

厚生労働科学研究費補助金（健康科学総合研究事業）

分担研究報告書

浄水プロセスにおけるオゾン/塩素処理の安全評価に関する研究

分担研究者 伊藤禎彦 京都大学大学院工学研究科教授

研究要旨

水道原水中に臭化物イオンを含む場合、塩素処理を行うと、臭素化反応が速やかに進行し、かつ生成した有機臭素化合物の有害性に対する寄与は大きい。原水中の臭化物イオンとその運命の把握、ならびにこれに対する対応策は今後の課題とすべき点である。一方、塩素処理に先だってオゾン処理を行うことは、処理水の有害性を大きく低減させる効果を有することを確認した。

A. 研究目的

水道原水が多種多様な有害化学物質を含んでいるという現状にあっては、望まれる浄水処理とは、微量化学物質を分解・除去して有害性を減少させ、かつ、フミン物質を中心とする天然有機物からの有害性の生成を最小限に抑えることが可能な処理法である。

本研究では、浄水処理における代表的な酸化および消毒法であるオゾン処理と塩素処理を取り上げ、処理水の安全性を測定しつつ、その特性を把握することを目的としている。処理水の安全性評価には、哺乳動物細胞を用いたバイオアッセイを用いている点が特徴である。

本研究は、直接には浄水処理での技術を扱うものであるが、同時に下水処理とその消毒法に関する要素技術ともなっている。すなわち、流域における水システムの再構築を支えるための基礎研究と位置づけられるものである。

B. 研究方法

基礎実験として、高濃度の試薬フミン酸

(Aldrich, TOC=1000 mgC/L) を自然水中有機物のモデルとして用いた。これに次亜塩素酸または次亜臭素酸を添加し、処理水とした。ただし、市販の次亜臭素酸ナトリウム溶液を使用すると Br_2 の影響が無視できないので、本研究では、臭化物イオンを等モル量の次亜塩素酸で酸化し Br_2 を含まない次亜臭素酸溶液を作製して用いた。

試薬フミン酸に対するオゾン処理は、外径 20mm、高さ 250mm の小型インピングジャーを使用し、10mL を処理した。

試薬フミン酸を用いる実験に加えて、水道原水として琵琶湖水を用いる実験を併行して行った。塩素処理は 10L に次亜塩素酸を添加して行った。また、この場合のオゾン処理は、外径 14cm、高さ 23cm のガラス製反応槽を用い、3 L を処理した。

処理水の安全性の評価を目的としてバイオアッセイを行った。チャイニーズハムスター肺細胞を用いる染色体異常試験を実施した。

C. 研究結果

まず、塩素処理に伴って生成する有機ハロゲン化合物のうち、有機塩素化合物と有機臭素化合物を分離定量する方法を開発した。

臭化物イオンの共存下で塩素処理を行うと有機臭素化合物が生成するため、臭化物イオンが存在しない場合よりも、処理水の有害性は高くなる。また、この場合、有機臭素化合物の全体に対する寄与率が塩素化合物よりも圧倒的に高い可能性を指摘した。

臭化物イオンの共存下で塩素処理により生成する有機臭素化合物に由来する有害性の減少速度は、有機塩素化合物のそれよりも速い。

フミン酸と次亜臭素酸の反応は、フミン酸と次亜塩素酸の反応に優先する。したがって、添加する次亜塩素酸の濃度に比べて初期次亜臭化物イオン濃度が低くても、塩素処理中においては次亜臭素酸とフミン質との反応は無視できない。

従来、オゾン処理水中に含まれる副生成物とは親水性の化学物質が多いことから、塩素処理副生成物と平等に濃縮・回収することができず、オゾン処理水の有害性を過小評価している可能性が指摘されてきた。本研究では、固相抽出法、凍結乾燥法などの濃縮法を比較検討することで、濃縮方法のバイアスの有無を検討した。この結果、採用した固相抽出法では濃縮方法のバイアスがないことを示した。

上記の検討を受けて実験を行った結果、塩素処理に先だってオゾン処理を行うことは、処理水の有害性を大きく低減させる効果を有することを確認した。一方、全有機ハロゲン化合物の生成量に大きな差はなかった。また、このオゾン処理の効果は、原水中に臭化物イオンを含ん

でいても同様に認められた。さらに、以上の現象にはpH依存性があった。

D. 考察

基礎実験の結果から見積もると、実際の自然水に塩素処理を行った場合、処理水の有害性に対する有機臭素化合物の寄与は30%程度、あるいはそれ以上となる。場合によっては、有機塩素化合物のそれを上回る可能性もあることを指摘できる。

すなわち、臭化物イオンを含む水道原水を塩素処理する場合、低濃度であっても臭素化反応は無視できないといえる。

E. 結論

水道原水中に臭化物イオンを含む場合、塩素処理を行うと、臭素化反応が速やかに進行し、かつ生成する有機臭素化合物の有害性は大きい。また、原水中の臭化物イオンはオゾン処理によっては、発がん性を有し新しく水質基準項目となる臭素酸イオンに変換される。原水中の臭化物イオンとその運命の把握、ならびにこれに対する対応策は今後の課題とすべき点である。

塩素処理に先だってオゾン処理を行うことは、処理水の有害性の低減に有効であることを確認した。

F. 健康危険情報

直ちに問題とすべきものはない。

G. 研究発表

1. 論文発表

- 1) 伊藤禎彦、早坂剛幸、岡田朋之、三次元螢

光分析を用いた水道水中フミン物質の回収性の
検討、環境衛生工学研究、Vol. 16/No. 3, 113-118,
2002.

2) 伊藤禎彦、塩素消毒のゆくえ、水道公論、
Vol.39/No.1, 28-30, 2003.

2. 学会発表

1) 伊藤禎彦、池田大助、仲野敦士、水道水の
染色体異常誘発性・形質転換誘発性の塩素処理
後の変化過程、第 53 回全国水道研究発表会講演
集、614-615, 2002.

2) 伊藤禎彦、仲野敦士、荒木俊昭、配水過程
における強変異原物質 MX の指標性、第 53 回
全国水道研究発表会講演集、616-617, 2002.

3) 越後信哉、伊藤禎彦、夏井智毅、荒木俊昭、
安藤良、O₃/Cl₂ 連続処理による副生成物の染色
体異常誘発性に関する研究、第 37 回日本水環境
学会年会講演集、38, 2003.

厚生科学労働研究費補助金（健康科学総合研究事業）

分担研究報告書

生物学的高度水処理技術の開発

分担研究者 遠藤銀朗 東北学院大学工学部教授

研究要旨

新規な物質による汚染に対処しつつ水環境を適切に管理することを目的として、新しい水循環システムを構築するうえで必要となる要素技術として、遺伝子工学等を用いた新規リスクモニタリング技術および生物学的水処理技術の開発の在り方について検討した。本分担研究では、潜在的な危険性（リスク）を持つ病原微生物および有害汚染物質をモニタリングしつつそれらの除去を達成するために必要となる新規なバイオテクノロジーの可能性を探る研究を行った。環境負荷の小さい全く新しい水循環システムを構築するためには、モニタリング技術の開発においても水処理プロセスの開発においても、物理化学的方法だけではなく新規バイオテクノロジーを駆使した生物学的水処理技術の開発が必要であること、また、病原微生物および汚染物質除去のための物理化学的および生物学的な要素技術の組合せによる最適化システムあるいは統合化システムの開発が必要であること、などが明らかとなった。

A. 研究目的

汚染された水を効率的かつ低コストで浄化するためには生物学的処理は第一に考えられなければならない方法である。本研究のタスクとして、最新の分子生物学的手法を用いて病原微生物および重金属汚染による水環境リスク因子を鋭敏に検出するための高感度バイオテクノロジー技術を開発するうえで必要な研究手順を明らかにすることを目的とした。

