

2004-019793

厚生労働科学研究研究費補助金

健康科学総合研究事業

健康で豊かな水環境を創造するための新しい水管理システムの可能性  
ーその戦略的構築と支援技術開発

平成14年度～16年度 総合研究報告書

主任研究者 山本 和夫  
東京大学環境安全研究センター教授

平成17(2005)年 4月

## 目 次

### I. 総合研究報告

#### 1) 第1部 総合研究報告

健康で豊かな水環境を創造するための新しい水管理システムの可能性  
ーその戦略的構築と支援技術開発

山本和夫 東京大学環境安全研究センター センター長/教授

#### 2) 第2部 個別研究成果

次世代メンブレンバイオリアクターシステムの開発

山本和夫 東京大学環境安全研究センター センター長/教授

##### 1. 光利用型水処理技術の開発とその展開

大瀧雅寛,お茶の水女子大学大学院人間文化研究科,助教授

##### 2. 前凝集沈殿ーメンブレンバイオリアクターを用いた都市下水処理技術に関する研究

岡部聡,北海道大学大学院工学研究科,助教授

##### 3. メンブレン関連技術

浦瀬太郎,東京工業大学大学院理工学研究科,助教授

##### 4. 化学物質による健康影響リスクを回避した自律・分散型の水システムに向けた安全性評価

高梨啓和,鹿児島大学工学部,助教授

##### 5. 有害物質の選択的除去ー機能性タンパク質を利用したバイオプロセスの開発

福士謙介,東京大学環境安全研究センター,助教授

##### 6. 健全な水環境の水質モニタリングに関する研究

亀屋隆志,横浜国立大学大学院工学研究院,助教授

##### 7. 小規模分散型水供給システム導入と消毒技術の評価

伊藤禎彦,京都大学大学院工学研究科,教授

##### 8. システムの総合評価 (遺伝子)

遠藤銀朗,東北学院大学工学部,教授

##### 9. 微量汚染化学物質除去への膜分離法の適用に関する研究

尾崎博明,大阪産業大学工学部,教授

##### 10. 河川水中の自然由来有機物とエストロゲンの挙動に関する研究

湯浅晶,岐阜大学流域圏科学研究センター,教授

##### 11. 超微粉化活性炭と凝集剤を添加する MF 膜処理

松井佳彦,岐阜大学工学部,教授

##### 12. メンブレンバイオリアクターによる微量汚染化学物質の除去に関する研究

渡辺義公,北海道大学大学院工学研究科,教授

#### 3) 第3部 座談会 「健康で豊かな水環境を創造するための新しい水管理システムの可能性ーその戦略的構築と支援技術開発」・・・次世代の水システムについて・・・

### II. 研究成果の刊行に関する一覧表

厚生労働科学研究費補助金（健康科学総合研究事業）

総合研究報告書

健康で豊かな水環境を創造するための新しい水管理システムの可能性－その戦略的構築と  
支援技術開発

主任研究者 山本和夫 東京大学環境安全研究センター教授／センター長

#### 要旨

本総合研究報告書は平成14年度～平成16年度までの研究成果を以下の3つの部分に分けて報告する。第1部として本研究に参加した研究者等で論議した新しい水システムの提案に関する物、第2部として個別研究成果の報告、第3部として今までの研究をふまえ、今後の水システムのあり方をテーマに本研究に携わった主要な研究者に国立保健医療科学院の国包章一水道工学部長を加えて座談会を行った記事を報告する。

本研究は我が国を代表する研究者が集まり、次世代の水システムのあり方を考え、それを支える基盤技術ないしはそのシードを開発することに目的を置き、(社)土木学会環境工学委員会高度水処理技術・システム小委員会（小委員長：山本和夫、平成16年度まで）の活動基盤を十分活用し、産官学連携、基礎技術開発を促進する事をねらった。その結果として「コミュニティレベルの水管理システム」の提案を行い、それを実現するための研究の方向性や問題点などを示し様々な問題の構造化を行った。一方、技術開発面においては膜技術を利用した新システムの提案や新しいバイオアッセイ法の提案など提案システムを支える技術開発を行った。

## 第1部 新しい水システムの提

### 案

分担研究者名	所属機関	所属機関における職名
大瀧雅寛	お茶の水女子大学大学院人間文化研究科	助教授
岡部 聡	北海道大学大学院工学研究科	助教授
浦瀬太郎	東京工業大学大学院理工学研究科	助教授
高梨啓和	鹿児島大学工学部	助教授
長岡 裕	武蔵工業大学工学部	助教授
福士謙介	東京大学環境安全研究センター	助教授
亀屋隆志	横浜国立大学大学院工学研究院	助教授
伊藤禎彦	京都大学大学院工学研究科	教授
遠藤銀朗	東北学院大学工学部	教授
尾崎博明	大阪産業大学工学部	教授
津野 洋	京都大学大学院工学研究科	教授
松井佳彦	岐阜大学工学部	教授
湯浅 晶	岐阜大学流域科学研究センター	教授
渡辺義公	北海道大学大学院工学研究科	教授
小越真佐司	(財)下水道事業団	
北脇秀敏	東洋大学	教授

#### A. 目的

持続可能な都市の形成は、今世紀における人類の喫緊の課題である。すなわち、既存の都市は再生されなければならない。水がなければ都市が存在し得ないという点で、水は都市の欠くべからざる構成要素である。

本研究は、水技術の革新という側面から、都市における水活用の新しい形態を作り出し、持続可能な都市の形成に貢献する。都市に存在する水を再生する技術、或いは都市を水で再生する技術を、都市水再生技術と位置付け、水活用社会の実現のため、或いは新しい水利用を展開するための研究を推進する。水活用社会のあるべき水システム像の理念の下で水再生技術の開発と理想的な水システムの提案、そして現在の水道・下水道のインフラを十分活用した上で、現実的な理想水システムへ移行するための方針を研究する。

#### 背景と問題の所在

「水危機に直面する地球」の問題は、持続可能な開発における水の問題であり、畢竟、人口爆発による食料不足及び衛生危機の問題である。このような全地球的環境問題に取り組むことに加えて、我が国においては、近い将来に予測される大幅な人口減少の局面にどう対応するかが問われている。或いは先進諸都市においては、成長の終焉した都市をどう活性化させ再生していくかが問われている。高度成長期の都市を支えるために、遠くにダムを建設し水資源を開発してきた時代は過ぎ去り、ダム開発に頼らない水活用社会の実現が力説されている。しかし現実の都市を見ると、都市の水は意外に活用されていない。活用できる水システムとなっていないからである。

