

ざざむしを用いた環境モニタリング

岐阜県保健環境研究所

○村瀬 秀也、安田 裕、大平 武俊

1. はじめに

演者らは、平成 10 年度から、国立環境研究所と環境試料におけるダイオキシン類分析法に関する共同研究を実施しており、河川に生息する水生生物に注目してきた¹³⁾。

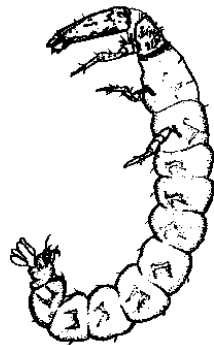
一般に、河川のモニタリングとして河川水、魚類等生物、底質等分析されることが多い。しかし、河川水は多量の検体が必要であり一過性の検体である。底質は汚染のバックグラウンド的な要素を持つてはいるものの、生物への影響をかならずしも示しているわけではない。魚類においては濃縮されることから、モニタリングの対象とされる場合があるが、魚種によって濃縮係数が違い、行動範囲が広く、加えて河川での生息域に限られる。また、試料の入手は漁協から購入するなど、手軽に採取できないなどモニタリング生物としては問題がある。

そこで、河川環境試料として、河川水、底質、魚類等に加え、地方の研究所職員による採集が可能で、きれいな河川では上・中流域にわたり広く分布域する水生生物ヒゲナガカワトビケラや付着藻類を調査対象に加え、岐阜県内河川環境中のダイオキシン類を調査し、河川におけるダイオキシン類の汚染実態、ダイオキシン類の河川環境中の動態とその由来等明らかにするとともに、付着藻類、水生昆虫、魚類における異性体、同族体組成について比較検討した事例を紹介する。

2. ざざむし (ヒゲナガカワトビケラ)

トビケラはチョウヤガに近い昆虫の一種で、カゲロウと共に日本の河川で最も良く見られる生物である。その中でもヒゲナガカワトビケラの幼虫は成長すると 3cm 以上になる大型の生物で、図 1⁹⁾に示すイモムシ様の形状をしている。石と石の間に網を張り、流れてくる藻類や有機物を捕集して食べる習性があり、年 2 回春と秋に羽化する。また、水質の汚染度が比較的少ない河川 (水質類型 AA~B) の瀬の部分に多く生息し、山地溪流から平地まで広く分布し¹⁰⁻¹²⁾、図 2 に示すように岐阜県内でも多くの河川で生息することが確認されている¹³⁾。

なお、この生物は信州 (長野県) では「ざざむし (正確にはザクザク捕れる川虫を意味し、捕獲された川虫の大部分がヒゲナガカワトビケラで占められる)」¹⁴⁾とも呼ばれ、昔から佃煮として食されてきており、最近ではかなり高価な珍味として売られている。以後、文、図中では簡単にざざむしと表記する。なお、殆ど同形の種にチャバネヒゲナガカワトビケラも存在する。



原図 日本産水生昆虫検索図説

図 1 ヒゲナガカワトビケラの形状

ザザムシ出現個体数 (岐阜県河川平成 7 年度調査)