B. 研究方法

これまで開発してきた病原微生物および重金属汚染による水環境リスク要因の検出方法について検索するとともに、分子生物学的方法として適用可能な方法について予備的な知見を得るための実験を行う方法を採用した。

(倫理面への配慮)

本研究で採用した研究方法は、科学倫理及び人権擁護上の配慮に抵触するものを含んでおらず、倫理面の問題はない。

C. 研究結果

既存の病原微生物および重金属汚染による検出方法では原理的にまた感度的に検出できない水環境リスク要因が存在することが明らかとなった。また、病原微生物の検出方法として、PCR 法およびハイブリダイゼーション法が高感度検出方法として適用可能であるとの予備的知見を得た。

D. 考察

従来法では検出できない水環境リスク因子

を鋭敏に検出するための分子生物学的方法の開発の必要性が認められる。特に重要な点は、既存の方法が、特別な訓練を受けた特殊技能者のみが実施可能な方法であることで、広くユビキタスに存在する水環境リスク因子を迅速に検出するために大きな障害となっていることである。この障害を改善し、一般的の水環境分析技術者が容易にかつ精確に水環境リスク因子を評価できる方法の開発が急務とされると考えられる。

E. 結論

水環境リスク因子を容易にかつ鋭敏に検出するための新たな方法の開発が必要である。その方法の開発には、分子生物学的手法の導入を基盤として検討することが有効と考えられる。

F. 健康危機情報

本年度実施した研究の範囲では、健康危機情報を具体的に得るまでには至らなかった。しかし、健康危機情報を収集するための既存の方法には欠陥があり、そのような既存の方法によって健康危機を招いている側面があると考えられた。

G. 研究発表

1. 論文発表

2. 学会発表

2件

H. 知的財産権の出願・登録状況

なし

分担研究報告書

膜法を用いる水管理システムの構築に関する研究

分担研究者 尾崎 博明 大阪産業大学 工学部 教授

研究要旨

安全で清浄な净水処理技術や、微量有害物質をも確実に除去し、水の再利用も視野に入れた下・排水の新処理システムを構築するために、超低圧逆浸透法に関する検討を行った。超低圧逆浸透膜は実験に供した内分泌搅乱物質の多くを90%以上の阻止率で分離したが、非解離状態にあるものについては80%以下の阻止率を示すものがあり、溶質と膜の間の電気的相互作用や吸着を含むその他の相互作用についてさらに検討する必要があることが明らかになった。

A. 研究目的

コミュニティーにおいて安全かつ豊かで自立した水環境を創生するためには、多様な水源に適用できる净水技術や、下・廃水中の有害物質を含む様々な汚濁物質を適切に処理した後、水の再利用が可能な水処理技術の開発が重要である。本研究ではその一環として超低圧逆浸透膜を用いた微量有害物質含有水の浄化と同膜の使用において基礎となる溶質透過機構について検討を加えた。

B. 研究方法

微量有害物質としての各種内分泌搅乱物質（2,4-Dichlorophenol、Bisphenol A、 17β -estradiol、Diethyl Phthalateなど）の超低圧逆浸透膜（全芳香族ポリアミド系膜、公称のNaCl阻止率：99.7%）による膜分離試験をpH 3～10の間で所定値に保ち行った。また、ノニルフェノールについては実排水処理をも想定して、有機物質としてのグルタミン酸ソーダ

及び無機物質としての塩化カルシウムの共存系での分離実験を行った。なお、供試液温度は $25 \pm 2^\circ\text{C}$ に保ち、圧力は0.3Mpaあるいはそれ以下の一定圧力で操作した。また、低圧逆浸透膜による溶質除去における膜電位（ゼータ電位）の影響を明らかにするために、各種低圧逆浸透膜の流動電位方式によるゼータ電位測定を自動測定装置（日本ルフト株・ZetaCAD）及び手作り簡易装置を用いて行い、上記の膜分離実験における結果と合わせて考察した。

（倫理面への配慮）

とくに配慮すべき項目はない。

C. 研究結果

全芳香族ポリアミド系膜の超低圧逆浸透膜を用いて各種内分泌搅乱物質の膜分離（印加圧力0.3Mpa）を行ったところ、Bisphenol A、 17β -estradiol、Diethyl phthalateのように100%近い分離率が得られるものがあった。一方、

Pentachlorophenol や 2, 4-Dichlorophenol の阻止率は pH 依存性を示し、酸性域で阻止率が 80% 以下と低く、アルカリ性域で高くなつた。種々の（超）低圧逆浸透膜のゼータ電位を測定したところ、通常の膜では強酸性領域で正、弱酸性からアルカリ性領域では負の電位をもち、膜によって異なる等電位点 (zpc) をもつことが明らかになつた。

D. 考察

実験に供した内分泌搅乱物質等の溶質は、その pKa 値が中性付近以下にありアルカリ領域で解離していること、及び用いた膜はその ζ 電位測定結果から弱酸性からアルカリ性域にかけて負に帶電していることから、阻止率は溶質の解離性と膜の電位に依存すると考えられた。Nonylphenol の超低圧逆浸透膜による分離についても同様な pH 依存性を示したが、上記の膜よりは塩阻止性能が低い低圧逆浸透膜（公称の NaCl 阻止率：94%）を用いた実験では、時間とともに阻止率が漸減するという他の溶質では見られない傾向を示した。この結果は Nonylphenol の膜への強い吸着性によることが、吸着実験の結果から明らかとなつた。酢酸やグルタミン酸ナトリウムなどの有機物質あるいは塩化カルシウムのような無機物質との共存系における Nonylphenol の膜分離挙動について調べたところ、Nonylphenol 単独系での膜分離結果との比較において阻止率が 10～20% 上昇して 95% 以上を示し、しかも共存物質の濃度が高い方より高くなることがわかつた。Nonylphenol は、このよう

な共存物質とともに挙動し同時に分離される機構があると推定された。

E. 結論

多くの内分泌搅乱物質は、超低圧逆浸透膜によりほぼ 90% 以上分離されることがわかつたが、Nonylphenol のように膜へ強く吸着し、徐々に溶出してくるものもあった。今後は内分泌かく乱物質のような汚濁物質と膜との相互作用についてさらに検討する必要がある。

今後の新しい水管理システムを構築するためには、微量有害物質を効率的に分離できる膜分離法の発展が不可欠であり、低圧逆浸透法は高効率かつ操作が容易な方法として重要な位置を占めていくと期待される。

G. 研究発表

1. 論文発表

1) Hiroaki Ozaki et al., The Role of Membrane ζ -Potential in Solute Rejection by Low Pressure Reverse Osmosis Membrane, Water Science and Technology : Water Supply, Vol. 2 (5-6), 321-328, 2003.

2) Hiroaki Ozaki Kusumakar Sharma and Wilasinee Saktaywin, Performance of an ultra-low-pressure reverse osmosis membrane (ULPROM) for separating heavy metal : effects of interference parameters, Desalination, No144, 287-294, 2002.

2. 学会発表

尾崎博明, 低圧逆浸透膜を用いる電気メッキ廃水の処理、第 57 回土木学会年次学術講演会後援概要集、VII-150, 2002.

