

## 無曝気・超省エネ電極支援型膜分離活性汚泥法 (e-MBR) の新規開発

研究代表者：北海道大学大学院 工学研究院 環境創生工学部門 教授 岡部 聡

### 1. 緒言

水とエネルギー不足が喫緊の今日の課題である。現在、総電力消費量の約 0.7%(約 72 億 kWh)が廃水処理に使用されている。その主な内訳は、汚泥処理・処分に約 30-50%、活性汚泥法の曝気に 30%である。また、廃水処理施設からは、年間 700 万トンもの CO<sub>2</sub> が排出されており (主な内訳は、電気駆動システム (曝気を含む) から 52%、汚泥処理から 36%)、これは日本の地球温暖化効果ガス排出量の約 0.5%に相当する。汚泥を含む廃水中には、処理に費やされるエネルギーの 10 倍以上の潜在的なエネルギー (電子) が蓄積しており、廃水は都市の持続利用可能な重要な水資源およびエネルギー源として再利用する必要がある。従って、低炭素循環型社会構築のためには、水不足解消のために処理水を再利用することができるよう高度処理を行うと同時に、曝気量と汚泥発生量を削減し省エネルギー化を図るとともに、廃水からエネルギー回収が可能な廃水処理システムの開発が求められる。

この目的に合致する廃水処理方法として、膜分離活性汚泥法 (MBR) があげられる。MBR は、処理施設がコンパクトであり運転管理が容易であるうえ、高品位な処理水が得られるため、廃水再利用において中心的処理技術である。しかしながら、MBR 普及の最大阻害要因は処理水量あたりの消費エネルギーの大きさである。MBR の消費エネルギーの大半を占めるのが膜面洗浄および生物学的酸化のための曝気であり、曝気量の大幅な削減が MBR 普及の重要な鍵となっている。

そこで本研究では、曝気量および発生汚泥量削減のために溶存酸素(O<sub>2</sub>)に代わって固体電極を最終電子受容体として用いる“電極呼吸”を適用した廃水処理を提案する。エネルギー獲得 (有機物酸化) 過程から、固体電子受容体 (負電極) に直接電子を受け渡すことができる細菌 (電気生産細菌) を利用して、化学エネルギーを直接電気エネルギーに変換する電気化学デバイス、すなわち、バイオ燃料電池(MFC)と MBR を融合した、新規電極支援型膜分離活性汚泥法(e-MBR, electrode-assisted MBR)を開発することを目的とした。e-MBR 槽内の微生物は、MFC 同様に電極を電子受容体とした電極呼吸を行うため、エアレーションによる酸素供給を必要としない。しかし、MBR におけるエアレーションには膜ファウリング抑制を目的とする膜洗浄効果もあり、無曝気の e-MBR では MBR 以上に顕著な膜ファウリングの進行が懸念される<sup>1-3</sup>。膜ファウリングは MBR の稼働に必要なエネルギー・コストの増大を招くため、e-MBR における膜ファウリング機構の解明およびその抑制技術の開発は非常に重要な課題である。しかしながら、電極呼吸が膜ファウリングの進行に及ぼす影響については未だ明らかにされていない<sup>4</sup>。

本研究では、酸素供給と膜ファウリング防止のための膜面洗浄を目的とした曝気を廃止

し“電極呼吸”に替えた e-MBR の場合、(1) 十分な廃水処理性能が達成できるか？ (2) 汚泥発生量は削減できるか？ (3) 膜ファウリングの進行は抑制できるか？を検討した。これらを同時に達成できれば、MFC と MBR を組み合わせた e-MBR は、無曝気で高度廃水処理、余剰汚泥発生量の削減、電気エネルギーの直接回収を同時に可能とする高効率・省エネ型廃水処理システムとなり得る。さらに、電気駆動システムや汚泥処理（焼却処分）過程から発生する地球温暖化効果ガス（CO<sub>2</sub> や N<sub>2</sub>O）の発生を大幅に削減でき、本システムは地球環境・地球温暖化防止に貢献できる次世代の廃水再利用技術の核になりうる。

## 2. 実験方法

### 2-1 e-MBR の構築

酸素（O<sub>2</sub>）の代わりにアノード電極を最終電子受容体とする電極支援型膜分離活性汚泥法(e-MBR)の開発を目的とし、処理性能評価および膜ファウリング抑制効果の検証を行うために、連続二槽式 MFC と定流量クロスフロー膜ろ過装置を連結させた実験装置を作成した<sup>5</sup>(図 1)。連続二槽式 MFC のアノード槽およびカソード槽の容積はそれぞれ 250 ml であり、アノード電極にはカーボンフェルト(6 × 5 cm<sup>2</sup>, Somerset; NJ, U.S.A.)を、カソード電極には白金含有炭素(0.5 mg-Pt/cm<sup>2</sup>, 3 × 5 cm<sup>2</sup>, E-TEK, Somerset; NJ, U.S.A.)を用いた。カソード槽はフェリシアン化カリウム溶液(100 mM)を充填した。セパレーターには陽イオン交換膜(Nafion 117, Dupont Co., DE, U.S.A.)を用いた。電極呼吸の影響を評価するために、MFC の外部電子回路の抵抗値の異なる MFC を 4 台構築し、内 1 台は開回路で運転した。

