

北海道大学大学院 工学研究科 教授

渡辺 義公

「質の利用を中心にすえた新しい都市水代謝システムの構築

—構造的な渇水と水質汚濁からの脱却—」

1. 研究の概要

本研究プロジェクトでは、用途に応じた水質の水を必要な量だけ都市に供給し、水文サイクルのフラックスの不足分を自然との生態学的調和と水再利用を考えて対応する、図-1.1に示すような新しい都市水代謝システムを構想した。

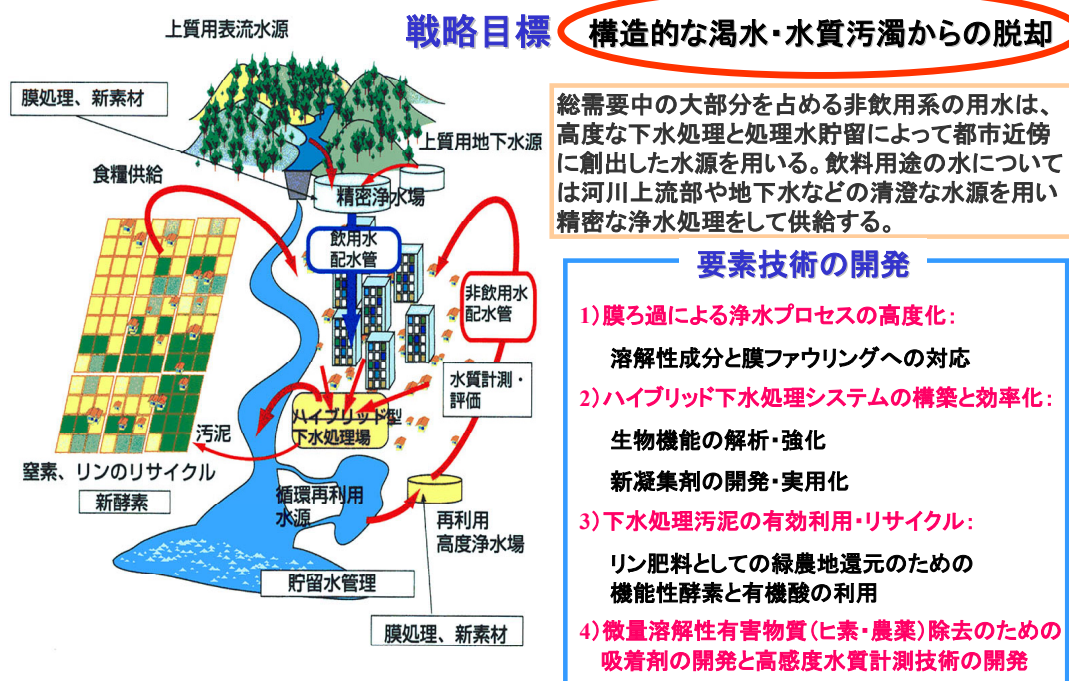


図-1.1 新しい都市水代謝システムの構想

総需要の20%程度の発ガン性や変異原性も考慮した超上質の飲用水は、河川上流部の清澄な水源から取水し、機能性膜等による精密処理により造水する。非飲用系の大量の生活用水は、高度な下・廃水処理と河川・湖沼・地下貯留により容量を与えられた人工・自然のハイブリッド系を用いて創出した、都市近郊の清澄化された水源から取水する。必要に応じて吸着・膜分離を基幹とする高度浄水処理により飲用可の水質に変換する。再利用水は高感度水質計測システムによって水質をモニタリングし、その安全性を保障する。下水処理で発生する汚泥の重金属含有量を少なくして、有機物、リン、窒素のリサイクルのために農地還元する。汚泥からの作物へのリン吸収効率を高めるために、植物が分泌する機能性酵素・有機酸の作用を活用する。

上質飲用水供給システムを完成させた後に、現在の水道システムを非飲用水供給用に転用する。これに至る間は、利水末端で飲用水のみを上質化しながら、水道システムの二元化を逐次進め、次世代の都市水代謝システムを構築する。本研究課題で開発した要素技術

を活用して、既存の水代謝システムを高規格化して、提案する都市代謝システムを地域の水需給特性に応じた形態に設計し運用する。

これまでの5年間では、構想の実現に必要な要素技術の開発を行った。要素技術の開発は、それぞれの研究グループが既に蓄積済みの研究成果を、基本構想との整合性を考慮しつつ更に発展させることを基本とした。それと並行して、開発された要素技術を組み合わせた水利用システム総合施設を設計・建設・運転して、構想の実現性を実証した。