粒状活性炭膨張床式反応器によるテトラクロロエチレンの分解に関する研究

分担研究者 津野 洋 京都大学大学院工学研究科教授

研究要旨

環境微量汚染化学物質による水質汚濁は、環境保全の立場からも利水の立場からも深刻な問題であり、未知のものも含め対応可能な技術展開が不可欠である。このため、オゾン処理（+促進酸化処理）+生物活性炭処理が有用であると考えられる。本研究では、生物活性炭処理の部分に焦点を当てて、粒状活性炭膨張床式反応器を考え、そして環境微量汚染化学物質としてテトラクロロエチレン（PCE）を対象とし実験的検討を試みた。また、PCE 分解関与微生物の特定の DNA を PCR で増幅させることにより、反応器内の生態学的状態下での存在を確認する手法を適用した。連続処理実験において馴致には約 100 日かかりそれ以後は嫌気性分解にとって良好な状態を保ち続け、PCE、COD ともに良好に処理された結果を得ることができた。PCE は明らかに粒状活性炭による物理吸着とともに微生物分解も受けて除去されていることが、物質収支解析および分解中間物より確認された。そして PCR 手法により、PCE をエチレンまで分解できる *Dehalococcoides* の存在が確認された。

A. 研究目的

環境微量汚染化学物質による水質汚濁は、環境保全の立場からも利水の立場からも深刻な問題である。これら化学物質は、顕在化し評価基準が示されている物質、環境中での存在が確認され影響が懸念されている物質、未知のものなど種々のレベルにあるが、未知のものも含め対応可能な技術展開が不可欠である。環境微量汚染化学物質の多くは活性炭に吸着される。そして、生物学的に分解されるものもあり、こういった化学物質は、活性炭の吸着と生物学的分解を組み合わせれば、生物活性炭処理として長期にわたり微量であっても水中より除去しうる。生物学的に分解が難しい化学物質も存在する。このため、我々は、オゾン処理（+促進酸化処理）+生物活性炭処理を未知物質も含めた対処として考えている。本研究では、生物活性炭処理の部分に焦点を当てて実験的検討を試みた。

生物活性炭反応器として粒状活性炭膨張床式反応器を考え、そして環境微量汚染化学物質とし

て、地下水汚染物質であるテトラクロロエチレン（PCE）を対象とした。

粒状活性炭膨張床式反応器は粒状活性炭による物理吸着及びそれに付着増殖する微生物による生物分解を組み合わせて廃水処理を行う反応器である。本反応器では、高濃度では生物に阻害性を与える物質が、粒状活性炭によって吸着除去されて低濃度となることにより阻害性が緩和され、また長期間反応器内に保留されるので生物による分解の可能性も高まる。そして粒状活性炭は生物付着担体として最適な表面形状を有しており、表面の凹凸には、微生物の付着量及び付着速度を増大し、微生物の剥離を防ぐ効果がある。難生物分解性物質を含む廃水の処理においては、反応器をスタートさせてから生物分解が行われはじめるまでに馴致期間が存在する。しかしその期間は粒状活性炭による物理吸着によって、反応器からその物質が高濃度で流出するのを防ぐように操作することができ、またその物質を分解できる微生物が十分粒状活性炭に蓄積すれば、吸着し

た有機物を徐々に分解するので、粒状活性炭の生物学的再生も期待できる。またその吸着能により流入水の負荷変動にも対応できる。さらに反応器内は下部から上部への循環によって粒状活性炭が流動化しており、固定床に見られる有機物の生分解における拡散律速の問題も解消される。

この反応器では、分解に関与する微生物の存在の把握は重要である。微量の化学物質の分解では、共代謝であることが多く、複数の微生物の共益作用により生じていることも考えられ、その場合は単一の微生物を分離して研究する手法は使えない。このため、本研究は関与微生物の特定の DNA を PCR で增幅させることにより、反応器内の生態学的状態での存在を確認する手法を適用した。

B. 研究方法

1) 連続処理実験

本研究では嫌気性条件下での PCE の処理を試みた。連続処理実験で使用した粒状活性炭膨張床式嫌気性反応器を図 1 に示す。

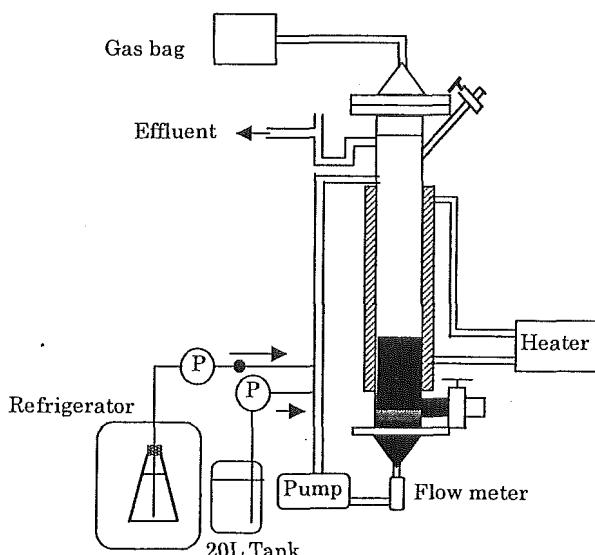


図 1 実験装置図

本装置は、内径 10cm で有効高さ 127cm (有効容積 10L) の温水保溫管付きの透明塩化ビニル製のカラム型反応器である。この中を水道水で満たすと共に、吸着剤として、及び嫌気性微生物を付着させるための担体として平均粒径 0.9~1.1mm の粒状活性炭を充填し、それと同時に、嫌気性微

生物群を添加することで植種を行った。反応器の上部から反応器内の液の一部を引き抜きマグネットポンプにより底部に循環することで担体の膨潤流動化を行った。循環流量は膨張率が 25% となるように、上昇速度を 22.9 ($m^3 / (m^2 \cdot hr)$) として設定した。

処理対象廃水は、表 1 に示される組成の人工廃

表 1 流入組成

有機物		
PCE	0.0027~0.0172g	
エタノール	0.132g~0.264g	
栄養塩類		
K ₂ HPO ₄	0.348g	
KH ₂ PO ₄	0.227g	
NH ₄ Cl	0.5g	
MgCl ₂ ·6H ₂ O	0.41g	
CaCl ₂ ·2H ₂ O	0.05g	
システイン塩酸塩・1水和物	0.3g	
*) ビタミン水溶液	1ml	
**) 微量元素	3ml	
***) Fe(OH) ₃ · 6H ₂ O 溶液	1ml	
水道水	1L	
*) ビタミン水溶液	***) 微量元素	
ビオチン	0.02g	ZnSO ₄ ·7H ₂ O 0.1g
葉酸	0.02g	MnCl ₂ ·4H ₂ O 0.03g
ピリドキシン塩酸塩	0.1g	H ₃ BO ₃ 0.3g
チアミン塩酸塩	0.05g	CoCl ₂ ·6H ₂ O 0.2g
リボフラビン	0.05g	CuCl ₂ ·2H ₂ O 0.01g
ニコチニ酸	0.05g	NiCl ₂ ·6H ₂ O 0.02g
(+)-パンテントン酸カルシウム	0.05g	Na ₂ MO ₄ ·2H ₂ O 0.03g
p-アミノ安息香酸	0.05g	
(±)-チオクト酸	0.05g	イオン交換水 1L
イオン交換水	1L	***) Fe(OH) ₃ · 6H ₂ O 溶液
		Fe(OH) ₃ · 6H ₂ O 2g
		イオン交換水 1L

水を用いた。PCE の生物分解も想定しているため、有機物として処理対象物である PCE と共にそれへの電子供与体となるエタノールを溶解した。また、ORP を低下させるため、システインを添加した。流入水構成物を 20L のポリタンク及び 3L の三角フラスコの 2 つに分け、それぞれ別々にマイクロチューブポンプを用いて反応器の循環ラインへと供給した。三角フラスコには揮発の恐れのある PCE 及びエタノール、並びに変質の恐れのあるビタミン水溶液等を入れ冷蔵庫中において 4°C で保存し、供給した。また PCE の揮発を抑える工夫として三角フラスコにはバイトン製の栓をした。

流出水は反応器の上部より、流入した水量に相当する量で得られる。本反応器は、常に流入水水

量に比して大量の混合液を循環しているため、反応器全体としてみると見かけ上完全混合状態であるので、流出水の組成及び各物質の濃度は、反応器内のそれと同じである。生成したガスは反応器の上部より排出され、排出口に接続したガスバッグによって捕集した。反応器内の水温は温水循環装置を用いて33~36℃の範囲に調節した。

