

学 位 論 文 要 旨

(Summary of the Doctoral Dissertation)

学位論文題目 (Dissertation Title)	Microplastic pollution in the marine and riverine environments in Yamaguchi: Abundances and distributions, sources-to-sinks, and ecological risks 山口の沿岸と河川環境中のマイクロプラスチック汚染: 量と分布、流出過程、生態リスク
氏 名 (Name)	KABIR A. H. M. ENAMUL

Microplastic pollution is a growing concern for planetary health. Japan, one of the mega economies of the world, has recognized the microplastic pollution as the paramount problem. The Japanese Seto Inland Sea (SIS) and Sea of Japan (SJ) are regarded as microplastic pollution hotspots. Out of the 47 prefectures of the country, Yamaguchi prefecture is surrounded by both the SIS and SJ, which was my study area. In the year of 2018, Ministry of the Environment of Japan reported largest amount of marine litter in the Yamaguchi prefectural coasts among all other prefectures. However, microplastic pollution information were unknown so far in the prefectural marine environmental contexts. For the first-time, microplastic pollution along the SIS and SJ coastal areas in the prefecture were explored in my research. High-level pollution was found in comparison to other marine environments worldwide. The microplastic types (shapes-sizes-colors-polymers) were different both in environmental matrices (marine water and sediments) and spatial scales (SIS and SJ areas). Small microplastic fragment particles (<1000 μm) dominated sediment and large microplastic fibers (1000-5000 μm) were major in water along with the diverse polymers. Sediments were more polluted than water which might be due to complex biophysical reasons. According to the field survey, it was likely that the Japan land-sources might affect the SIS while the regional territory might affect the SJ through transboundary fluxes of (micro-)plastics alongside the domestic sources. Overall, microplastic pollution assessment results indicated threats to these marine ecosystems. Thus, this study opened the ways for further studies towards the pathways of microplastic pollution sources-to-sinks.

While studying source-to-sink pathways, we discovered that small-scale Japanese rivers were highly polluted with microplastics compared to reported larger rivers around the world. This appeared to be the first study filling the literature gaps about small-scale river microplastic pollution. Microplastics characterization revealed that particles <1000 μm in size, fibers and fragments, and diverse polymers were dominant in river surface water. A new dominant polymer 'Vinylon' was identified. This polymer was invented in Japan and is being commonly used in industries, agricultures, fisheries etc. We were first to identify and report it. Apart from this, the small-scale rivers acted as the key transportation pathways responsible for SIS and SJ marine pollution emitting billions and tons microplastics sourced from Japan lands. Though the river basins were small at size, they were highly significant in generating microplastics and influencing marine pollution. In contrast, rivers were not the linear pathways to release them in the marine realm. We addressed Knowledge gaps regarding the retained microplastics in river sediments. Large particles (>1000 μm), fragments and films, high-density polymers dominated in sediments which were different from surface water compartmental

(和文 2,000 字程度 / 英文 800 語程度)
(about 800 words)

microplastics. We observed that river microplastics underwent weathering processes and contained metal contaminants onto microplastics particle surface which could pose synergistic hazards. This study filled preliminary knowledge gaps within river and marine microplastic pollution, fate and transportation with global relevance.

What's more, the questions— what risks and ecotoxicological threats of the pollution were applicable to freshwater and marine ecosystems including human populations. Despite the microplastic abundances reported widely, knowledge of ecological risks remained unknown. To address ecological risks and contribute to methodological challenge, we developed risks assessment formulae. Using the formulae, we empirically derived that, 'the higher were the abundances of microplastics and toxic polymers, the higher were the pollution levels and risks' at any particular ecosystem. Deploying our risks assessment models, the ecological risks of microplastic pollution were found variably low to high. Downstream areas of the rivers ranked high risk compared to the upstream. Human exposures to microplastics were speculated unavoidable through various ecosystem pathways— drinking water supplies, food commodities, fishery, agriculture etc.

Overall, this Doctoral research developed new insights— i. addressed knowledge gaps in microplastic pollution occurrences within marine and freshwater systems; ii. filled the knowledge gap about small-scale rivers; iii. identified a new abundant polymer in Japan; iv. investigated prominent source-to-sink pathways in Japan; v. developed ecological risk assessment formulae. This dissertation will contribute to develop microplastic pollution control and management strategies for Japan and beyond in light of the popular philosophy "thinking globally and acting locally".

(様式 9 号)

学位論文審査の結果及び最終試験の結果報告書

山口大学大学院創成科学研究科

氏 名	Kabir A. H. M. Enamul
審査委員	主 査： 関 根 雅 彦
	副 査： 朝 位 孝 二
	副 査： 今 井 剛
	副 査： 樋 口 隆 哉
	副 査： 鈴 木 祐 麻
論文題目	Microplastic pollution in the marine and riverine environments in Yamaguchi: Abundances and distributions, sources-to-sinks, and ecological risks (山口の沿岸と河川環境中のマイクロプラスチック汚染：量と分布，流出過程，生態リスク)