(1) 研究成果の要約

I 北海道大学大学院工学研究科 渡辺義公チーム

研究課題(1): 分離膜を用いた精密浄水システム

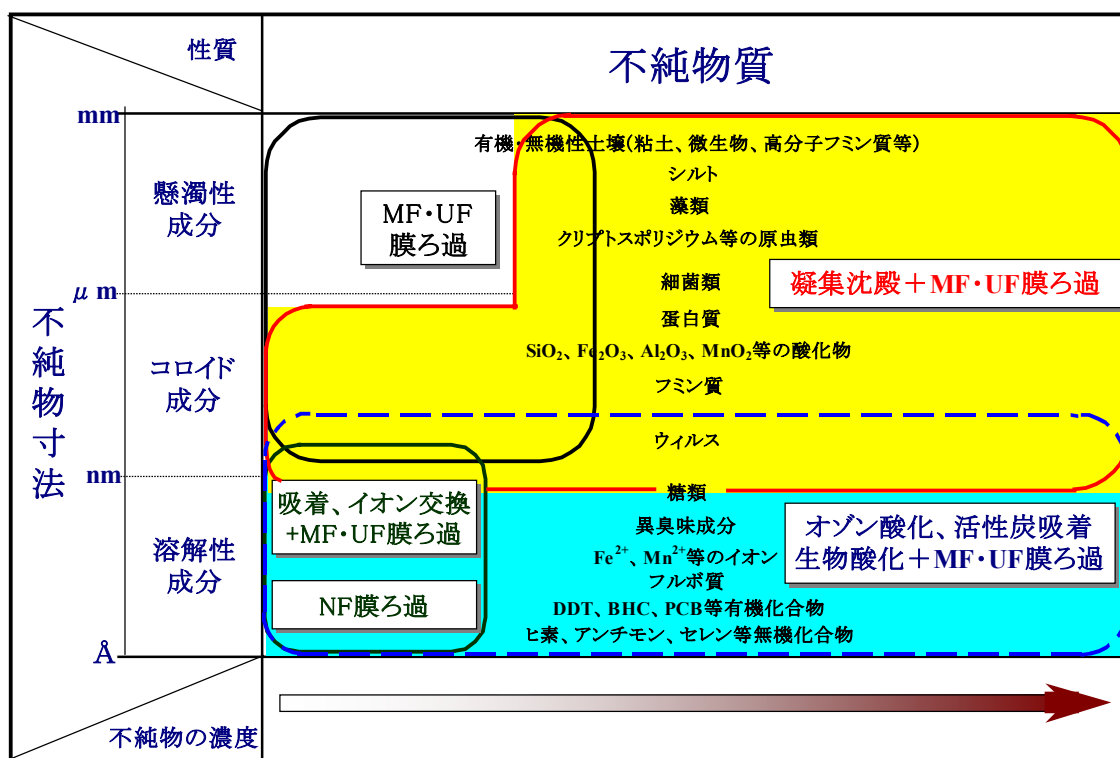


図-1.2 膜ろ過を中心にした浄水システムの構成マトリックス

次世代型精密固液分離法としての膜分離が汎用的水処理プロセスとなるには、膜ファウリングの制御と有機・無機性溶解成分への対応が課題である。本研究で上記2課題の解決についてこれまでに得た主な研究成果を挙げると以下のようなものである。

- * 粉末活性炭循環型浸漬 MF 膜処理システム
- * 膜分離と生物学的酸化を組み合わせた回転平膜装置
- * 硫黄脱窒菌と膜分離を組み合わせた硝酸除去プロセス
- * フミン質による膜ファウリング機構の解明とモデル化
- * 傾斜管沈降部を持つ噴流攪拌固液分離槽を前処理とした膜処理システム
- * 新しいオゾン耐性膜による高度浄水処理システム
- * エアースラビングと逆流洗浄を組み合わせた膜洗浄法
- * 農薬、ヒ素等の溶解性有害物質を除去できる振動型 NF 膜分離装置

以上の研究成果をまとめて、原水中の不純物の寸法と濃度を規準とした膜ろ過を中心とした浄水システムの構成をマトリックス化すると図-1.2 のようになる。

研究課題（2）：凝集・高速固液分離・生物酸化・膜分離を組み合わせたハイブリッド下水処理システム

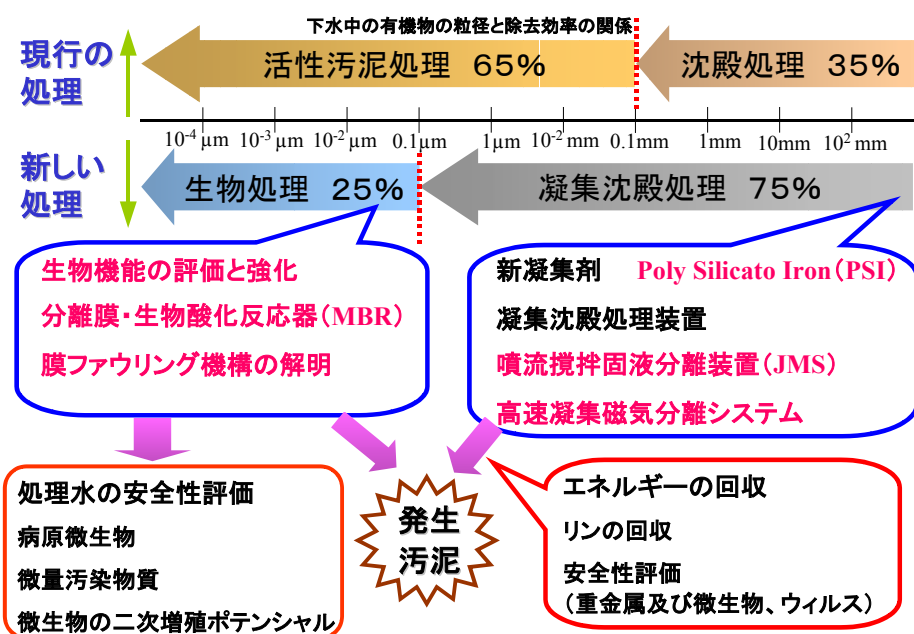


図-1.3 ハイブリッド下水処理システムの概念

再利用水源の創出と下水からのリンの回収を考慮して、多用されているアルミニウム系に代わる、新しい鉄系の凝集剤（Poly-Silicato-Iron, PSI）を用いた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を図-1.3 の概念に基づき構築し、運転性・処理性を図-1.4 のようなパイロットプラントによる実験で明らかにした。

得られた研究成果は以下のものである。

- * オンサイト使用のための PSI 製造法
- * 下水の凝集沈殿処理装置としての傾斜管沈殿部を持つ噴流攪拌固液分離装置
- * 回転平膜による膜分離活性汚泥装置
- * 超電導磁石を用いた高速凝集磁気分離システム
- * 前凝集沈殿処理による膜分離活性汚泥法の効率化
- * 膜分離活性汚泥法における膜ファウリング機構
- * 植物根が分泌する酵素と有機酸による凝集沈殿汚泥からのリンの可溶化効果