嫌気性微生物の植種のために、以前よりPCEを処理していた同型反応器から活性炭200mlを引き抜き、本研究での反応器に添加した。なおこの活性炭に付着していた微生物量は0.3mgAlb/gGACであった。担体用の活性炭としては平均粒径0.9~1.1mmの粒状活性炭FILTRASORB400(東洋カルゴン製)を使用した。

処理運転条件を表2に示す。この運転期間中は、水理学的滞留時間(HRT)を5日に維持し、PCE及びエタノールの濃度を変えて、Run I~IVの系列下で行った。この表に示されるPCE及びCODcrの濃度は定期的に行なった流入水分析の各Runの平均値を示している。

表2 運転条件

Run No.	I	II	III	IV
日	1~68	68~125	125~325	325~
流量(L/day)	2	2	2	2
HRT(day)	5	5	5	5
PCE	2.0	2.0	6.2	11.5
Ethanol	132	264	264	132
COD _{cr}	440	650	650	450
PCE	2.7	2.7	8.3	15.3
Ethanol	176	352	352	176
COD _{cr}	587	867	867	600

処理状況を把握するために、定期的に流入水および流出水の採水を行い、pH、ORP、全及び溶解性CODcr、並びにクロロエチレン類について分析を行なった。反応器から生成したガスはガスバッグで捕集し、メタンおよび二酸化炭素の濃度分析およびガス発生量の計量を行なった。また本研究における連続実験期間の最後に反応器内の粒状活性炭を採取し、粒状活性炭に付着した微生物中のタンパク質量とDNA量の分析を行い付着生物量の把握を試みた。

2) PCE分解菌の測定

PCEを一つの菌で無害なエチレンにまで分解

する菌がわかっている。そこで本実験では、その菌に着目しその存在の確認を、PCR(Polymerase Chain Reaction: ポリメラーゼ連鎖反応)手法を用いて試みた。PCRは、生体内でのDNA複製の際に起こっている反応を試験管内で行うことにより、DNAのある特定の領域を増幅させる反応である。

実験手順のフローチャートを図2に示す。まず、反応器から活性炭を採取する。それを少量取り、99℃で15分間インキュベートする。これにより活性炭に付着している微生物中のDNAを抽出する。その抽出液をPCR反応溶液と混ぜPCRする。その後、PCRの反応液を電気泳動にかけPCR産物のDNAの長さを確認する。実験条件はLöfflerら¹⁾の実験に基づいて設定した。この実験では、PCEをエチレンまで分解することができる*Dehalococcoides*とPCEを分解できる*Desulfomonas*をターゲットにして行った。以下表3にプライマーを表4にPCR条件を示す。

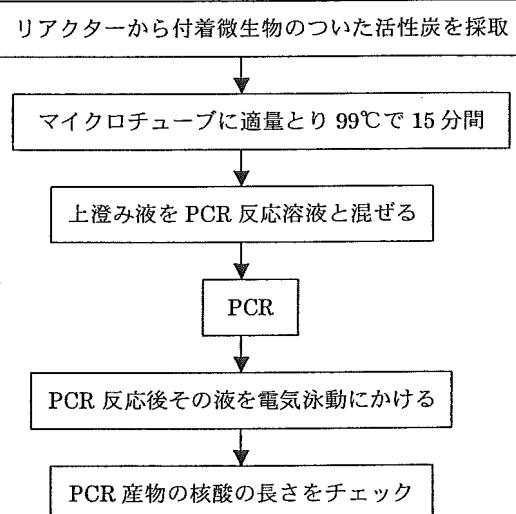


図2 PCR実験手順

表3 プライマー

target	primer	position	product length
<i>Dehalococcoides</i>	foward 5'-AAGGCGGGTTCTAGGTTCAC-3'	728-750	444
	reverse 5'-CGTTTCGCGGGGCAGTCT-3'	1172-1155	
<i>Desulfomonas</i>	foward 5'-AACCTCAGGGTCTACTGTC-3'	205-222	817
	reverse 5'-GCCGAATCTGACCCCTATGTT-3'	1033-1015	

表4 PCR条件

°C	time(min)	cycle
94	3	1
94	0.75	
58	0.5	30
72	1.5	
72	7	1

C. 研究結果

1) 連続処理実験

流入水の pH は、6.8 であった。実験期間中の流出水 pH は、連続運転開始から上昇し始め、25 日目以降から 6.8~7.2 で安定していた。メタン生成をもたらすメタン生成細菌の pH の至適範囲は一般に 6.5~8.2 の間であり、本研究ではこの至適範囲内に維持されていたと判断される。実験期間中の反応器内の ORP は、連続実験開始直後は 220mV であったが徐々に ORP は下がっていき、メタン生成が起こる ORP の条件である-200mV より低くなったのは実験開始から約 10 日であった。1 ヶ月間は-250mV~ -300mV の範囲であったが、100 日目以降からは-320mV 前後で安定していた。100 日目以降から ORP 値が安定したことから本反応器では馴致に約 100 日かかったものと考えられる。

実験期間中の流入水中の COD_{Cr} 濃度と流出水中の全及び溶解性の COD_{Cr} 濃度の測定結果を図 3 に示す。流出水の COD_{Cr} 濃度は、馴致までに要したとされる 100 日までは約 90mg/L と高くなつたが、これ以後は、高くて 20mg/L となつた。

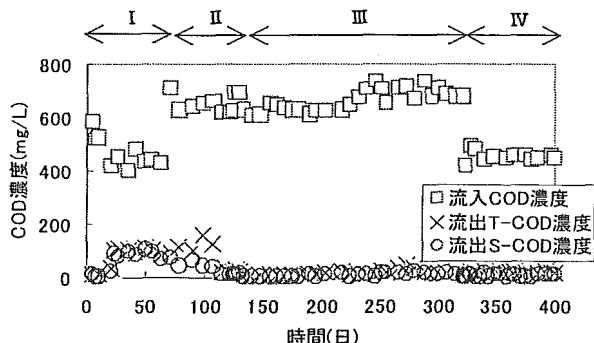


図 3 COD_{Cr} 経日変化

実験期間中の流入水中及び流出水中の PCE 濃度を図 4 に示す。Run I、IIにおいて、流入 PCE 濃度の 2.0mg/L に対して流出 PCE 濃度は 0.03~0.2 μg/L であった。また、Run III では、流入水中 PCE 濃度を 3 倍にしたところ、その直後に流出 PCE 濃度が 0.3 μg/L に上がつたがその後は 0.2 μg/L 前後で安定していた。そして、Run IV では、流入水中 PCE 濃度をさらに 2 倍し、流入エタノール濃度を 1/2 倍にしたが流出水中の PCE 濃度はほとんど変化はなかつた。実験期間を通して、PCE 処理率は

99.99%以上と高い処理率を保つた。また、その他のクロロエチレン類は、TCE が Run IV から検出されようになつた。その値は 0.1 μg/L 以下と低い値を保ち続けていた。その流出水中の TCE 濃度の分析結果を図 5 に示す。その他のクロロエチレンに関しては、検出できなかつた。

