#### Form 3 論文要旨

## Abstract

論 文 題 目(Title); Contamination and eco-toxicological impacts of antifouling chemicals around the subtropical coral reef ecosystems (亜熱帯サンゴ礁および周辺環境における船底防汚剤の汚染とインパクト)

This study evaluates the spatial distribution, temporal variation of organotin compounds (butyl and phenyl tin) and their main alternative antifouling compounds, Irgarol-1051 and diuron, (DCMU) in aquatic ecosystems around subtropical coral reef areas around the Ryukyu Archipelago. Furthermore, I have examined the acute impacts caused by antifouling compounds on the carbon metabolisms (mainly photosynthesis and calcification processes) of the coral Galaxea fascicularis on the laboratory scale.

Chapter 2 results show that butyltin compounds (BTCs) were frequently detected in all seasons (Feb. -Oct., 2006) while phenyltin (PhTs) were detected in winter and early spring (April, 2006). Furthermore, 17% of TBT in waters and 71% of TBT in sediment samples collected from the Manko estuary have exceeded the threshold levels and represent an ecological risk to the aquatic life.

Chapter 3 reports the concentrations of diuron which ranged from ND to 90.00 ng/L and 0.18 to 3.97 ng/g for water and sediments, respectively. The detection frequency was relatively higher (82.4%, 842/51 samples) in Okinawa mainland waters compared to Ishigaki water samples 39.5 %, (32/81 samples).

Chapter 4, the average concentrations detected in commercial ports, fisheries port and estuaries were 24.70  $\pm$  9.88 ng/L (mean  $\pm$ SD) and 2.68  $\pm$  7.84 ng/L for Irgarol-1051 and M1, respectively. In Naha Bay, the average concentrations were 10  $\pm$  13 and 2.25 $\pm$ 6.13 ng/L for Irgarol-1051 and M1, respectively. Irgarol-1051 was detected in waters at the frequency of 92.3% (24/26), while M1 was less frequently detected, 11.5% (3/26) of the total samples collected around fishing and commercial ports around Okinawa Island. In Naha Bay, Irgarol was detected in 40.5% (17/42) and M1 was detected in 11.9% (5/42) of the water samples.

Chapters 5 and 6 provide information on the acute effects of tributyltin (TBT), Irgarol and diuron on the calcification and photosynthesis rates on the intact coral-alga association *Galaxea fascicularis*. The results show that the photosynthesis rate and calcification rate were significantly reduced by 78% and 72% relative to the control when corals were exposed to 5000 ng/L TBT, respectively. No significant effects were observed when corals were exposed to 1000 ng/L TBT. The Photosynthesis rate of the coral was significantly reduced by 6.5% and 75.7% and 18% and 121% relative to control when the coral exposed to 1000 and 10,000 ng/L of diuron and Irgarol 1051, respectively. The calcification rate dropped to 32.7% and 98.3% relative to control when the corals were exposed to 10,000 ng/L of diuron and Irgarol 1051, respectively. The nominal sensitive concentration of TBT, Irgarol and diuron that causes the alteration of carbon metabolisms of coral are much higher than those currently reported in the coral reef waters.

This study reveals that the coral reefs and adjacent aquatic ecosystems around the Ryukyu Archipelago are widely contaminated with antifouling chemicals as a fingerprint of the effects of anthropogenic activities in the coral reefs. While the levels detected in this region do not pose a threat to the carbon metabolisms of corals over a short term exposure, the consequences that might be caused by chronic exposure of the environmental relevance concentrations of these chemicals in coral reef ecosystems remains uncertain.

Name: Sheikh, Mohammed Ali

平成 20年 8月 15日

琉球大学大学院 理工学研究科長 殿

論文審查委員

 主査 氏 名
 大 森 保

 副査 氏 名
 大 出 茂

 副査 氏 名
 上江田捷博

副查 氏 名 新垣 雄光



# 学位 (博士) 論文審査及び最終試験の終了報告書

学位(博士)の申請に対し、学位論文の審査及び最終試験を終了したので、下記のとおり報告します。

記

申	請	者	専攻名 海洋環境学 氏 名 SHEIKH MOHAMMED ALI 学籍番号 058567A
指	導 耄	<b>数 員</b> 名	大 森 保
成·	績	評 価	学位論文 合格 最終試験 合格 不合格
論	文	題目	Contamination and eco-toxicological impacts of antifouling chemicals around the subtropical coral reef ecosystems (亜熱帯サンゴ礁および周辺環境における船底防汚剤の汚染とインパクト)

