隆・金森憲雄・松谷ひろ子・依田敏行・田上保博・花岡研一・甲斐徳久・永井毅・上西由翁 (2001). 食の科学—水産食品を中心に—7(2) セレンの果たす役割 初版. 成山堂.
- 田川昭治・甲斐徳久・花岡研一 (1994). 海洋大循環の実態解明に関する観測解析研究—海洋生物による鉛直物質輸送の実態解明に関する研究—. 科学技術庁振興調整費総合研究成果報告書, 188-201.
- 武田道夫・上田 正・長友洪太 (1993). 海水・海洋生物の水銀とセレンの関係. 下関女子短期大学紀要, Vol. 12, 9-12.
- Toei, K., and Shimoishi, Y. (1981). Determination of ultra-micro amounts of selenium by gas chromatography with electron-capture detection. *Talanta*, Vol. 28, 967-972.
- 上田正・武田道夫 (1979). バイ類の水銀レベル. 日本水産学会誌. Vol. 45, No. 6, 763-769.
- 上田正・武田道夫 (1983). シロザメおよびホシザメの水銀ならびにセレンレベル. 日本水産学会誌, Vol. 49, No. 11, 1731-1735.
- 山県登 (1978). 生物濃縮—環境科学特論— 初版. 産業図書.
- Yamashita, M., Yamashita, Y., Ando, T., Wakamiya, J., and Akiba, S. (2013). Identification and determination of selenoneine, 2-selenyl-N_α,N_α,N_α-trimethyl-L-histidine, as the major organic selenium in blood cells in a fish-eating population on remote Japanese islands. *Biological Trace Element Research*, Vol. 156, 36-44.
- 山下倫明・今村伸太郎・藪健史・石原賢司・山下由美子 (2013). 水産物由来のセレン—セレノネインの栄養生理機能—. *Bio-medical Research on Trace Elements*, Vol. 24, No. 4, 176-184.

(受稿：2019年9月10日 受理：2019年9月24日)