〈論 文〉

魚類に及ぼすアニオン性ならびにノニオン性ポリアクリ
ルアミド系高分子凝集剤の亜急性毒性

Long-term toxicity of anionic and nonionic polyacrylamide flocculants to fish

田 端 健 二* 石 橋 矩 久**
Kenji TABATA* Norihisa ISHIBASHI**

Abstract

The toxicity of 7 polyacrylamide flocculants (A~G) was tested on fish. The 48-h LC_{50} of A and B (nonionic) to carp (*Cyprinus carpio*), goldfish (*Carassius auratus*) and Japanese killifish (*Oryzias latipes*) were high, and those of C, E and G (anionic) were low to some extent, but the range of the values was between 150 and 530 $mg \cdot L^{-1}$. Nevertheless, 48-h LC_{50} of C to nibblers (*Girella punctata*) in sea water was 840 $mg \cdot L^{-1}$.

Safe concentrations and application factors of the flocculants to fish were estimated through the long-term toxicity tests. These values of C, D and E were small to carp and goldfish, that is, safe concentration of C was less than 8 $mg \cdot L^{-1}$, those of D and E were 2~10 $mg \cdot L^{-1}$, and application factors of these flocculants were 0.01~0.03. No effect was observed on nibblers in sea water with 84 $mg \cdot L^{-1}$ of C during 14 weeks.

Reduced specific viscosity of the flocculants was measured, dissolving them into the fresh water used in toxicity tests. Moreover, the viscosity of C was measured in sea water. It was lower than in fresh water. There are the tendencies that 48-h LC_{50} and safe concentration of anionic and nonionic flocculants decrease as the viscosity.

Key words: flocculant, anionic polyacrylamide, long-term toxicity, fish, viscosity

1. 緒 言

水生生物に対する高分子凝集剤の急性毒性については、比較的多くの測定値がある¹⁻⁴⁾。しかし、亜急性、慢性毒性に関するものは少なく、カチオン性高分子凝集剤について、ニジマス、淡水産アミ類、ミジンコ⁵⁾、アニオン性について、ニジマス、ファットヘッドミノ⁶⁾、ノニオン性についてヒメダカ³⁾などの飼育実験の結果が報告されているに過ぎない。

著者らは、高分子凝集剤が固液分離の処理水に残存するなどして環境水中に放出された場合を想定し、アニオン性ならびにノニオン性ポリアクリルアミド系高分子凝集剤7種について急性毒性を測定した。また水

処理分野における使用量の多い3種については、コイの4週飼育実験、メジナの14週飼育実験などを行ない、亜急性毒性の強さを求めた。さらに、高分子凝集剤の毒性と物性との関係をみるために、毒性実験の稀釈水と同質の水に高分子凝集剤を溶解させて、比粘度、還元比粘度を求めて考察した。その結果、若干の知見が得られたので報告する。

2. 実験材料

2.1 高分子凝集剤

実験材料として Table 1 の市販高分子凝集剤 A~G 7種類を、成分、物理化学的性質、使用量など考

* 東海区水産研究所 〒104 東京都中央区勝どき5-5-1, Tokai Regional Fisheries Research Laboratory, 5-5-1 Kachidoki, Chuo-ku, Tokyo 104 Japan

** 日本栽培漁業協会玉野事業場 〒706 岡山県玉野市築港5-21-1, Japan Sea Farming Association, Tamano Station, 5-21-1 Chikko, Tamano-shi. Okayama 706 Japan

Table 1 Polyacrylamide flocculants for experimental materials and their chemical properties

flocculants	agencies	components	ionic properties	hydrolysis ratio in polyacrylamide	molecular weight
A	X	partially hydrolyzed PAA	nonionic	3 — 5 %	10 x10 ⁶
B	Y	"	"	5	20 — 30
C	X	"	anionic	20	10
D	Y	"	"	20	20 — 30
E	Y	"	"	30	20 — 30
F	Y	"	"	50	5 — 6
G	Y	sodium salt of polyacrylic acid	"	100	2 — 3