確かに、明治以来の近代水道の普及により、全国ほぼ限なく飲料水として衛生的な水の供給が実現し、水系感染症を激減させた。このことは医療・保健の長足の進歩と

相俟って、長寿命国の実現に貢献した。高度成長期に激甚であった未処理の都市生活排水による河川水質汚濁は、近年の急速な下水道の普及により、大きく改善された。しかし、現在の都市の水システムはいささか硬直化している。飲用以外の用途の水利用が多いにもかかわらず、「おいしい水」を一律に長距離輸送して供給している。それにもかかわらず特に若い世代に顕著になってきているが、高度処理しコストと手間をかけてつくった水道水すらも飲まずに、ペットボトルの水を飲む皮肉な現象が常態化しつつある。都市の水ストックとしての浅層地下水は正当に評価されるべきであるはずなのに、地盤沈下対策としての地下水の汲み上げ規制と水資源の表流水転換が図られてきた経緯もあり、浅層地下水の利用は必要以上に抑制されている。それは多大な効果を挙げたが、その結果都心部では地下水位が上昇し、地下構造物に影響を与えないため地下水を引き抜く必要があるもののそれを利用できないため、無駄に下水道に捨てるという皮肉な事態も生じている。また、地下水を利用しないため却って地下水汚染が放置されてしまった側面も否定できない。地下水の利用は地下水涵養とのバランスの問題でもある。雨水浸透は地下水涵養に重要な役割を担うが、その雨水の水質管理については、まだ検討が十分になされていない。また社会問題となる水不足は渇水時に顕在化するが、雨が降らない渇水時に雨水浸透は望めない。都市活動が維持される限り排水され処理される污水こそ、長期にわたる渇水時にも安定した地下水涵養源であるはずなのに、大規模集約化が進んだ下水道ではそのような活用法は期待でき

ない。水活用社会を真に実現するためには、既存の都市の水システムを更新し再生していく必要がある。

さらに、都市における水の需要は新しい局面を迎えようとしている。飲料水や雑用水などの従来型需要に加え、様々な潜在的な需要がある。例えばヒートアイランド現象に苦しむ東京などでは水を積極的に都市の熱管理に利用することが有効となるはずである。たとえば、屋根・外壁面或いは路面散水や緑化等、直接間接の蒸発潜熱の利用、水冷冷房方式の復活、或いは水を廃熱媒体とし下水道で集め熱回収する等々、様々な工夫が可能である。その際、発生するエアロゾルやミスト中に病原体が存在して空気中に飛散しないよう、その安全性を確実に担保する水を作り出す技術が必要となる。

#### 上位概念としての水システムの方向性

地球及び地域の持続可能性 (Sustainability) は、3 Es (Economy, Environment, Equity) の三位一体として実現すると指摘されている。水活用社会の実現にあたって、「持続可能性」はその前提となる上位概念である。「持続可能性」を支える経済産業構造として、メンテナンス産業の重要性が指摘されている。付加価値を生む財やサービスの生産のみの経済産業構造から、付加価値を再生するメンテナンスを中心とした経済産業構造への転換が迫られている。大量生産・大量消費の時代から、循環型社会への転換においても、長寿命製品とそのメンテナンスの確立が不可欠である。このような視点で、従来の水システムを構成する技術群を見直すと、ややも

すると効率優先でスケールメリットを追求する大量生産型の価値観を引きずった技術開発の結果として実現してきたものが多く、必ずしも地球環境時代における持続可能な維持管理のあるべき姿を体現していない。

本申請グループの中核メンバーは、厚生労働省科学研究費や社団法人土木学会環境工学委員会高度水処理技術・システム小委員会の活動の下、上記問題の解決の糸口を探る討議を重ねてきた。その結果、上記ミッションを体現する水システムのあるべき姿は「自律分散持続型」水システムにあるとの結論に至った。自律とは、システムの経営において自律していることであり、技術的には多様な水資源の利用が前提となる。また、自律システム間のネットワーク型の調整が可能な重層的自律システム群が構築されなければならない。分散とは、システムの経営範囲が小規模で分散していることであり、コミュニティレベルにおける多様なリスクベネフィットに関わる参加型意志決定を可能とし、また重層的システム群においてはシステムリスクを分散することにある。持続とは、持続可能なメンテナンスをシステムとして実現することであり、総体としての自律分散持続型水システムにおいては、3Esを実現するコミュニティにおける参加型の経営、維持管理を通じて、地域における持続型の雇用を創出し、さらに重層的システム群の自律的調整により、グローバルな視点での持続可能性を追求する自主的システム改善が継続的に行われるべきものである。このような「理想」水システムを構成することにより、持続可能な水活用社会を実現し、新しい水利用が展開されると考えられる。

水活用社会における分散システムの位置づけ

終末処理場や大規模浄水場に代表されるような集約型水管理システムはスケールメリットがあることは確かであるが、水を集約し、汚染物質も集約する。一方、都市における排水源は散在しており、また、需要源も都市中に散在する。都市で排出される下水は散在する水資源としてとらえることができるが、その水を利用するためには小規模かつ高度な水浄化システムが必要である。また、浄化された水の貯蔵を考えると、浅層地下水を都市における貯留池として考えると分散型のシステムが効率的に機能する。熱管理のための水も分散的に利用してこそ効果を発揮する。

一般に、分散型水システムは維持管理が困難で、かつエネルギー消費が大きくなると考えられている。現状技術のままでは、それは正鵠を射た評価といえる。しかし、家庭用燃料電池の実用化が目前に迫り、未利用エネルギーとしての廃棄物バイオガス化を都市ガス燃料電池システムに組み合わせることにより、例えば、デイスポーター対応エネルギー節約型高度浄化システムの実現は俄然と現実味を増しているし、太陽光発電などの分散型エネルギー供給と組み合わせるには、分散型水システムの方がむしろ合理的となる。維持管理の問題解決の鍵は、参加型システムの構築にあるが、それも情報技術の革新によりユビキタス社会が到来しようとしており、いわば素人が参加する維持管理を支援する技術群の土壌は醸成されてきている。従って、現在はおもかく将来においては、分散型水システムの「維