【論文審査の結果及び最終試験の結果】

水環境の $1\mu\text{m}\sim 5\text{mm}$ のマイクロプラスチック（以下、MPs）による汚染が近年急速に注目を集めている。特に海洋における MPs 汚染実態は世界的に多くの知見が蓄積されているが、淡水域の汚染実態や、発生源から海洋に至る流出過程、生態リスクなどについての知見はほとんどない。我が国においては海域の汚染実態すら情報が限られており、山口県における情報は皆無である。本研究では初めて山口県沿岸と河川で水中、堆積物中の MPs を調査し、その量・質と分布，流出過程，生態リスクを論じた。

まず、瀬戸内海(SIS)から日本海(SJ)に至る 4 箇所の海浜砂とその前面の沿岸水の MPs 含量と粒径・形状・材質を調査した。その結果、SIS と SJ では同程度の MPs が海浜砂や沿岸水に含まれているが、海外と比較すると高めであること、検出された MPs はポリエチレン (PE)、ポリプロピレン (PP)、ポリエチレンテレフタレート (PET)、ポリビニルアルコール (PVA) が優占するが、PVA は海浜砂にのみ含まれていること、海浜砂中の MPs は小さく軽い破片状またはフィルム状のものが多く、沿岸水中には繊維状のものが多く、海浜砂中の MPs は劣化が進行していると推察されること、SJ と SIS の違いは沿岸水では見られないが、海浜砂は SJ ではほぼすべて破片状で最も軽い PP が優占し、SIS ではフィルム状が多く PE が優勢となることを示し、その形状と比重から SIS は国内河川由来、SJ は海外由来が多いと推察した。

次に、都市化した真締川、綾羅木川と農地や山林が多い栗野川、厚狭川の流下過程の複数地点で河川水、堆積物中の MPs を調査し、都市だけでなく山林農地からも MPs が排出されていること、河川水には繊維状、堆積物にはフィルム状・破片状が多いこと、沿岸域とは逆に河川水中の粒径は堆積物中の粒径より小さく、劣化が進行していないと思われること、材質の種類は沿岸域より格段に多く、ポリ塩化ビニル(PVC)など比重の大きなものが堆積物に移行していること、PVC は河床堆積物 MPs 量のマーカーとなり得ること、農地などを経て

都市域に達した時点で河床堆積物中の MPs 量が最大となり、都市域を流下するにつれて河床堆積物中の MPs 量は減少する傾向があることなどを示した。また MPs の材質ごとに異なる高分子危険性指数(PHI)を検出個数で重みづけした生態リスク指数(ERI)を提案し、ERI は MPs 量とは相関がなく、都市域で高くなる傾向があること、河川水や河床堆積物には PHI の高い成分が含まれるが、沿岸水や海浜砂にはそれらは含まれていないことを明らかにした。さらに、FTIR と SEM-EDS により MPs の劣化が検出できること、劣化により重金属やその他の汚染を媒介する可能性があることを例示した。

以上より、いまだに不明点が多い MPs 汚染の山口県の現状と流出過程、危険性について多くの新しい知見を加え、MPs 汚染の管理手法立案のための重要な情報を与えた。

公聴会はオンラインで開催され、海外からの 7 名を含む 32 名が出席し、活発な質疑応答がなされた。公聴会での主な質問内容は、①非点源汚染源や大気降下物からの MPs 負荷はあるか、②海水の MPs が海外の値より大きいのがなぜか、検出下限の違いとの関連はあるか、③ERI の高低の意味は何か、飲料水としてどう考えるか、④堆積物採取深をどう決めたか、浅い方が ERI が高いなどの知見はないか、⑤MPs 濃度の時間変化はないか、⑥流域面積が小さくとも流出負荷が大きい地点があるのがなぜか、など多数であった。以上いずれの質問に対しても発表者からの的確で具体的な回答がなされた。

以上より、本研究は独創性、信頼性、有効性、実用性ともに非常に優れ、博士(工学)の学位論文に十分値するものと判断した。

論文内容および審査会、公聴会での質疑に対する応答などから、最終試験は合格とした。

なお、主要な関連論文の発表状況は以下の通りである(関連論文: 3 編)。

- 1) A. H. M. Enamul Kabir, Masahiko Sekine, Tsuyoshi Imai, Koichi Yamamoto. Microplastics Pollution in the Seto Inland Sea and Sea of Japan Surrounded Yamaguchi Prefecture Areas, Japan: Abundance, Characterization and Distribution, and Potential Occurrences. *Journal of Water and Environment Technology*, Vol. 18, No. 3, pp. 175-194, 2020.
- 2) A. H. M. ENAMUL KABIR, MASAHIKO SEKINE, TSUYOSHI IMAI, KOICHI YAMAMOTO. TRANSPORTATION PATHWAYS OF LAND SOURCE BASED MICROPLASTICS INTO THE MARINE ENVIRONMENTS: THE CONTEXT OF RIVERS. *Proceedings of the 22nd IAHR-APD Congress 2020, Sapporo, Japan*, <https://www.iahr.org/library/info?pid=7550>, 2020
- 3) A. H. M. Enamul Kabir, Masahiko Sekine, Tsuyoshi Imai, Koichi Yamamoto, Ariyo Kanno, Takaya Higuchi. Assessing small-scale freshwater microplastics pollution, land-use, source-to-sink conduits, and pollution risks: Perspectives from Japanese rivers polluted with microplastics. *Science of the Total Environment*, 768 (2021) 144655, 2021.