

論文審査の要旨

報告番号	理工研 第 184号	氏名	澤井 淳
審査委員	主査	中島 常憲	
	副査	門川 淳一	橋本 雅仁
<p>学位論文題目 質量分析による下水中の生態毒性物質の探索に関する研究 (Mass Spectrometric Exploration of Organic Ecotoxicants in Sewage)</p> <p>審査要旨</p> <p>本論文では、下水中に存在する有機性の生態毒性物質を網羅的な化学分析により探索する技術を検討し、これまで報告例が見当たらない毒性物質などを発見した。</p> <p>第1章は、既存の排水等の毒性削減および毒性同定の手法について整理し、課題を明確にした。また、有機物質が原因となるケースにおいて、既存の手法を補完するため、網羅的な質量分析技術が必要であることを述べた。さらに、網羅的な質量分析技術の活用事例を整理し、生態毒性試験、網羅的な質量分析および多変量解析を組み合わせる手法の新規性、適用可能性について述べた。</p> <p>第2章は、負イオン化モードでのノンターゲットスクリーニング分析による未知物質の探索・同定能力を実証した。下水処理水に既知の毒性物質5物質を添加して模擬試料を調製し、その藻類生長阻害試験結果、高分解能LC/MSを用いた分析結果を得た。得られた結果に対して多変量解析を適用し、試料の毒性強度が試料に添加したトリクロサンのピーク面積により説明可能とのモデルが構築され、毒性物質の添加条件と一致した。以上により、負イオン化モードでの有効性を確認した。</p> <p>第3章は、第2章で対象としなかった正イオン化モードで測定可能な有機物質の探索・同定能力を実証した。下水処理水に既知の毒性物質5物質を添加して模擬試料を調製し、その藻類毒性推算値、高分解能LC/MSを用いた分析結果を得た。多変量解析により模擬試料中の毒性物質を推定した結果、同族体が11物質発見され界面活性剤の混合物と推定された。11物質のうちピーク面積最大の物質の分子式は$C_{14}H_{31}NO$、データベースマッチングにより、<i>N,N</i>-ジメチルドデシルアミン=<i>N</i>-オキシド (DDAO) と推定され、毒性物質の添加条件と一致した。以上により、ノンターゲットスクリーニング分析結果および多変量解析を用いた網羅的探索が正負の両イオン化モードで可能なことを実証した。</p> <p>第4章は、設置地域、処理水量などが異なる17か所の下水処理場から採取した流入下水を対象に、藻類生長阻害試験およびGC/EI/QMSを用いたターゲットスクリーニング分析を実施した。本分析における同定は、電子イオン化 (EI) により得られるマススペクトルおよびリテンションインデックスの一致に基づいて行われた。さらに、予め取得された各物質の検量線情報に基づいた定量分析が行われた。その結果、すべての流入下水の藻類生長阻害を90%以上説明可能な物質が発見され、<i>N,N</i>-ジメチルドデシルアミン (DDA) およびDDAOであった。これらのうちDDAについては、下水からの検出例やリスク評価事例を発見することができなかった。</p> <p>第5章は、第2章および第3章で有効性を確認した技術を、5か所の小規模下水処理場の流入下水に適用した。その結果、各試料の藻類生長阻害率とピアソンの相関係数0.9以上で相関関係が認められる5物質を発見した。このうち1物質を対象に、精密質量および安定同位体パターンから分子式を推定し、さらに衝突誘起解離により得られたプロダクトイオンから構造を推定した。推定結果に基づいて標準物質とのコクロマトグラフィーを実施したところ、界面活性剤ラウロイルメチルβアラニン (LMA) であると同定できた。LMAの藻類生長阻害試験を実施したところ、生長阻害活性が認められた。LMAが下水から検出された例およびLMAの藻類生長阻害の検討例は発見することができなかった。</p> <p>第6章は、本研究で得られた結果を総括した。</p> <p>よって審査委員会は、本論文を博士 (工学) の学位論文として合格と判定する。</p>			