持管理が困難で、かつエネルギー消費が大きい」という隘路は解消される可能性が大きい。だからこそ、そのための技術開発を推進する必要がある。

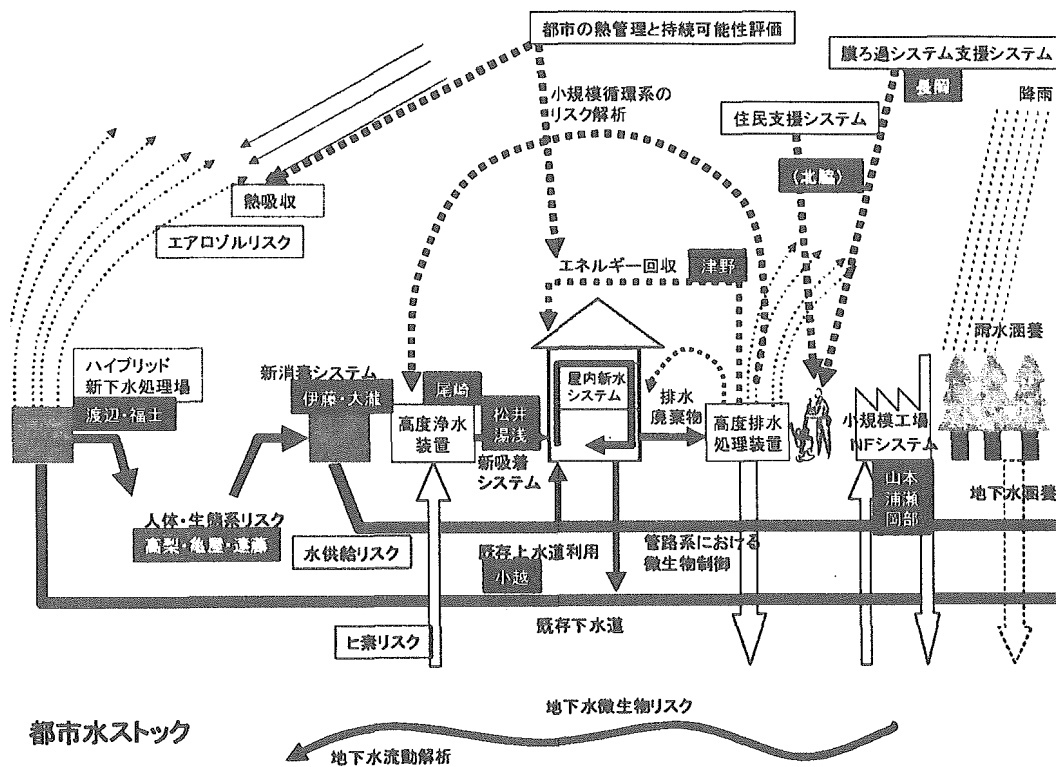
想定される研究の具体的項目

今後、このコミュニティレベルの水管理を効率的に研究を行うためには、この提案システムの有する利点を考慮しつつも現存する技術では安全かつ持続的にシステムを構築できない現実を踏まえ、下記のように研

究分野を分けて今後活動をして行くのが望ましい。

- 1) 新しい水利用形態と水再生技術に関する研究
- 2) 水再生システムの実現性、安全性評価に関する研究

具体的には、地下水創造研究、地下水利用研究、都市雨水水質管理研究、都市熱管理研究、市民参加・メンテナンス研究、そして安全性評価等が特に必要な研究分野となる。下に本構想のコンセプト図を載せる。



コミュニティレベル水管理システムの概略図

(図中の研究者名は該当項目を専門とする我が国の代表的な研究者である)

## 第2部 個別研究成果の報告



厚生労働科学研究費補助金（健康科学総合研究事業）

総合研究報告書

次世代メンブレンバイオリアクターシステムの開発

主任研究者 山本 和夫 東京大学環境安全研究センター教授／センター長

#### 研究要旨

主任研究者である山本は助成研究全体の統括を行うと同時にメンブレンを利用した高度な水浄化システムを開発してきた。本助成研究においては主にナノ濾過膜を利用した新しいメンブレンバイオリアクターシステム(NF-MBR)の開発と MBR 内の生物叢の変遷の解析を行った。生物叢の解析は将来的にはメンブレンのファウリング解析などにも役立つと思われる。NF-MBR の開発に関しては長期間の運転に成功し、メンブレンバイオリアクターシステムの操作上の特性解析を行った。また、生物叢解析においては膜表面の微生物叢と反応槽液中の微生物叢とではその構成が異なっていたことが分かった。今後、これらの知見を基礎に、より高度でより信頼性のある浄化システムを構築する事が可能となった。

#### A 研究目的

膜分離活性汚泥法(Membrane Bioreactor: MBR)とは、活性汚泥法と膜分離法を組み合わせたプロセスであり、通常、分離膜としては精密濾過膜(Microfiltration: MF) ないしは限外濾過膜(Ultrafiltration ; UF) が使用される。膜分離活性汚泥法は膜の固液分離作用で汚泥流出が阻止されることにより、バイオリアクターの生物濃度を高められるので、装置の小型化が可能であることや余剰汚泥の生成量が少ないこと等が利点である。特に膜分離により、汚泥の沈降性に処理水質が全く影響されないと言う大きな長所を有する。最近では、大量製造により膜モジュールの販売コストも低下し、廃水処理への適用にあたって経済的な妥当性もより高まっている。このような背景をもとに、現在日本を筆頭に世界で小規模の下水処理を中心に様々な分野で広範囲に適用されはじめている。

一方、近年 UF 膜と逆浸透 (Reverse Osmosis ; RO) 膜との中間領域の阻止性能を持つナノ濾過

(Nanofiltration ; NF) 膜の開発が進められている。NF 膜は、以前はルーズ逆浸透膜と呼ばれていたが、適用範囲が広がることで現在は NF 膜という新たな分類がなされている。NF 膜は、おおよそ 2 nm より小さい程度の粒子や高分子が阻止される圧力駆動の膜分離プロセスとされている (なお、精密濾過 (MF) :  $>0.1\mu\text{m}$ , 限外濾過 (UF) :  $0.1\mu\text{m} \sim 2\text{nm}$ )。しかし、一般的に NF 膜は UF 膜と RO 膜の中間の細孔径をもつ (細孔径 1-2 nm, 分画分子量 200-1000 程度) ことに加えて、膜素材表面に荷電を持つ膜を指している。すなわち NF 膜では、(1) 細孔による分離効果 (篩い効果), (2) 膜表面の荷電による静電気的な分離効果, (3) 水中物質の膜への親和性による分離効果等が組み合わされて、その膜固有の阻止性能及び透過性能を示す。NF 膜の中には膜自身の荷電により、1 価イオン (例えば  $\text{Na}^+$ ) は通し、2 価イオン (例えば  $\text{Mg}^{2+}$ ) は阻止できるものもあり、また細孔径も製造法を変えることにより制御できるので、NF 膜はこれら細孔と荷電の違いにより特徴のある分離

性を付与することができる。

この特性により、最近の環境分野の複雑かつ高度な要求に応えるものとして NF 膜の水浄化プロセスへの応用が注目されている。欧米においては NF 膜は地下水・河川水からの有機溶剤、農薬除去を目的とした浄水プロセスとして多く適用されており、大規模な NF 膜プラント（例えば、処理量 140,000 m<sup>3</sup>/日）が続々と採用されている。また、フミン質、難分解性有機汚染物質 (Persistent Organic Pollutants, POPs)、重金属イオン、内分泌攪乱物質 (Endocrine Disrupting Chemicals, EDCs) 等の分離除去の要望が多いので、今後 NF 膜の分離特性が有効に利用されると予想されている<sup>2)</sup>。更に、低圧下で運転できる NF 膜モジュールが続々開発されて来ており、電気料金等ランニングコストの面でもまた、膜モジュールそのもののコストも下がってきており、水浄化への適用可能性が高まっている。