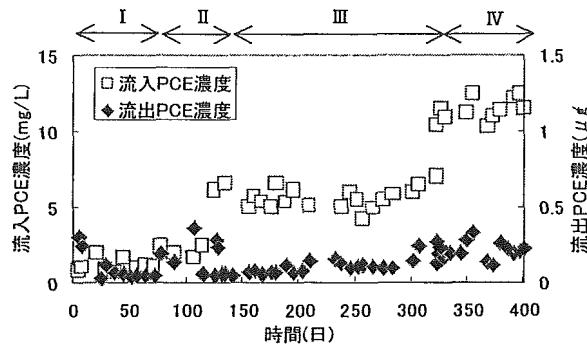


図 4 PCE 濃度経日変化

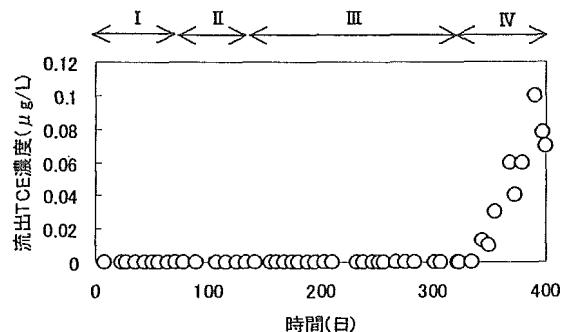


図 5 TCE 経日変化

実験期間中のメタンガスの生成速度を図 6 に示す。馴致に要した 100 日までは、メタン生成速度は 50ml/day であったが、その後は徐々に増加していき 350ml/day 前後で安定した。エタノール濃度を 1/2 倍とした Run IV では、350ml/day の約半分である 170ml/day となり、エタノール負荷変動に追随して変化することがわかつた。

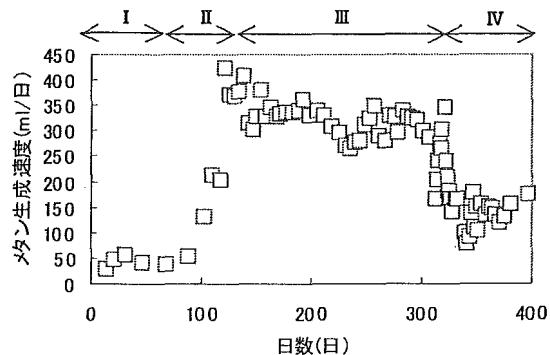


図 6 メタンガス生成速度経日変化

粒状活性炭付着微生物量は、タンパク質換算で、

1.43mgAlb/g GAC であった。初期に投入した粒状活性炭付着微生物量は 0.3mgAlb/g GAC であったので、実験期間中に微生物は徐々に増加したことがわかった。また、DNA 量で求めたところ 0.26mgDNA/gGAC であり、西村ら²⁾の研究で導出された補正係数(0.47mgAlb/mgMLSS)を用いると、3.04mgMLSS/gGAC となる。さらに、0.031mgDNA/mgSS の補正係数を用いると 8.38mgSS/gGAC となる。

2) PCE 分解菌の測定

PCE 分解菌の存在を明らかにするために特定の PCE 分解菌の 16SrDNA に着目し、PCR 法に基づきその存在を明らかにすることを試みた。電気泳動をおこなった結果を図 7 に示す。レーン 1 と

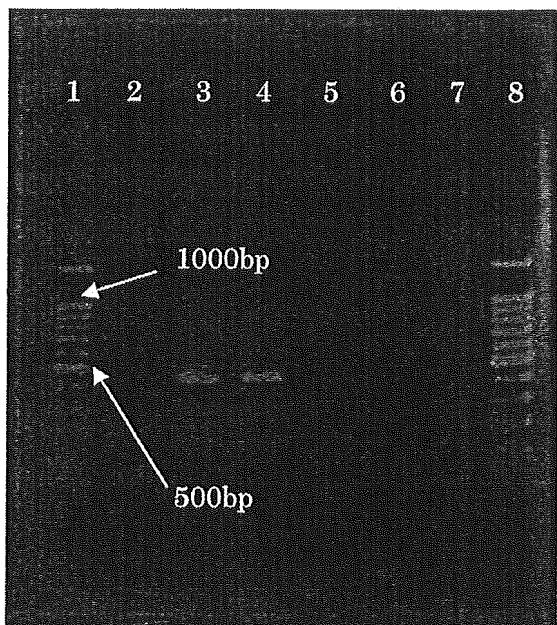


図 7 泳動写真

8 はマーカーで 100bp ずつ示している。レーン 2 は *Dehalococcoides* のネガティブコントロールであり、レーン 3.4 は *Dehalococcoides* の PCR 産物である。これより、PCR 産物の DNA の長さは 450bp くらいなので予想の 440bp とほぼ一致している。このため、反応器内には *Dehalococcoides* が存在していることがわかる。また、レーン 5 は *Desulfomonas* のネガティブコントロールであり、レーン 6.7 は *Desulfomonas* の PCR 産物である。これにより、レーン 6.7 には PCR 産物が確認されないので、反応器内には *Desulfomonas* が存在し

ないことがわかる。

このことから、16SrDNA に着目しターゲットに対して PCR をすることにより反応器内のその菌の存在の有無が確認できることがわかり、また *Dehalococcoides* が存在することがわかった。

D. 考察

CODcr に関して実験期間中の流入量、その中のエタノール由来の CODcr、流出量、及び流出量+メタンガス化量の累積値の関係を図 8 に示す。

(A) は流出量、(B) はガスに変換された量、(C) はエタノールの変換したもので流出及びメタンへのガス化以外、(D) は流入 COD のうちエタノール以外、主にシステイン塩酸塩・1 水和物の行方を表している。図より流出水の水質が常に安定しており、メタンガスが実験開始から 100 日経ったあたりから活発に生成されたことが分かる。(C) の内容としては、エタノールの水素などメタンガス以外のガスへの変換などがあり、その他は反応器への貯留量である。(D) の内容としてはシステイン塩酸塩・1 水和物の微生物分解により生成された硫化水素などが考えられる。システインが嫌気的に分解されると、ピルビン酸とアンモニアと硫化水素が生成される。そのピルビン酸が生物分解されエタノールや乳酸ができる。このため、システインはエタノールの上乗せとなることになる。このことよりシステイン塩酸塩・1 水和物が生物分解によりエタノールが生成され、メタンの上乗せとなつたことは十分に考えうる。

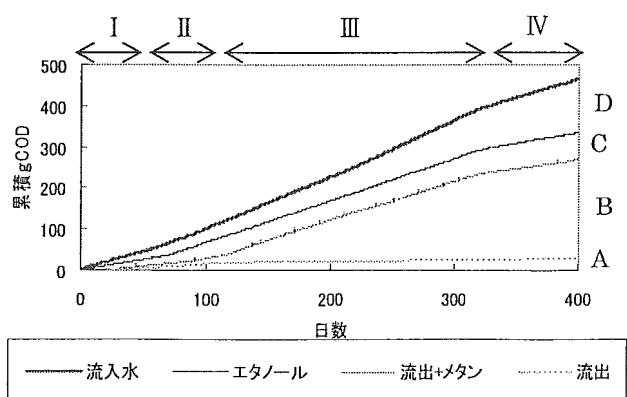


図 8 各累積 COD 経日変化

PCE に関して実験期間中の流入量及び流出量の累積値の関係を図9に示す。図より流入した

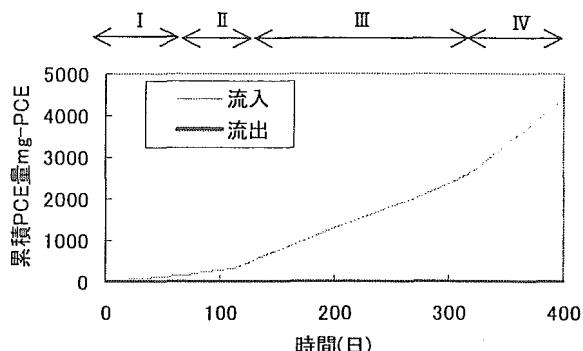


図9 累積PCE経日変化

PCE のほとんどが反応器内から流出していないことが分かる。実験の最終日（400日）の時点で PCE としての除去率は、99.99%以上である。この時除去された分が全て活性炭に吸着されていたと仮定すると、その吸着量は 2.95 (mg/g-GAC) である。ソックスレー抽出により吸着量を求めた結果 0.16 (mg/g-GAC) であった。これにより粒状活性炭による吸着以外の作用、すなわち嫌気性の微生物分解によって PCE が除去されているのは明らかである。このことは、PCR 手法により反応器内には *Dehalococcoides* が存在していることが明らかにされたことからも確実であると考えられる。

