

論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称	博 士 (学 術)	氏名	平島 宗一郎																				
学位授与の要件	学位規則第4条第①・2項該当																						
<p>論 文 題 目</p> <p>水環境中におけるフェニルピラゾール系殺虫剤の光化学的動態と運命：高分解能質量分析法を用いた包括的な解析</p>																							
<p>論文審査担当者</p> <table border="0"> <tr> <td>主 査</td> <td>教 授</td> <td>竹 田</td> <td>一 彦</td> </tr> <tr> <td>審査委員</td> <td>教 授</td> <td>中 坪</td> <td>孝 之</td> </tr> <tr> <td>審査委員</td> <td>教 授</td> <td>和 崎</td> <td>淳</td> </tr> <tr> <td>審査委員</td> <td>教 授</td> <td>石 原</td> <td>康 宏</td> </tr> <tr> <td>審査委員</td> <td>准教授</td> <td>岩 本</td> <td>洋 子</td> </tr> </table>				主 査	教 授	竹 田	一 彦	審査委員	教 授	中 坪	孝 之	審査委員	教 授	和 崎	淳	審査委員	教 授	石 原	康 宏	審査委員	准教授	岩 本	洋 子
主 査	教 授	竹 田	一 彦																				
審査委員	教 授	中 坪	孝 之																				
審査委員	教 授	和 崎	淳																				
審査委員	教 授	石 原	康 宏																				
審査委員	准教授	岩 本	洋 子																				
<p>〔論文審査の要旨〕</p> <p>本博士論文では、フェニルピラゾール系殺虫剤であるフィプロニル(FIP)とエチプロール(ETH)について、高分解能質量分析計を用いて同定・構造推定された新規光分解生成物も考慮して、水環境中における光化学的動態と運命に関する研究を行った。</p> <p>第1章では、研究背景や関連分野の先行研究を整理し、本博士論文の中心課題を示した。水環境中におけるフェニルピラゾール系殺虫剤の光化学的動態に関して、①FIP 主要光分解生成物である FIP-desulfinyl の光分解反応の解明、②FIP と ETH で異なる主要光分解経路が報告されている点の検証、③高分解能質量分析計を用いた LC-MS/MS 分析による新規光分解生成物の存在確認の3つを中心課題とした研究を行うこととした。</p> <p>第2章では、FIP の光化学的動態と運命に関する知見を得るために、FIP の詳細な光分解経路を提示し、主要光分解生成物の光化学的安定性を評価した。化合物の構造解析では高分解能質量分析計を用いた LC-MS/MS 分析および Multi-stage MSⁿ 分析を行った。その結果、FIP が FIP-desulfinyl となる既知の分解反応の後、当化合物がアミノ基部分の環化/脱塩素化により一脱塩素化生成物 IV となり、さらに水酸化/脱塩素化され二脱塩素化生成物 I へと分解される主要光分解経路が明らかになった。これにより、FIP にも ETH と類似した主要光分解経路が存在することが判明した。また、4 種類の新規化合物がマイナー光分解生成物として発見された。FIP とその分解生成物の濃度の時間的変化から、1 次速度論モデルと逐次分解モデルを用いて分解速度定数の推定を行った。その結果、FIP-desulfinyl は光化学的に安定であり、光分解速度定数は FIP の 22.6 倍低いことが分かった。さらに、今回発見された化合物 I は、FIP-desulfinyl よりも光分解速度定数が低く、光化学的に安定で、水環境中に残留し、FIP の長期汚染の重要な指標となる可能性が示唆された。</p> <p>第3章では、第2章の実験方法を応用し、ETH の光化学的動態と運命を調べた。先行研究と同様の主要光分解経路が確認され、このなかでも、二脱塩素化生成物である Benzimidazole of des-chloro-hydroxy-ETH が最も光化学的安定性が高いことが示された。</p>																							

第4章では、第2章と第3章の実験結果を比較し、FIPとETHの光化学的動態に関する相違点を示した。ETHはFIPよりも光化学的に安定であるものの、これらの主要光分解生成物に関しては、FIP光分解生成物の方が高い安定性が示された。FIP光分解生成物である化合物Iは、ETH光分解生成物である Benzimidazole of des-chloro-hydroxy-ETH より3.0倍長い光化学的半減期を有していた。

第5章では、総括として、本博士論文で明らかになった点と各種分析および解析手法の有用性について整理した。また、これらの研究成果を踏まえ、今後の展望を示した。

本研究はFIPとETHの光分解過程について高分解能質量分析計を用いた手法で網羅的な分析を行い、多くの新規光分解生成物を同定・構造推定した。また、主要光分解生成物の光化学的半減期や安定性などを明らかにした。これらの成果は、フェニルピラゾール系殺虫剤の環境中での動態、生態系への影響評価を議論する上で重要な研究成果であり、その学術的価値は高い。

以上、審査の結果、本論文は統合生命科学研究科学位論文評価基準を満たし、著者は博士（学術）の学位を授与される十分な資格があるものと認められた。