本研究タスクの目的は NF 膜を利用した排水浄化システムの開発とバイオリアクター内の微生物叢解析としている。ただし、微生物叢解析に関しては精密濾過膜を使用した。

## B 研究方法

### 1) NF-MBR システムの開発

本タスクにおいてはナノ濾過膜（セルロース系、ポリアミド系）を使用したメンブレンバイオリアクターシステムを組み、実下水を原水として長期間処理を行った。

### 2) 膜のファウリングに関わる微生物の役割

本タスクにおいては精密濾過膜を使用したメンブレンバイオリアクターシステムを構築し、実下水を原水として長期間処理を行い、その間の膜表面とリアクター内溶液中の微生物叢の変遷を分子生物学的手法で追跡した。微生物叢の変遷の解析には PCR-DGGE 法を用いた。

## C 研究結果および(D)考察

### 1) NF-MBR システムの開発

本研究は今まで例の無かった NF 膜とバイオリアクターの組み合わせを実下水に対してその適用性を検討した物である。特に今回の研究では、高品質の処理水質と高い耐微生物分解性を狙い、密度の高い 3 酢酸セルロース膜とポリアミド膜を使用した。

約 10 日間の運転結果から、NFMBR は MFMBR より良い処理水質が得られることがわかった。ポリアミド膜の場合、DOC 濃度が 1.0mg/L 以下になり満足できる処理水質となった。更に、リンの場

合、3 酢酸セルロース系及びポリアミド系 NF 膜は膜分離のみの除去効率で 80 - 90% を得た。しかし、窒素の除去率はリンより低く、35 - 45% だった。ただし、窒素は生物学的にも除去が可能であるため、膜の分離性能に多く依存せず、嫌気-好気微生物を組み込んだ脱窒システムなどを構築することも考えられる。

本研究では使用した NF 膜では膜間差圧が高くなり、NFMBR プロセスの長期間に亘る安定運転はできなかった。長期運転を実現するためには、膜で起こっている濃度分極現象を解決しなければならない。この現象を解決するためには塩の阻止率が低く有機物の阻止率の高い NF 膜の開発が望まれる。結果として長期運転はできなかったが、処理水質の面と耐生物分解性の面では高い評価が得られ、NF 膜を使用した膜分離活性汚泥法の新しい応用分野が考えられる。

### 2) 膜のファウリングに関わる微生物の役割

本研究においては膜に付着している微生物が膜のファウリングに大きな役割を担っているのではないかという仮定の下、膜のファウリングと微生物叢の関連、そしてその微生物叢の特徴を把握することを目的に、膜付着微生物叢とリアクター内溶液中の微生物叢を採取し、その時間的な変遷を調べた。その結果、膜表面とリアクター内溶液中の微生物叢は異なっており、*Xanthomonas* 属に近縁な細菌が優占種として膜表面に特異的にしかも長期間に渡って存在することが分かった。*Xanthomonas* 属細菌はバイオポリマーを産生することから、その近縁種の膜表面への付着と増殖はバイオポリマーつまり細胞外高分子物質 (EPS) 生成となんらかの関連があると推定された。ひいてはこのバイオポリマーが膜ファウリングに大きな役割を担っている可能性もある。

## E 結論

NF-MBR の開発に関してはある程度の長期間運転に成功し、システムオペレーション上の特性解析を行った。結果としてセルロース系のナノ濾過膜は耐久性に若干の問題があり、ポリアミド系の膜は高い膜間差圧が問題である。塩阻止率が低く、有機物の阻止率の高い新しい膜の開発が望まれる。また、生物叢解析においては膜表面の微生物叢と反応槽液中の微生物叢とではその構成が異なったことが分かった。今後、これらの知見を基礎に、より高度でより信頼性のある浄化システムを構築する事が可能となった。

F 論文発表

小野(伊津)恭子、山本和夫、中島典之(2004)、光合成細菌を用いた廃水処理における紅色非硫黄細

菌の選択的増殖のための諸条件の検討、水環境学会誌、27(4), 261-266.

光利用型水処理技術の開発とその展開

分担研究者 大瀧雅寛 お茶の水女子大学大学院人間文化研究科 助教授

研究要旨

光を利用する水処理は、化学薬品注入と異なり、自身の残存性がないことや、副生成物反応の可能性が低いなど、処理後の放流先に関して環境負荷が低い技術である点が長所である。本研究はこの光利用型水処理技術として、人工光である紫外光を用いた消毒技術を適用した場合の管理方法を検討した。また持続可能なエネルギーとして太陽光を用いた排水技術の開発として、可視光照射下で、脱色能力をもつ光依存性細菌から分離した細胞由来物質を用いた脱色処理について、その可能性を検討した。

A. 紫外光を用いた消毒技術について

光利用型の水処理技術として、紫外光による消毒処理について検討を行い、以下の知見を得た。

1) 低圧紫外線ランプとパルスランプの2種類の紫外線ランプによるウイルス（ファージQβ）の消毒効果を濁質共存下において比較した。低圧ランプを用いた実験結果を図1に示す。

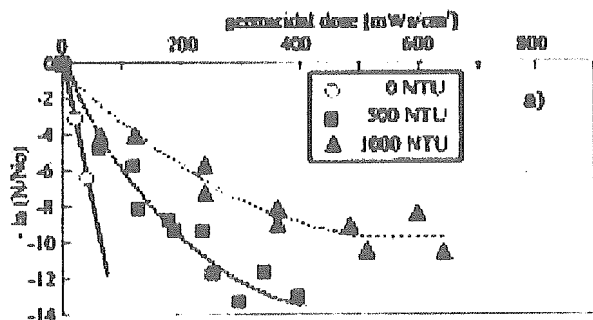


図1 高濁度（500, 1000NTU）におけるファージQβの不活化（低圧ランプ）

低圧ランプにおいては、濁質への吸着による遮光効果やテーリング現象が見られた。この場合、試料溶液の吸光度によって算定される平均紫外光強度は過剰評価となる可能性が示唆された。

パルスランプを用いた実験結果を図2に示す。

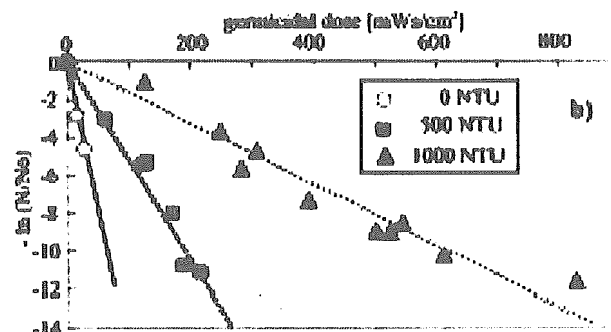


図2 高濁度（500, 1000NTU）におけるファージQβの不活化（パルスランプ）

パルスランプにおいては、濁質への吸着によるテーリング現象が見られず、ウイルスの場合は吸光度により算定される予想値と同等かそれ以上の消毒効率が得られることがわかった。