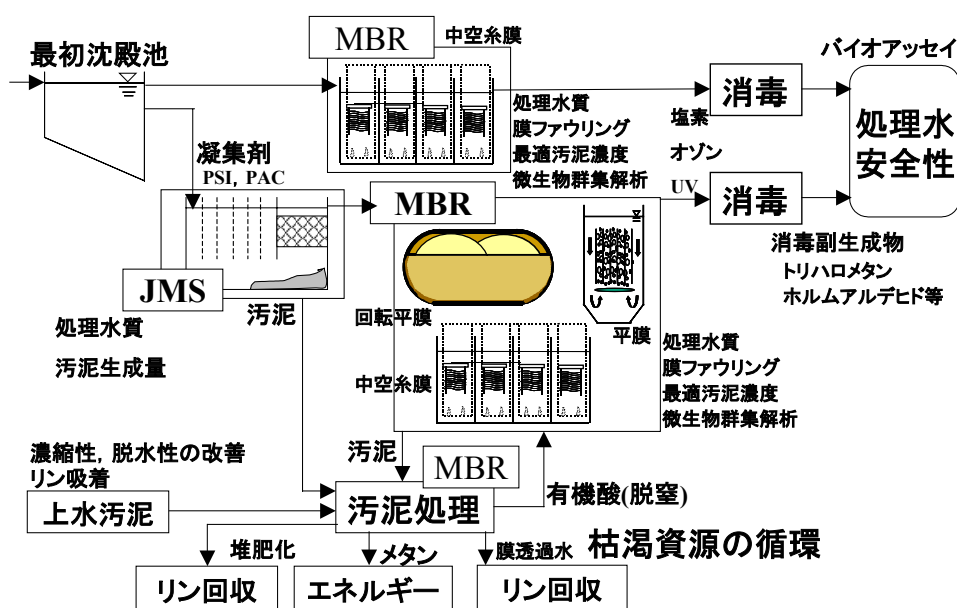


図-1.4 パイロットプラントの構成

研究課題（3）：ハイブリッド下水処理のための生物膜の機能と構造の解析

これまでの下水処理生物膜は Black Box として取り扱われてきた。しかし、生物膜の機能を強化してハイブリッド下水処理システムに組み込む新たな生物膜処理プロセスを開発するには、生物膜内に存在する微生物群の生態学的構造とその機能の関係を明らかにする必要がある。本研究では、生態学的構造を解析するために、16S rDNA クローニング法、16S rDNA 標的蛍光 DNA プローブを用いた FISH 法、DGGE 法等の分子生物学的手法、を適用した。また、生物膜内 in situ での微生物活性を高い空間分解能で解析するために、 NH_4^+ 、 NO_2^- 、 NO_3^- 、 S^{2-} 、 O_2 、pH を測定する微小電極を開発した。これらの新規手法を用いて都市下水生物膜内の炭素・窒素・硫黄の循環経路と下水中の有機物と窒素の除去過程の関係を明らかにした。これらの新知見は生物膜法の飛躍的發展を可能にする。得られた研究成果は以下のものである。

- * 都市下水生物膜内における硫酸塩還元細菌の population dynamics と硫酸塩還元活性分布
- * FISH 法と微小電極を用いた硝化細菌生物膜の生態学的構造と機能の原位置解析
- * 生物膜内における物質移動機構
- * AOC と Biofilm Formation Potential を指標とした配水管内の細菌再増殖能評価

II 北海道大学大学院農学研究科 但野利秋チーム

研究課題：下水処理汚泥中リンの農地還元のための、植物根分泌有機酸と酸性ファスファターゼ (APase) の遺伝子解析、機能評価

リン資源の枯渇に対応するために、下水に含まれるリンを回収して、植物が保持する難溶性リンの可溶化機能（植物が分泌する酵素と有機酸の作用）を用いて食糧生産のためにリサイクル利用するための研究を図-1.5のような概念に基づいて行った。

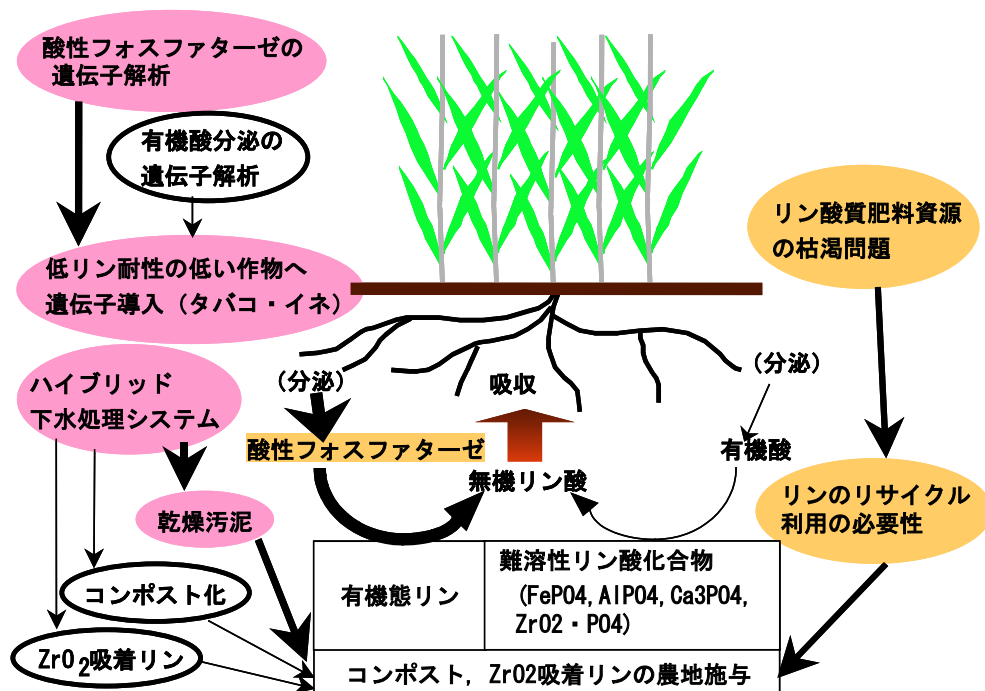


図-1.5 下水汚泥からのリンのリサイクルのための機能性酵素と有機酸の利用

得られた研究成果は以下の通りである。

- * ルーピン根から分泌される APase と有機酸の根圏における分布と有機態リン酸化合物分解能
- * ルーピンにおける分泌性 APase の分泌能と合成部位の解析

- * ルーピンにおける分泌性 APase 遺伝子の解析
- * ルーピンの APase 遺伝子の他作物への導入
- * 下水汚泥からのクエン酸と APase による難溶解性リンの可溶化
- * リサイクルリンの施肥効果

Ⅲ 東京工業大学資源化学研究所 岩本正和チーム

研究課題：水処理用新素材の開発

膜ろ過でも除去できない溶解性の有機・無機有害物質の除去を目的とした新しい吸着剤及び低水温時において著しく活性が低下するマンガン酸化細菌の作用を補うためのマンガン空気酸化触媒を開発し、水処理におけるその有効性を検証した。得られた研究成果は以下の通りである。

- * 農薬吸着剤としてのシリカ系メゾ多孔体の合成と特性解明
- * ヒ素・リン・クロム・セレン吸着剤としてのジルコニウムメゾ構造体の合成と特性解明
- * 活性炭と Pt を材料としたマンガン空気酸化触媒の合成と特性解明

Ⅳ (株)日立製作所中央研究所 平林 集チーム

研究課題：高感度水質計測システムの開発

水環境には微量の各種農薬が存在し、いわゆる環境ホルモンとしての作用が問題視されている。本研究では親水性農薬を含む各種農薬を高感度で一斉に分析する技術を開発した。また、発ガン性消毒副生成物やカルキ臭の生成を抑えるために、水道水の残留塩素濃度を常時高感度でモニタリングできる超小型の測定システムを開発した。得られた研究成果は以下の通りである。

- * 農薬一斉分析のためのソニックスプレー噴霧器を用いたプラズマイオン源質量分析システム
- * 残留塩素連続モニタリングのためのマイクロ水質分析システム

2. 研究構想

提案した構想を実現するための要素技術の開発についてはほぼ所期の目的を達成できた。ただし、日立研究所の研究テーマを「オゾン処理加速酸化触媒及び反応槽の開発」から「マンガン酸化空気触媒の開発」に変更した。これはオゾン耐性膜の開発によって膜分離とオゾン酸化を同時に行うことの見通しが立った反面、生物酸化と膜分離の組み合わせ処理において、低水温時に生物学的マンガン酸化能が低下することが判明したことに関係している。マンガン空気酸化触媒の開発によって、低水温期にもマンガンの効率的除去が可能になる見通しを得た。