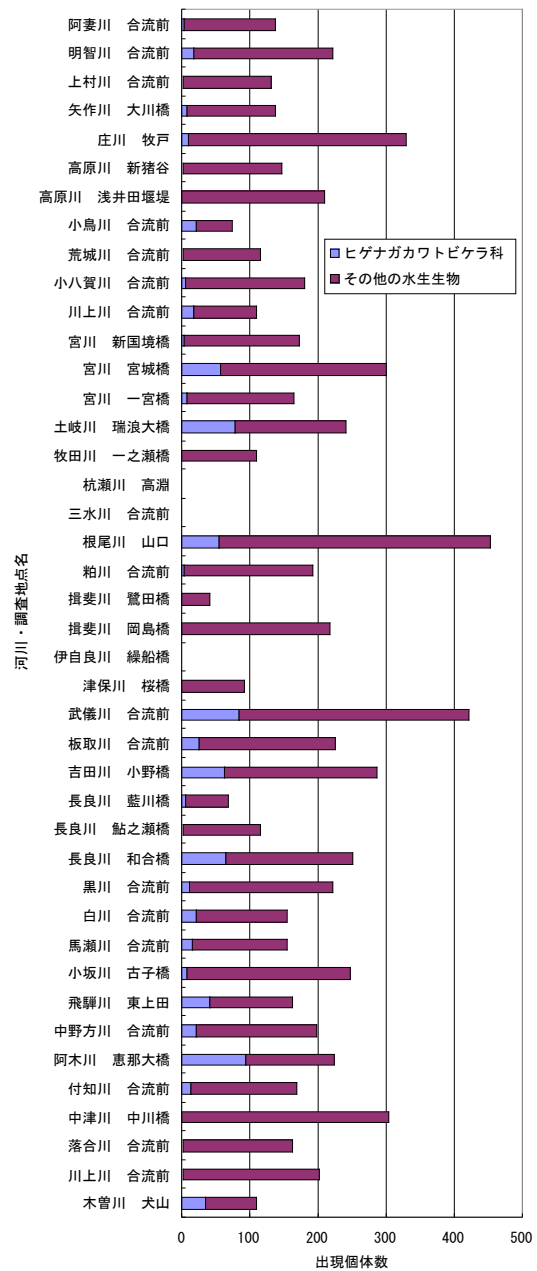


図 2 ざざむし出現個体数

3. 調査方法

3.1 採取河川及び採取方法

調査は平成12年～13年の夏季に行った。調査河川は図3に示す岐阜県内の主要な6河川、長良川、木曾川、飛騨川、根尾川、庄川、宮川とし、調査媒体全てが採取、或いは入手が可能な上・中流域にて調査を行った⁵⁾。なお、各河川の調査年度及び調査地点は表1の通りである。

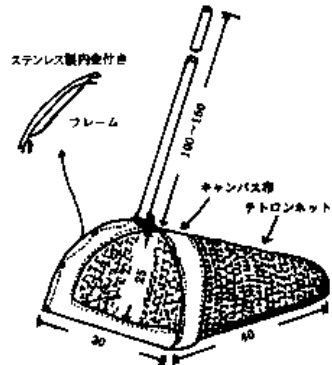


表1 河川の調査年度

調査年度	調査河川
平成12年度	長良川、木曾川、飛騨川
平成13年度	根尾川、庄川、宮川

図3 調査地点

ざざむしの採集方法は、河川の水深10～30cmの瀬の部分にあるこぶし大～頭大の石表面から直接、あるいは「大型底生動物による河川環境評価のための調査マニュアル」¹⁵⁾に従いキック・スイープしながら、図4のDフレームネットに採集した。そして、水洗、水切りした後広口ガラス瓶に入れ、氷冷して持ち帰り、実験室にて匹数、重量を測定、袋詰めし、分析まで凍結保存した。



なお、その他の各試料は表2の方法にて採取、処理をおこない分析試料とした。

図1 キック・スイープ用Dフレームネット (単位cm)

図4 Dフレームネット

表2 試料の採取、処理の方法

検体	採取、処理の方法
河川水	10L 広口ビンに採取、持ち帰る
底質	スコップ等で採取後、現地にて2mmのふるいを通し、持ち帰り自然乾燥
付着藻類	石表面をブラシでこすり落としビンに洗い込み、上澄みを除いて持ち帰り、実験室にて砂等急速に沈殿した成分を除いた後、1000rpm/分で1分間遠心分離
ざざむし	石表面に巣を作って生息するざざむしをピンセット等で集め、持ち帰り秤量して袋詰め
アユ	現地漁協より入手、実験室にて解体後、筋肉部分のみホモジナイズ、秤量して袋詰め

3.2 分析方法

各試料の抽出・調査方法は表3の方法により行った。すなわち、河川水においてはGLサイエンス社のソックスサーモを、底質においては300ml容のソックスレー抽出器を用い抽出を行った。また、水生生物はアルカリ分解法により抽出を行った。