B. 消毒技術の管理手法について

水中の健康関連病原微生物の制御においては、浄水と同様に下水処理における管理制御が重要である。現在指標としては大腸菌群が用いられているが、今後十分な管理体制を敷くためにはその他の細菌指標やウイルス対応指標に関して検討しておく必要がある。また下水の消毒法として特に紫外線の導入増加が世界的傾向としてあり、実際に導入した場合、各指標に対してどのような特性を示すのかあらかじめ把握しておく必要がある。本研究では上記に鑑み実下水処理場の各微生物指標の検討とそれらの塩素・紫外線消毒処理における特性を検討した。

結果として、大腸菌群の濃度変動については他の細菌指標を代表しているとは言えず、他の2つ

のうちどちらかによって不備を補填できる可能性がある。消毒に関しては塩素よりも紫外線のほうが、効率評価としては安定していた。大腸菌フェージによる消毒効率評価についても同様であることがわかった。

### C. 光合成細菌を用いた染料 AB92 の脱色処理

太陽光を利用する排水処理技術として、光合成細菌を用いた処理が考えられる。しかし一般にこの様に可視光照射を行う生物処理においては、処理に伴う藻類増殖によって連続運転における処理能力が低下する。その原因を調べたところ、藻類増殖による可視光透過率の減少ではなくて、藻類が光合成細菌と群落を形成することによる細菌の固-液界面の現象によることが示唆された。

(図3参照)

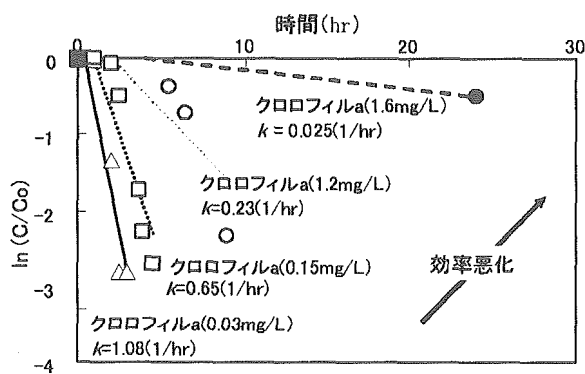


図3 連続運転における処理効率とクロロフィルa濃度

### D. 光合成細菌の細胞外物質による脱色処理

光合成細菌より分離された細胞外物質には、可視光照射下で AB92 の脱色反応を起こすことがわかった。またこの物質は高圧蒸気滅菌処理後においても脱色能力の低下がおきないこともわかった。(図4参照) さらに排水の処理水を再利用する際には、有機物除去や栄養塩除去が必要であるが、使用者の視点から見れば、着色成分の除去も重要な課題である。

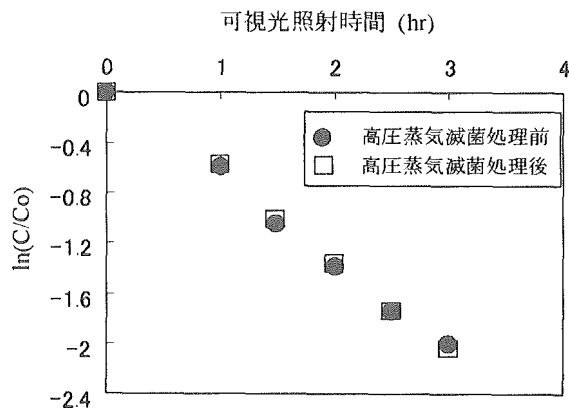


図4 高圧蒸気滅菌 (120°C, 15 分) 前後の細胞外物質溶液の AB92 の脱色能力

ここでは、数種の染料に対する脱色効果を比較検討すると共に、その分解機構について考察を加えた。またこの処理方法の適用性を検討するために、下水二次処理水および主な着色成分の水溶液を対象とした脱色処理実験を行った。図5より、酸性染料 (AR88, AB1) と反応性染料 (RB5) の反応速度は大きく異なることがわかった。

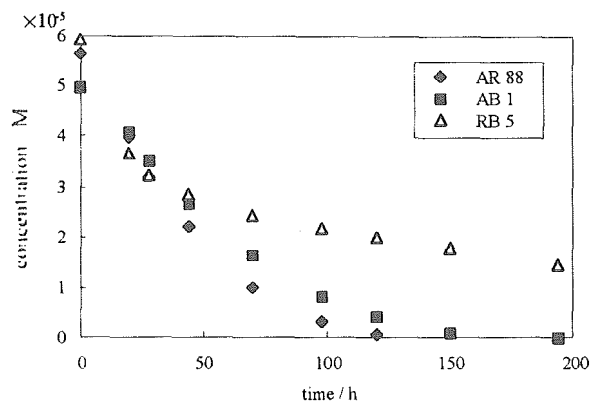


図5 AR88, AB1, RB5 の濃度変化

細胞由来物質は蛍光灯照射下において、酸性染料の分解能力を持つこと、二次処理水に対しては、分解能力はあるが時間かかることがわかった。効率を高める方法の一つとして、細胞由来物質を増やすことが考えられる。光触媒反応による細胞からの溶出増加を狙ったが、細胞由来物質量は増えたものの、分解能力の増加には至らなかった。従って、現時点では、依存性細菌数を増加させることが、細胞由来物質量の増加方法として有効な手段と考えられた。

厚生科学労働研究費補助金（がん予防等健康科学総合研究事業）  
分担研究報告書

前凝集沈殿－メンブレンバイオリアクターを用いた都市下水処理技術に関する研究  
分担研究者 岡部 聡（北海道大学大学院工学研究科助教授）

## 研究概要

本研究では、パイロットスケールの凝集沈殿を前処理として設けたメンブレンバイオリアクターの処理特性および汚泥中の微生物群集構造の解析を行い、両者をリンクさせることでMBRが従来の活性汚泥法と異なる点を把握し、MBRシステムの効率的な設計・運転方法の検討を行った。処理特性に関しては、特に、女性ホルモン様物質（ $17\beta$ エストラジオール；E2）の除去特性および除去メカニズムについて、長期にわたる実下水を用いたパイロットプラント実験結果を基に検討を行った。その結果、MBRは、①MLSS濃度が高いため汚泥吸着容量が大きく、吸着されたE2は長時間かけて生物分解されること、②膜細孔径以上の粒径を持つ溶存有機物と結合し膜分離されることなどの理由により、標準活性汚泥法に比べてより高度で安定した女性ホルモン様物質の処理が可能であることが認められた。また、TOCとE2およびE260とE2との間に明らかな正の相関関係が認められ、E2の処理特性はTOCまたはE260を指標として評価できる可能性が示唆された。微生物群集解析に関しては、MBR槽内には*Chloroflexi*に属する糸状性細菌が優占的に存在することが確認された。*Chloroflexi*は、嫌気・好気条件に関わらず、微生物細胞壁の主要構成物質であるNAGを利用することが確認され、MBR槽内で最終有機物分解者として機能することにより、MBRの処理・運転性に大きく寄与している可能性が示唆された。更に、膜モジュール面において、運転の継続に伴い、微生物が付着・増殖することによりバイオフィルムを形成し、膜ファウリング発生の要因の一つとなっていることが示唆された。これらの知見は、MBRの処理・運転性に関する機能の改善を行う上で非常に有用な結果を得ることができると考えられる。