CREST の研究期間後半にあたる平成 10 年度に札幌市創成川下水処理場に水再利用システムのパイロットプラントを設計・建設した。水処理と汚泥からのリン回収については要素技術研究の成果を実証できたが、パイロットプラント処理水を用いた貯留水の浄化実験には着手できなかった。しかし、研究開始時には考えていなかった分野において本研究成果活用の要請がある。例えば、1) EU が開発中の 800 人乗りエアバス内でのシャワー用水を含めた水再利用のための、超高度下水処理装置としての回転平膜と生物酸化を組み合わせた処理装置の適用、2) 振動型 NF 膜装置の尿からの窒素とリンの回収への適用、3) 凝集沈澱と膜分離を組み合わせた下水高度処理システムの、浸透圧発電システムの淡水水源の創出への適用、等である。

表-2.1 に各サブグループの 5 年間の研究進捗状況をまとめる。

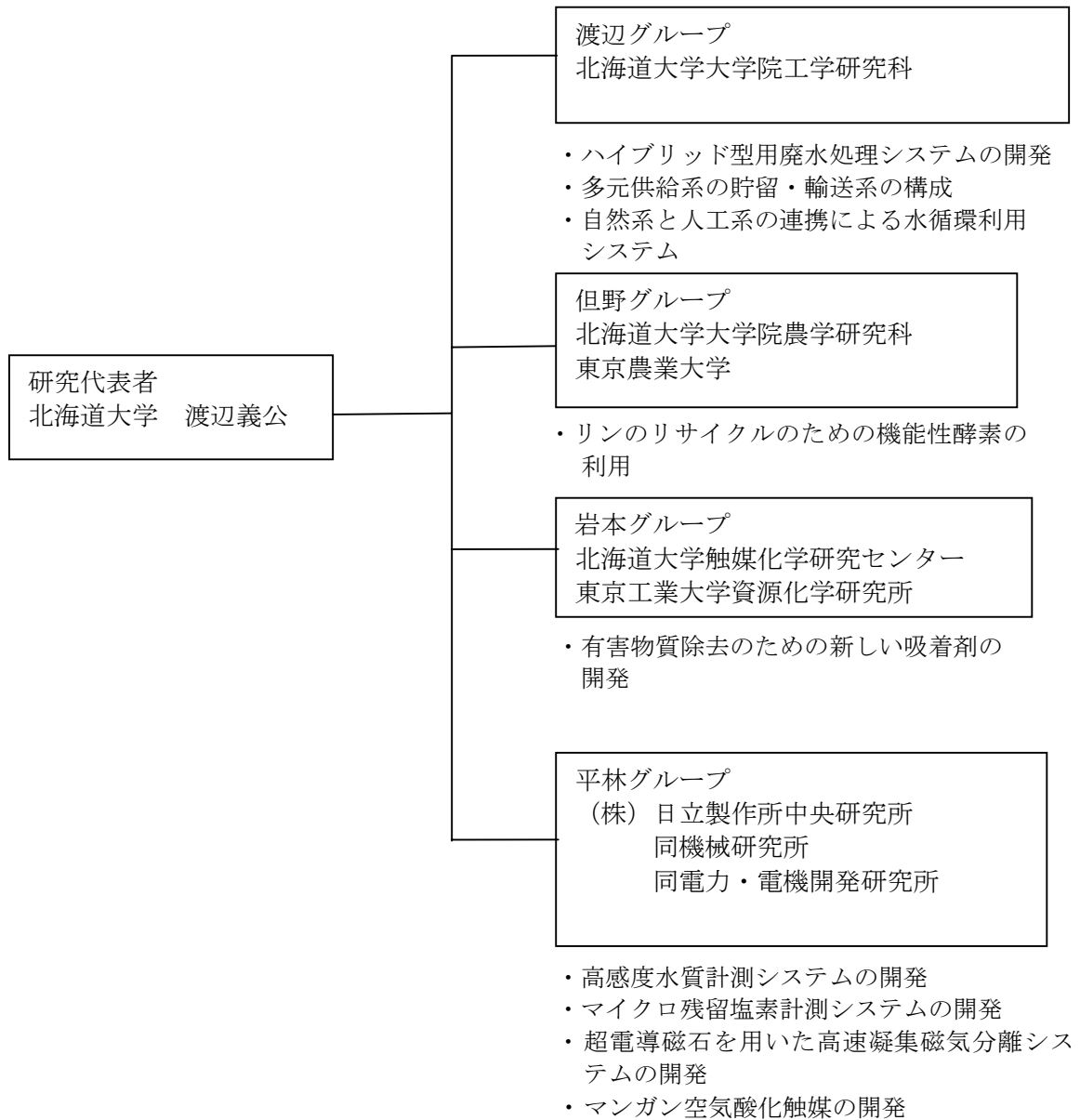
表 2-1 研究期間における研究テーマ毎の進捗状況

実施済み

計画

研究期間	年度(暦)					
	平成8年 4月	平成9年 4月	平成10年 4月	平成11年 4月	平成12年 4月	平成13年 4月
研究期間	1年度	2年度	3年度	4年度	5年度	
主な研究課題	1. 二元水道と下水再利用のための要素技術の開発 2. リンのリサイクルのための機能性酵素の利用 3. 水処理用新素材の開発 4. 高感度水質計測システムの開発					
I. 二元水道と下水再利用のための要素技術の開発						
(1) 分離膜を用いた精密浄水システム						
(2) 凝集・高速固液分離・生物酸化を組み合わせた高度下水処理システム						
(3) 多元供給系における貯留・輸送系の構成						
(4) 自然系と人工系の連携による水循環再利用システム						
(5) 超電磁磁石を用いた高速凝集磁気分離システムの開発						
(6) マンガン空気酸化触媒						
II. リンのリサイクルのための機能性酵素の利用						
(1) 植物根分泌性酸性フォスターゼの遺伝子解析、機能評価及び遺伝子導入組み換え植物の作出						
III. 水処理用新素材の開発						
(1) メン多孔体の合成技術の開発						
(2) ヒ素吸着剤の調整及び特性解明						
(3) 農薬除去剤の開発及び特性解明						
IV. 高感度水質計測システムの開発						
(1) 高感度水質計測システムの開発						
(2) マイクロ水質分析システムの開発						
研究機関						
北工学研究科						
日立/機械研究所						
日立/日立研究所						
北農学研究科						
東京工業大学資源化学研究科						
日立/中央研究所						
1年度	1. 二元水道と下水再利用のための要素技術の開発 2. リンのリサイクルのための機能性酵素の利用 3. 水処理用新素材の開発 4. 高感度水質計測システムの開発					
2年度		膜分離法の効果的・前処理法の開発 新凝集剤と汚泥からのリン回収技術の開発 生物膜リアクターの開発				
3年度			膜分離法の処理性、運転性の検討 噴流懸拌固液分離槽の機能解析 生物膜の構造と機能解析			
4年度				高感度浄水処理水の二次増殖ポテンシャル評価 湖沼の自然浄化能を利用した水循環再利用 モデル粒子分離実験・解析		
5年度					吸着・生物学的酸化機能を持つ精密膜処理プロセスの構築 パイロットプラントによるシステムの有効性の検討 パイロットプラント処理水の二次増殖ポテンシャルの評価 パイロットプラント処理水を用いた貯留水の浄化実験	
調査						
分沁性酸性フォスターゼの遺伝子解析						
分沁性酸性フォスターゼによる下水汚泥からのリン酸放出機能						
S系多孔体の合成						
Fe担持メン多孔体の調整、ヒ素吸着特性						
有機多孔体の調整						
計測コンセンブト検討						
分析項目・方式の検討						

