

学 位 論 文 要 旨

(Summary of the Doctoral Dissertation)

学位論文題目 (Dissertation Title)	Development of novel biochar adsorbent functionalized with layered double hydroxides for phosphate removal and its application potential as fertilizer リン除去のための層状複酸化物を担持させたバイオ炭系新規吸着材の開発とその肥料としての応用の可能性
氏名(Name)	Jittrera Buates

In this study, rice straw was used as a raw material for the synthesis of biochar functionalized with layered double hydroxides (BC-LDHs) as efficacious phosphate adsorbents. Experimental investigations, including pH, coexisting anion, reaction time, and initial phosphate concentration effects were systematically performed with selected BC-LDHs 6 and pure LDHs. An optimum pH of 3.0 was observed in both samples. Kinetic and isotherm studies indicated that phosphate adsorption on these samples was controlled by the pseudo-second-order model and the Freundlich model, respectively. The maximum adsorption capacity of the composite was 192 mg/g, which was higher than that of pure LDHs (166 mg/g). The coexistence of various anions negligibly affected the removal efficiency of the composite; however, fluoride was the most competitive anion for phosphate adsorption on pure LDHs. The transformation of BC-LDHs 6 after its usage in phosphate treatment (P-BC-LDHs 6) into a fertilizer was further explored by using seed germination and early growth assays of lettuce through a comparison with phosphate-loaded LDHs (P-LDHs). Lettuce seeds germinated in all P-BC-LDH 6 treatments showed undesirable growth characteristics compared with the controls, while total germination failure was observed under high concentrations of P-LDHs. In the latter experiments, the optimal application rates for plant growth were 2.5% for P-BC-LDHs 6 and 1.0% for P-LDHs. The considerably greater biomass development and length of lettuce were visible in samples delivered from P-BC-LDHs 6 compared to those from P-LDHs. The results obtained suggest that BC-LDHs 6 is a promising adsorbent for phosphate treatment and post-adsorption BC-LDHs 6 has the application potential to serve as a fertilizer for horticultural crop production.

(様式 9 号)

学位論文審査の結果及び最終試験の結果報告書

山口大学大学院創成科学研究科

氏 名	Jitrera Buates
審査委員	主 査： 今 井 剛
	副 査： 関 根 雅 彦
	副 査： 佐 伯 隆
	副 査： 樋 口 隆 哉
	副 査： 鈴 木 祐 麻
論文題目	Development of novel biochar adsorbent functionalized with layered double hydroxides for phosphate removal and its application potential as fertilizer (リン除去のための層状複水酸化物を担持させたバイオ炭系新規吸着材の開発とその肥料としての応用の可能性)
<p>【論文審査の結果及び最終試験の結果】</p> <p>現在、環境水の富栄養化が問題となっており、排水中からのリン除去が必要とされている。排水からのリン除去については、これまでに微生物による除去法、化学的な沈殿除去法、物理化学的な吸着除去法が開発されてきた。一方で、リンはすべての生物にとって必須の栄養素であり、しかも枯渇資源であることからその回収・再利用技術の開発が喫緊の課題である。</p> <p>そこで、本研究では、安価で豊富な量がある稲わらをバイオ炭の原料として用い、それに層状複水酸化物を担持させてリン吸着材 (BC-LDHs) を合成し、その評価とリンを吸着したこの吸着材の肥料としての可能性、すなわち再利用可能性を評価した。</p> <p>本研究では、上述のように稲わらをバイオ炭の原料として用い、それに層状複水酸化物を担持させてリン吸着材 (BC-LDHs) を合成した。BC-LDHs 6 (層状複水酸化物を担持させたバイオ炭で 10g の稲わらをベースに合成したもの) と層状複水酸化物のみ (LDHs) を対象として、pH、共存アニオン、接触時間、初期リン濃度を変化させた一連の比較実験を行った。どちらのリン吸着材も最適 pH は 3 であった。解析結果からリンの吸着はどちらのリン吸着材においても擬二次モデルと Freundlich モデルで表現できることがわかった。BC-LDHs 6 のリンの最大吸着容量は 192 mg/g で LDHs の 166 mg/g に比べて高い値を示した。共存アニオンの存在は BC-LDHs 6 のリン吸着能を低下させたが、フッ化物イオンが LDHs のリン吸着能を最も低下させた。</p> <p>リン吸着後の層状複水酸化物を担持させたバイオ炭 (P-BC-LDHs 6) のリン肥料としての評価をレタスを用いた発芽試験と初期生長試験により評価した。P-BC-LDHs 6 の添加率を変化させた 4 つのケースの発芽試験では、すべてのケースでコントロールと比較して差がない結果となったが、発芽時の根の生長ではすべてのケースがコントロールに劣っていた。実験結果より最適な P-BC-LDHs 6 の添加率は 2.5% であった。一方で初期生長試験の結果</p>	

(様式 9 号)

から、P-BC-LDHs 6 の添加率は 2.5% と 5.0% の条件で長さ重さともにコントロールを大きく上回った。発芽試験と初期生長試験の結果から P-BC-LDHs 6 の最適添加率は 2.5% であることがわかった。以上より、リン吸着後の BC-LDHs 6 の肥料としての利用可能性が示された。以上より本研究の有効性ならびに実用性が明らかとなった。

公聴会には、学内外から 20 名の参加があり、活発な質疑応答がなされた。公聴会での主な質問内容は、①実験結果からバイオ炭の存在によってリン吸着能が向上しているがそれはなぜか、②合成したリン吸着材の主材料であるバイオ炭の役割について、なぜ LDHs を吸着させてから焼成した方が良いのか、③何を対象にこの吸着剤を使ってリンの回収を想定しているのか、④実験結果から LDHs の 1g あたりのリン吸着量が増加しているがその理由はなぜか、⑤レタスを用いた初期生長試験の実験結果で最も多くの使用済みリン吸着材を肥料として与えたものの標準偏差が最も低かったのはなぜか、⑥活性炭は通常低 pH で分子量の大きい有機物などの吸着に優れるが、本研究の層状複水酸化物を担持させたバイオ炭で pH が 3 の場合にリン吸着量が最も高くなったのはなぜか、など多数であった。

以上のいずれの質問に対しても発表者からの的確で具体的な回答がなされた。

以上より、本研究は独創性、信頼性、有効性、実用性ともに非常に優れ、博士（工学）の学位論文に十分値するものと判断した。

論文内容および審査会、公聴会での質疑に対する応答などから、最終試験は合格とした。

なお、主要な関連論文の発表状況は下記の通りである（関連論文：2 編）。

- 1) Jitrera Buates, Tsuyoshi Imai, Biochar functionalization with layered double hydroxides composites: Preparation, characterization, and application for effective phosphate removal, *Journal of Water Process Engineering*, **37**, online, 2021.
- 2) Jitrera Buates, Tsuyoshi Imai, Assessment of plant growth performance and nutrient release for application of phosphorus-loaded layered double hydroxides as fertilizer, *Environmental Technology & Innovation*, **22**, online, 2021.