

審査の結果の要旨

氏名 ユタロン ヴィタラス

我が国の湖沼では、有機物の環境基準として過マンガン酸カリウムを酸化剤として用いた化学的酸素要求量 (COD_{Mn}) が使用されている。様々な水質改善対策にもかかわらず、湖沼における COD_{Mn} の環境基準達成率は 50-60% であり、水環境における大きな課題となっている。 COD_{Mn} は懸濁態と溶存態から構成されるが、藻類との関連が明瞭な懸濁態に対して、 COD_{Mn} に寄与する溶存有機物 (Dissolved Organic Matter: DOM) については知見が限られている。 COD_{Mn} による汚濁機構を理解し、水質改善につなげるためには、どのような種類の DOM が COD_{Mn} に寄与しているのかという点を明らかにする必要があるが、その解明は進んでいない。

本論文は「Characterization of low molecular weight dissolved organic matter contributing to COD_{Mn} in lake water by Orbitrap mass spectrometry (和訳：湖水 COD_{Mn} に寄与する低分子溶存有機物の Orbitrap 質量分析による特性評価)」と題し、電場型フーリエ変換質量分析計である Orbitrap 質量分析計を活用することで、湖水中の溶存 COD_{Mn} (DCOD_{Mn}) に寄与する低分子 DOM の組成を分子レベルで評価する手法を新規に提案し、千葉県印旛沼における DCOD_{Mn} 分子組成の季節変化及びその起源、栄養状態の異なる複数の湖沼における DCOD_{Mn} 分子組成に関する知見を得たものである。

論文は 8 つの章で構成され、結果に関する章は 4~7 章である。第 1 章では、論文の背景及び目的を述べている。第 2 章では、Orbitrap 質量分析計を中心とした高分解能質量分析計による DOM に関する既往の知見を整理している。第 3 章では、本論文における実験方法がまとめられている。

第 4 章では、Orbitrap 質量分析を用いた DCOD_{Mn} 分子のスクリーニングに関する基礎的検討として、主に過マンガン酸カリウムによる酸化に伴って湖水 DOM の組成がどのように変化するかを評価している。Orbitrap 質量分析による分子レベルの解析の結果、不飽和度の指標である DBE-O の高い分子ほど酸化処理によって消失しやすいことを明らかにしている。以降、本論文では、過マンガン酸カリウムによる酸化によってピークが消失した分子を「 DCOD_{Mn} 分

子」と定義している。

第5章では、富栄養化湖沼である千葉県印旛沼において、2016年5月、7月、9月、11月、2017年1月、3月に採水し、DOM及びDCOD_{Mn}の分子組成の季節変化を評価している。DOM分子組成については、いずれの試料からも1000種類近い分子式が推定され、採水期間を通じて共通する186種類の分子式が確認された。これらのコアな成分に季節的に特徴的な分子群が加わることで、DOM組成が季節的に遷移する過程を明らかにしている。過マンガン酸カリウムによる酸化処理によって抽出したDCOD_{Mn}分子は全体の分子式の10%未満程度であった。DCOD_{Mn}分子についても、採水期間を通じて検出された10分子に加え、各季節に特異的な分子の存在を明らかにすることに成功している。

第6章では、第5章で抽出されたDCOD_{Mn}分子の起源を分子レベルで推定するために、印旛沼湖水と印旛沼流入河川である鹿島川と神崎川との間で分子式の照合を行っている。湖水において検出されたDCOD_{Mn}分子式数の62-96%は、流入河川でもその存在が確認され、これらは外部負荷由来であることを推測している。一方、湖水のみで検出されたDCOD_{Mn}分子の割合は、湖水のクロロフィルaと相関が高く、内部生産に由来していることを示唆している。

第7章では、印旛沼に加え、2016年8月から10月にかけて採水した八郎湖、霞ヶ浦、手賀沼、小河内ダム、津久井湖、宮ヶ瀬湖、琵琶湖北湖の湖水を解析し、DCOD_{Mn}分子の組成を比較している。印旛沼、八郎湖、霞ヶ浦、手賀沼、琵琶湖北湖では、C、H、O、Nを構成元素とするDCOD_{Mn}分子の割合が、津久井湖、宮ヶ瀬湖、小河内ダムなどの清浄な湖沼よりも高いという特徴を明らかにしている。このことより、湖沼の栄養状態の違いにより、DCOD_{Mn}分子の組成が異なるという新たな知見をまとめている。

第8章は結論および今後の課題が述べられている。

以上のように、本論文は、Orbitrap質量分析計を用いて湖水中のDCOD_{Mn}分子の組成を解明する手法を提案し、季節変化や起源解析に有効であることを示したものである。また、栄養状態の異なる湖沼によってDCOD_{Mn}の組成に差異があることを明らかにした点は、各湖沼における水質管理の在り方を検討する上で有用な知見と評価できる。このように、本論文の成果は、今後の都市環境工学の学術の進展に大きく寄与することが期待される。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。