3. 研究実施体制



4. ワークショップ・シンポジウム等

年月日	名称	場所	参加人数	概要
平成9年1月22日	第1回研究推進会議	北海道大学(札幌市)	20名	5年間の研究計画について討議
平成9年10月6日	第2回研究推進会議	北海道大学(札幌市)	12名	平成9年度の研究の進捗状況および成果の中間報告会
平成10年3月17日	第3回研究推進会議	北海道大学(札幌市)	20名	平成9年度の研究成果報告および10年度の計画
平成10年11月17日	第4回研究推進会議	科学技術振興事業団東京展示館	12名	平成10年度の研究成果中間報告会
平成11年4月19日	第5回研究推進会議	北海道大学(札幌市)	20名	平成10年度の研究成果報告および11年度の計画
平成11年11月29日	第6回研究推進会議	北海道大学(札幌市)	20名	平成11年度の研究成果中間報告会
平成12年4月11日	第7回研究推進会議	科学技術振興事業団東京展示館	14名	平成11年度の研究成果報告および12年度の計画
平成12年10月9～11日	CREST Workshop on Integrated Water Quality Management-The 4 th Japan-Netherlands Workshop-	北海道キロロリゾート	150名	平成12年3月までの研究成果を第4回日本・オランダ水の統合管理に関するシンポジウムのポスターセッションとして発表した。
平成12年12月8日	第8回研究推進会議	科学技術振興事業団領域事務所	10名	平成12年度の研究成果中間報告およびワークショップの報告・反省会
平成13年4月10日	第9回研究推進会議	科学技術振興事業団東京展示館	15名	平成12年度の研究成果報告および13年度の計画
平成13年10月7日	CREST Workshop	札幌グランドホテル(札幌市)	20名	渡辺チームの5年間の研究成果を海外の関連分野における著名な研究者に披露し、徹底的な討議による評価を受ける。
平成14年1月31日	水の統合管理に関するCRESTシンポジウム	日本科学未来館(東京都)	250名	渡辺チーム5年間の研究成果報告シンポジウム

5. 主な研究成果

(1) 論文発表

1. 卞如林、渡辺義公、小澤源三、丹保憲仁、凝集・UF膜処理における有機色度成分及び鉄・マンガンの除去性、水道協会雑誌、66(4), 24-33, 1997
2. Satoshi Okabe, T. Yasuda and Yoshimasa Watanabe: Uptake and Release of Inert Fluorescence Particles by Mixed Population Biofilms, *Biotechnology and Bioengineering*, Vol.53, No.5, 459-469, 1997.5
3. Satoshi Okabe, K. Hirata and Yoshimasa Watanabe: Significance of the Spatial Distribution of Microbial Species in Mixed-Population Biofilms, *Biofouling*, Vol.11 (2), 119-136, 1997
4. Yoshimasa Watanabe and Yoshihiko Iwasaki: Performance of Hybrid Small Wastewater Treatment System Consisting of Jet Mixed Separator and Rotating Biological Contactor, *Water Science & Technology*, Vol.35, No.6, 63-70, 1997
5. Yoshimasa Watanabe, Katsuki Kimura, Satoshi Okabe, Genzo Ozawa and Naoki Ohkuma: A Novel Biofilm-Membrane Reactor for Ammonia Oxidation at Low Concentrations, *Water Science & Technology*, Vol.36, No.1, 51-60, 1997
6. 笠原伸介、相沢 拓、渡辺義公、小澤源三、岡部 聡、木質系および石炭系粒状活性炭を用いたオゾン・生物活性炭処理、水道協会雑誌、66(12), 20-29, 1997
7. Li, M., Shinano, T., and Tadano, T., Distribution of exudates of lupin roots in the rhizosphere under phosphorus deficient conditions. *Soil Sci. Plant Nutr.*, 43, 237-245, 1997
8. Li, M., Osaki, M., Honma, M., and Tadano, T., Purification and characterization of phytase induced in tomato roots under phosphorus-deficient conditions. *Soil Sci. Plant Nutr.*, 43, 179-190, 1997
9. Li, M., Osaki, M., Rao, I.M., and Tadano, T., Secretion of phytase from the roots of several plant species under phosphorus-deficient conditions. *Plant Soil*, 195, 161-169, 1997
10. Wasaki, J., Ando, M., Ozawa, K., Omura, M., Osaki, M., Ito, H., Matsui, H., and Tadano, T., Properties of secretory acid phosphatase from lupin roots under phosphorus-deficient conditions. *Soil Sci. Plant Nutr.*, 43, 981-986, 1997
11. 卞如林、渡辺義公、小澤源三、丹保憲仁、UF膜処理に伴う膜ファウリング（第一報）—河川水の回分膜ろ過実験による評価—、水道協会雑誌、67(1), 16-24, 1998
12. 岡部 聡、境一澄、渡辺義公、テトラゾリウム塩還元法を応用した硝化細菌の検出方法の検討、水環境学会誌、21(2), 88-97, 1998
13. 渡辺義公、岩崎義彦、ハイブリッド下水処理システム、EICA（環境システム計測制御学会誌）、Vol.2, No.3, 3-11, 1998
14. 卞如林、渡辺義公、小澤源三、丹保憲仁、UF膜処理に伴う膜ファウリング（第二報）—回分膜ろ過実験による前処理の評価—、水道協会雑誌、67(3), 11-19, 1998
15. Satoshi Okabe, Takayuki Matsuda, Hisashi Satoh, Tsukasa Itoh and Yoshimasa Watanabe: Sulfate Reduction and Sulfide Oxidation in Aerobic Mixed Population Biofilms, *Water Science & Technology*, Vol.37, No.4-5, 131-138, 1998
16. Yoshimasa Watanabe, Sshinsuke Kasahara and Yoshihiko Iwasaki: Enhanced Flocculation/Sedimentation Process by a Jet Mixed Separator, *Water Science & Technology*, Vol.37, No.10, 55-67, 1998
17. 佐藤 久、岡部 聡、伊藤 司、渡辺義公、微小電極を用いた微好気性生物膜内の硫酸塩還元反応の検討、水環境学会誌、21(6), 367-375, 1998
18. Yoshimasa Watanabe, K. Hashimoto, T. Hasegawa, S. Kameda and H. Suzuki: Application of Polysilicato-Iron Coagulant to Coagulation of Algae and Municipal Wastewater, Hermann H. Hahn, Erhard Hoffmann, Hallvard Odegaard (eds), *Chemical Water and Wastewater Treatment V*,

