〈論 文〉

河川の微量元素汚染指標生物としての水生昆虫 ヒゲナガカワトビケラに関する研究—カドミウムと銅—

栃 本 博*

Study of Aquatic Insect, Caddisfly, *Stenopsyche marmorata* as a Bio-monitor of Trace Element Contamination in Rivers and Streams: Cadmium and Copper

Hiroshi TOCHIMOTO*

* Tama Branch Laboratory, The Tokyo Metropolitan Research Laboratory of Public Health 16-25, Shibazaki-cho 3 chome, Tachikawa, Tokyo 190 Japan

Abstract

Trace element contaminations were monitored in a stream by using of the larvae of an aquatic insect, caddisfly *Stenopsyche marmorata* as a bio-monitor of trace element contamination every other year from April 1979 to April 1989. The caddisfly was distributed widely in rivers and streams in Japan. In April 1989, high concentrations of cadmium and copper in the larvae which seemed to be caused by a factory waste water were detected. Accordingly, concentrations of trace elements in water, sediments, periphytons (substances adhering onto the river bed) and the larvae were measured.

The concentrations of cadmium and copper in the larvae were higher than those of water, sediments, or periphytons of the stream. When discharge of the waste water from a factory which was the pollution source was stopped, the concentrations of both elements in the larvae gradually decreased with time elapsed, finally reaching to the background levels after one year.

These findings indicate that the caddisfly larvae can be used as a good bio-monitor for detection of low level contaminations of trace elements in rivers, of which sensitive detection with water, sediments and periphytons is often very difficult.

Key words: caddisfly *Stenopsyche marmorata*, rivers and streams, bio-monitor of trace element contamination, sediment, periphyton

1. はじめに

わが国河川の上流および中流域は水道水源に利用されているので、その水域環境を保全していくことは飲料水の確保上から重要である。

これらの水域は下流に比較して有機汚濁が少ないので、水生昆虫の幼虫が多く生息している。なかでも、ヒゲナガカワトビケラ科 (*Stenopsychidae*) の幼虫は、しばしば優占種 (重量) となっている^{1)~3)}。そこで我々

はこの幼虫に着目し、河川に存在する微量元素量の指標生物としての有効性の検討を行ってきた。これまでに、関東、中部および東北地方の6河川における調査により鉱山や工場の下流で採取された幼虫からカドミウムや鉛等の微量元素濃度が高く検出されたことから、この幼虫が生物濃縮作用として微量元素を体内に蓄積することを確認し、微量元素汚染の指標生物として使用できることを報告してきた⁴⁾。

今回は、ヒゲナガカワトビケラ (*Stenopsyche mar-*

* 東京都立衛生研究所多摩支所 〒190 東京都立川市柴崎町3-16-25

morata) の幼虫 (以下トビケラと略す) を指標生物として微量元素汚染のモニタリングを行ってきた小河川において、カドミウムおよび銅の汚染が疑われた水域に遭遇した。その後、汚染排水の放流が停止されたことにより水域環境が回復した事例の結果を通して、トビケラがカドミウムおよび銅の優れた指標生物であることが確認されたので報告する。

2. 調査方法

2.1 調査河川、地点、時期および試料

調査河川は、多摩川支流 H 川である。H 川および調査地点 (st. 1~9) を Fig. 1 に示した。H 川は、東京都西多摩郡 H 町に源を発し、H 町を縦断し、A 市の北部を経て多摩川に合流する長さ 16.5km の小河川である。表流水の川幅は上流および中流では 5 m、下流では 8 m 程度で、水深は 20cm 程度と浅い。河川水の BOD は $2 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 以下である。調査地点は上流から中流までの 7 km の範囲内にある 9 地点で、上流から st. 1~9 とした。st. 1~8 は山間を流れる渓流で、st. 9 は流れがゆるやかとなり平地が開けてくる地点である。

調査時期は 1979 年 4 月から 1992 年 2 月である。1979 年 4 月から 1989 年 4 月までは 2 年ごと 4 月に、st. 8 で定期的にトビケラを採取した。1989 年 11 月は st. 1~9 について発生源および河川環境を調査するため、また、1990 年 2、4、6、8、11 月、1991 年 2 月および 1992 年 2 月は st. 2、3、5、6、8 について排水放流停止後の水域環境の回復状況を調査するため、トビケラと同時に河川水、底質および石面付着物を採取した。