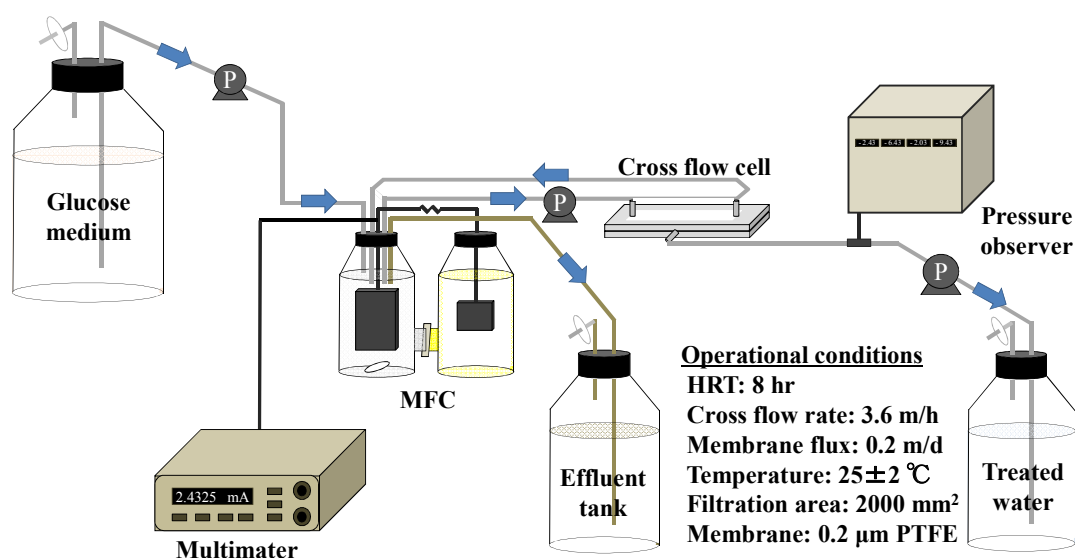


図 1 本研究で使用した連続二槽式 MFC と定流量クロスフロー膜ろ過装置を連結させた実験装置の全体図（矢印は培地や槽内液、膜透過液の流れを表す）

各 MFC に既存の MFC のバイオマスを植種し、7 日間静置後にグルコース(2.8 mM)を炭素源とした人工下水を HRT = 8hr となるように連続供給した。室温(25 ± 2°C)で 4 ヶ月間連続運転し発電量が安定した後、MFC 処理水の膜ファウリングポテンシャルを測定した。測定にはクロスフロー連続膜ろ過装置を用いた。処理膜には PTFE 膜(100 × 20 mm<sup>2</sup>, 0.2 μm, hydrophilic PTFE; Advantec Toyo; Tokyo, Japan)を使用した。

MFC の COD 除去特性を評価するために、流入水および流出水の COD 濃度を測定した。COD 測定には吸光光度計(DR2400; HACH Co.; CO, U.S.A.)を、OD 測定には分光光度計(Smart Spec Plus; Bio-Rad; CA, U.S.A.)を使用した。

## 2-2 ファウリングポテンシャルの測定および分泌物の分析

各 MFC 処理水を定流量クロスフロー連続膜ろ過装置へ通水し、膜間差圧(TMP)を引抜き開始から 3 時間計測し、各 MFC のファウリングポテンシャルを評価した。実験の再現性を確認するために引抜き実験は計 3 回行った。定流量クロスフロー連続膜ろ過実験と並行して、引抜き後の槽内液(ML)および 0.05%NaCl 溶液に懸濁したケーキ層(BC)を 6,000 × g で 15 分間遠心分離することで SMP を抽出し、デッドエンドろ過法で SMP のファウリングポテンシャルを評価した<sup>6</sup>。SMP 中のバイオポリマー濃度は LC-OCD(LC-OCD Model 8, DOC-LABOR; Karlsruhe, Germany)で測定した。

## 2-3 菌叢解析

MFC 槽内の微生物群集構造もしくは有機物代謝経路が変化し、溶解性有機物や細胞外ポリマーの生成量およびその特性が変化し、その結果として、膜ファウリングが抑制できることを検証するため、異なる外部抵抗値で運転した MFC 槽内およびアノード電極表面上のバイオフィーム内の菌叢解析を行った。定流量クロスフロー連続膜ろ過実験終了後、アノードバイオフィームを 5 × 5 mm<sup>2</sup>に切り取り、10 ml の 0.05%NaCl 溶液に浸漬させ 10 秒間ボルテックスを行い、緩やかに付着していたバイオフィームを採取することで、アノードバイオフィームの外部(AB<sub>out</sub>)と内部(AB<sub>in</sub>)を分離した。AB<sub>out</sub> また 3 ml の ML は 8,000 × g で 5 分間遠心分離し、得られたペレットから Fast DNA Spin kit for soil (Bio101, Vista; CA, U.S.A.)を用いて DNA を抽出した。定量 PCR は SYBR Green 法を<sup>7</sup>、菌相解析は次世代シーケンサー(Illumina Miseq, Illumina; Hayward, CA, U.S.A.)を用いて行った<sup>8</sup>。定量 PCR、菌相解析のいずれも 16S rRNA 遺伝子の v3 および v4 領域を対象とし<sup>9</sup>、Silva 119 データベースに基づき、QIIME 1.8.0 で得られた塩基配列を同定した<sup>8</sup>。