- 3-13, Springer-Verlag, Berlin, 1998
19. T. Suzuki, Yoshimasa Watanabe, Genzo Ozawa and S. Ikeda: Removal of soluble organics and manganese by a hybrid MF hollow fiber membrane system, *Desalination 117 (Proceeding of Membranes in Drinking and Industrial Water Production, Amsterdam)*, 119-130, 1998
 20. T. Takata, K. Yamamoto, R. Bian and Yoshimasa Watanabe: Removal of humic substances with vibratory shear enhanced processing membrane filtration, *Desalination 117 (Proceeding of Membranes in Drinking and Industrial Water Production, Amsterdam)*, 273-282, 1998
 21. Katsuki Kimura, Yoshimasa Watanabe and Naoki Ohkuma: Filtration Resistance Induced by Ammonia Oxidizers Accumulating on the Rotating Membrane Disk, *Water Science & Technology*, Vol.38, No.4-5, 443-452, 1998
 22. Satoshi Okabe, Hirofumi Kuroda and Yoshimasa Watanabe: Significance of Biofilm Structure on Transport of Inert Particulates into Biofilms, *Water Science & Technology*, Vol.38, No.8-9, 163-170, 1998
 23. 木村克輝、渡辺義公、大熊那夫紀、回転平膜表面に硝化細菌を固定した膜処理プロセスにおけるろ過抵抗に関する研究、*土木学会論文集*、No.608/VII-9, 87-95, 1998.10
 24. 亀田 豊、清水達雄、工藤憲三、小林 大、渡辺義公、丹保憲仁、高度処理との連携による湖沼の自然浄化能を利用した水の循環再利用、*水道協会雑誌*、67 (9), 22-30, 1998.9
 25. 笠原伸介、相澤 拓、渡辺義公、小澤源三、岡部 聡、AOC を指標とした高度浄水処理システムの性能評価、*水道協会雑誌*、67 (11), 12-21, 1998
 26. Satoshi Okabe, Hisashi Satoh, Tsukasa Itoh, Takayuki Matsuda and Yoshimasa Watanabe: Sulfer cycle in microaerophilic wastewater biofilms: microbial activity and Fe-S geochemistry, *Proc. of the International Symposium of the COE Project on Microbial Community and Functions in Wastewater Treatment Processes*, 125-139, 1998
 27. P. Wu, M. Iwamoto, Anion Exchange between Sulfate and Hydrogen phosphate Ions to Form Mesoporous Zirconium-Phosphorus Complex Oxide, *Chem. Lett.*, 1213, 1998
 28. M. Okamura, S. Tsubota, M. Iwamoto, M. Haruta, Chemical Vapor Deposition of Gold Nanoparticles on MCM-41 and Their Catalytic Activities for the Low-temperature Oxidation of CO and of H₂, *Chem. Lett.*, 315, 1998
 29. A. Taguchi, T. Abe, M. Iwamoto, Hexagonally Mesoporous Array of Surfactant Micelles and 11-Tungsto- phosphoric Heteropoly Anions, *Adv. Materials*, 10, 667, 1998
 30. A. Taguchi, T. Abe, M. Iwamoto, Non-Silica-Based Mesoporous Materials. 2. Formation of Hexagonal Superstructure Consisting of 11-Tungstophosphate Anions and Dodecyltrimethylammonium Cations, *Micro. Meso. Mater.*, 21, 387, 1998
 31. P. Wu, M. Iwamoto, Metal Ion-implanted MCM-41. 3. Incorporation of Titanium Species by Atom-planting Method, *J. Chem. Soc., Faraday Trans.*, 94, 2871, 1998
 32. M. Yonemitsu, Y. Tanaka, M. Iwamoto, Metal Ion-implanted MCM-41. 2. Catalytic Epoxidation of Stilbene and Its Derivatives with tert-Butyl Hydroperoxide on Mn-MCM-41, *J. Catal.*, 178, 207, 1998
 33. Y. Tanaka, N. Sawamura, M. Iwamoto, Highly Effective Acetalization of Aldehydes and Ketones with Methanol on Siliceous Mesoporous Material, *Tetrahedron Lett.*, 39, 9457, 1998
 34. S. Ito and A. Hirabayashi: Simultaneous Determination of Agricultural Chemicals by Column-Switching Liquid Chromatograph/Mass Spectrometer, *環境と計測技術*、25 (1998) 19-24
 35. 鈴木辰彦、渡辺義公、小澤源三、池田啓一、循環汚泥接触酸化型 MF 膜処理装置の溶解性マンガンの処理特性、*水道協会雑誌*、68 (2), 2-11, 1999

