

岡部 聡

国立大学法人北海道大学大学院工学研究院・教授

水循環の基盤となる革新的な水処理システムの創出

§1. 研究実施体制

(1) 北海道大学「水の安全性評価」グループ

①研究代表者: 岡部 聡 (北海道大学大学院工学研究院、教授)

②研究項目

・病原微生物・微量化学物質のモニタリングと健康リスク評価手法の開発

(2) 北海道大学「膜処理」グループ

①主たる共同研究者: 木村 克輝 (北海道大学大学院工学研究院、准教授)

②研究項目

・膜分離技術を核とした先端的水処理システムの開発

(3) 「大阪市水道局」グループ

①主たる共同研究者: 山崎 弘太郎 (大阪市水道局、浄水統括担当部長)

②研究項目

・高速生物ろ過+凝集+MF膜ろ過 (セラミック膜及びPTFE膜) システムの開発

(4) 「阪神水道企業団」グループ

①主たる共同研究者: 小林 健一 (阪神水道企業団、技術部長)

②研究項目

・高速生物ろ過+凝集+MF膜ろ過 (セラミック膜及びPTFE膜) システムの開発

(5) 「メタウォーター(株)」グループ

①主たる共同研究者: 大和 信大 (メタウォーター(株)、研究員)

②研究項目

- 低ファウリングセラミック膜の開発

§ 2. 研究実施内容

(文中に番号がある場合は(3-1)に対応する)

I. 膜分離技術を核とした先端的水処理システムの開発(要素研究-1)

膜ろ過による下廃水処理の革新に関する研究では、札幌市創成川水再生プラザ内に設置したパイロットスケール MBR より採取した糖・タンパク質を新規手法により分析した。糖については、レクチンアフィニティクロマトグラフィーによる分画を行い、膜ファウリングポテンシャルが高い糖と低い糖が存在していることを確認した。また、ファウリングポテンシャルが高い糖の構造及び起源に関する情報を MALDI-TOF/MS 分析により得ることに成功した^{論文1)}。タンパク質に関しては、限外ろ過膜を用いた試料の精製方法を検討し、膜ファウリングタンパク質を二次元電気泳動により明瞭に分離することに成功し、膜ファウリングタンパク質の構造と起源に関する情報を得ることができた^{論文2)}。

さらに、MBRの省エネルギー化を目的として、槽外クロスフロー型 MBR に着目した実験及び浸漬型 MBR に担体を導入する実験を行った。前者については新型セラミック膜の開発を行うと共に、膜ファウリング物質の分析手法についての検討を行った。槽外型 MBR では、浸漬型 MBR とは異なる成分が膜ファウリングに関与することが示され、今後のセラミック膜開発に方向性を示すものとなった。担体の導入については、成功裏に進行したベンチスケール実験を受けてパイロットスケール実験を開始したところである。パイロットスケール実験においても明白な膜ファウリング抑制効果およびばっ気送風量削減の可能性が示されている。

新規な省エネ型超小型微細気泡発生装置の開発に関する研究では、振動板を用いた超小型の微細気泡発生装置 MiBos (マイボス)を開発し、MiBos による培養が微生物の細胞外多糖類の生成に与える影響を評価した。細胞外多糖類に特異的に結合する蛍光レクチン染色の結果、MiBos 培養した大腸菌細胞の細胞外多糖類が 20%程度以下に抑制されていた。それに対して、通常のエアレーションの粗大気泡による培養や振とう培養ではほとんどの細胞に細胞外多糖類が認められたことから、MiBos の活用により膜ファウリングの原因である細胞外多糖類の低減が期待できることが示された。

膜ろ過による浄水処理技術の革新に関する研究では、上流域で繰り返し利水された河川である淀川表流水に対し、活性炭吸着と生物処理に膜ろ過を組み合わせた「ハイブリッド膜ろ過システム」を用いて、高い水処理性と運転・維持管理性を備えた次世代型の浄水処理システムについて検討した。約2年間同一の条件にて運転してきたケーシング型セラミック膜については、当該システムが中～高水温期において長期間安定的に運転可能であることを確認した。また、これまでケーシング型セラミック膜に比べ薬品使用量を低減した条件で運転してきた浸漬型 polytetrafluoroethylene (PTFE)膜については、ケーシング型セラミック膜と同じ薬品注入条件とすると、ケーシング型セラミック膜と同様、高度浄水処理と同等の水処理性能が得られた。いずれのシステムにおいても、低水温期の場合は、溶解性マンガンの除去性が低下するため、その対応策について検討した。さらに原水水質変動時を想定し、perfluorooctanoic acid (PFOA)を