## 2-4 電気生産細菌 *Geobacter sulfurreducens* strain PCA を用いた実験

電極呼吸により有機物代謝経路が変化し、溶解性有機物や細胞外ポリマーの生成量およびその特性が変化するか否かを検証するため、電極およびフマル酸(40 mM)を唯一の電子受容体、酢酸を唯一の炭素源(20 mM)として、電気生産細菌の代表株である *Geobacter*

*sulfurreducens* strain PCA (PCA 株)を MFC を用いて培養し、膜ファウリングポテンシャルおよびバイオポリマー生産量およびその組成を分析した。

実験は、まずアノード槽に PCA 株を植種し(OD<sub>600</sub>=0.1)、4 日間培養した後、前述の方法で ML から SMP を抽出した。膜ファウリングポテンシャルはデッドエンドろ過法で、バイオポリマー濃度は LC-OCD を用いて測定した。さらに、PCA 株によるファウリング原因物質の分解効果を検証するため、アノード槽内の ML と MFC D の滅菌済み流出液とを培養 4 日後に置換し、置換した ML のファウリングポテンシャルの経時変化を観察した。

## 2-5 膜ファウリング原因菌 (FCB) である *K. quasipneumoniae* strain S05 を用いた実験

*Klebsiella quasipneumoniae* strain S05(S05 株)は、実下水を処理するパイロットスケール MBR より単離されたファウリング原因細菌 (FCB) である<sup>5</sup>。PCA 株同様、電極、酸素もしくは硝酸を唯一の電子受容体として S05 株を培養し、膜ファウリングポテンシャルおよびバイオポリマー生産量およびその組成を分析した。

酸素は空気を 25 L/h で連続送風、硝酸は 6 M NaNO<sub>3</sub>溶液 2 ml を毎日添加した。硝酸濃度を測定し枯渇していないことを確認した。また、電極呼吸を促進させるため、+0.2 V(vs. Ag/AgCl)の電圧をアノード電極に印加した MFC と、コントロールとして外部から全ての溶存電子受容体を供試しない開回路 MFC の計 5 台を構築した。

培養は、アノード槽に S05 株を植種し(初期 OD<sub>600</sub>=0.5)、グルコースを唯一の炭素源(20 mM)とする培地を用いて 2 日間培養した後、PCA 株同様に ML から抽出した SMP を用いてファウリングポテンシャルおよびバイオポリマー濃度等を測定した。

## 3. 結果と考察

### 3-1 e-MBR の性能評価

外部抵抗値の異なる MFC の性能評価を比較した結果を表 1 に示す。外部抵抗値の違いによる電流量の違いはみられるものの、各 MBR(HRT=8hr)の COD 除去率はいずれも 70 %以上であった(表 1)。槽内バイオマス濃度(ML OD<sub>600</sub>)にも違いは見られなかった。外部抵抗値が小さいほど MFC の発電流量、クーロン効率(CE)は大きく、電極呼吸が促進されていることを確認した。CE は 0.2-8.9%と、既往の e-MBR と同程度であった<sup>1,2,10-12</sup>。

表 1 外部抵抗の異なる MFC の性能評価

初期条件運転時	MBR A	MBR B	MBR C	MBR D
外部抵抗値	100 Ω	1000 Ω	10000 Ω	open circuit
電流値(mA)	2.78±0.02	0.60±0.01	0.07±0.00	-
電圧値 (mV)	246.2±1.0	634.7±1.1	750.6±0.6	-
発電量 (W/m <sup>3</sup> )	2.83±0.01	1.62±0.00	0.21±0.00	-
クーロン効率 (%)	8.9	2.0	0.2	-
OD600	0.19 ±0.01	0.18±0.02	0.21±0.02	0.17±0.01
COD除去率 (%)	77±7	71±1	71±1	78±4
↓ 外部抵抗値変更後 ↓				
外部抵抗値	10000 Ω	1 Ω	100 Ω	Aeration (MBR)
電流値(mA)	0.07±0.00	3.54±0.03	2.42±0.01	-
電圧値 (mV)	785.4±0.7	5.9±0.0	246.8±0.8	-
発電量 (W/m <sup>3</sup> )	0.23±0.01	0.08±0.00	2.40±0.01	-
クーロン効率 (%)	0.2	11.7	7.8	-
OD600	0.20 ±0.01	0.21±0.02	0.20±0.02	0.22±0.01
COD除去率 (%)	72±6	71±3	71±5	79±2

### 3-2 膜ファウリング抑制効果

各 MFC 処理水の膜ファウリングポテンシャルを評価するために、クロスフロー膜ろ過実験を行い TMP の経時変化を測定した。その結果、100 Ω および 1,000 Ω の外部抵抗が接続されている MFC A および B の TMP は運転開始 3 時間後も 5 kPa 前後であったが、外部抵抗値が 10,000 Ω の MFC C および全ての電子受容体を排除した MFC D の TMP は、運転開始 1 時間後から急激に増加し、運転 3 時間後には 25 kPa 程度に到達した(図 2)。外部抵抗値が小さいほど、TMP 増加が緩やかであり、膜ファウリングが抑制されることが分かった。

