

博士論文の要旨及び審査結果の要旨	
氏名	KONONOV Andrei
学位	博士（農学）
学位記番号	新大院博（農）第226号
学位授与の日付	令和4年9月20日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
博士論文名	Soil microplastics: an extraction method and monitoring of the deterioration under paddy conditions (土壌マイクロプラスチック：その抽出法と水田条件下における劣化過程のモニタリング)
論文審査委員	主査 教授・原田 直樹 副査 教授・大竹 憲邦 副査 教授・吉川 夏樹 副査 准教授・三亀 啓吾 副査 助教・鈴木 一輝
<p>博士論文の要旨</p> <p>陸上におけるプラスチックの存在量は、海洋におけるその4～23倍と推定されており、埋立地、都市域、海岸の他、農地での汚染も無視できない。これは現代の農業が様々なプラスチック製品（例：マルチフィルム、ビニールハウス、育苗ポット、灌漑用パイプ、被覆肥料）に強く依存しているためである。一方、農地におけるプラスチック汚染の程度はまだ正確には分かっていない。</p> <p>大型のプラスチックは自然環境下で劣化し、5mm以下の小さな破片、いわゆるマイクロプラスチック（MPs）となる。農耕地土壌からMPを分離し、さらにその存在量や種類を特定し、土壌環境における動態を調べることは重要である。こうした背景を踏まえ、本研究は以下の3つの研究を行った。</p> <p>1. 農耕地土壌からのMPs抽出法の開発</p> <p>キャノーラ油の浮力と塩化ナトリウム（NaCl）を用いた密度分離を利用して、土壌中のMPsを簡便かつ経済的に抽出する方法の確立を試みた。まず7種類の油を対象に、土壌からのMP抽出能力および適性を調べ、最適な油としてキャノーラ油を選択した。次に、キャノーラ油とNaCl溶液を用いて、低密度ポリエチレン（LDPE）、ポリプロピレン（PP）およびポリ塩化ビニル（PVC）を対象とした添加回収試験を、日本の5種類の農地土壌を用いて行った。その結果、<1mmのLDPE、PPおよびPVCの回収率はそれぞれ95.2～98.3%、95.2～98.7%、76.0～80.5%となり、これは飽和NaCl溶液を用いた密度分離で得られた回収率より高かった。</p> <p>2. 油分分離法の農業土壌中の被覆肥料カプセルの抽出への応用</p> <p>日本国内の農業では、省力化のため被覆肥料がよく使用されている。被覆肥料はプラスチックフィルムコーティングによって窒素の溶出が制御されており、窒素溶出後はその外殻（カプセル）が農地に残存することになる。ここでは高分子ポリマーである被覆肥料由来カプセルに、上記のMP抽出法が適用できるか検討した。その結果、砂質土壌からは2回、粘土質土壌からは3回、抽出を繰り返すことで被覆肥料カプセルの約8割が回収できた。</p>	

3. 水中土壌条件下における被覆窒素肥料カプセルの形状および化学構造の経時的変化

水田に施用した後の被覆肥料カプセルの変化を調べることを目的に、試験水田における被覆尿素の施用試験と、恒温器を用いての保温静置試験を行った。360日間の試験で、カプセルは白色から黄色～黄褐色へと変化し、表面への酸化鉄の付着や添加物であるタルクの溶出が認められた。尿素が完全に放出された後のカプセルの重量は初期重量の10%程度であった。IRスペクトルから、カプセルの主成分がポリエチレンであることが推定され、土壌に施用された後にヒドロキシル基やカルボニル基が生成し、ポリマーの劣化が徐々に進行すること、その劣化に温度依存性があることが確認された。

審査結果の要旨

本博士論文は、農地のMPsに着目し、抽出方法の確立と被覆肥料由来のプラスチックカプセルの劣化過程について検討したものである。その結果は以下のようにまとめられており、いずれも土壌中のMPsの動態解明のための重要な知見を与えるものと判断された。

- ・ 農地土壌からMPsを抽出するために、キャノーラ油と不飽和NaCl溶液を用いた新しい分離方法を提案した。
- ・ 上記のMP分離法は、抽出条件の最適化の後、被覆肥料カプセルの抽出にも適用できることを示した。
- ・ 水田に施用後の被覆肥料マイクロカプセルの劣化過程を調べ、被覆肥料の総重量のうち約10%が空カプセルとして残留すること、またポリマー構造に経時的な化学的劣化が生じることを示した。

なお本論文の内容の一部は、下記のレフリーシステムの確立された学術雑誌に Andrei Kononov 氏を筆頭著者として1編掲載されている。

著者：Andrei Kononov, Motoya Hishida, Kazuki Suzuki, Naoki Harada

題名：Microplastic Extraction from Agricultural Soils Using Canola Oil and Unsaturated Sodium Chloride Solution and Evaluation by Incineration Method

(キャノーラ油と不飽和食塩水を用いた農耕地土壌からのマイクロプラスチックの分離と燃焼法による評価)

掲載誌：Soil Systems 誌

発表年：2022年

巻号頁：第6巻, 54, <https://doi.org/10.3390/soilsystems6020054>

以上のことから、本論文は博士（農学）の博士論文として十分であると認定した。