## A. 研究目的

### 研究背景

現在、都市下水・産業廃水処理は標準活性汚泥法（Activated Sludge, AS）が最も多く採用されている。活性汚泥には多種多様な微生物が存在し、排水中の有機物の分解に寄与している。このような生物学的処理を用いた排水処理法の一つに、膜分離活性汚泥（Membrane Bioreactor, MBR）法がある。MBR法は、①膜孔径に応じた完全な固液分離が可能、②処理過程における余剰汚泥の生成を抑制することが可能、そして③増殖速度の遅い微生物の保持も可能等の利点を有する。このような利点のためにMBR法はより良好な処理水を得ることが可能であることから、都市下水処理への適用が検討されている。一方、MBR法には膜ファウリングの発生による膜透過水フラックスの低下等が生じることから、安定した運転を長期間連続して行うことが困難という欠点をもつ。現在、

この膜ファウリング発生機構の解明、および抑制方法について様々な研究が行われているが、未だ不明な点が多い。

また近年、ヒトや野生生物の生殖機能等に重大な影響を及ぼす可能性のある、外因性内分泌攪乱化学物質や人畜由来の女性ホルモンである $17\beta$ エストラジオール（E2）等による新たな水環境問題が顕在化してきている<sup>1)</sup>。このような女性ホルモン様物質は、そのほとんどが下水処理場を経由して河川等に影響を与えていると考えられ、下水処理の安全性評価及び確保は、今後ますます重要になると考えられる。現在広く用いられているA.S.において女性ホルモン様物質は60%～90%以上除去されているが、E2などは数ng/l程度の低濃度でも河川に生息する魚介類に対して内分泌攪乱作用を引き起こすことが認められていることから<sup>2)</sup>、現行のA.S.を用いた下水処理では、女性ホルモン様物質への対応は不十分であると考えられ

る。

## 本研究の目的

本研究では、パイロットスケールの MBR を用いて実都市下水処理を行い、微量有害物質のうち女性ホルモン様物質に着目し、A.S.および前凝集沈殿・MBR における除去性の相違について検討を行った。また処理過程における女性ホルモン様物質の挙動についても検討を行った。同時に MBR 槽内の混合液中の微生物群集構造を解析した。特に特異的かつ優占的に存在する微生物群に着目し、これらの溶解性有機物分解・除去と膜ファウリングの進行との関連性を検討した。また、膜面における、加圧水程度の物理洗浄では容易に剥離しない付着汚泥を解析した。

## B. 研究方法

MBR 前処理としての凝集沈殿処理は、傾斜管付きの噴流攪拌固液分離装置 (JMS : W1240mm×L3400 mm×H2350 mm) を採用した。JMS は多孔板において凝集と沈殿が同時に発生し、残余のフロックは傾斜管により除去可能な固液分離装置である。運転は凝集剤として PSI を 10mg·Fe/L 添加し、1.5 時間の水理的滞留時間 (HRT) で行った。MBR (W350mm×L520 mm×H1200 mm) に使用した膜モジュールは膜面積 3 m<sup>2</sup>、ポリエチレン製の浸漬型 MF 中空糸膜 (三菱レイオン製) である。運転は間欠曝気式、定流量吸引ろ過方式を採用した。

## C. 研究結果

本研究で得られた結果をまとめると以下のよう

- 女性ホルモン様物質は、そのほとんどが流入下水中では溶存態として存在するため、凝集沈殿処理においては、ほとんど除去できなかった。
- E2 は、標準活性汚泥法の生物処理において約 65% の除去率を得ることができたが、

MBR は最高で 90% (平膜装置) とさらに高い除去率が得られていた。また、標準活性汚泥法に比べて MBR は、高度の生物分解により、E2/Estrogen 率が小さくエストロゲン活性のより低い処理水を得ることができていた。

- MBR の女性ホルモン様物質の主な除去メカニズムは、①高 MLSS 濃度のため高い汚泥吸着容量を有し、かつ長時間かけて生物分解すること、②膜細孔径以上の粒径を持つ溶存有機物と結合し膜分離され透過水中へ流出しないがあげられる。
- TOC と E2 およびの E260 と E2 との間に重相関係数 0.7 の正の相関関係が認められ、E2 の処理特性は TOC または E260 を指標として評価できる可能性が示唆された。
- MBR 槽内の混合液中において糸状性細菌である *Chloroflexi* は高い存在割合を占めていた。*Chloroflexi* はフロック形成に関与し、混合液粘度の上昇に影響を及ぼすなど MBR 槽内混合液の物理的な特性の指標となることが示唆された。更に、死滅菌体由来の有機物などを利用することから、MBR 槽内の有機物分解に非常に重要な役割を果たし、溶解性有機物の蓄積による膜ファウリング進行の抑制に寄与することが示唆された。

## D. 結論

以上の結果ことより A.S. に比べて MBR は、有機物と同様女性ホルモン様物質に対しても、より高度で安定した処理を行えることが確認された。MBR 槽内に存在する微生物群集は AS の微生物群集とは異なることより、MBR 独自の設計・運転因子 (例えば、F/M 比、SRT など) が存在することが明らかとなった。膜面上にバイオフィームが付着・増殖することによるバイオフィームが膜ファウリング進行の重要な要目の一つであることが示唆された。このバイオフィーム形成は *β-Proteobacteria* に属す

る細菌が主要な役割を果たしていることが示唆された。

今後はこれらの得られた知見に基づいて、MBR を効率的に設計・運転するための因子を最適化する研究を行う必要がある。

#### F. 研究発表

##### 1. 論文発表

なし

##### 2. 学会発表

- 1) 久保広明、岡部 聡、木村克輝、渡辺義公、MBR(Membrane Bioreactor)を用いた都市下水処理システムにおける女性ホルモン様物質の挙動、第 38 回日本水環境学会年会講演集、札幌、p363、(2004 年 3 月)
- 2) 巽 善彦、岡部 聡、渡辺 義公、ジルコニウムメゾ構造体による下水汚泥からのリ

ン回収、第 38 回日本水環境学会年会講演集、札幌、p196、(2004 年 3 月)