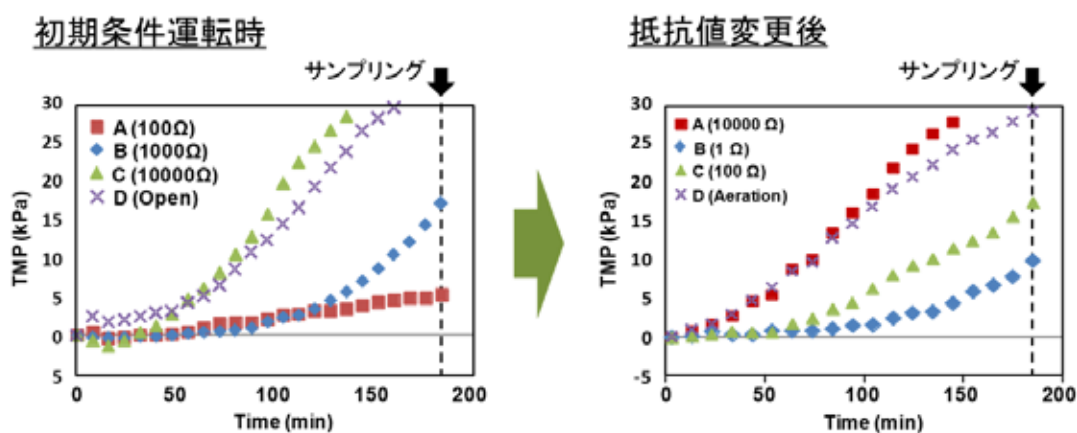


図 2 外部抵抗値の異なる MFC 処理水のクロスフロー膜ろ過実験における TMP の経時変化

この結果の再現性を検証するため、外部抵抗値を表 1 に示すように変更し、同様の実験を行った。その結果、変更前と同様の結果を得た (図 2)。特に、曝気を行った MBR D よりも MBR B および C の方が TMP の増加は緩やかであった。計 3 回の引抜き実験より得られた TMP3 と発電流量の関係を図 3 に示す。発電流量が大きいほど TMP3 は明らかに小さくなった。すなわち、外部抵抗値を小さくし電極呼吸を促進するほど膜ファウリングが抑制された。既往の研究において、MFC との統合による膜ファウリング抑制効果は確認されている一方<sup>10-12</sup>、CE が 0.24% と極端に低い e-MBR では、膜ファウリング抑制効果は確認されなかった<sup>2</sup>。これは本研究の結果と一致しており、CE が 0.2% であった MFC C のファウリングポテンシャルは、開回路 MFC である MFC D と同程度もしくは高かった。これらより、e-MBR で生じる膜ファウリングを抑制するためには、CE を一定値以上に維持する必要があることが分かる。

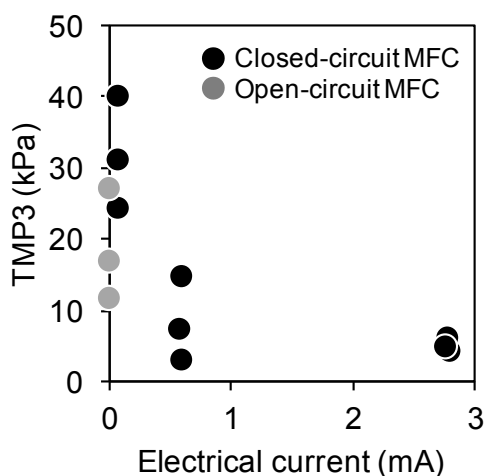
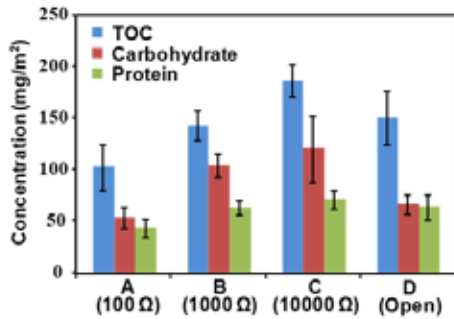


図 3 TMP3 と発電流量の関係

また、膜表面上ケーキ層の TOC、糖、タンパク質量は TMP の増加と一致しており、外部抵抗値が小さい (固体電子受容体の利用効率が高い) ほど、膜ファウリング原因物質の分泌量が減少することが分かった (図 4)。以上より、電極支援型膜分離活性汚泥法 (e-MBR) は、アノード電極を電子受容体として有効に利用することにより、曝気時と同等の COD 除去率を達成しながら、膜ファウリング抑制効果があることが明らかとなった。