表3 試料の抽出・分析方法

検体	抽出方法	調査方法
河川水	固相吸着・トルエン還流抽出法	ダイオキシン類に係る水質調査マニュアル ¹⁶⁾
底質	16時間トルエン・ソックスレー抽出法	ダイオキシン類に係る底質調査測定マニュアル ¹⁷⁾
付着藻類 ざざむし アユ	2 mol KOH エタノールによるアルカリ分解法	ダイオキシン類に係る水生生物調査暫定マニュアル ¹⁸⁾

前処理方法等については、それぞれ表3の調査方法に準拠し分析を行ったが、図5の分析フローでは水生生物のアルカリ分解法を例に示した。また、GC/MS測定は日本電子製JMS-700を使用した。

4. 結果及び考察

4.1 ダイオキシン類の濃度

図6に総ダイオキシン類濃度 (Total PCDDs+PCDFs+co-PCBs) について示した。各媒体の平均値は、河川水約 25pg/L、底質約 25pg/g、付着藻類約 60pg/g、ざざむし約 650pg/g、アユ約 100pg/g であり、ざざむしが最も高かった。また、河川について比較すると、アユを除く媒体で長良川が最も高く、庄川、宮川等その他の河川が低かった。この傾向は底質と付着藻類で顕著に現れた。アユについては全ての河川について比較的同レベルの汚染状況にあった。

次に、各組成 (PCDDs、PCDFs、co-PCBs) について見ると、底質、付着藻類においては PCDDs+PCDFs の濃度が co-PCBs 濃度より高い傾向にあり、アユにおいてはそのほとんどが co-PCBs によるものであった。何れの河川においても、各媒体とも co-PCBs 濃度の変動幅は2~4倍程度であり、PCDDs 濃度の 20~60 倍と比較して小さく、各河川のダイオキシン類濃度の違いは PCDDs 濃度の差に負うところが大きかった。なお、アユにおいてはダイオキシン類のほとんどが co-PCBs であり、これに当てはまらなかった。

すなわち、ダイオキシン類の汚染状況は、PCDDs、PCDFs は流域環境により異なり、co-PCBs は地域、流域差が比較的少ない状態にあることを示唆しているものと考えられた。また、生物試料においては高等生物 (動物) になるほど co-PCBs を濃縮する傾向にあるように見受けられた。

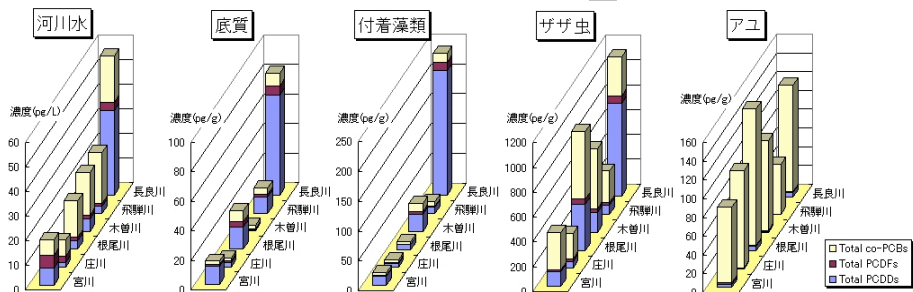


図6 ダイオキシン類 (PCDDs+PCDFs+co-PCBs) の濃度

4.2 毒性当量 (TEQ) と毒性当量寄与率

ダイオキシン類汚染の評価は毒性当量 (TEQ) にて行われるので、図7にダイオキシン類毒性当量 (Total PCDDs+PCDFs+co-PCBs) を、図8にその寄与率について示した。

総ダイオキシン類 (TEQ) における各媒体の平均値は、河川水約 0.1pg-TEQ/L、底質、アユともに約 0.1pg-TEQ/g、付着藻類約 0.4pg-TEQ/g、ざざむし約 1pg-TEQ/g であり、河川水、底質、アユについて平成10年度ダイオキシン類緊急全国一斉調査結果¹⁹⁾に照らして評価すると、いずれも非汚染地域に該当した。河川について比較すると、アユを除き長良川が概して高く、その他の河川が低くなった。この傾向は底質と付着藻類に強く現れたが濃度ほど顕著でなかった。アユは全ての河川が比較的同レベルにあるが、根尾川、庄川、宮川が比較的高かった。