Fig. 1 Map of study area showing the location of sampling stations

2.2 試料の採取および分析方法

2.2.1 トビケラ

河川水を入れたバットに 5 令の中程度の大きさ (体長 3 cm) のものを 1 地点 3~5 匹ずつ採取した。クロロホルムを少量添加した後、河川水で洗浄した。冷却して実験室に搬入し、 110°C で 5 時間乾燥した。1 匹ずつ重量を測定し、ピーカーに入れ、ホットプレート上で硝酸・過塩素酸処理し、0.5N 硝酸に溶かして一定量とし、カドミウム、銅、亜鉛およびマンガンの試験溶液とした。鉛およびニッケルの試験溶液については、前述の試験溶液から一定量ずつ取り出し、混合濃縮して調製した。

2.2.2 河川水

あらかじめ採取時に 100ml につき硝酸 1 ml を加えた河川水 100ml をピーカーに入れ、ホットプレート上で濃縮し、試験溶液とした。

2.2.3 底質

表層部を採取し、吸引汙過して脱水後、 110°C で 5 時間乾燥し、2 mm のふるいに通した。底質調査方法⁵⁾に準じて硝酸・塩酸処理し、試験溶液とした。

2.2.4 石面付着物

石の表面からブラシでバットに剥ぎ取り、底部に残った砂礫を除く上層部を吸引汉過して脱水後、 110°C で 5 時間乾燥した。約 200mg を秤取し、以下トビケラと同様硝酸・過塩素酸処理し、試験溶液とした。

2.2.5 元素の測定

フレイム原子吸光法 (Instrumentation Laboratory VIDEO 22) またはフレイムレス原子吸光法 (PERKIN ELMER 4000) により元素濃度を測定した。

2.2.6 その他の分析

底質および石面付着物は前述の 110°C に乾燥した試料を 600°C で 2 時間加熱し、その減少量から強熱減量を求めた。また、石面付着物は採取後その成分を顕微鏡で観察した。

3. 結果および考察

3.1 トビケラ中の微量元素濃度の年次推移

1979 年 4 月から 1989 年 4 月まで 2 年ごとの st. 8 におけるトビケラ中のカドミウム、鉛、銅、亜鉛、ニッケルおよびマンガン濃度 (各年の各元素濃度はトビケラ 3~5 匹の平均値) の推移を Fig. 2 に示した。

トビケラ中のカドミウム濃度は 1985 年までは $0.55 \sim 0.71 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ とほとんど変動はみられなかったが、1987 年は $1.2 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ とこれまでの値より約 2 倍高い値を示し、1989 年は $5.5 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ と 1985 年までの値の約 8 倍高い値を示した。銅濃度は 1987 年までは $27 \sim 37 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ とほとんど変動はみられなかったが、カドミウ

Fig. 2 Concentrations of six elements in *Stenopsyche marmorata* during 1979-1989 Fig. 3 Cadmium and copper concentrations in water, sediment, periphyton and *Stenopsyche marmorata* in November 1989

ムと同様1989年は $120\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ とこれまでの値の約3倍高い値を示した。他の金属濃度は、鉛 $3.0\sim 5.4\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 、亜鉛 $94\sim 120\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 、ニッケル $2.2\sim 3.9\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 、マンガン $130\sim 170\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ と全期間大幅な変動はみられなかった。

この結果、1987年頃からst. 8の上流にカドミウムおよび銅を流出する何らかの発生源の存在が示唆された。

3.2 発生源の調査

モニタリング調査でその存在が疑われた発生源の位置および水域環境を明らかにするため、1989年11月st. 8の上流3.3kmの間にst. 1～7を、またst. 8の下流3.7kmにst. 9の観測地点を設定し、トビケラの他に河川水、底質および石面付着物についても併せて調査した。その結果をFig. 3に示した。