E. 結論

本研究で得られた主な結果は、以下のとおりである。

- ①連続実験において馴致には約 100 日かかりそれ以後は pH、ORP、ともに嫌気性分解にとって良好な状態を保ち続け、PCE、COD ともに良好に処理された結果を得ることができた。メタン生成速度も 100 日を過ぎたころから徐々に増加していきエタノールの負荷率相当分に追随した。
- ②流入させているシステインも PCE 分解に寄与していることがわかった。また、より良好な処理のためには、エタノールも不可欠であることが示された。
- ③流入した PCE は明らかに粒状活性炭による物

理吸着以外の作用、すなわち嫌気性の微生物分解も受けて除去されており、また実際にその分解中間物である TCE も実験開始から 340 日後検出されはじめた。

④PCE 分解菌の 16SrDNA に着目して、反応器内の PCE 分解菌の有無を調べたところ、PCE をエチレンまで分解できる *Dehalococcoides* の存在が確認された。

⑤以上より、粒状活性炭膨張床式反応器の環境微量汚染化学物質（本研究では PCE）の処理に有用なことが示された。

参考文献

- 1) FRANK E. LÖFFLER, QING SUN, JIERAN LI, JAMES M. TIEDJE : 16SrRNA Gene-Based Detection of Tetrachloroethene-Dechlorinating *Desulfuromonas* and *Dehalococcoides* Species, Applied and Environmental Microbiology, Vol. 66, No. 4, p 1369-1374
- 2) 西村文武、津野洋、宗宮功：付着微生物量に関する研究、環境衛生工学研究、Vol.10、No.3、p245-250、1996

F. 健康危険情報

なし

G. 研究発表

なし

H. 知的財産権の出願・登録状況

なし

厚生労働科学研究費補助金（健康科学総合研究事業）

分担研究報告

凝集・MF 膜分離によるウイルス除去に関する研究

岐阜大学 松井佳彦 岐阜大学教授

研究要旨 伝統的な凝集法によってウイルスが除去されていることがわかった。このメカニズムとしては不活化の可能性が高い。したがって、ウイルスの除去が期待できないMF膜処理では凝集を前処理としてすることの有効性が示された。新技術のみならず伝統的な技術においても、病原微生物や微量有害物質（外因性内分泌擾乱化学物質など）等に対する安全性は未だ不明であり、新技術の適用にあたり、技術の評価を学術的に厳正に研究しておく必要があることが確認された。

A. 研究目的

凝集剤として PAC（ポリ塩化アルミニウム）を添加し凝集操作を行った後、精密ろ過（MF）をする処理法におけるウイルスの除去性を検討した。

B. 研究方法

(1) 試料水

木曽川河川水を採水・冷蔵保存し、全ての実験について同一の試料水を用いた。試料水の TOC, E260 はそれぞれ 1 mg/L , 0.02 cm^{-1} であった。NOM の除去性は、TOC, E260 及び分子量膜分画法 (Amicon YM filter) と HPSEC (Hitachi GLW520, PEG 校正) による分子量分布で評価した。ウイルスの除去性は、試料水に大腸菌ファージ Q₁ を添加し、その除去率で評価した。ウイルスの添加に伴う試料水の TOC 増加は 10% 以下になるように設定し、さらに NOM 除去実験はウイルスなしで独立して行った。試料水の試料中

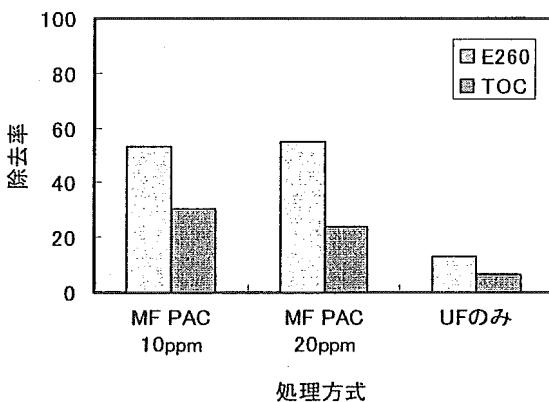


図-1 NOM 除去率

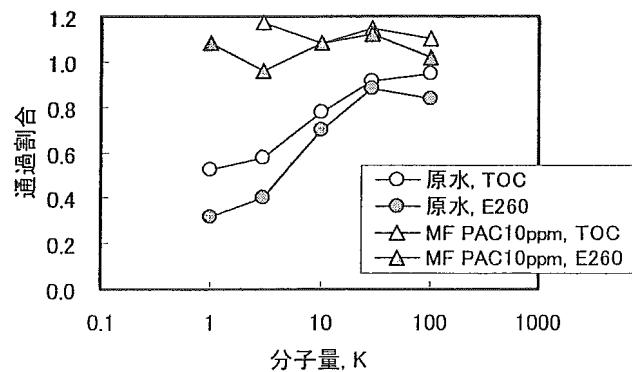


図-2 Amicon 膜による分子量分布

の Q? は宿主菌として *Escherichia coli* K12F⁺ (A/?) を用いたブラック形成法で定量し、PFU 単位で表示した。

(2) 凝集・MF 膜処理

5 連の攪拌槽を用いて河川試料水を流量 100mL/min で連続凝集・フロック形成処理し、MF 膜に通水した。MF 膜として膜面積 0.048 m²、公称分離孔径 0.1 ?m のセラミック膜を用い、フラックス 1.5 m³/日で 6 時間通水した。凝集、フロック形成の G 値、攪拌時間は、350 s⁻¹、35s⁻¹、5 min、15min である。さらに、比較のため、公称分画分子量 15 万の UF 膜（膜面積：0.13 m²）を用い、フラックス 1.0 m³/日、ろ過時間 1 時間で試料水の除去実験を行った。

C. 研究結果

(1) NOM の除去性

図-1 に NOM の除去率を示す。PAC 添加濃度 10ppm で、50% (E260) と 30% (TOC) 除去が達成された。これに対し、NOM が低分子成分で構成されているため、分画分子量 15 万の UF 膜処理では 13% (E260) と 5% (TOC) の除去に留まった。図-2 に示すように、分子量膜分画法によると、試料水中の分子量 10000 以下の成分割合は 80% であった。これに対し、凝集・MF 膜処理で残存する NOM は分子量 1000 以下の低分子成分であった。凝集剤添加により全体の 50% を占める分子量数 1000 以上の高分子成分が凝集粗大化するため、凝集・MF 処理では NOM の高い除去が達成された。アルミニウム濃度は、原水が 110?g/L であったのに対し、MF 膜処理後は PAC の添加の有無にかかわらず 30 ?g/L であり、分離サイズがさらに小さい UF では 12 ?g/L であった。

(2) ウィルスの除去性

凝集・MF 膜処理におけるウィルスの除去率

を図-3 に示す。PAC が 10ppm では 6log、20ppm では 8log の除去が達成された。PAC 20ppm 以上の添加率では、分画分子量 15 万の UF 膜処理に相当するウィルス除去が達成されることが分かった。このような除去が凝集・MF 膜処理のどの段階で達成されているかを調べるために、凝集・フロック形成終了時の水を採水し、フロックを含むままでウィルス濃度を調べた。図-3 に示すように、凝集・フロック形成終了時点ですでにウィルス濃度は 4log 程度低下していた。残りの除去は膜ろ過によって生じていると推定された。