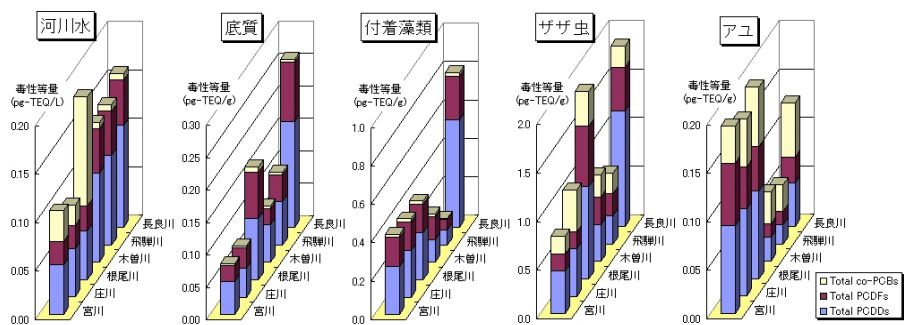


図7 ダイオキシン類(PCDDs+PCDFs+co-PCBs)の毒性当量

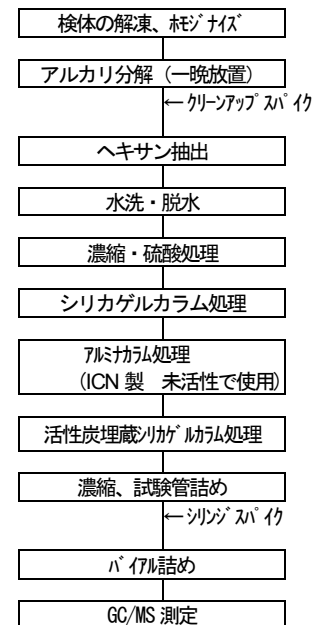


図5 分析フロー

次に、各組成 (PCDDs、PCDFs、co-PCBs) のTEQ 寄与率を見ると、底質、付着藻類はそのほとんどが PCDDs+PCDFs に寄与しており、ざざむし、アユにおいては co-PCBs による寄与率が増加していた。

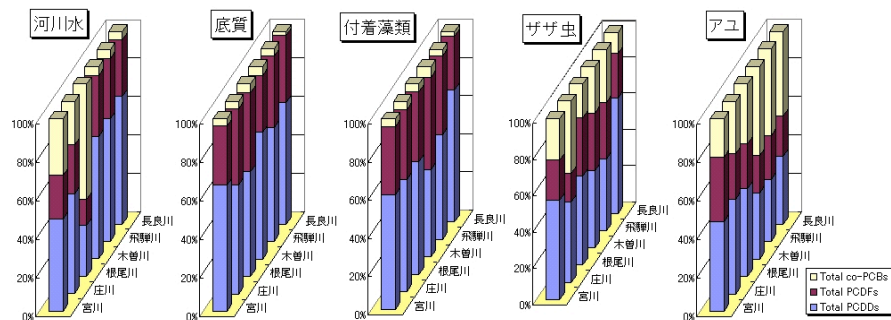


図8 ダイオキシン類の毒性当量寄与率(PCDDs、PCDFs、co-PCBs)

4.3 異性体・同族体組成とダイオキシン類の由来

河川環境におけるダイオキシン類の挙動とその由来について見るため、図9に同族体組成、図10に主要異性体組成を示した。

同族体組成は、何れの河川においても T4CDDs、O8CDD、mono-ortho PCBs、di-ortho PCBs の比率が高い傾向にあったが、T4CDDs については底質より付着藻類、ざざむしの方が高く、O8CDD においては底質における比率が最も高く、付着藻類、ざざむしで低かった。co-PCB においてはざざむしよりアユの方が高く、高等生物（動物）或いは食物連鎖の上位の生物ほど比率が高くなる傾向にあった。図では長良川、根尾川の例を示したが、これらの傾向は飛騨川、木曽川、庄川、宮川など他の河川にも共通して見受けられた。