河川水中のカドミウム濃度はst. 1～3では検出限界の $0.1\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 未満であったが、st. 4, 5, 6ではそれぞれ 0.5 , 0.2 , $0.1\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ を示し、それより下流は $0.1\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 未満であった。st. 1～9の底質中のカドミウム濃度は 0.05 , 0.05 , 0.48 , 0.41 , 0.83 , 0.48 , 0.36 , 0.17 , $0.09\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 、石面付着物は 0.49 , 0.34 , 4.0 , 6.1 , 5.7 , 4.1 , 2.0 , 1.4 , $0.71\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 、トビケラは 1.1 , 0.70 , 5.3 , 6.3 , 11 , 9.8 , 8.5 , 4.1 , $0.74\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ であった。底質、石面付着物およびトビケラ中のカドミウム濃度は、st. 3で急激に増加し、底質ではst. 2の9.6倍、石面付着物では12倍、トビケラでは7.6倍の値を示した。また、それぞれの試料で最高値を示した地点をみると、石面付着物はst. 4でその値は $6.1\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ であり、底質およびトビケラはいずれもst. 5でそれぞれ $0.83\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ および $11\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ であった。

次に銅濃度についてみると河川水ではカドミウムと同様にst. 1～3では $1\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 以下であったが、st. 4, 5, 6ではそれぞれ 8 , 3 , $2\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ の値を示した。st. 1～9の底質中の銅濃度はそれぞれ 25 , 21 , 32 , 26 , 29 , 23 , 22 , 20 , $20\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 、石面付着物は 41 , 43 , 160 , 280 , 250 , 150 , 54 , 37 , $50\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 、トビケラは 49 , 37 , 870 , 900 , $1,000$, 400 , 230 , 83 , $60\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ であった。底質中の銅濃度はst. 3で $32\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ とst. 2の $21\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ よりやや高い値を示したが、その濃度は1.5倍程度であった。また、石面付着物およびトビケラはst. 3で急激に増加し、石面付着物ではst. 2の3.7倍、トビケラは23倍であった。石面付着物で最高値を示した地点はst. 4で $280\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 、トビケラはst. 5の $1,000\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ であった。

カドミウムおよび銅濃度の変動がみられたst. 2～5における他の元素濃度については、河川水は鉛 $1\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 未満、亜鉛 $4\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 以下、ニッケル $1\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 未

満、マンガン $3\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 以下であった。底質および石面付着物はそれぞれ、鉛 $8.7\sim 11.6$, $13\sim 14\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 、亜鉛 $79\sim 87$, $130\sim 160\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 、ニッケル $13\sim 14$, $21\sim 27\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 、マンガン $480\sim 580$, $820\sim 1,100\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ で、いずれもほとんど変動はみられなかった。トビケラ中のst. 2～5における濃度は鉛 7.4 , 3.2 , 6.6 , $3.7\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 、亜鉛 110 , 100 , 120 , $150\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 、ニッケル 6.6 , 4.4 , 9.3 , $5.7\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 、マンガン 110 , 120 , 170 , $200\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ で、各元素ともやや変動がみられたが、カドミウムおよび銅濃度の増加したst. 3では増加傾向がみられなかった。

この結果から、st. 2とst. 3の間にカドミウムおよび銅の発生源があることが推定された。その後、別の機関の調査により、st. 2とst. 3の間にある某工場からカドミウムおよび銅を含有する工場排水が流出していることが確認された。底質、石面付着物およびトビケラ中のカドミウムおよび銅濃度がst. 3で最高値を示さず、その下流のst. 4あるいはst. 5で最高値を示すのは、排水が河川水に流入後直ちに希釈・拡散されないためと考える。1990年2月その工場排水の放流が停止された。

3.3 発生源の改善後

汚染排水の放流が停止された直前および停止後のst. 2, 3, 5, 6および8における河川水、底質、石面付着物および底質中のカドミウムおよび銅濃度の推移(1990年2月～1992年2月)をFig. 4に示した。

排水放流停止直前のカドミウム濃度の最高値は河川水、底質、石面付着物およびトビケラそれぞれ $0.1\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$, $0.66\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$, $3.0\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$, $5.0\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 、銅ではそれぞれ $1\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 以下, $35\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$, $110\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ および $270\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ であり、1989年11月に比較して底質以外はカドミウムおよび銅とも1/2以下の濃度であった。