### 審查要旨(2000字以内)

1) 提出された博士論文の概要は以下の通りである。

提出された博士論文は、琉球列島において使用頻度の高いと思われる3種類の船底防汚剤(有機スズ化合物、ジウロン、イリガロール)について、サンゴ礁および周辺環境における汚染状況の把握とその生態毒性を評価したものである。

#### 審査要旨(続き)

サンゴ礁は多様な生物が共生する重要な生態系であるが、地球規模の環境変動や生物間の生存競争および化学物質を含む様々な人間活動の影響を受け、衰退の傾向にある。

船底防汚剤は、船舶や漁網などの海洋構造物に海洋生物が付着することを防止するために広く用いられている。有機スズ化合物(トリブチルスズ)は極微量であっても海洋生物に重大な影響を与えることから2006年に製造と使用、販売を含めて全面的に禁止された。ジウロンやイリガロールはその代替物質として使用されているが、それらの環境動態や生態毒性について注目されつつあるが、サンゴ礁における情報は少ない。

本論文では、1)サンゴ礁周辺水域(沖縄本島南部および北部の港湾おおび河口域、石垣島白保のサンゴ礁および河川)における船底防汚剤の空間的、時間的変動の解明、2)サンゴの永槽飼育実験による船底防汚剤の毒性試験、3)琉球列島のサンゴ礁が被る化学的危険性の現状評価、をおこない、以下の結論を得た。

第2章では、沖縄本島の南部(都市部)の国場川河口域では、小規模の漁港周辺(TK2)で有害なトリブチルスズ(TBT)濃度が4月-10月で、顕著な生態毒性を示す1ug/Lを越えて高いこと、および北部(農村部)億首川河口域では、1箇所(TO1、6月)を除いてほとんど検出されなかったこと、およびTBTの供給源が主に小型船舶であることが示された。トリフェニルスズ(TPhT)濃度は、南部水域では那覇港(TKi)および国場川上流域(TK4)でわずかに検出されたが、北部水域では億首川の中流域(TO3)を中心にしてすべての観測点でや高い値で検出された。農業活動に関連する供給源があることが示唆された。

第3章では、沖縄本島河川水域(8河川)、港湾(那覇港、中城港)および白保サンゴ礁海域と河川域におけるジウロン濃度を得た。沖縄本島では中城港(18ng/L)および那覇港奥(7.9ng/L)でやや高く、船舶による供給が示唆された。白保サンゴ礁海域では最大で90ng/L(12月)のジウロン濃度を示した。主としてサトウキビ植付に伴う除草剤散布の残留物の寄与と考えられる。この濃度は顕著な生態毒性の影響が見られる濃度の約 1/10 であり、今後の継続した監視の必要性が示唆される。

第4章では、沖縄本島沿岸水域(7港湾、1河川)におけるイリガロール濃度を得た。全体的に 20-40ng/L の範囲で検出された。これは光合成に影響するイリガロール濃度 60ng/L (文献値) に近い値であり、今後の監視の必要性が示唆された。

第 5 章及び第 6 章では、アザミサンゴ(G. fascicularis)の飼育により、TBT、ジウロンおよびイリガロールの暴露実験をおこない、サンゴ - 褐虫藻共生系による光合成と石灰化に与える毒性試験をおこなった。その結果、光合成速度に対しては、それぞれ、 $5 \mu$  g/L(TBT)、 $1 \mu$  g/L(ジウロン)、 $1 \mu$  g/L(イリガロール)で、また石灰化速度に対しては、それぞれ $5 \mu$  g/L(TBT)、 $10 \mu$  g/L(ジウロン)、 $10 \mu$  g/L(イリガロール)で負の効果を与える結果を得た。

以上の結果より、琉球列島におけるサンゴ礁は、広い範囲に亘って船底塗料や農薬による 化学的インパクトを被っていることが示された。これら化学物質の濃度はサンゴ礁に直接的 に被害を与える濃度ではないが、監視を必要とする物質もあり、サンゴ礁や沿岸生態系の保 全に指針を与えるものである。

### 2) 学位論文の審査および最終試験

平成20年8月14日(木)13時30分より理学系複合棟202教室において口頭発表 と質疑応答による最終試験をおこなった。さらに提出された博士論文の審査をおこない、博 士論文として十分な内容であると判断し、最終試験および博士論文をそれぞれ合格とした。