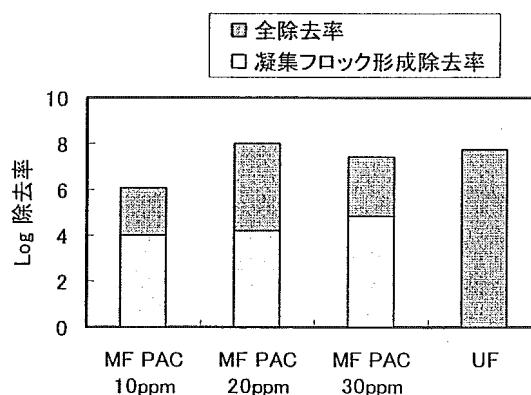


図-3 ウィルス(Q?)の除去率

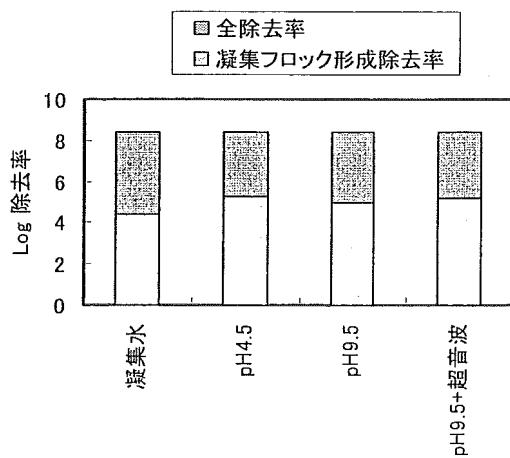


図-4 ウィルス(Q?)の除去率(PAC20ppm)

D. 考察

この $4\log$ の低下はどのようななかたちで生じたかをさらに検討した。フロックを溶解させるため試料水の pH を 4.5 と 9.5 に変化させた後 (pH4.5~9.5 の範囲ではウィルスの不活化などの影響はない), 濃度を測定した。図-4 に示すように, pH を 4.5 または 9.5 に変化させることによっても, ウィルス濃度は増加しなかった。pH を 9.5 にし超音波でフロックを分散させた場合にフロックは消滅したが, フロックを溶解させてもウィルス濃度は増加しなかった。アルミニウムフロックに取り込まれることによってウィルスは, 不活化された可能性が高い。

このように, 新技術のみならず伝統的な技術においても, 病原微生物や微量有害物質(外因性内分泌攪乱化学物質など)等に対する安全性は未だ不明であり、新技術の適用にあたり、技術の評価を学術的に厳正に研究しておく必要があることが確認された。凝集と MF 膜処理のように, 要素技術を組合せ或は統合しシステム化した場合に生じる得る問題や総合的リスク評価手法は併せて研究されるべき課題である。

E. 結論

伝統的な凝集法によってウィルスが除去されていることがわかった。このメカニズムとしては不活化の可能性が高い。したがって, ウィルスの除去が期待できない MF 膜処理では凝集を前処理としてすることの有効性が示された。さらに, この組み合わせは UF 単独処理に比べて NOM の除去性が高いことが示された。

F. 健康危機情報

凝集処理でウィルスが除去され, さらに水から分離され汚泥に移行したウィルスは感

染力がないことは, 浄水管理上重要な知見である。

G.

1. 論文発表

なし

2. 学会発表

Yoshihiko Matsui, Taku Matsushita, Takanobu Inoue, Masahiro Yamamoto, Yasuhiro Hayashi, Hitoshi Yonekawa, Yukihiko Tsutsumi, Virus Removal by Ceramic Membrane Microfiltration with Coagulation Pretreatment. *Proceedings of IWA Conference Membranes in Drinking and Industrial Water Production*, pp.157-164, Berlin, 2002.

H. 知的財産権の出願・登録状況(予定を含む)

なし

分担研究報告書

既存の急速ろ過方式浄水場における砂ろ過池洗浄排水の膜ろ過処理

分担研究者 湯浅 晶 岐阜大学流域圏科学研究センター

研究要旨

急速ろ過方式の既存浄水場において発生する砂ろ過池洗浄排水等の返送水の膜ろ過処理を行った。膜ろ過の運転は長期間にわたって非常に安定しており、膜ろ過水の水質は浄水なみに良好であることが実証された。

A. 研究目的

我が国における急速ろ過方式の既存浄水場では、砂ろ過池の洗浄排水は原水着水井に返送され、原水と混合して浄水処理工程に戻して再利用するのが一般的である。砂ろ過処理された浄水量の5～10%前後の量が洗浄用に使用され、ろ過池洗浄排水として排出される。

洗浄に必要な水量は砂ろ過池の洗浄頻度や洗浄効率に左右される。原水中の藻類や有機物の濃度が高い場合には凝集剤添加濃度が増加し、砂ろ過池への負荷配分が増加して砂ろ過池が閉塞しやすくなるので、砂ろ過池洗浄用の水量が増加する。したがって、砂ろ過池洗浄排水の返送は貴重な水資源の有効利用として重要である。

しかし一方では、浄水処理工程で除去された不純物の一部が浄水処理工程中に循環・蓄積することへの懸念が指摘されている。特に、クリプトスボリジウム等の病原性微生物が浄水処理工程中に循環・蓄積することは、予期せぬ故障や事故等により浄水処理機能の低下が生じた場合に重大な水道水汚染と健康被害を引き起こすことにつながる。このような事態を防ぐための選択肢の一つが返送水の膜ろ過処理による高度な固液分離の導入である。

本研究では、既存浄水場における急速砂

ろ過池洗浄排水の膜ろ過処理の実用性について検討することを目的として、セラミック精密ろ過膜を用いたパイロットプラント膜ろ過実験を行った。

B. 研究方法

A県N市水道局K浄水場(急速ろ過方式)の砂ろ過池洗浄排水貯留槽から排水を採取して、場内に設置したパイロットプラント膜ろ過実験装置に連続的に供給してデッドエンド方式による膜ろ過実験を行った。

使用した内圧式モノリス型セラミック精密ろ過膜エレメントの外観を写真1に示す。膜エレメントの直径30 mm、長さ1000 mmであり、原水流路側のモノリス穴の内径は2.5 mmである。分離膜の公称孔径は0.1 μmである。

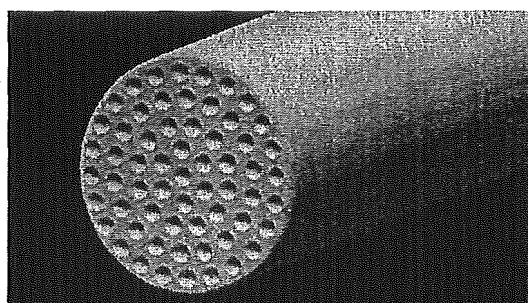


写真1 モノリス型セラミック膜エレメント

を行うとすると、薬品洗浄周期は約 90 日と推定される。

表 1 水質分析の結果

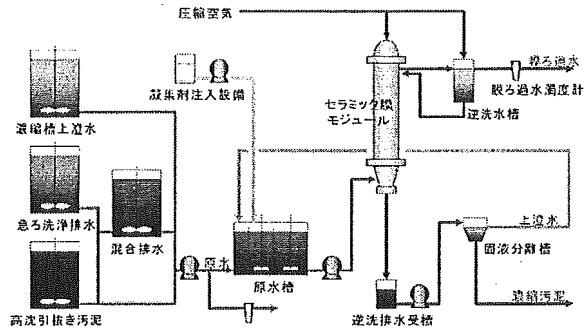


図 1 実験装置の概略フロー

実験装置の概略を図 1 に示す。膜ろ過工程では、膜ろ過流束が 4.0 m/d となるように定流量制御して実験原水を膜モジュールにポンプ圧送水した。膜間差圧が膜ろ過工程開始時に比べて 30 kPa 増加した時点で膜ろ過工程を停止して、逆洗工程に移った。逆洗工程では圧縮空気を動力として膜ろ過水を膜エレメントに圧送して逆流洗浄すると同時に、圧縮空気をモノリスエレメントの原水側流路に圧送して、膜表面に蓄積した汚泥を剥離洗浄排出した。

