

表2 主成分分析成分の固有値と寄与率（例）

	固有値	寄与率	累積寄与率
1	5.41385	41.64%	41.64%
2	2.67304	20.56%	62.21%
3	1.31136	10.09%	72.29%
4	1.22019	9.39%	81.68%
5	0.76076	5.85%	87.53%
6	0.48612	3.74%	91.27%
7	0.44035	3.39%	94.66%
8	0.25341	1.95%	96.61%
9	0.21936	1.69%	98.30%
10	0.13193	1.01%	99.31%
11	0.07962	0.61%	99.92%
12	0.01001	0.08%	100.00%

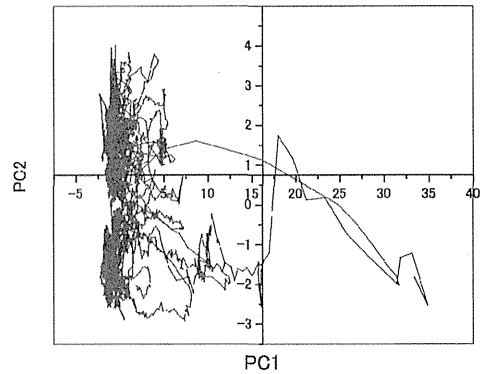


図2 ある浄水場における原水水質の主成分分析—時間毎の変動の推移例—（プロット：1時間値）

表2に主成分分析成分の固有値と寄与率を示した。累積寄与率は2項目で62%に達した。主成分第1因子については、濁度の変動が大きかったため、その影響が強く出ている。主成分第2因子については、pHと水温等の自然変動因子の存在可能性が考えられた。

図2にこれらの相互関係を時系列で示す。濁度の高い場合は、主成分1が大きく卓越し、他の場合は第2因子の正負が変動している。

現状ではあくまでも予備的な検討であるが、特に今回例となった大規模河川の表流水における濁度変化のような水質因子を評価する場合は、濁度の変動が急激に起こる場合があることから、1時間毎以上の頻度で計測されたデータを用いることが望ましいと考えられた。

今後、変動の指標化について、更なる検討を実施する予定である。

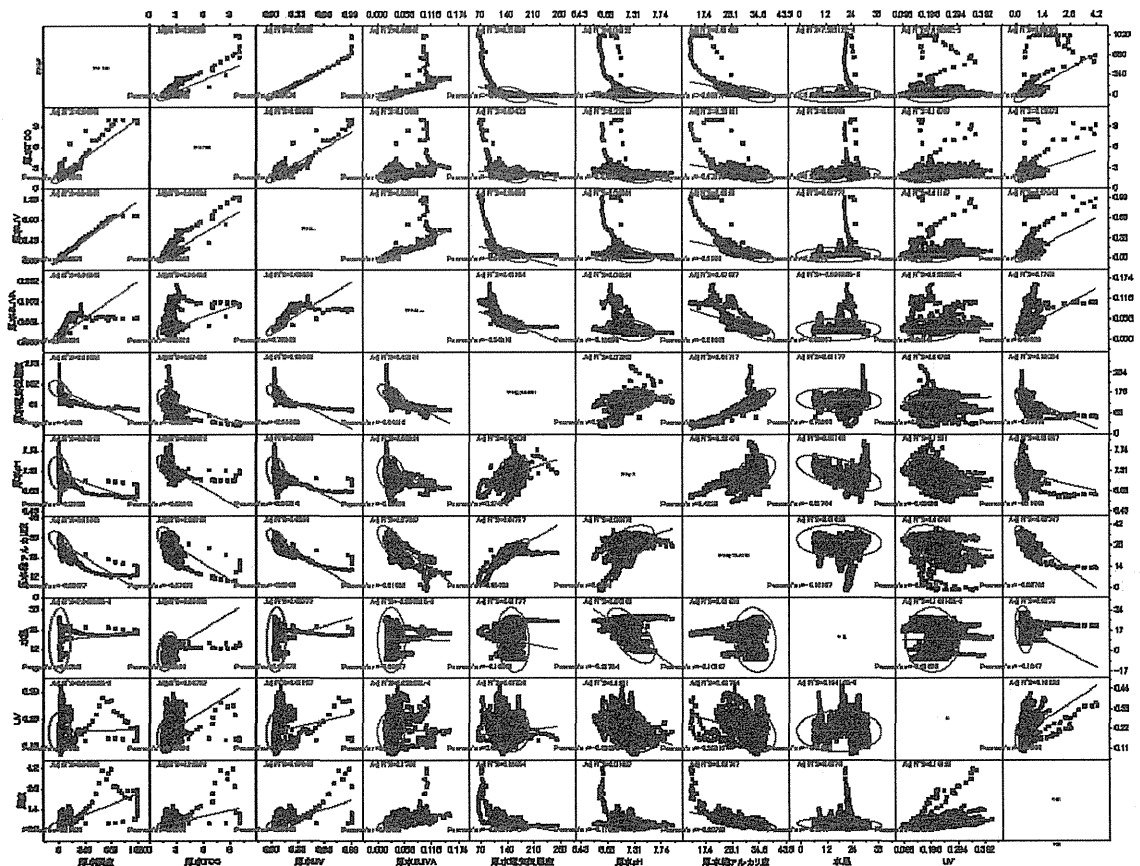


図1 ある浄水場における原水水質（濁度、TOC、UV、SUVA、電気伝導度、pH、総アルカリ度、水温および処理水水質（UV、濁度）の相関行列（直線は相関直線、楕円は信頼円）