### 初期条件運転時



### 抵抗値変更後

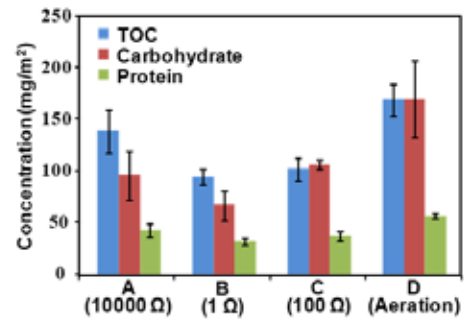


図4 各 MBR 膜表面ケーキ層の TOC、糖、タンパク質量

### 3-3 槽内液およびケーキ層中のバイオポリマー濃度

槽内液 (ML) 中の SMP の膜ファウリングポテンシャルを測定した結果、TMP3 と同様の傾向を示したことから(図 5)、既往の報告と同様に、SMP が膜ファウリングの主な原因物質であると考えられる<sup>5,12</sup>。SMP の成分分析を行った結果、ML およびケーキ層中 (BC) 中の SMP の TOC、糖、タンパク質濃度のいずれも TMP3 との間に相関性を見出せなかった一方、バイオポリマー濃度は TMP3 と高い相関を示した(図 6A)。この結果は、e-MBR においてもバイオポリマーが膜ファウリングの原因物質であったことを示すものである<sup>13,14</sup>。さらに、発電流量とバイオポリマー濃度を比較すると、発電流量が大きいほど、バイオポリマー濃度が小さかった(図 6B)。すなわち、電極呼吸を促進するほど、膜ファウリング原因物質であるバイオポリマー量を削減できることが明らかとなった。

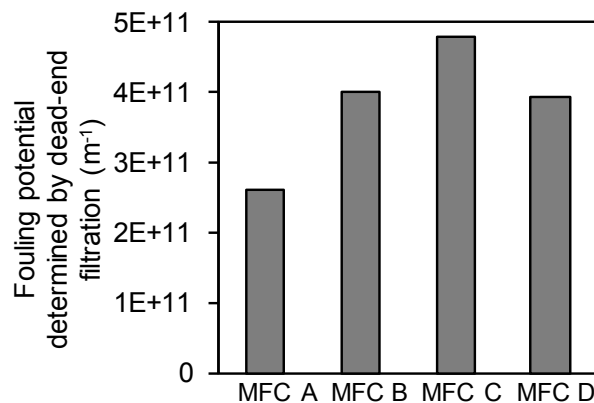


図5 ML より抽出した SMP の膜ファウリングポテンシャル

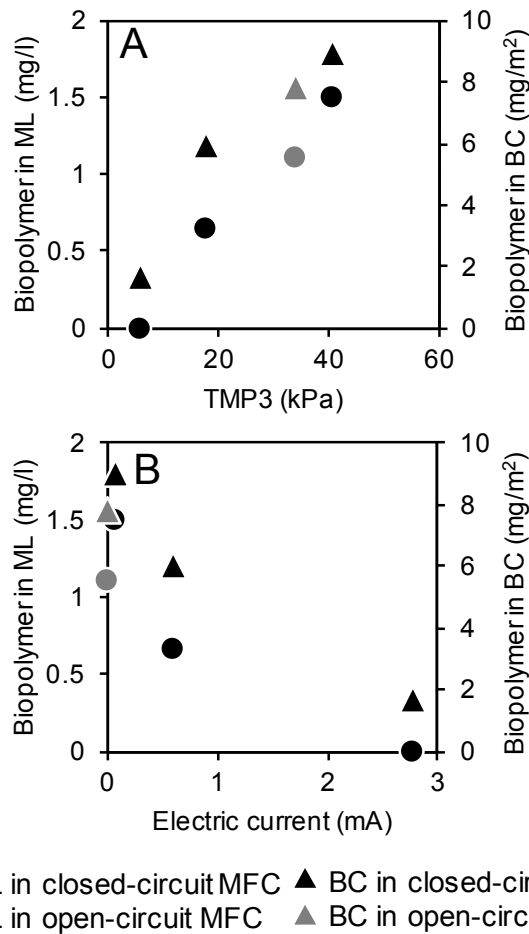


図6 バイオポリマー濃度と TMP3(A)とバイオポリマー濃度と発電流量(B)の関係

### 3-4 アノードバイオフィーム中の菌叢解析

電極呼吸の促進がバイオポリマー生産量の削減に寄与した原因を解明するため、バイオポリマーの生成に関与すると考えられる MFC 内の菌叢解析を行った。槽内液 (ML)、アノードバイオフィーム内部 ( $AB_{in}$ )、アノードバイオフィーム表層部 ( $AB_{out}$ ) 中の細菌存在量を比較すると、ML 中に存在する細菌の割合は、電極呼吸の程度にかかわらず 18-39% であり、50-70%の菌は  $AB_{in}$  に存在していた(図 7A)。アノードバイオフィーム内、特に  $AB_{in}$  (バイオフィーム内部) の菌相は、外部抵抗値が小さいほど *Geobacteraceae* 科に属する細菌が優占していた(図 7B)。この結果は既往の報告と一致し<sup>15</sup>、アノードバイオフィーム内に存在する *Geobacteraceae* 科を中心とした電気生産細菌が、e-MBR のバイオポリマーの生成および膜ファウリング抑制に寄与していたと考えられる。