慮して選定し、1974年から1976年にかけて入手した。表中の記載事項は製剤に添付された資料から引用した。イオン性については、通常、ポリアクリルアミド部分加水分解率（以下、加水分解率と略記する）5%以下の弱アニオン性がノニオン性として市販されている⁷⁾慣例に従い、高分子凝集剤AとBはノニオン性とした。残存モノマー含有量は0.2%以下⁷⁾、Cd, Pb, Hgなどの有害重金属も浄水場スラッジ処理用規格の規制値以下⁷⁾である。

2.2 供試生物

供試生物としてコイ、ワキン、ヒメダカ、メジナの4種を選定した。コイ *Cyprinus carpio* は神奈川県淡水魚増殖試験場から分譲された幼魚で、平均体長5.8 cm、平均体重は4.7 gであった。ワキン *Carassius auratus* は金魚商から購入した当才魚である。コイ、ワキンとも、屋外池で2～3週飼育したのち、実験に用いた。ヒメダカ *Orizias latipes* は養魚業者より購入し、屋外池で3ヶ月ほど飼育したもので、供試直前の平均体重は0.25 gであった。メジナ *Girella punctata* の幼魚は横須賀市長井町の磯で採集し、屋外流水池で十分に飼育したもので、実験開始直前には、平均体長7.3 cm、平均体重7.7 gであった。

3. 実験方法

3.1 高分子凝集剤原液の作製

高分子凝集剤A～Gはいずれも粉末である。実験に際しては、水1ℓに粉末10gの割合で、攪拌機により水面に形成される渦巻の中心部に、ごく少量ずつ添加したのち、20～30rpmの低速で6～8時間、注意深く攪拌して溶解し、無色透明の供試原液を作製した。

3.2 LC₅₀の測定

4種の供試生物を用い、常法⁸⁾に準じて24-h、48-h LC₅₀を測定した。高分子凝集剤原液を希釈して、相隣なる濃度間隔がほぼ $\sqrt{2}$ 倍系列の試験水を作製した。

稀釈水として、淡水魚の実験には脱塩素ずみの横須賀市上水道水（pH7.0～7.2、硬度62～67mg・ℓ⁻¹）を、メジナの実験には砂・活性炭汙過した相模湾海水（塩素量18.2‰）を用いた。各濃度の試験水量はコイの実験では40ℓ、ワキンで30ℓ、ヒメダカで4ℓ、メジナで120ℓを用い、軽くエアレーションを行ないながら24時間ごとに同濃度の水で全交換した。おのおのの試験水に供試魚10尾を放った。水温はコイ、ヒメダカの実験では25±1℃、ワキンで20±1℃、メジナで18±1℃に保ち、溶存酸素は5.5mg・ℓ⁻¹以上を保持した。

3.3 長期飼育実験

コイ、ワキン、メジナを用い、それらの長期飼育による成長量、摂餌量などの変化から、高分子凝集剤の亜急性的影響限界濃度を求めた。飼育期間は、コイ、ワキンの実験では4週、メジナでは14週であった。試験水の換水はコイの実験では24時間ごとに全交換する方法によったが、ワキンとメジナでは定濃度流水式装置⁹⁾によった。すなわち、高分子凝集剤原液を10倍に希釈して二次原液を作り、ローラー型微量定量ポンプでそれぞれの混合槽に連続的に分注した。同時に稀釈水を定量サイホンで混合槽に注入し、軽いエアレーションで原液を均一に希釈、混合して、それぞれ所定の段階濃度の試験水を作製した。これらの試験水を換水率6 times・d⁻¹でおのおの実験水槽に連続注入し、供試魚10尾ずつを放った。実験水槽の容量はワキンで30ℓ、メジナで60ℓであり、水温ならびに稀釈水の水質はLC₅₀測定の場合とはほぼ同一である（メジナの実験では、塩素量18.2～18.7‰、水温17～20℃の範囲であった。）飼育中の餌料として、コイ、ワキンにはイトミミズを、メジナにはウナギくろ仔用練餌（水分約50%）をいずれも1日1回、飽食するまで与えた。