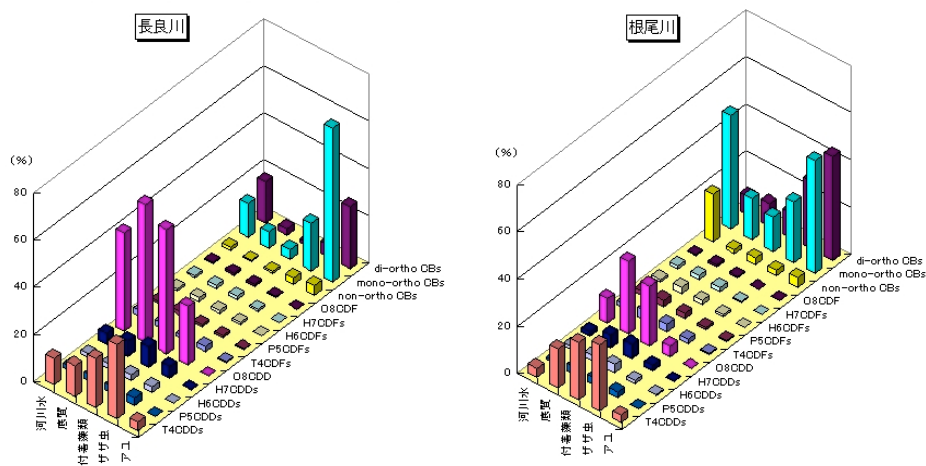


図9 長良川、根尾川における各媒体の同族体組成

つぎに、各媒体における異性体組成の特徴と、ダイオキシン類の由来 (汚染起源) について検討するため、河川水、付着藻類、ざざむし、アユの4媒体と、河川環境における主要な汚染起源といわれている農薬 CNP (クロロニトロフェン)、PCP (ペンタクロロフェノール) の異性体組成を比較した。なお、農薬の異性体組成データは S. Masunaga ら²⁰⁾の値を使用した。なお、各媒体の異性体組成は6河川の平均値である。異性体組成は、河川水と付着藻類は類似しており、岐阜県内河川の場合概して O8CDD の比率が最も高く、次いで 1368-T4CDD である傾向にあったが、アユは河川水・付着藻類の組成とかなり異なり、1368-T4CDD が高かった。ざざむしはそれらの中間に位置していた。各媒体間で異性体の組成がかなり変化しているものの、農薬である CNP、PCP 由来のダイオキシン類異性体は、いずれの媒体においても主要異性体であり、これら農薬が主要な由来であると考えられる。

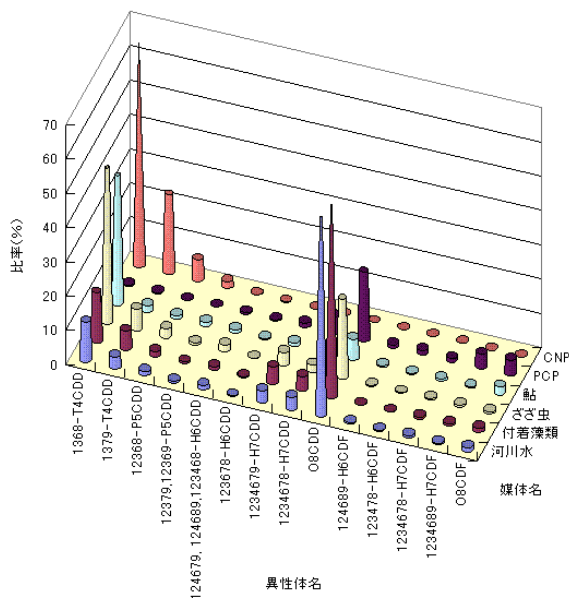


図10 主要異性体組成

いずれにしても、河川環境中のダイオキシン類の挙動は、ダイオキシン類各異性体の生物濃縮係数、水溶解度の違い等により、また、河川水、底質、付着藻類、水生昆虫（ざざむし）、魚類（アユ）が複雑かつ相互に影響しあっているものと考えられる。

4.4 モニタリング生物としてのざざむし

図 11 にざざむしの食物連鎖の位置及び水質、底質、魚類等との関連についてイメージ図を示した。

はじめに述べたように、ざざむしは食物連鎖の下位に位置し、食物である付着藻類（厳密にはデトリタス）、底質の影響を強く受けるものの、河川環境のダイオキシン類モニタリングを行うには重要な位置にあると考えられる。