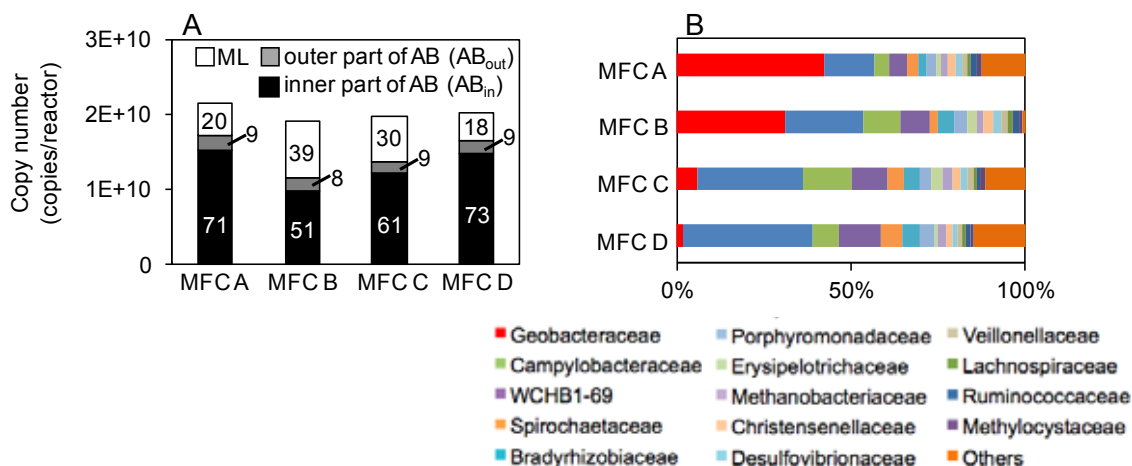


図7 (A)各 MFC 中に存在する細菌の存在比および(B)アノードバイオフィーム内部(AB<sub>in</sub>)の菌相の比較

### 3-5 電極呼吸が *G. sulfurreducens* PCA 株のファウリングポテンシャルおよびバイオポリマー生産に与える影響

電極呼吸することにより、電気生産細菌の有機物代謝経路が変化し、溶解性有機物や細胞外ポリマーの生成量およびその特性が変化し、その結果として、膜ファウリングが抑制される可能性を、電気生産細菌の代表株である *G. sulfurreducens* PCA 株を用いて検証した。

実験は、電極およびフマル酸をそれぞれ電子受容体として *G. sulfurreducens* PCA 株を培養した。その結果、電極呼吸時の PCA 株の膜ファウリングポテンシャル( $1.78 \pm 0.84$  vs.  $0.56 \pm 0.03$  ( $10^{11} \text{ m}^{-1}$ ))およびバイオポリマー生産量( $5.48 \pm 2.79$  vs.  $2.25 \pm 0.89$  (mg/g-acetate))は、それぞれフマル酸呼吸時に比べて統計学的に小さくなることが分かった(図 8A および図 8B)。このことから、電極呼吸を促進するほど、電気生産細菌のバイオポリマーの生産が抑制され、その結果、膜ファウリングポテンシャルが抑制されることが明らかとなった。

次に、電気生産細菌が電極呼吸時にバイオポリマーを分解することにより、膜ファウリングポテンシャルが抑制される可能性を検証するため、滅菌した MFC D (電子受容体無し) の ML に、PCA 株を植種しアノード電極を電子受容体として培養し、その培養液の膜ファウリングポテンシャルの経時変化を測定した(図 8C)。その結果、培養液の膜ファウリングポテンシャルに顕著な差はみられなかった。この結果は、電気生産細菌 PCA 株は、膜ファウリング原因物質を分解することはできないことを示すものである。

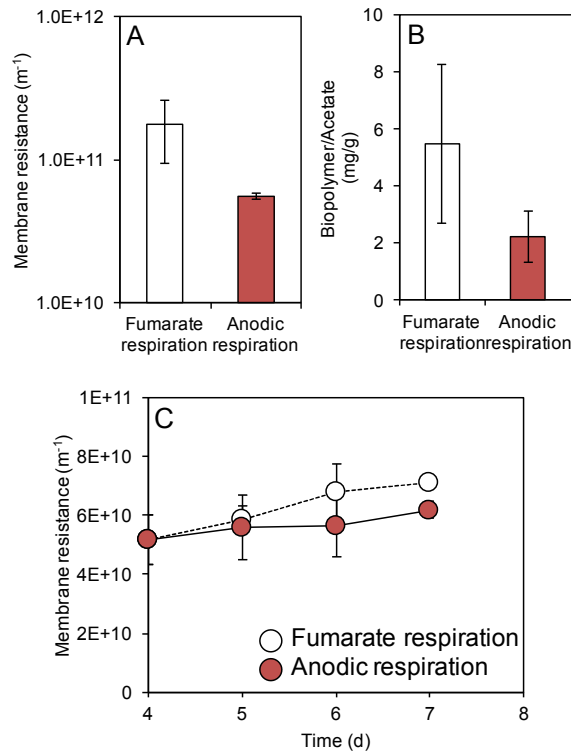


図 8 電極呼吸およびフマル酸呼吸時の PCA 株の(A)膜ファウリングポテンシャル、(B) バイオポリマー生産量および(C)MFC D の培養液の膜ファウリングポテンシャルの経時変化