C. 研究結果

水質分析の結果を表 1 に示す。実験原水（砂ろ過池逆洗排水）の濁度は 40 度前後であり、膜ろ過水の濁度は常に検出限界以下（0.1 度以下）であった。膜ろ過水は極めて清澄であり、浄水並に良好な水質を維持した。

実験開始当初の膜間差圧は 10 kPa 程度であり、膜ろ過運転は極めて安定しており、逆洗間隔は $120\sim180$ 分で推移した。実験日数の経過につれての膜間差圧の上昇は極めて緩やかであり、2 週間の運転時間で膜間差圧の增加分は約 15 kPa であった。膜間差圧が 100 kPa に達した時点で薬品洗浄

水質項目	砂ろ過池洗浄排水		
	最大	最小	平均
濁度 度	55.5	32.0	43.2
真色度 度	2.2	1.2	1.5
KMnO ₄ mg/L	20.9	15.4	18.7
消費量			
E260 1/cm	0.102	0.081	0.093
総Fe mg/L	1.74	0.96	1.32
総Mn mg/L	0.260	0.168	0.233
総Al mg/L	9.70	5.05	5.60

分析項目	膜ろ過水		
	最大	最小	平均
濁度 度	<0.1	<0.1	<0.1
真色度 度	0.5	0.3	0.4
KMnO ₄ mg/L	3.4	2.7	3.0
消費量			
E260 1/cm	0.059	0.038	0.052
総Fe mg/L	<0.01	<0.01	<0.01
総Mn mg/L	<0.005	<0.005	<0.005
総Al mg/L	0.08	0.03	0.06

D. 考察

通常の濁度が 5 度前後以下の河川水や湖沼水等を原水とする膜ろ過処理では、前凝集処理を伴って $1.5\sim2.5 \text{ m/d}$ 程度の膜ろ過流束で安定した膜ろ過運転がなされるのが一般的である。これに対して、濁度が 10 倍程度高い砂ろ過池洗浄排水を原水とする膜ろ過処理では、 4.0 m/d といった高流束での安定運転が可能であった理由は次のように考えられる。

砂ろ過池洗浄排水の濁質濃度は、水源の

原水の濁質濃度、凝集剤注入量、砂ろ過池での除去濁質量、逆洗水量／原水量比などに左右されるが、一般には、浄水場流入原水濁質濃度の数倍程度までの範囲となる。濁質の粒度分布からみると、河川水や湖沼水中の濁質が $1\text{ }\mu\text{m}$ 前後の粘土コロイドであり、 $10\text{ }\mu\text{m}$ 以上の粒子は非常に少ない。これに対して、砂ろ過池洗浄排水中の濁質は、砂層間隙に抑留蓄積して $100\sim 1000\text{ }\mu\text{m}$ 程度まで成長した凝集フロックが逆流洗浄攪拌によって剥離したものであり、微細化した $10\text{ }\mu\text{m}$ 前後～数十 μm の凝集粒子と微細化されなかった数百 μm の濁質が混在する。

このような濁質粒子の性状の違いにより、砂ろ過池洗浄排水の膜ろ過では、膜ろ過浄水処理の場合よりも大きな膜ろ過流束による運転が可能であると考えられる。

E. 結論

内圧式モノリス型セラミックMF膜を用いて、既存浄水場における急速砂ろ過池洗浄排水のデッドエンド方式の膜ろ過処理が高流束条件で安定して運転可能であることが実証された。膜ろ過水の水質は極めて良好であり、そのまま浄水として供給することが可能であると期待される。

F. 健康危惧情報

なし。

G. 研究発表

なし。

H. 知的財産権の出願／登録状況

なし。

厚生労働科学研究費補助金（健康科学総合研究事業）

分担研究報告書

メンブレンバイオリアクターによる環境ホルモンの除去に関する研究

分担研究者 渡辺 義公 北海道大学大学院工学研究科教授

研究要旨：21世紀型リサイクル社会に対応するための統合的水管理を目指した新しい水代謝システムのための超高度下水処理法について提案し微量汚染化学物質の除去率が飛躍的に高まるこことを明らかにした。

A. 研究目的

単純大規模システムによる高速大量輸送技術を基盤として一括的な水供給と污水排除を行うことにより、20世紀の都市水代謝を支えてきた近代上・下水道は、構造的な渴水と水質汚濁に対処できず破綻しようとしている。本研究では、21世紀型リサイクル社会に対応するための統合的水管理を目指した、新しい水代謝システムのための超高度下水処理法について研究する。本下水処理法は、病原性微生物と微量汚染化学物質の除去効率を飛躍的に高めて、下水処理水を河川の上・中流部に戻すことにより、下水処理水を非飲用水の水源として再利用することを可能にする。

B. 研究方法

海域よりはるかに希釈効果が小さい表流水域に下水処理水を戻せば、その生態系への影響は極めて大きいことを考慮して、本研究では微量汚染化学物質として環境ホルモンを取り上げ、前凝集沈殿処理とメンブレンバイオリアクター（MBR）を組み合わせた下水処理システムによる除去効率を明らかにする。MBRには膜孔径と膜材質が異なる三つの装置を用いた。実験装置は札幌市創成川下水処理場に設置し、実下水を原水とする実験を行った。対象とした環境ホルモンは 17β エストラジオール（E2）、Estrogenとした。

C. 研究結果および考察

標準活性汚泥法、各種 MBR における TOC と E2 の除去率を比較した。活性汚泥法に比べて全ての MBR の E2 除去率は高い。最初沈殿池流出水の E2 濃度は 20ng/L であったが、活性汚泥処理水では 8ng/L、凝集沈殿水では 20mg/L であった。MLSS 濃度を 5, 8, 15mg/L とした中空糸 MF 膜、

回転 UF 平膜、固定 MF 膜を用いた MBR 処理水では E2 はそれぞれ 4, 2.5, 2ng/L となつた。それぞれの MBR においては汚泥の生物学的活性の増加に伴って処理水の TOC 濃度が低下するに伴って E2 と Estrogen の濃度も低下した。これらのことから、E2 は生物学的に除去されたことが示唆されるが、生物学的な分解と吸着の割合については不明である。下水処理場の返送活性汚泥を遠心分離し、分離液を孔径 $0.45 \mu\text{m}$ のろ紙でろ過したろ液の E2 濃度は 30ng/L であったことから、活性汚泥には相当量の E2 が吸着されていたことがわかる。渡辺らは MBR の活性汚泥は標準活性汚泥より遙かに粒径が小さく、このことが混合液の粘性を下げ、中空糸膜への汚泥の付着を抑制することを見いだした。同一の MLSS 濃度でも MRB 活性汚泥は通常の活性汚泥よりも大きな表面積を持つ為 E2 や Estrogen の吸着に有利であると考えられる。

D. 結論

水の間接的再利用はライン川や淀川の例を見るまでもなく、世界の至るところで行われてきた。それを計画的・集中的に行う場合は、再利用時のリスクは勿論のこと、排水の放流先の生態系への影響も考慮すべきである。特に、環境ホルモンに対する考慮は必要である。本研究では 17β エストラジオールと Estrogen の MBR による除去性が活性汚泥法よりはるかに高いことを明らかにした。

E. 研究発表

2. 学会発表

糸永貴範、渡辺義公、凝集沈殿と膜分離活性汚泥法を組み合わせたハイブリッド下水処理システムの評価、第 37 回日本水環境学会年会講演集、P. 290、2003. 3