氏 名	GAMAMADA LIYANAGE ERANDI PRIYANGIKA PERERA
授与した学位	博士
専攻分野の名称	環境学
学位授与番号	博甲第 7065 号
学位授与の日付	2024年 3月 25日
学位授与の要件	環境生命科学研究科 環境科学専攻 (学位規則第4条第1項該当)
学位論文の題目	Reduction of internal phosphorus loading in agricultural drainages using iron-incorporated sediment microbial fuel cells (鉄添加した底質微生物燃料電池を用いた農業排水路におけるリン内部負荷の削減)
論文審査委員	准教授 宗村広昭 教授 森 也寸志 教授 前田守弘

## 学位論文内容の要旨

Iron (Fe) reduction under anaerobic conditions releases redox-sensitive phosphorus (P) from sediment, leading to eutrophication in closed water bodies. It has been suggested that adding Fe oxyhydroxide (FeOOH) or Fe-treated biochar to the sediment will reduce the P release. However, the long-term sustainability of this effect is uncertain because Fe<sup>3+</sup> reduction to Fe<sup>2+</sup> occurs constantly under anaerobic conditions. Sediment microbial fuel cells (SMFCs) are bio-electrochemical devices that produce electricity by transferring electrons from sediment to the oxygen-rich overlying water via an external circuit. In the present study, we investigated the use of SMFC for long-term suppression of P release by avoiding Fe<sup>3+</sup> reduction in the sediment. Recent studies reported that Fe incorporation has increased the power generation of SMFCs because of its high conductivity and redox reversibility. However, the effect of Fe-added SMFCs on suppressing P release from sediment is unknown. Since it is cost-effective, the current study investigated the suppression of P release from agricultural drainage sediment, where the P content is generally high. Accordingly, the objectives of this dissertation are:

- to elucidate the effect of mixing FeOOH and Fe-treated biochar with agricultural drainage sediment to reduce P release (Chapter 3),
- 2. to determine the effect of SMFC with Fe<sup>3+</sup> or Fe<sup>2+</sup> on reducing P release from sediment (**Chapter 4**), and
- 3. to investigate the effect of Fe-added SMFC on P release from different agricultural drainage sediments (**Chapter 5**) In Chapter 1, the objectives, context of the research, and structure of the thesis were addressed. In Chapter 2, the mechanism of P suppression by SMFCs, the benefits of Fe addition in SMFCs, and the gaps in knowledge were discussed. Referring to objective 1, P release from agricultural drainage sediments was significantly reduced when FeOOH was added. Adding Fe-treated biochar also reduced P release under high oxygen conditions. However, P concentrations increased under low dissolved oxygen conditions due to the reduction of Fe<sup>3+</sup> and SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> in the overlying water (Chapter 3). In response to objective 2, adding Fe<sup>3+</sup> to SMFCs increased electricity generation and reduced P release from agricultural drainage sediments by acting as an electron shuttle (Chapter 4). With regard to objective 3, SMFC reduced P release up to day 42. Thereafter, P release increased in organic matter-rich sediment because Fe addition or SMFC promoted organic matter decomposition, and no effect of SMFC was observed (Chapter 5). In chapter 6, the overall discussion and thesis conclusions are provided. This thesis demonstrated the effectiveness and limitations of SMFCs as a technology for suppressing P release from agricultural drainage sediment.

## 論文審査結果の要旨

閉鎖性水域では、底質が嫌気状態になると鉄が還元され、鉄(Fe)結合態として存在するリン(P)が直上水中に溶出することで富栄養化が生じる。Fe処理バイオ炭やオキシ水酸化Fe(FeOOH)を底質に混和することでP溶出を低減できると考えられるが、嫌気環境ではFe³+還元が継続的に生じるため効果の継続性には疑問が残る。底質微生物燃料電池(SMFC)は底質の有機物分解で生じた電子を酸素が豊富な上層水に外部電気回路を介して伝達する新たな発電システムである。本研究では、SMFCを適用することによって底質中のFe³+還元を防ぎ、P溶出を長期的に抑制することを考えた。また、Feは導電性が高く、酸化還元可逆性を持つことから、SMFCの発電効率を高めることが最近報告された。しかし、Fe添加SMFCの底質P溶出低減効果については研究例がない。また、費用対効果を考慮し、P含量が一般的に高い農業排水路に着目した。本研究の目的は以下の通りである。

- 1. 農業排水路底質に鉄処理バイオ炭およびFeOOHを混和することによるP溶出低減効果の解明
- 2. Fe<sup>3+</sup>またはFe<sup>2+</sup>添加SMFCによるP溶出低減効果の解明
- 3. 農業排水路底質の違いがFe3+添加SMFCのP溶出低減効果に及ぼす影響の解明

FeOOHを底質に添加すると、農業排水路底質からのP溶出が顕著に低減した。Fe処理バイオ炭添加では、高溶存酸素条件ではP溶出が大幅に減少したが、低溶存酸素条件では、直上水のFe³+とSO₄²-が還元されたため、P濃度が上昇した。Fe³+またはFe²+を添加したSMFCでは、Fe³+添加によって発電量が増加し、P溶出が低減した。また、農業排水路底質の違いをみた実験では、有機物が豊富な底質ではP溶出が顕著であった。両底質とも、SMFCによって42 日目までP溶出が減少したが、その後は、SMFCによって有機物分解が促進されたためP溶出が増加し、SMFCの効果は認められなかった。また、Fe添加によって有機物分解に伴うP溶出が生じる可能性が示された。

以上のように、本研究は様々な条件で Fe 添加 SMFC による農業排水路底質からの P 溶出を実験的に調べたものであり、酸化 Fe の添加が P 溶出抑制に効果的であることを実証した。また、SMFC によって有機物分解が促進され、P 溶出が高まる可能性が示された。これらは、農業排水路における P 溶出抑制技術のひとつとして SMFC の有効性とその限界を示唆したものである。よって、本論文は学術的に高く評価でき、博士(環境学)の学位に値するものと認められる。