### 3-6 電極呼吸がFCBであるS05株のファウリングポテンシャルおよびバイオポリマー生産に与える影響

既往の研究により、電気生産能を有する S05 株が膜ファウリング進行に大きく関与することが明らかとなっている<sup>5</sup>。e-MBR における膜ファウリング抑制効果を解明するために、電極呼吸が電気生産能を有する FCB のファウリングポテンシャルに与える影響を評価した。

S05 株は、電極、酸素、硝酸を電子受容体として利用し増殖可能である。まず、これらを電子受容体として S05 株を培養した時の膜ファウリングポテンシャルを比較した(図 9A)。その結果、ファウリングポテンシャルはいずれもほぼ同程度であり、電子受容体の種類に依存しないことが明らかとなった。一方、電極呼吸時に比べ、電子受容体枯渇時、すなわち発酵条件下では顕著に高いファウリングポテンシャルを示した( $0.71 \pm 0.34$  vs.  $1.99 \pm 0.13$  ( $10^{12} m^{-1}$ ))。また、アノード電極に+0.2 V (vs. Ag/AgCl)電圧を印加することにより、S05 株の電極呼吸を促進すると、ファウリングポテンシャルは減少した( $0.71 \pm 0.34$  vs.  $0.27 \pm 0.06$  ( $10^{12} m^{-1}$ ))。バイオポリマーの生産に関しても、膜ファウリングポテンシャルと同様の傾向を示した(図 9B)。S05 株は、電極呼吸時に比べ電子受容体枯渇時により多くのバイオポリマーを生産した( $1.48 \pm 0.48$  vs.  $10.4 \pm 2.9$  (ppm))。一方で、電極呼吸を促

進した場合には、バイオポリマーの生産量は抑制された( $1.48 \pm 0.48$  vs.  $1.18 \pm 0.09$  (ppm))。

MBR 中の溶存酸素濃度の低下によるファウリングポテンシャルの増大<sup>16</sup>や、電子受容体の枯渇が特定の分泌物生産を促進すること<sup>17</sup>、はこれまでに報告されており、本研究の結果と一致する。S05 株においても、電極呼吸を促進するほど、バイオポリマーの生産量は減少し、その結果、膜ファウリングポテンシャルが抑制される。

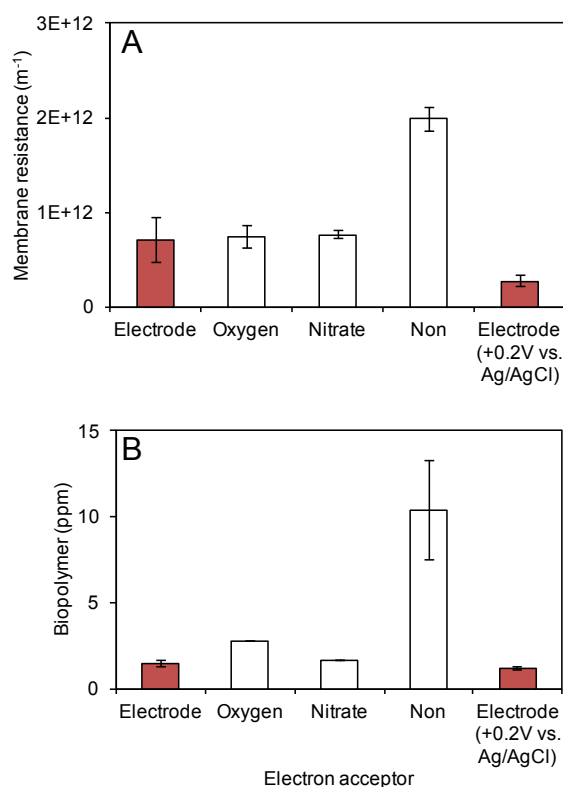


図9 電極、酸素および硝酸を電子受容体とした時の S05 株の(A)膜ファウリングポテンシャルおよび(B)バイオポリマー生産量

#### 4 まとめ

本研究では、酸素の代わりに固体電極を電子受容体とする電極支援型膜分離型活性汚泥法 (e-MBR) の開発を目的とし、COD 除去特性および膜ファウリング抑制効果の検証を行った。その結果、無曝気の e-MBR でも通常の MBR と同等の COD 除去率(約 70 %)を達成できた。

電極呼吸には膜ファウリング抑制効果があり、FCB を含めた電気生産細菌の電極呼吸を促進するほど、膜ファウリング原因物質であるバイオポリマーの生産が抑えられるため、膜ファウリングポテンシャルが抑制されることが分かった。

電子受容体の枯渇が膜ファウリングポテンシャル、バイオポリマー生産量の飛躍的な増大を引き起こすことから、膜ファウリングの抑制には、電子受容体が枯渇しないように供

給する必要がある。

このように、e-MBR は、無曝気、汚泥削減、電気エネルギー回収、高度処理水等を同時に達成できる次世代型の超省エネ型廃水処理技術となりうることが示唆された。さらに e-MBR は運転管理が容易であり小規模自律分散型処理施設として適用可能であり、世界各地の深刻な水・エネルギー問題の解決に貢献できると考えられる。