3.4 そのほかの毒性実験

このほか、コイの酸素消費量、ヒメダカの短期間（7日）飼育による摂餌量の変化から高分子凝集剤の影響

を追及する実験を行なった。

コイの4週飼育実験中に計5回、各濃度ごとに飼育中のコイの全尾数を5000ml容の流水式呼吸量測定装置に注意深く移し換え、 $350\text{ml}\cdot\text{min}^{-1}$ の流速で通水してコイを1時間測定容器に馴らしたのち、注入水、流出水の溶存酸素量をDOメーターで測定し、コイによる酸素消費量を求めた。(この測定日には、測定終了後に給餌した。)

7日間飼育に伴うヒメダカの摂餌量の変化をみるために、各濃度区の試験水20ℓに平均体重0.26gのヒメダカ40尾ずつを放った。試験水は24時間ごとに全交換した。水温は $25\pm 1^\circ\text{C}$ であった。各実験水槽には毎朝魚体重の約20%に相当する割合でイトミミズを与え、2時間後に食残し分を回収した。給餌前と後のイトミミズは、いずれも汚紙上に暫時放置して水分を吸収させてから重量測定を行ない、前後の重量差をヒメダカが摂餌した量とした。これらの値を7日間集計し、魚体重1kg、1日当りの摂餌量を求めた。

3.5 粘度の測定

毒性実験用の人工淡水の組成⁹⁾のうち、Ca, Mg, K塩の含量を同じ比率で増加させて、硬度 $65\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ の人工淡水を作製し、これにより凝集剤原液を希釈して、種々の段階濃度の試験液を調製した。また純水にアクアマリン(八州薬品製)を溶解させて、塩素量18.19%の人工海水を作成し、同様に試験液を調製した。改良型オストワルド動粘度計を $30.1\pm 0.005^\circ\text{C}$ に設定された恒温水槽中に浸漬して、粘度を測定した。粘度計中における試験液と空試験液(人工淡水または人工海水)との流出時間の差を空試験液の流出時間で除して比粘度を求め、これを試験液100ml中の高分子凝集剤のg数で除して還元比粘度を求めた¹⁰⁾。

4. 結果と考察

4.1 高分子凝集剤Cのコイに対する急性、亜急性毒性

加水分解率20%のアニオン性高分子凝集剤Cは、埋

立、浚渫における余水の浮泥沈降促進剤などとして、一般的に、多く使用されているようである。

高分子凝集剤Cの $560\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ から $140\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ までと対照の6段階濃度の試験水についてコイに対する急性毒性を測定した。Cの致死作用はかなり緩慢であり、試験開始後6時間までの観察では、 $560\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ の粘調な水中でコイの全尾数の生存が認められた。設定された濃度の中で、24時間後に供試魚の全数が斃死した最低濃度は $400\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ で、48時間後に全数が生存していた最高濃度は $200\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ であった。24-h LC_{50} は $300\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 、48-h LC_{50} は $250\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ という値が得られた。

亜急性毒性の測定結果をTable 2に示した。Table 2によれば、高分子凝集剤Cは $8\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ においてもコイの増重量、摂餌量、餌料効率に影響を及ぼしていることが判明した。このほか飼育終了時のC 80, 25, $8\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 濃度区と対照区において、コイの平均体長はそれぞれ5.7, 5.9, 5.9, 6.5cmであり、Cは体長増加に対しても影響を及ぼしていることが分かった。

亜急性毒性測定中のコイを用いて、粘調な試験水中での酸素消費量の変化を調べた結果がFig. 1である。これによれば、実験開始2時間後には、C $80\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ に

Fig. 1 Effects of flocculant C upon oxygen consumption by carp.

Table 2 Effects of flocculant C on carp through 4 weeks breeding experiment

concentration of flocculant C	numbers of survival fish		total fish weight		increase in total fish weight	amount of food eaten	food conversion efficiency
	before experiment	after experiment	before experiment	after experiment			
$80\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	10	8	47.0 g	$38.0\pm 7.4^*\text{g}$	-1.6 g	7.7 g	— %
25	10	7	44.0	$39.0\pm 10.0^*$	5.0	109	4.6
8	10	10	44.5	54.0	9.5	146	6.5
0	10	10	47.0	70.0	23.0	219	10.5