36. 鈴木辰彦、渡辺義公、小澤源三、池田啓一、粉末活性炭循環型 MF 膜装置による高度浄水処理、水道協会雑誌、68 (3), 2-14, 1999
37. 岡部 聡、内藤初夏、渡辺義公、FISH 法を用いた都市下水生物膜内におけるアンモニア酸化細菌の空間分布の解析、水環境学会誌、22 (3), 191-198, 1999
38. 佐藤 久、岡部 聡、渡辺義公、微小電極および FISH 法を用いた都市下水生物膜内のアンモニア酸化機構の検討、水環境学会誌、22 (3), 206-214, 1999
39. Satoshi Okabe, Hisashi Satoh and Yoshimasa Watanabe: Microbial Ecology of Sulfate-Reducing Bacteria in Wastewater Biofilms Analyzed by Microelectrodes and FISH (Fluorescent *In Situ* Hybridization) technique, *Water Science and Technology*, Vol.39, No.7, 41-47, 1999
40. 渡辺義公、卞如林、膜分離技術を用いた色度成分の除去、用水と廃水、41 (4), 318-323, 1999
41. 渡辺義公、卞如林、水道への膜ろ過プロセスの応用、膜 (MEMBRANE) , 24 (6), 310-318, 1999
42. 岡部 聡、乗松直生子、内藤初夏、渡辺義公、FISH 法を用いた都市下水生物膜内における硝化細菌の動態解析、水環境学会誌、22 (8), 683-691, 1999
43. 佐藤 久、岡部 聡、渡辺義公、微小電極および FISH 法を用いた生物膜内アンモニア酸化細菌菌体密度分布および活性分布に及ぼす流入基質 C/N 比の影響評価、水環境学会誌、22 (9), 763-769, 1999
44. ジテップ・プラシトヨシン、渡辺義公、亀田修平、但野利秋、凝集沈殿による下水中のリン回収とリン含有凝集沈殿汚泥の植物根分泌酵素・有機酸による可溶化、環境工学研究論文集、36, 121-128, 1999
45. Satoshi Okabe, Hisashi Satoh and Yoshimasa Watanabe: In Situ Analysis of Nitrifying Biofilms as Determined in Situ Hybridization and the Use of Microelectrodes, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol.65, No.7, 3182-3191, 1999
46. Rulin Bian, Yoshimasa Watanabe, Norihito Tambo and Genzo Ozawa: Removal of Humic Substances by UF and NF Membrane Systems, *Water Science & Technology*, Vol.40, No.9, 121-129, 1999
47. Satoshi Okabe, Tsukasa Itoh, Hisashi Satoh and Yoshimasa Watanabe: Analyses of Spatial Distributions of Sulfate-Reducing Bacteria and Their Activity in Aerobic Wastewater Biofilms, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol.65, No.11, 5107-5116, 1999
48. 木村克輝、渡辺義公、低濃度アンモニア性窒素の酸化を行う硝化銀菌が膜ろ過抵抗の増加に及ぼす影響、環境工学研究論文集、36, 287-294, 1999
49. Luo, H. M., Watanabe, T., Shinano, T., and Tadano, T., Comparison of aluminum tolerance and phosphate absorption between rape (*Brassica napus* L.) and tomato (*Lycopersicon esculentum* Mill.) in relation to organic acid exudation. *Soil Sci. Plant Nutr.*, 45, 897-907, 1999
50. Wasaki, J., Omura, M., Osaki, M., Ito, H., Matsui, H., Shinano, T., and Tadano, T., Structure of a cDNA for an acid phosphatase from phosphate-deficient lupin (*Lupinus albus* L.) roots. *Soil Sci. Plant Nutr.*, 45, 439-449, 1999
51. Wasaki, J., Omura, M., Ando, M., Shinano, T., Osaki, M., and Tadano, T., Secreting portion of acid phosphatase in roots of lupin (*Lupinus albus* L.) and a key signal for the secretion from the roots. *Soil Sci. Plant Nutr.*, 45, 937-945, 1999
52. 北川博一、岩本正和、ジルコニウムメゾ構造体による砒酸アニオンの交換除去、触媒、41, 486, 1999
53. 岩本正和、規則性ナノ空間を利用した新しい触媒化学、触媒、41, 31, 1999
54. M. Huang, H. Kojima, A. Hirabayashi, and H. Koizumi: Sonic Spray Nebulizer for Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectroscopy, *Anal. Sci.* 15 (1999) 265-268

55. M. Huang, T. Shirasaki, A. Hirabayashi, and H. Koizumi: Microliter Sample Introduction Technique for Microwave-Induced Plasma Mass Spectrometry, *Anal. Chem.* 71 (1999) 427-432
56. 卞如林、渡辺義公、張洛庸、丹保憲仁、河川水の UF 膜ろ過における膜ファウリング発現機構、水道協会雑誌、69 (2), 12-23, 2000
57. 峯岸進一、渡辺義公、山村弘之、小澤源三、中空糸 UF 膜の全量ろ過運転における膜ファウリングの解析、水道協会雑誌、69 (3), 2-10, 2000
58. R. Bian, K. Yamamoto, Yoshimasa Watanabe: The effect of shear rate on controlling the concentration polarization and membrane fouling, *Desalination*, 131 (2000), 225-236, 2000
59. Hisashi Satoh, Satoshi Okabe, Naoko Norimatsu and Yoshimasa Watanabe: Influence of substrate C/N ratio on structure and activity of nitrifying biofilms determined by *in situ* hybridization and the use of microelectrodes, *Water Science & Technology*, 41 (4-5), 317-321, 2000
60. Yoshimasa Watanabe, Katsuki Kimura and Tatsuhiko Suzuki: Membrane application to water purification process in Japan-development of hybrid membrane system-, *Water Science & Technology*, 41 (10-11), pp. 9-16, 2000
61. Satoshi Okabe and Yoshimasa Watanabe: Structure and function of nitrifying biofilms as determined by *in situ* hybridization and the use of microelectrodes, *Water Science & Technology*, 42 (12), 21-32, 2000
62. Katsuki Kimura, Yoshimasa Watanabe and Naoki Ohkuma: Filtration resistance and efficient cleaning methods of the membrane with fixed nitrifiers, *Water Research*, 34 (11), 2895-2904, 2000
63. 渡辺義公、上水汚泥と下水汚泥の混合処理、再生と利用、23 (88), 8-14, 2000
64. Yoshimasa Watanabe, T. Tadano, T. Hasegawa, Y. Shimanuki and H. Odegaard: Phosphorous recycling from Pre-coagulated wastewater sludge, *Chemical Water and Wastewater Treatment VI* (Eds.: H.H. Hahn, E. Hoffmann and H. Odegaard), 359-371, Springer-Verlag, Berlin, 2000
65. Satoshi Okabe, Naoko Norimatsu, Hisashi Satoh, Hatsuka Naitoh and Yoshimasa Watanabe: In situ analysis of microbial structure and function in nitrifying, *Proc. of International Symposium of IES-IETI, Biofilm for Wastewater Treatment, Korea, 2000*
66. Wasaki, J., Omura, M., Ando, M., Dateki, H., Shinano, T., Osaki, M., Ito, H., Matsui, H., and Tadano, T., Molecular cloning and root specific expression of secretory acid phosphatase from phosphate deficient lupin (*Lupinus albus* L.). *Soil Sci. Plant Nutr.*, 46, 427-437, 2000
67. M. Iwamoto, T. Abe, Y. Tachibana, Control of Bandgap of Iron Oxide through Its Encapsulation into SiO₂-based Mesoporous Materials, *J. Mol. Catal. A.*, 155, 143, 2000
68. 岩本正和、田中康裕、規則性メソ細孔の特性を生かした新しい固体触媒反応系の開拓、化学、55 (5), 64, 2000
69. M. Huang, H. Kojima, T. Shirasaki, A. Hirabayashi, and H. Koizumi: Study on Solvent-Loading Effect on Inductively Coupled Plasma and Microwave-Induced Plasma Sources with a Microliter Nebulizer, *Anal. Chimica Acta* 413 (2000) 217-222
70. M. Huang, A. Hirabayashi, T. Shirasaki, and H. Koizumi: A Multimicrospray Nebulizer for Microwave-Induced Plasma Mass Spectrometry, *Anal. Chem.* 72 (2000) 2463-2467
71. 磯上尚志、佐保典英、森田 穰、高木武夫、連続式超電導磁気分離装置による下水処理特性、日本機械学会論文集 (B編) 66 巻 648 号 (2000-8)
72. 卞如林、渡辺義公、丹保憲仁、小澤源三、河川水の連続 UF 膜ろ過におけるケーキ層の形成機構、水道協会雑誌、70 (1), 2-16, 2001
73. 張洛庸、渡辺義公、峯岸進一、卞如林、凝集沈殿を前処理とした定流量全量 UF 膜ろ過プロセスの評価、水道協会雑誌、70 (2), pp.2-15, 2001