- 3) 三浦佑己、伊藤 司、岡部 聡、渡辺義公、Membrane bioreactor の運転性に伴う微生物群集構造の解析、第 39 回日本水環境学会年会講演集、千葉、(2005 年 3 月)
- 4) 平岩ミリアンのり子、伊藤 司、岡部 聡、渡辺義公、Microbial community structure and membrane bioreactor performance、第 38 回日本水環境学会年会講演集、札幌、p546、(2004 年 3 月)

#### H. 知的財産権の出願・登録状況 (予定を含む)

1. 特許取得 (なし)
2. 実用新案登録 (なし)
3. その他 (特になし)



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

健康で豊かな水環境を創造するための新しい水管理システムの可能性

—その戦略的構築と支援技術開発

分担課題：メンブレン関連技術

分担研究者 浦瀬太郎 東京工業大学大学院理工学研究科助教授

研究要旨

地下水を介した水の開放循環系を膜分離技術を用いた水処理技術を用いて実現することを想定し、様々な揮発性化合物、半揮発性化合物、および、比較的親水性を持つ有機化合物である医薬品およびエストラジオール類に着目して、膜分離活性汚泥による分解除去実験およびナノろ過実験を行った。膜分離活性汚泥法では、17 $\beta$  エストラジオール(E2)は比較的除去率が高かった。一方、医薬品では、エストロゲン類の中では難分解性であるとされる17 $\alpha$  エチニルエストラジオール(EE2)よりも除去率がさらに低いものが多かった。医薬品の低い除去率を向上させる方法として、高脂血症治療薬、消炎鎮痛剤などの酸性医薬品に対しては、pHを酸性側で膜分離活性汚泥を運転する方法が有効であることを見出した。これらの物質は、pHが中性域では親水性が強く、水相から汚泥相への移行が進まず、汚泥自体には分解能力があるにもかかわらず、水相から除去されないが、pHを酸性にすることにより、医薬品のイオン解離を抑制し、水相から汚泥相へこれらの物質を移行させることができた。また、低pH時の反応槽内にこれらの物質が蓄積していないことから、汚泥へ吸着した医薬品は、分解反応を受けたと考えられる。ナノろ過においては、木曾らの提唱する分子幅による実験結果の整理が、分子量による結果の整理よりも有効であることを示した。さらに、重回帰分析の結果、すべての膜について、分子幅の影響が分子長の影響よりも強く、さらにlogKowに対する回帰の係数から疎水性の溶質ほど膜で阻止されやすいという結果を得た。

A. 研究目的

水システムを自律分散型にするための一つの要素技術として、地下水を介した開放循環系と膜分離技術を組み合わせた水システムがある。こうした地下水を介した開放循環系と膜分離技術を組み合わせた水システムでは、微量の人への影響が懸念される物質をどのように取り除くかは重要である。

下水処理水を地下水涵養に用い、一方で、地下水資源を有効に利用するシステムを考えると、硝酸性窒

素のように、地下水中で移動しやすい物質が問題となる。これまで微量化学物質対策では、ダイオキシン類のように疎水性で難分解性の化合物が主として注目を集めてきたが、地下水利用などを考えた場合には、水溶性を持つが難分解性の物質、すなわち、医薬品やエストロゲン類、消毒副生成物ではハロ酢酸などが重要となる。

下水処理水の持つ内分泌攪乱作用については、ヒトの排泄する尿に含まれる17 $\beta$  エストラジオール

(E2)が主因であろうと考えられている。さらに1990年代から、欧米を中心に水環境中で医薬品の検出に関する研究発表がなされるようになり、医薬品が新たな環境汚染物質として注目されるようになった。医薬品は生体に取り込み易くするために親水性のあるものが多く、生体内での効果が持続するように難分解性であり、生物に対して何らかの活性を持っている。17 $\alpha$ エチニルエストラジオール(EE2)の分解に硝化運転が有効であるなどの知見が断片的に報告されているが、下水処理における医薬品やエストロゲン類の除去率に影響する因子を明らかにすることはきわめて重要である。

本研究では、活性汚泥によるエストラジオール類や医薬品を含む人工下水の連続処理実験を行い、活性汚泥の運転条件が医薬品の除去性能にどのような影響を与えるかおよびナノろ過での微量物質の直接除去法について、実験した。その結果、エストラジオール類に比較してほとんどの医薬品は活性汚泥によって難分解性であり、さらに、酸性医薬品に対しては、pHが除去を決定する重要な因子となることを見出した。また、医薬品の物理化学的性状と除去率の間の関係について、有効な知見を得た。ナノろ過法では木曾らの提唱する分子幅による実験結果の整理が、分子量による結果の整理よりも有効であることを示した。さらに、重回帰分析の結果、すべての膜について、分子幅の影響が分子長の影響よりも強く、さらにlogKowに対する回帰の係数から疎水性の溶質ほど膜で阻止されやすいという結果を得た。

## B. 研究方法

### 膜分離活性汚泥法実験

対象化学物質を女性ホルモンの一種である17 $\beta$ -estradiol (E2)などホルモン3種、代表的環境ホルモンとしてbisphenol A (BPA)など2種、clofibric acid (CA)など医薬品10種を除去対象物質として、膜分離活性汚泥リアクターを運転した。

### ナノろ過実験

5種類のナノろ過膜・逆浸透膜について、36種類のVOC, SVOCに対する阻止率を実験的に求めた。

## C. 研究結果

### 結論としてまとめて記載

## D. 考察

### 結論としてまとめて記載

## E. 結論

実験室内にて活性汚泥に対して、エストロゲン、合成化学物質、医薬品の全15種類の化学物質を連続投与し、分解除去実験を行った。得られた知見は以下の通りである。

- 1) pH 中性域での運転では、17 $\beta$ -estradiol(E2)を90%以上除去することができた。一方、医薬品では、エストロゲン類の中では難分解性であるとされる17 $\alpha$ -ethynilestradiol (EE2)よりも除去率がさらに低いものが多かった。実験期間中に汚泥が微量物質に対して馴致し除去率が向上することはなかった。
- 2) Propyphenazone(PPZ)と Carbamazepine(CBZ)を除く今回対象としたカルボキシル基を含む鎮痛剤などの酸性医薬品は、pHを低くするほど高い除去率が得られた。PPZとCAZはpHを下げてほとんど除去されなかった。酸性医薬品について、対象物質が除去され始めるpHとLog Kowとの関係を求めたところ、Log Kowの小さい物質ほどpHを酸性側へ大きく動かすことが除去のために必要であることがわかった。
- 3) pHを低くすることによって、除去が促進される理由は、pHが低くなると、当該物質がイオン性を失い、汚泥に吸着しやすくなり、水相から汚泥相に当該物質が輸送されるからであると考えられる。汚泥相に一旦輸送された医薬品等は、比較的速やかに活性汚泥によって少なくとも初発化合物からは分解され、汚泥に蓄積することはなかった。