排水放流停止後の河川水中のカドミウム濃度は全地点 $0.1\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 未満であった。発生源下流の底質および石面付着物中のカドミウム濃度は6ヵ月後までそれほど減少しなかったが9ヵ月後に一挙に減少し、各地点とも発生源上流のst. 2のレベル(底質 $0.1\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 、石面付着物 $0.3\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)となった。トビケラ中のカドミウム濃度はほぼ経時的に減少し、各地点とも12ヵ月後にはほぼ発生源上流のst. 2のレベル($0.5\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)になった。

排水放流停止後の河川水中の銅濃度は全地点 $1\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 以下であった。底質中の銅濃度は発生源下流では6ヵ月後まで上流に比べわずかに高い傾向を示したが、9ヵ月後に各地点とも発生源上流のst. 2のレベル($30\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 以下)となった。石面付着物およびトビケラ中の銅濃度は高い濃度を示した発生源の近くでは排水放流停止2ヵ月後1/2程度に減少し、カドミウムと同様石

Fig. 4 Cadmium and copper concentrations in water, sediment, periphyton and *Stenopsyche marmorata* after the stop of discharge of the factory wastewater (February 1990–February 1992)

面付着物は9ヵ月後に、トビケラは12ヵ月後に、各地点とも発生源上流のレベル（石面付着物 $30\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 、トビケラ $40\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ ）に近づいた。

河川水中のカドミウムおよび銅濃度は、発生源下流でも上流と全く同じレベルか、発生源に近接した地点でそれより高い程度で、河川水ではこれらの元素によ

る汚染を把握するのが不可能または不十分であった。これは低レベルの汚染のうえ断続的に工場排水が放流されているためと推定される。底質中のカドミウム濃度は、汚染の影響を反映していたが、銅濃度は発生源の下流でやや高い値を示す程度であった。その理由はトビケラや石面付着物（強熱減量11～39%）に比較し

ほとんど無機物である底質（強熱減量2.4～5.3%）に排水中の銅が蓄積しにくいためと考えられる⁹⁾。また、排水放流停止6ヵ月後までカドミウム濃度はわずかに減少した程度であったが、9ヵ月後非汚染レベルに一気に減少した。これは、底質が砂礫状であるため、高い降雨量がしばらくなく流出しなかったが、8～10月の台風による増水のため流出したと考えられる。底質中の銅濃度の減少も同様と考える。石面付着物中の両元素濃度レベルは水生昆虫より常に低いが、底質より高く、両元素による汚染の影響を反映していたと考えられる。

トビケラ中の両元素濃度は各地点とも試料中最も高く、発生源の下流で急激に増加し、発生源から数km離れた地点でも汚染の影響を示した。トビケラは河川水、底質および石面付着物に比べて両元素による汚染を最も顕著に反映しており、発生源を発見するのに最も有効であった。トビケラはカドミウムあるいは銅で低レベルに汚染された水域でこれらの金属を良く濃縮するためと考えられる。ここで、トビケラ中の微量元素がどのくらいの期間の河川水中の微量元素の取り込みを反映しているかについてトビケラの生活史から考察すると、西村⁹⁾の兵庫県円山川の調査では、卵期から蛹期までの日数は非越冬世代（5～9月）では145日、越冬世代では212日（10～4月）、5令の期間はそれぞれ61日、106日である。また、御勢⁷⁾はトビケラ幼虫の体重の変化を奈良県吉野川で観察し、短期間に著しく成長することを示している。今回用いたトビケラ幼虫は5令の中程度の大きさのものであり、これまでの調査からこの河川（水温は円山川と同程度）においても非越冬世代と越冬世代があると推定され、5令でも体重が100mg程度から600mg程度（湿重量）に成長する。これらのことから、今回用いたトビケラ中の微量元素が実際のどのくらいの期間の河川水中の微量元素の取り込みを反映しているかについては、脱皮の影響を考慮しなくても非越冬世代では2ヵ月以下、越冬世代では3ヵ月以下の比較的短期間であると考えられる。今回トビケラ中のカドミウムおよび銅濃度は1989年11月から1991年2月にかけて減少したが、それを裏づけていると考える。1989年11月から1990年2月（排水放流停止直前）の石面付着物およびトビケラ中のカドミウムおよび銅濃度の減少の原因については、工場からの排水量の減少および水温の低下にともなう取り込み量の減少⁸⁾が考えられる。また、トビケラのカドミウムおよび銅の蓄積経路は水経由か食物経由が考えられるが、今回トビケラ中の微量元素濃度が食物と考えられる石面付着物（主成分は珪藻とデトリタス）³⁾と相関がみられることから、食物経由が主であると推定される。