## 謝辞

本研究は、公益財団法人 JFE21 世紀財団の技術研究助成を受けて実施されたものである。付記して関係者各位に深甚の謝意を表す。

## 参考文献

1. Wang, Y. K., Sheng, G. P., Li, W. W., Huang, Y. X., Yu, Y. Y., Zeng, R. J., Yu, H. Q. Development of a novel bioelectrochemical membrane reactor for wastewater treatment. *Environ. Sci. Technol.* **2011**, 45 (21), 9256–9261.
2. Ma, J., Wang, Z., He, D., Li, Y., Wu, Z. Long-term investigation of a novel electrochemical membrane bioreactor for low-strength municipal wastewater treatment. *Water Res.* **2015**, 78, 98–110.
3. Malaeb, L., Katuri, K.P., Logan, B.E., Maab, H., Nunes, S.P., Saikaly, P.E. A hybrid microbial fuel cell membrane bioreactor with a conductive ultrafiltration membrane biocathode for wastewater treatment. *Environ. Sci. Technol.* **2013**, 47(20), 11821-11828.
4. Judd, S. The status of membrane bioreactor technology. *Trends in Biotechnol.* **2008**, 26(2), 109-116.
5. Ishizaki, S., Fukushima, T., Ishii, S., Okabe, S. Membrane fouling potentials and cellular properties of bacteria isolated from fouled membranes in a MBR treating municipal wastewater. *Water Res.* **2016**, 100, 448-457.
6. Kimura, K., Tanaka, I., Nishimura, S., Miyoshi, R., Miyoshi, T., Watanabe, Y. Further examination of polysaccharides causing membrane fouling in membrane bioreactors (MBRs): Application of lectin affinity chromatography and MALDI-TOF/MS. *Water Res.* **2012**, 46(17), 5725-5734.
7. Kobayashi, A., Sano, D., Taniuchi, A., Ishii, S., Okabe, S. Use of a genetically-engineered *Escherichia coli* strain as a sample process control for quantification of the host-specific bacterial genetic markers. *Appl. Microbiol. Biotechnol.* **2013**, 97(20), 9165-9173.
8. Rathnayake, R.M., Oshiki, M., Ishii, S., Segawa, T., Satoh, H., Okabe, S. Effects of dissolved oxygen and pH on nitrous oxide production rates in autotrophic partial

- nitrification granules. *Bioresour. Technol.* **2015**, 197, 15-22.
9. Elshahed, M. S., Youssef, N. H., Spain, A. M., Sheik, C., Najjar, F. Z., Sukharnikov, L. O., Roe, B. A., Davis, J. P., Schloss, P. D., Bailey, V. L. Novelty and uniqueness patterns of rare members of the soil biosphere. *Appl. Environ. Microbiol.* **2008**, 74 (17), 5422-5428.
  10. Wang, J., Zheng, Y., Jia, H., Zhang, H. Bioelectricity generation in an integrated system combining microbial fuel cell and tubular membrane reactor: Effects of operation parameters performing a microbial fuel cell-based biosensor for tubular membrane bioreactor. *Bioresour. Technol.* **2014**, 170, 483-490.
  11. Zhou, G., Zhou, Y., Zhou, G., Lu, L., Wan, X., Shi, H. Assessment of a novel overflow-type electrochemical membrane bioreactor (E-MBR) for wastewater treatment, energy recovery and membrane fouling mitigation. *Bioresour. Technol.* **2015**, 196, 648-655.
  12. Wang, J., Zheng, Y., Jia, H., Zhang, H. Bioelectricity generation in an integrated system combining microbial fuel cell and tubular membrane reactor: Effects of operation parameters performing a microbial fuel cell-based biosensor for tubular membrane bioreactor. *Bioresour. Technol.* **2014**, 170, 483-490.
  13. Rosenberger, S., Laabs, C., Lesjean, B., Gnirss, R., Amy, G., Jekel, M., Schrotter, J.C. Impact of colloidal and soluble organic material on membrane performance in membrane bioreactors for municipal wastewater treatment. *Water Res.* **2006**, 40(4), 710-720.
  14. Tian, J.Y., Ernst, M., Cui, F., Jekel, M. Correlations of relevant membrane foulants with UF membrane fouling in different waters. *Water Res.* **2013**, 47(3), 1218-1228.
  15. Ishii, S., Suzuki, S., Norden-Krichmar, T. M., Wu, A., Yamanaka, Y., Nealson, K. H., Bretschger, O. Identifying the microbial communities and operational conditions for optimized wastewater treatment in microbial fuel cells. *Water Res.* **2013**, 47 (19), 7120-7130.
  16. Lin, H., Peng, W., Zhang, M., Chen, J., Hong, H., Zhang, Y., A review on anaerobic membrane bioreactors: applications, membrane fouling and future perspectives. *Desalination* **2013**, 314, 169-188.
  17. Cotter, J. J., O'Gara, J. P., Mack, D., Casey, E., Oxygen-mediated regulation of biofilm development is controlled by the alternative sigma factor  $\sigma^B$  in *Staphylococcus epidermidis*. *Appl. Environ. Microbiol.* **2009**, 75(1), 261-264.