また、5種のナノろ過膜・低圧逆浸透膜について、36種類の揮発性有機化合物および半揮発性有機物の除去実験を行ったところ、以下のことがわかった。

- 1) データの蓄積を行った。木曾らの提唱する分子幅による実験結果の整理が、分子量による結果の整理よりも有効であることを示した。さらに、重回帰分析の結果、すべての膜について、分子幅の影響が分子長の影響よりも強く、さらにlogKowに対する回帰の係数から疎水性の溶質ほど膜で阻止されやすかった。

## F. 健康危険情報

なし。

## G. 研究発表

### 1. 論文発表

- 1) K. O. Agenson, J. I. Oh, T. Kikuta, T. Urase (2003): Retention of a wide variety of organic pollutants by different nanofiltration/reverse osmosis membranes: controlling parameters of process, J. of Membrane Science, 225, 91-103.
- 2) K. O. Agenson, J. I. Oh, T. Kikuta, T. Urase (2003): Rejection mechanisms of plastic additives and natural hormones in drinking water treated by nanofiltration, Water Science and Technology - Water Supply, 3, 5, 311-319.
- 3) 浦瀬太郎, 香川千絵 (2004): 活性汚泥中での医薬品・女性ホルモン様物質の除去に影響を及ぼす因子,

用水と廃水, 46, 11, 955-961.

4) 香川千絵, 菊田友弥, 浦瀬太郎 (2005): 医薬品の除去に対する膜分離活性汚泥法分離膜の付加効果, 水環境学会誌, 28, 3, 207-210.

## 2. 学会発表

1) K. O. Agenson, J. I. Oh, T. Kikuta, T. Urase (2003): Rejection mechanisms of plastic additives and natural hormones in drinking water treated by nanofiltration, Proc. of International conference on Membranes in drinking and industrial water production, Mulheim, Germany. (Best Abstract Award)

2) K. O. Agenson, J. I. Oh, T. Urase (2003): Influence of molecular structure on the rejection of volatile and semi-volatile organic compounds by nanofiltration, Proc. of 5th international membrane science and engineering conference (IMSTEC-'03), Paper No. 25 (Full document in CD-ROM), Sydney, Australia.

3) 香川千絵, 浦瀬太郎, 菊田友弥(2004): 固液間の化学物質の分配に着目した医薬品の活性汚泥での吸着分解挙動, 土木学会年次学術講演会, 59, VII-020.

4) T. Urase and T. Kikuta (2003): Reaction kinetics of degradation of natural hormones in

activated sludge process, Proc. of IWA conference on Environmental Biotechnology, Paper No. A-01 (Full document in CD-ROM), Kuala Lumpur, Malaysia.

5) T. Urase, C. Kagawa, T. Kikuta(2004): Factors affecting removal of pharmaceutical substances and estrogens in membrane separation bioreactor, Proc. of International conference on Membranes in drinking and industrial water production, L'Aquila, Italy.

6) 佐藤孝太, 浦瀬太郎 (2004): ナノろ過膜による医薬品の阻止性能の pH 依存性, 土木学会環境工学研究フォーラム講演集, 41, 110-112. (優秀ポスター賞受賞)

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）  
（総合）研究報告書  
分担研究者 高梨啓和 鹿児島大学工学部 助教授

化学物質による健康影響リスクを回避した自律・分散型の水システムに向けた安全性評価

**研究要旨**

化学物質による健康影響リスクを回避した自律・分散型の水システムを構築するために、安全性評価方法の選定、塩素処理副生成物の除去技術の検討、変異原性物質生成能（Mutagen Formation Potential, MFP）を用いて現状の浄水処理場における変異原性削減率、変異原性削減に適した浄水処理方法の検討、農薬の MFP 測定を行った。

**A. 研究目的**

水資源の供給に関する持続可能性を向上させるためには、今まで利用されなかった多様な水資源を有効活用して自律・分散型の水システムを構築することが重要である。そこで本研究では、バイオアッセイによる総合評価指標を導入し、多様な水資源の利用に備えることを目的とした。

**B. 研究方法**

バイオアッセイとして、サルモネラ菌を用いた Ames 試験を用いた。本研究に関し、倫理に関して配慮が必要な部分はないが、P 2 レベルの封じ込めが可能な施設を用いて実験を行った。

**C. 研究結果及び考察**

初年度に、評価法として、サルモネラ菌を用いた Ames 変異原性試験を用いるのが適切と考えられることを示した。また、水道水中の変異原性物質の大部分が変異原性を有さない前駆物質が塩素消毒される際に生成することから、水道水源の水質保全のための指標として変異原性物質生成能（Mutagen Formation Potential, MFP）という指標を提案した。MFP を用いて、代表的な水道水源の汚染源である下水中の変異前駆物質の除去速度を検討した結果、溶存有機炭素の除去速度よりも遅く、処理時間を長くするか活性汚泥の濃度を高くすることが有効であることが明らかになった。

次年度に、現状の浄水処理場における変異原性削減率、変異原性削減に適した浄水処理方法の検討などを行った。表流水を水源としている九州地域の 21 カ所の浄水場から、2002 年 6 月～2003 年 10 月にかけて原水、浄水をサンプリングして合計 131 サンプルを得た。得られたサンプルの原水の MFP と上水の変異原性を測定して削減率を求めた結果、変異原性削減

率はサンプルにより大きく異なり、-26～98% であった。また、緩速ろ過を行っている浄水場における変異原性削減率が相対的に高い傾向が認められた。逆に、急速ろ過を行っている浄水処理場の変異原性削減率は低い傾向が認められたが、急速ろ過に活性炭処理を組み合わせることにより緩速ろ過を行っている浄水処理場と同程度の削減率が得られる傾向が認められた。

最終年度は、13 種類の農薬の MFP を測定した。その結果、試験したすべての農薬の変異原性は検出限界以下であったのに対し、MFP については 3 種類の農薬が検出限界以下、4 種類が擬陽性、残りの 6 種類は明確な MFP が観察され、プロペナゾールに関しては Ames 試験における検体最大投与量における MR 値が 27 となり、強い MFP が認められた。しかし、試験に供した農薬原体の質量基準で MFP の比活性を求めると 349 net rev./mg となり、最も高かった MEP の場合でも通常の陽性対照物質と比較すると 30,000 分の 1 となった。今後は、変異原性物質の同定と、当該物質質量基準の比活性を測定する必要があると考えられる。

**E. 結論**

Ames 試験により、多様な水源を原水とした水道水の安全性評価を行った結果、活性炭処理などの高度浄水処理が有効に機能している可能性が示されたが、今後、農薬の塩素処理物などに注意が必要と考えられた。

**F. 研究発表及び知的財産権の出願・登録状況**

加治屋仁、小坂瑞樹、新福桂子、高梨啓和、中島常憲、大木 章、水道水の安全性向上を指向した農薬の環境安全性評価、第 37 回日本水環境学会講演予稿集、p.438, 2005.他

知的財産権の出願・登録は特になし。