*) total weight of dead fish during experiment

おいても、コイは対照区とほぼ同じレベルで溶存酸素を消費した。しかし7日以降の測定においては、消費量が減少した。C $8 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ におけるコイの酸素消費量は21日以降の測定で減少した。

4.2 高分子凝集剤B, Dのワキンに対する急性, 亜急性毒性

前項のコイの実験と比較するため、Cとは加水分解率は同じで、メーカーの異なるDと、ノニオン性のBについて、ワキンを用いて急性, 亜急性毒性を測定した。

Cのコイに対すると同様に、B, Dの致死作用は緩慢で、ともに $500 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ の濃度では6時間を経過しても供試魚の全数が生存した。24-h, 48-h LC_{50} は、それぞれBで $440, 410 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$, Dで $440, 350 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ となった。

亜急性毒性の測定結果をTable 3に示す。(表中の実験1と実験2とは実施時期が若干ずれている。)設定された全濃度区において、ワキンの生残率は100%を示した。Table 3によれば、B $30 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$, D $10 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ の濃度区では、対照区に比べてワキンの増重量, 摂餌量に明瞭な影響が認められた。

4.3 高分子凝集剤A, C, E, F, G, のヒメダカに対する急性毒性など

E, F, G, など加水分解率の大きいアニオン性高分子凝集剤は水処理にあまり使用されないものの、それらの物性と毒性との関係を知る目的から、ヒメダカを用いて実験を行なった。また比較のために、A, Cについても、ヒメダカに対する毒性を調べた。

24-h LC_{50} ならびに48-h LC_{50} の測定結果は、それぞれAでは 550 と $530 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ であり、同様にC $200, 180 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$, E $180, 180 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$, F $250, 250 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$, G $150, 150 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ であった。なお試験水のpH範囲はGが最も高く $8.6 \sim 7.7$ で、その他の凝集剤は $7.9 \sim 6.7$ に含ま

れた。

前出のTable 3によれば、高分子凝集剤がワキンに影響を及ぼしたB $30 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ とD $10 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ の濃度では、まず1週の摂餌量(10尾, 7日間の合計量)にその影響が現れ、これが4週まで継続し、結果として増重量の低下につながっているであろう。すなわち、これら高分子凝集剤の毒性を知るには、7日までの摂餌量がある程度の目安になるように思われる。それゆえ、まだ亜急性毒性の測定されていない高分子凝集剤EとFについて、ヒメダカの7日間摂餌量に及ぼす影響を調べた。(Gは試験水中において徐々にガム状の不溶性物質を形成するため、この実験から除外した。)

実験結果をFig. 2に示す。これによれば、Eは $6 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ で明らかに影響を及ぼしたが、Fは $60 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ においても影響を及ぼさなかった。

4.4 高分子凝集剤Cのメジナに対する急性, 亜急性毒性

高分子凝集剤Cは埋立, 浚渫などにしばしば使用されるため、海域環境への混入が予想される。前述の淡水魚による実験では、Cは比較的低濃度まで亜急性毒性が認められたため、次に海産魚メジナの幼魚を用いて急性, 亜急性毒性を測定した。

その結果、24-h, 48-h LC_{50} はコイに比べて大きく、いずれも $840 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ となった。なお $1400 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ では24時間以内に供試魚の全数が斃死し、 $500 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ では48時間で全数が生存した。

次に亜急性毒性を測定した。Cの濃度は $84, 30, 10, 3, 1 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ とした。(最高濃度として $100 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ が設定されたが、粘性のため定量ポンプによる注入量が所定値より減少し、実際の注入量は $84 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ と計算された。)なお、 30 と $10 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ の濃度区では、6週の飼育に入ったとき、事故により断水したため、5週までで実

Table 3 Effects of flocculant B and D on goldfish through 4 weeks breeding experiment