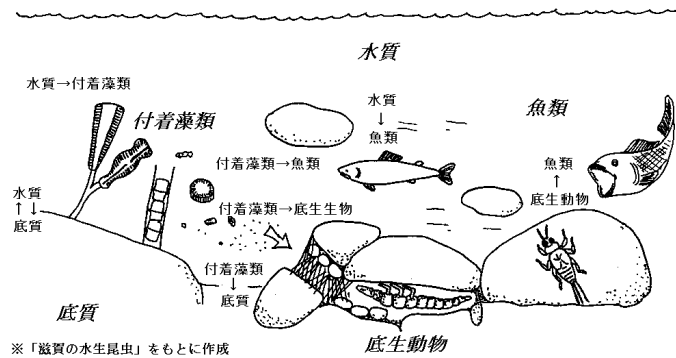


図 11 水環境中のダイオキシン類の動態

日本の河川における底生動物群集の中にトビケラが占める比率は高く、現存量の 50～90%を占めるといわれている。なかでも、ヒゲナガカワトビケラは水質類型が AA～B 類型の、上流から中流域で流速流量の安定した河川において現存量の最大値を示す傾向にある¹⁰⁾。

ざざむしは、比較的水量の安定した上・中流域の河川で採取することが可能であり、必ずしも分析に多量の検体を必要としない。また、多くの地点で D フレームネットを使用したり、直接ピンセット等にて数十匹の採集は可能であり、付着藻類と比較して、採取及び採取後の処理が比較的簡単である。それ故、河川水の異性体組成・同族体組成と比較して変化するものの、河川水の異性体・同族体組成の特徴を比較的残しているため、河川環境中のダイオキシン類モニタリング生物としてざざむしを利用することは、有効な手段であると考えられる。

5. まとめ

岐阜県内 6 河川、5 媒体の環境試料を用いてダイオキシン類の調査を行った結果、以下の知見を得た。

- 1) 総ダイオキシン類濃度は媒体ではざざむしが最も濃度が高く、次いでアユ、付着藻類、底質、河川水の順であった。河川では長良川が最も高く、飛騨川、木曽川等他の河川は低かった。
- 2) 各河川における総ダイオキシン類濃度の違いはアユを除いて PCDDs 濃度に負うところが大きく、アユではダイオキシン類のほとんどが co-PCBs で占め、河川間で大きな差はなかった。
- 3) 毒性当量 (TEQ) はざざむしでやや高い傾向にあるが、河川水、底質、アユなどは非汚染域の TEQ 値であった。河川では長良川が高い傾向にあったが、河川間の差は濃度ほど顕著には見られなかった。
- 4) TEQ 寄与率は河川水、底質、付着藻類については PCDDs+PCDFs が極めて大きく、ざざむし、アユにおいては PCDDs+PCDFs の寄与が大きいものの、co-PCBs の寄与も明らかに認められた。
- 5) 同族体組成では、アユを除き T4CDDs、O8CDD、mono-ortho PCBs、di-ortho PCBs の比率が高く、アユではほとんどが co-PCBs で占めた。これらは、CNP、PCP、PCB から由来すると考えられている。
- 6) 同族体組成の媒体による違いは、T4CDDs では底質からざざむしにかけて増加、O8CDD は減少し、mono-ortho PCBs、di-ortho PCBs ではざざむしからアユにかけて増加傾向が強く認められた。
- 7) 河川環境試料における主要な異性体は、媒体によって組成比率がやや異なるものの 1368-T4CDD、O8CDD 等で、CNP、PCP 由来のダイオキシン異性体であった。
- 8) ざざむしは河川上・中流域に広く生息し、同族体・異性体組成がやや変化するものの、付着藻類と比較して採取及び採取後の処理が容易で、河川環境モニタリングに有効な生物である。