原水に添加した実験においてもケーシング型、浸漬型ともに高度浄水処理水と比較して同等以上の除去率を示した。また、平成 24 年度夏場に発生した淀川上流域における集中豪雨による約 2200 度の高濁度原水に対しても、安定的に運転できることを確認した。

II. 水の新規安全性評価・管理手法の開発（要素研究-2）

微量有害化学物質のモニタリングに関する研究では、再利用の際に必要な不可欠となる塩素消毒による影響を評価した結果、塩素消毒により処理水の細胞毒性が変化し、その変化は処理方式の違いによって異なることが示された。さらに DNA マイクロアレイを用いた解析により、塩素消毒された処理水は細胞の異なる生物学的機能に影響を与えることが示唆された。処理水中の残留医薬品がもたらす毒性を評価した結果、医薬品そのものとは異なる毒性を示すことが判明した。さらに処理水中に残留する医薬品の毒性を高感度に検出することが可能となった他、毒性同定評価 (Toxicity Identification Evaluation: TIE) にトキシコゲノミクス(マーカー遺伝子の発現量の定量)を組み合わせることによって、処理水中に残留する毒性画分を特定することに成功した。

病原微生物リスク評価に関する研究では、宿主特異的遺伝子マーカーを環境試料に適用するための準備を行った。また、複数種病原細菌の同時一斉検出・定量手法のプロトタイプを開発した(原著論文7)。さらに、菌株混合液から大腸菌 O157 だけを特異的に検出・分離する手法を開発した。

組織細胞を用いないウイルス不活化評価手法の確立に関する研究では、アビジン固定化ゲルを用いたカラム方式による酸化損傷ウイルス粒子回収手法を適用することで、ヒトノロウイルスの代替ウイルスであるマウスノロウイルスの感染価を組織細胞を用いずに推定する手法を構築した。

ノロウイルス吸着性細菌に関する研究については、本研究により分離されたノロウイルス吸着性腸内細菌 (*Enterobacter* sp. SENG-6) が、細胞外物質中に存在する A 型抗原様物質を通じてヒトノロウイルス粒子を特異的に捕捉することが確認され、新規ノロウイルス吸着材として利用可能であることが示された。

ナノマテリアルを用いた重金属センサーに関する研究については、市販の原料より BODIPY を母骨格とする 4 種類のナノマテリアルを合成した。ナノマテリアル 1 が Zn に対して選択性があったことから、これを用いて環境サンプル(路面排水)中の Zn 濃度を分析することを試みた。まず、pH がナノマテリアル 1 に及ぼす影響を検討した。ナノマテリアル 1 の蛍光極大波長は pH に依らずナノマテリアル 1 由来の 539 nm であった。pH5.0 から 9.0 では蛍光強度はほぼ一定であったが、pH5.0 以下では蛍光強度が低下した。これはナノマテリアル 1 のイオン配位子部位の N 原子の非共有電子対にプロトンが配位結合したためと考えられる。この結果から、環境サンプル測定時には、標準液および各サンプルの pH を一定にすることが重要であることが明らかとなった。次にナノマテリアル 1 を用いて Zn²⁺の検量線を作成した。検出限界は 0.24 μM (16 μg/L)、定量限界は 0.54 μM (35 μg/L) であった。この検量線を用いてナノマテリアル 1 により路面排水中の Zn 濃度 (Zn(N)) を定量した。この結果を ICP-AES にて測定した路面排水中の Zn 濃度 (Zn(I)) と比較した。茨城で採取された路面排水を除き、Zn(I)の増大に伴い Zn(P)は増大した。すなわち、ナノマテリアル 1 を用いれば、路面排水をろ過するのみで、他のいかなる前処理も必要とせず、Zn の半定量的測定が可能となる事が明らかとなった。しかしながら、Zn(N)が Zn(P)よりも低くなる傾向が