No. of experiments	flocculants and their concentrations	total fish weight			amount of food eaten					food conversion efficiency
		before experiment	after experiment	increase in total fish weight	1	2	in 3 weeks	4 weeks	through 4 weeks	
No. 1	B $10 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$	26.7 g	54.3 g	27.6 g	25.3	32.0	36.1	30.7g	124g	22 %
	B 3	27.0	52.6	25.6	22.6	30.1	34.7	29.6	117	22
	B 1	26.0	48.1	22.1	22.8	30.9	31.1	26.1	111	20
	control	25.5	50.8	25.3	24.9	30.7	31.9	28.1	116	22
No. 2	B $30 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$	32.0 g	41.9 g	9.9 g	16.1	18.6	15.3	15.2g	65g	15 %
	D 10	31.5	40.0	8.5	19.9	26.8	22.2	19.8	89	11
	D 3	32.5	55.3	22.8	28.5	40.3	39.7	33.4	142	16
	D 1	32.9	55.1	22.2	28.2	35.8	39.5	39.2	143	16
	control	31.1	49.9	18.8	27.3	33.9	31.8	31.8	125	15

Table 5 Acute and subacute toxicity of flocculants on fish

flocculants	name of fish	water for dilution	water temperature	LC ₅₀		effects in lower range than LC ₅₀			application factor
				24-h	48-h	breeding period	method	concentration	
A	<i>O. latipes</i>	fresh water	25°C	550 mg·L ⁻¹	530 mg·L ⁻¹				
B	<i>C. auratus</i>	"	20	440	410	weeks 4	F, W	10—30 mg·L ⁻¹	0.02—0.07
C	<i>C. carpio</i>	"	25	300	250	weeks 4	F,G,O	< 8	< 0.03
C	<i>O. latipes</i>	"	25	200	180				
C	<i>G. punctata</i>	sea water	20—17	840	840	weeks 14	F, G	> 84	> 0.1
D	<i>C. auratus</i>	fresh water	20	440	350	weeks 4	F, W	3—10	0.01—0.03
E	<i>O. latipes</i>	"	25	180	180	days 7	F	2—6	0.01—0.03
F	<i>O. latipes</i>	"	25	250	250	days 7	F	> 60	> 0.24
G	<i>O. latipes</i>	"	25	150	150				

*) F; amount of food eaten
 W; increase in fish weight
 G; increase in fish growth
 O; amount of oxygen consumption by fish

4.6 比粘度と還元比粘度

このような高分子凝集剤の性能と魚類に及ぼす毒性の関係をj知るため、凝集性能をあらわす尺度として一般に用いられる粘度をとり上げ、常法¹⁰⁾により比粘度、還元比粘度を測定した。

Fig. 3 は、人工淡水に溶解させた高分子凝集剤 A～G に関する比粘度の測定結果を、Table 1 から引用した加水分解率との関連において示したものである。Fig. 4 は、人工海水に溶解させた高分子凝集剤 C の測定結果を含めて、これらを還元比粘度で示したものである。

これらの結果から、人工淡水に溶解させた高分子凝集剤 A～G について比粘度および還元比粘度を比較すると、加水分解率 20～30% の C, D, E ならびに 100% の G が高い。一方、人工海水中の C の還元比粘度は著しく低い。なお、還元比粘度の値も高分子凝集剤濃度とともに幾分変化し、加水分解率の大きい高分子凝集剤ほど、濃度とともに還元比粘度の増加する割合が大きい。

4.7 粘度と毒性の関係

以上の実験データにもとづき、還元比粘度と、48-h LC₅₀、亜急性的影響限界濃度との関係を示したのが Fig. 5 である。還元比粘度は各段階濃度の凝集剤溶液の比粘度を 1% 濃度当りに換算したものであるが、そ

Fig. 3 Specific viscosity of the flocculants dissolved in fresh water (hardness 65 mg·L⁻¹).

これらの値に若干の濃度依存性が認められたため、おのおの毒性実験値に相当する濃度の還元比粘度を Fig. 4 から読みとり、これらを Fig. 5 にプロットした。(ただし G については、Fig. 4 において実測点より E, F と同一勾配の直線を引き、それにより推定値を求めた。)

Fig. 4 Reduced specific viscosity of the flocculants dissolved into fresh and sea water.

Fig. 5 Relationship between toxicity and reduced specific viscosity of flocculants.