謝辞

共同研究実施に当たり、国立環境研究所の森田昌敏統括研究官、伊藤裕康主任研究員、橋本俊次主任研究員に指導・助言をいただいた。また、本研究では検体入手に際し、岐阜県内の郡上、恵那、益田川、根尾川筋、庄川、宮川下流の各漁協にご協力をいただいた。ここに深謝いたします。

参考文献

- 1) 村瀬秀也, 中村朋之, 佐々木裕子, 内藤季和, 植野康成, 橋本俊次, 伊藤裕康: 水生昆虫(ザザ虫)のダイオキシン類分析法の検討, 第8回環境化学討論会講演要旨集, 208-209, 1999.
- 2) 村瀬秀也: 水生昆虫(ザザ虫)を指標とした河川ダイオキシン類モニタリングの検討, 第15回全国環境・公害研究所交流シンポジウム予稿集, 37-44, 2000.
- 3) 村瀬秀也, 小澤秀明, 岡本拓, 白子定治, 服部達明, 志田義美, 広瀬浩二, 橋本俊次, 伊藤裕康, 森田昌敏: 水環境試料中のダイオキシン類, 第9回環境化学討論会講演要旨集, 284-285, 2000.
- 4) 村瀬秀也, 安田裕, 大平武俊, 橋本俊次, 伊藤裕康, 森田昌敏: 水環境試料中のダイオキシン類(第2報), 第10回環境化学討論会講演要旨集, 276-277, 2001.
- 5) 村瀬秀也, 安田裕, 大平武俊: 河川におけるダイオキシン等微量化学物質の評価に関する研究(1) 県内河川環境中のダイオキシン類, 平成13年度保健環境研究所研究成果発表会抄録集, 13-16, 2002.
- 6) 大平武俊, 村瀬秀也, 安田裕, 橋本俊次, 伊藤裕康, 森田昌敏: 岐阜県内河川環境中のダイオキシン類I—河川水、底質、付着藻類中のダイオキシン類—, 第11回環境化学討論会講演要旨集, 262-263, 2002.
- 7) 村瀬秀也, 安田裕, 大平武俊, 橋本俊次, 伊藤裕康, 森田昌敏: 岐阜県内河川環境中のダイオキシン類II—付着藻類、水生昆虫、魚類中のダイオキシン類—, 第11回環境化学討論会講演要旨集, 264-265, 2002.
- 8) 村瀬秀也, 安田裕, 大平武俊, 橋本俊次, 伊藤裕康, 森田昌敏: 岐阜県内河川環境中のダイオキシン類V—付着藻類、水生昆虫のダイオキシン類異性体組成—, 第12回環境化学討論会講演要旨集, 398-399, 2003.
- 9) 川合禎次編: 日本産水生昆虫検索図説, 東海大学出版会, 1985.
- 10) 森下郁子: 生物からみた日本の河川, 山海堂, 1979.
- 11) 滋賀県小中学校教育研究会理科部会編: 滋賀の水生昆虫・図説ハンドブック 自然観察シリーズ No.3, 新学社, 1991.
- 12) 石綿進一, 野崎隆夫編: 相模川水系の水生動物, 神奈川県環境部水質保全課, 1997.
- 13) 岐阜県環境局: 岐阜県水生生物水質判定事業調査結果報告書, 1997.
- 14) 牧田 豊: 伊那の冬の風物詩 ざざ虫, 天竜川上流工事事務所調査課, 1999.
- 15) 環境庁水質保全局: 大型底生動物による河川環境評価のための調査マニュアル, 1992.
- 16) 環境庁水質保全局水質管理課: ダイオキシン類に係る水質調査マニュアル, 1998.
- 17) 環境庁水質保全局水質管理課: ダイオキシン類に係る底質調査測定マニュアル, 2000.
- 18) 環境庁水質保全局水質管理課: ダイオキシン類に係る水生生物調査暫定マニュアル, 1998.
- 19) 環境省: 「平成10年度ダイオキシン類緊急全国一斉調査結果 (<http://www.env.go.jp/chemi/dioxin/index.html> からダウンロード)」.
- 20) S. Masunaga, T. Takasuga & J. Nakanishi: Dioxin and dioxin-like PCB impurities in some Japanese agrochemical formulations, *Chemosphere* 44[4], 873-885, 2001.