見られた。これはナノマテリアル 1 が路面排水中のフリーの Zn^{2+} のみと配位結合可能であり、 Zn^{2+} が有機物や陰イオンに捕捉されており、その結合定数がナノマテリアル 1 と Zn^{2+} との結合定数よりも大きいため、ナノマテリアル 1 が結合状態の Zn^{2+} を認識できなかったためと考えられた。

§3. 成果発表等

(3-1) 原著論文発表

● 論文詳細情報

1. Kimura, K., Tanaka, I., Nishimura, S. I., Miyoshi, R., Miyoshi, T., Watanabe, Y. (2012) Further examination of polysaccharides causing membrane fouling in membrane bioreactors (MBRs): Application of lectin affinity chromatography and MALDI-TOF/MS, *Water Research*, **46**, 5725-5734. (DOI: 10.1016/j.watres.2012.08.004)
2. Miyoshi, T., Aizawa, T., Kimura, K., Watanabe, Y. (2012) Identification of proteins involved in membrane fouling in membrane bioreactors (MBRs) treating municipal wastewater, *International Biodeterioration and Biodegradation*, **75**, 15-22. (DOI: 10.1016/j.ibiod.2012.08.003)
3. Hoque, A., Kimura, K., Miyoshi, T., Yamato, N., Watanabe, Y. (2012) Characterization of foulants in air-sparged side-stream tubular membranes used in a municipal wastewater membrane bioreactor, *Separation and Purification Technology*, **93**, 83-91. (DOI: 10.1016/j.seppur.2012.03.027)
4. Hoque, A., Kimura, K., Miyoshi, T., Watanabe, Y. (2012) Performance of Membrane Bio-Reactor Equipped with Air-Sparged Side-Stream Tubular Membrane: Treatment Efficiency and Membrane Fouling, *Separation and Science and Technology*, **47**, 1455-1463. (DOI: 10.1080/01496395.2011.648784)
5. Hafuka, A., Taniyama, H., Son, H.-S., Yamada, K., Takahashi, M., Okabe, S., Satoh, H. (2013) BODIPY-based ratiometric fluoroionophores with bidirectional spectral shifts for the selective recognition of heavy metal ions, *Bulletin of the Chemical Society of Japan*, **86**(1), 37-44 (DOI: 10.1246/bcsj.20120235)
6. Kobayashi, A., Sano, D., Okabe, S. (2013) Effects of temperature and predator to the persistence of host-specific Bacteroides-Prevotella genetic markers in water, *Water Science and Technology*, **67**(4), 838-845 (DOI: 10.2166/wst.2012.626)
7. Ishii, S., Segawa, T., Okabe, S. Simultaneous quantification of multiple food and waterborne pathogens by use of microfluidic quantitative PCR, *Applied and Environmental Microbiology*, accepted.
8. Kimura, Z., Okabe, S. Acetate oxidation by syntrophic association between

Geobacter sulfurreducens and a hydrogen-utilizing exoelectrogen, *ISME Journal*, accepted.

9. Satoh, H., Okabe, S. Spatial and temporal oxygen dynamics in macrofaunal burrows in sediments: A review of analytical tools and observational evidence, *Microbes and Environments*, accepted.

10. Tojo, K., Sano, D., Miura, T., Nakagomi, T., Nakagomi, O., Okabe, S. A new approach for evaluating the infectivity of noncultivable enteric viruses without cell culture, *Water Science and Technology*, accepted.

11. Kobayashi, A., Sano, D., Hatori, J., Ishii, S., Okabe, S. Chicken- and duck-associated *Bacteroides-Prevotella* genetic markers for detecting fecal contamination in environmental water, *Applied Microbiology and Biotechnology*, in press.

12. Bandara, W., Satoh, H., Sasakawa, M., Nakahara, Y., Takahashi, M., Okabe, S. Introduction of a degassing membrane technology into anaerobic wastewater treatment. *Water Environment Research*, accepted.

(3-2) 知財出願

- ① 平成 24 年度特許出願件数(国内 2 件)
- ② CREST 研究期間累積件数(国内 2 件)