Fig. 5によると、まず急性毒性については、高分子凝集剤の還元比粘度が大きいほど48-h LC_{50} の値は小さくなる傾向が認められる。図中の直線はヒメダカの実験値のみに適合させたものである。他の淡水魚による実験値も、魚種、大きさ、水温の違いによると思わ

れるばらつきはあっても、ヒメダカの直線に近くプロットされた。高分子凝集剤Cは海水中で急性毒性が弱まったものの、還元比粘度も低下し、メジナの実験値がヒメダカの直線に近くプロットされた。一般の毒性物質に対して感受性が高いといわれるサケ科の淡水魚や2, 3の海産魚について、今後この直線に対する適合性を検討する必要がある。なお、Fig. 5における種々の48-h LC_{50} について、それらに相当する還元比粘度を比粘度に換算すると、ワキンが2.46と3.29で大きいものの、コイとヒメダカは1.31~2.17の範囲となる。メジナは1.60でコイ、ヒメダカの範囲に含まれる。

次に亜急性毒性については、測定方法の相違、実験値が少ないこと、その限界値の上限と下限の巾が大きいことなどのために、その影響限界濃度と還元比粘度との関係は急性毒性の場合より幾分不明瞭となる。傾向としては LC_{50} とほぼ同様なものの、還元比粘度の増加に伴う影響限界濃度の低下の割合が LC_{50} より著しいようにも見受られる。B, D, Eについて亜急性の影響限界濃度に相当する還元比粘度を比粘度に換算すると、それぞれ0.05~0.14, 0.02~0.06, 0.01~0.03となる。これらを巨視的に集約すると、影響限界となる比粘度は0.01~0.1の桁といえよう。しかし、海水中におけるCについては、0.17以上という値になる。

近年わが国でコイを用いて多くの有機化合物の濃縮性試験が行なわれているが、分子量 10^4 以上の高分子物質で顕著な濃縮性を示した実験例はない¹²⁾ようである。この理由として、鰓または腸管を通過しうる分子の大きさに限界があること、脂質への溶解性が悪くなることなどが考えられる¹²⁾としている。高分子凝集剤についても、ダイアクリラーMA(アニオン性)のコイによる濃縮度試験が行なわれているが、表皮や消化管内容物などを含めた魚全体の分析でも、濃縮係数は0.26~0.41という値⁷⁾にすぎなかった。またSeparan AP30を投与したラットの部位別分析では、体内へはほとんど摂り込まれなかった⁶⁾。カチオン性高分子凝集剤はアニオン、ノニオン性に比べてはるかに毒性が強く、淡水魚に対する24~48-h LC_{50} は $1 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 前後^{11,2)}を示すが、このカチオン性のダイアクリラーMK4000で斃死したコイの血液ガス分析と鰓の観察によると、死因は鰓の交換機能の障害による外的窒息であろうと推察された¹³⁾。無機凝集剤として用いられるアルミニウム塩の $0.52 \text{ mg} \cdot \text{Al} \cdot \text{l}^{-1}$ により、ニジマスは鰓に増生(hyperplasia)が生じて繊毛が融合し、呼吸困難となった¹⁴⁾。

これらの知見から類推して、アニオン性、ノニオン性高分子凝集剤の魚類への作用は、鰓などの魚体表面を通じて体内に取り込まれる蓄積毒のようなものでは

なく、カチオン性高分子凝集剤や無機凝集剤の場合に類似した鰓への外的呼吸障害の症状が、高濃度では急性的な致死作用として発現し、また低濃度では呼吸困難状態をもたらして、摂餌量の減退や酸素消費量の低下という形で発現したのであろうと推察される。さらに著者らの毒性と粘性との関係の知見も勘案すると、鰓に対する外的障害とは、おそらく高分子凝集剤の粘性によるガス交換不能、もしくは凝集性による鰓の上皮細胞の変化、分泌物の凝固などではなかろうか。(カチオン性高分子凝集剤まで含めると、それらの毒性の強弱は単に粘度のみでは説明しえないであろう。アニオン、カチオンのイオン性にもとづく鰓への作用の相違など関与するかも知れない。)

固液分離処理に使用された高分子凝集剤は、一般的にはその大部分が凝集反応に加わり固形分に吸着される^{7,13)}と考えられる。したがってその通常の使用濃度からみて、高分子凝集剤の環境水域での存在濃度はかなり稀薄であろうと推測されるものの、著者らの毒性実験の結果にも留意し、過剰、不用意な使用など避けることが望まれる。