なお、水生昆虫の微量元素の蓄積あるいは微量元素汚染指標についての報告は小山⁸⁾、畠山⁹⁾、光木¹⁰⁾、石崎¹¹⁾等の報告があるが、いずれも鉱山排水の影響を調査したものである。トビケラは鉱山と精錬所による微量元素汚染の指標になるばかりでなく、今回のような小河川における小規模な微量元素汚染をモニタリングする上でも指標生物として有用であることが示唆された。

4. 結 論

1) トビケラ中のカドミウムおよび銅濃度は、同時に採取した河川水、底質および石面付着物中の濃度より高く、両元素による汚染を最も顕著に反映した。

2) 発生源の排水放流停止後、トビケラ中の両元素濃度はほぼ経時的に減少し、1年後非汚染レベルとなった。

3) このモニタリングの事例において、トビケラは河川水、底質および石面付着物より、河川水中の微量元素汚染実態をより正確に反映しているので、両元素の優れた汚染指標生物となることを明らかにした。

謝 辞

この調査を企画、実施するにあたって、御指導、御協力をいただいた東京都立衛生研究所多摩支所押田裕子主任研究員、有賀孝成主任研究員、同毒性部加納いつ参事研究員、同故大橋誠前所長、寺山武博士、山岸達典博士、中山弘子氏、帆刈祥弘氏に深謝します。また、論文をまとめるにあたり御指導いただいた二島太一郎多摩支所長に感謝いたします。

（原稿受付 1994年6月6日）

（原稿受理 1994年7月25日）

引 用 文 献

- 1) 津田松苗 (1959) 川の底棲動物の現存量をめぐる諸問題 特に造網型昆虫の重要性について、日本陸水学雑誌, 20, 86-91.
- 2) 森下郁子 (1978) 生物から見た日本の河川, 56pp., 山海堂, 東京.
- 3) 西村登 (1985) ヒゲナガカワトビケラの生態, インセクトリウム, 22, 232-239.
- 4) 栃本博, 押田裕子, 菊地洋子, 笹野英雄, 中村弘, 松本昌雄 (1981) 河川の重金属汚染指標としての水生昆虫, 東京都立衛生研究所年報, 32-1, 296-303.
- 5) 環境庁水質保全局水質管理課編 (1979) 底質調査方法とその解説, (財)日本環境測定分析協会, 東京.
- 6) 下川洪平, 加藤邦夫, 渡辺恵人 (1983) 河川底質中の重金属について, 衛生化学, 29, 45-62.
- 7) 御勢久右衛門 (1974) 奈良県吉野川における底生動物の生態学的研究 II. 吉野川における底生動物の生産速度について, 淡水生物, 20, 1-22.
- 8) 小山次郎, 小林紀男 (1986) 底生動物と河川水間の重金属の

- 量的関係, 水質汚濁研究, **9**, 793-797.
- 9) 畠山成久(1987) 水生昆虫コカゲロウにおける重金属の蓄積, 国立公害研究所シンポジウム「水域における生物指標の問題点と将来」, 91-99.
- 10) 光木偉勝, 小川剛, 深田哲右(1988) 底生動物における重金属汚染指標種の検索, 兵庫県公害研究所研究報告, **20**, 29-34.
- 11) 石崎修造, 山之内公子(1987) 佐須川と瀬川の底生動物相とカゲロウ中の重金属濃度, 長崎県衛生公害研究所報, **30**, 46-52.