74. 張洛庸、渡辺義公、卞如林、小澤源三、定流量全量 UF 膜ろ過における物理洗浄法に関する研究、水道協会雑誌、70 (6), pp.42-53, 2001
75. S. Minegishi, N. -Y. Jang, Y. Watanabe, S. Hirata and G. Ozawa, Fouling mechanism of hollow fiber ultrafiltration membrane with pretreatment by coagulation/sedimentation process, *Water Science & Technology: Water Supply*, 1 (4), 49-56, 2001
76. K. Kimura, Y. Watanabe, S. Okabe and H. Satoh, Kinetic analysis of nitrifying biofilm growing on the rotating membrane disk, *Water Science & Technology: Water Supply*, 1 (4), 111-118, 2002
77. Shinano, T., Yonetani, R., Ushihara, N., Adachi, H., Wasaki, J., Matsui, H., and Osaki, M., Characteristics of phosphoenolpyruvate phosphatase purified from *Allium cepa*. *Plant Sci.*, 161, 861-869, 2001
78. M. Iwamoto, Y. Tanaka, J. Hirosumi, Enantioselective oxidation of sulfide to sulfoxide on Ti-containing mesoporous silica prepared by a template-ion exchange method, *Micro. Meso. Mater.*, 48, 271, 2001
79. M. Iwamoto, Y. Tanaka, J. Hirosumi, Asymmetric Oxidation of Sulfide on Metal Ion Planted in Mesoporous MCM-41, *NATO Sci. Ser., II[13]*, 235, 2001
80. M. Ishikawa, S. Yoshioka, and A. Hirabayashi: Analysis of Dymron in River-Water Samples Using LC/Sonic Spray Ionization MS, *分析化学*, 50 (2001) 149-152
81. Akihiko Okumura, Atsumu Hirabayashi, Yasuhiko Sasaki, and Ryo Miyake、Simple Miniaturized Amperometric Flow Cell for Monitoring Residual Chlorine in Tap Water, *Anal. Sci.*, 17 (2001) 1113
82. 森田 穰、佐保典英、磯上尚志、高木武夫、磁性フロックの磁気分離捕捉特性解析、日本機械学会論文集 (B編) 67 巻 653 号 (2001-1)
83. H. Isogami, N. Saho, M. Morita and T. Takagi: Sewage Treatment Performance of a Continuous Superconducting-Magnetic Separator: *JSME International Journal Vol.44 No.4 Nov. 2001*
84. 張洛庸、渡辺義公、小澤源三、オゾン酸化を前処理とした河川水の MF 膜ろ過に関する研究、水道協会雑誌、71 (2)、pp.2-12、2002
85. S. Okabe, C. M. Santegoeds, Y. Watanabe and D. de Beer, Successional development of sulfate-reducing bacteria populations and their activities in an activated sludge immobilized agar gel film, *Biotechnology and Bioengineering*, 78 (2), 2002
86. T. Itoh, J. L. Nielsen, S. Okabe, Y. Watanabe and P. H. Nielsen, Phylogenetic identification and substrate uptake patterns of sulfate-reducing bacteria inhabiting an oxic-anoxic sewer biofilm determined by combining microautoradiography and fluorescent In Situ hybridization, *Applied and Environmental Microbiology*, 68 (1), 356-364, 2002
87. T. Itoh, S. Okabe, H. Satoh and Y. Watanabe, Successional development of sulfate-reducing bacteria populations and their activities in a wastewater biofilm growing under microaerophilic conditions, *Applied and Environmental Microbiology*, 68 (3), 1392-1402, 2002
88. 木村克輝、羽根康史、渡辺義公、膜ろ過と生物膜を組み合わせた高度浄水処理プロセスに関する研究、水道協会雑誌、掲載決定
89. K. Kimura, M. Nakamura and Y. Watanabe, Nitrate removal by a combination of elemental sulfur-based denitrification and membrane filtration, *Water Research*, accepted for publication
90. M. Iwamoto, Y. Tanaka, Preparation of Metal Ion-planted Mesoporous Silica by Template-ion Exchange Method and Its Catalytic Activity for Asymmetric Oxidation of Sulfide, *Catal. Surv.Jpn.*, in press
91. A. Hirabayashi, M. Ishikawa, and S. Yoshioka: Simultaneous Analyzing Systems for Hydrophobic Pesticides with Sonic Spray Ionization Mass Spectrometry, (submitted)

(2) 特許出願 (国内 5 件、海外 0 件)

① 国内

(1) 発明者：平林集、黄敏、平林由紀子、奥村昭彦、小泉英明 (㈱日立製作所)

名 称：噴霧器アレイ

番 号：10-146835

出願日：平成 10 年 5 月 28 日

(2) 発明者：渡辺義公、木村克輝 (北海道大学大学院工学研究科)

吉川慎一、大熊那夫紀 (日立プラント建設㈱)

名 称：微生物担体型回転平膜装置の運転方法

番 号：10-280253

出願日：平成 10 年 10 月 1 日

(3) 発明者：奥村昭彦、平林集、小泉英明 (㈱日立製作所)

名 称：毛細管電気泳道装置

番 号：3048345

出願日：平成 12 年 3 月 24 日

(4) 発明者：佐野理志、高木武夫、佐保典英、磯上尚志、森田穰 (㈱日立製作所)

名 称：水処理装置および肥料の製造法

番 号：01-009020

出願日：平成 13 年 1 月 17 日

(5) 発明者：奥村昭彦、平林集、小泉英明 (㈱日立製作所)

名 称：残留塩素計およびこれを利用する浄水装置

番 号：2001-91945

出願日：平成 13 年 4 月 6 日