5. 要 約

市販のアニオン性、ノニオン性ポリアクリルアミド系高分子凝集剤7種(A~G)のコイ、ワキン、ヒメダカによる48-h LC₅₀は、ノニオン性のA, Bが大で、アニオン性のC, E, Gが小という相違はあるが、いずれも150~530mg・l⁻¹の範囲に含まれた。海水中におけるCの48-h LC₅₀は、メジナに対して840mg・l⁻¹という高い値を示した。

長期飼育実験による亜急性的影響限界濃度は、コイ、ワキンなどに対してはCは8 mg・l⁻¹以下、D, Eは2~10mg・l⁻¹と小さく、適用係数も0.01~0.03という小さい値であった。メジナの14週飼育実験では、Cは84 mg・l⁻¹でも影響を及ぼさなかった。

毒性実験と同質の水中で測定した還元比粘度が高い凝集剤ほど、48-h LC₅₀、亜急性的影響限界濃度は低い値を示す傾向が認められた。なお、海水中におけるCの還元比粘度は、淡水中に比べて著しく低い値を示した。

謝 辞

本研究に対して、東海区水産研究所 町田喜弘 前・水質部長には終始懇切なる御指導を賜わり、本文のとりまとめに際しては、東京都公害研究所 川原 浩水質部長より有益な御助言を賜わった。また、高分子凝集剤懇話会に加盟する数社の技術担当者からは高分子凝集剤に関する種々の御教示を得た。以上の方々に厚く

感謝の意を表する。

(原稿受理 昭和59年3月6日)

引用文献

- 1) 田端健二・酒井昭四郎(1970)水産生物に及ぼす高分子凝集剤の毒性について、水処理技術, **11**(5), 29-33.
- 2) 宮永信幸・堀川武夫・坪内 彰・植山洋一・塩谷勝夫(1977)水中における高分子凝集剤の残留性とその毒性, 水処理技術, **18**(4), 33-42.
- 3) 中島文夫・黒沢義乗(1965)水処理薬剤の毒性に関する研究(I), 用水と廃水, **7**(2), 109-112.
- 4) 須藤俊造・相良順一郎・小川良徳・梅林 脩・月館潤一(1968)浮泥の一沈降促進剤(商品名 シルトフロック)の海産生物に対する影響, 水産増殖, **16**(3), 151-161.
- 5) Biesinger, K.E., Lemke, A.E., Smith, W.E. & Tyo, R.M. (1976) Comparative Toxicity of Polyelectrolytes to Selected Aquatic Animals, *Jour. WPCF*, **48**(1), 183-187.
- 6) McCollister, D.D., Hake, C.L., Sadek, S.E. & Rowe, V.K. (1965) Toxicologic Investigation of Polyacrylamides, *Toxicology and Applied Pharmacology*, **7**, 639-651.
- 7) 高分子凝集剤懇話会(1976)ポリアクリルアミド系(ノニオン, アニオン性)高分子凝集剤の安全性について, 1-27.
- 8) 日本水産資源保護協会編(1980)新編水質汚濁調査指針, 377-390. 恒星社厚生閣.
- 9) 日本分析化学会関東支部編(1974)公害分析指針別巻水・土壌編, 41-73, 共立出版.
- 10) Sorensen & Campbell (星野・依田訳)(1967)高分子合成実験法, 29-35, 化学同人社.
- 11) 芝原康夫(1972)高分子凝集剤の新展開, 高分子加工, (1972-11) 713-719.
- 12) 北野 大(1982)生物濃縮に関する2, 3の考察, 海洋における生物濃縮とそれに影響を及ぼす因子(放医研環境セミナーシリーズ), 36-44, 技術寄与研究会.
- 13) 高分子凝集剤懇話会(1978)ポリアクリルアミド系(カチオン性)高分子凝集剤の安全性について, 1-32.
- 14) Freeman, R.A. & Everhart, W.H. (1971) Toxicity of Aluminum Hydroxide Complexes in Neutral and Basic Media to Rainbow Trout, *Trans. Amer. Fish. Soc.*, **100**(4), 644-658.