E. 結論

・自動水質計器の測定結果の解析を行い、多項目の変動の特性把握手法等について検討した。幾つかの水道事業体の連続監視データを用いて、基本統計量の把握などの予備的な検討を行った。過去の自動水質計器のデータから、濁度や酸化還元電位、電気伝導度等のデータを利用する場合、基本統計量の解析のみではなく、連続的な変動解析手法に関する検討や制御用の指標値との比較、多項目の相関関係を評価する必要があると考えられた。

・複数の自動水質計器のデータから、変動が激しい項目を評価する場合においては、毎時間以上の頻度のデータが処理の最適化に必要と考えられ、それらのデータを取得し、複数指標の相関関係の解析を実施したところ、項目により特性が異なることが把握された。主成分分析においてもその特性を把握することができ、各因子の推移を見ることも有効であると考えられた。今後、特徴量等に着目した異常検出等を含む更なる解析を実施し、解析を行う必要がある。

F. 健康危険情報

該当なし。

G. 研究発表

1. 論文発表

該当なし。

2. 学会発表

該当なし。

H. 知的財産権の出願・登録状況（予定も含む。）

1. 特許取得

該当なし。

2. 実用新案登録

該当なし。

3. その他

該当なし。

分担研究報告書 5

イベント検知システムに関する調査

研究協力者 山口 太秀

厚生労働科学研究費補助金（健康安全・危機管理対策総合研究事業）
「水道における連続監視の最適化および浄水プロセスでの処理性能評価に関する研究」
分担研究報告書

研究課題：イベント検知システムに関する調査

研究協力者 山口 太秀 メタウォーター（株）

研究要旨

イベント検知システム（EDS）は浄水プロセスにおける水質異常の検知手法として、ISO や米国環境保護庁（USEPA）により検討されている。本研究では今後、『原水安全度』、『浄水安定度』等の運転管理に役立つ指標を検討する予定だが、EDS の考え方は、より簡便にリスクを把握できる指標を考案する上で、役立つものであると考えられる。そこで、USEPA の報告書を中心にその技術内容を調査するとともに代表的な EDS の一つである BlueBox™ を実際に試験することを試みた。その結果、EDS の現段階の性能は異常の判断を完全に委ねるレベルには到達しておらず、運転管理者の補助的な利用に留まると推察された。さらに、EDS の運用に当たっては、少なくとも数か月に及ぶデータの学習期間が必要であり、水質異常を検知するためのチューニングは、ICT の技術者の協力を仰がなければならないことが分かった。

我が国では、近年のゲリラ降雨による原水水質の急変や熟年技術者不足がさらに進行しており、連続自動水質計器を利用した水質管理は必須な状況にある。今回評価した EDS による異常検知手法は課題があるものの、今後ソフトウェアのアルゴリズムに関して標準化が進み、より簡易的に利用できるようになれば、運転管理の質を高めることが期待できる。

A. 研究目的

本研究の目的のうち、分担に関連した事項に、1) 水道水源で優先度の高い危害を抽出し、監視体制の最適化を目指す。2) 浄水プロセスでの処理状況を連続監視し、変動や処理性能の評価手法の最適化を行う。3) 浄水場での過去の連続データを用いて、水質変動パターン、他の項目との相関性、スペクトル解析、変動要因等の詳細解析により、『原水安全度』、『浄水安定度』等の指標を検討することが挙げられている。

そこで、上記の指標を検討するにあたって、イベント検知システム（Event Detection System、以下 EDS）について調査することを研究課題とした。EDS はソフトウェアによって手法は異なるが、過去の学習データと現在のデータの絶対値、変化の速度、多次元頻度分布等に基づいて水質異常を判断するアルゴリズムを有しており、『浄水の安定度』の指標を検討する上で参考になると考えられる。本項では、EDS の概要と代表的な EDS を評価した結果について記すとともに、EDS の課題に関しても考察する。

1. EDS に関する調査

EDS は、「ISO/TC224 飲料水及び下水サービシスに関する活動」の中で、国際標準規格化が検討されており、2008 年には米国環境保護庁（USEPA）による評価が行われている。一方、

我が国では、厚生労働省により、2007 年 2 月に「テロ対策マニュアル策定指針」が示され、取水施設、浄水施設については連続自動水質計器等の設置が予防対策として記載されているが、連続自動水質計器のデータを活用した EDS 等の水質異常の検知手法や評価手法は検討されていない。そこで本研究では、USEPA の報告書等から、特に米国におけるイベント検知の取り組みについて調査を行った。

2. 過去データを利用した EDS の評価

USEPA での調査以降、EDS はイスラエルや米国等の実施に数件導入されている事例があるものの、導入件数が大幅に伸びているという報告はない。そこで本研究では、代表的な EDS として知られている Whitewater 社（イスラエル）の BlueBox™ の評価を行うことで、イベント検知の考え方を導入するにあたって課題となっている内容を抽出することとした。水質異常を自動検知するソフトウェアを取り扱うことで得られる知見は、本研究で目的としている『浄水安定度』等の指標を検討する際に役立つと考えられる。

B. 研究方法

1. EDS に関する調査

主として USEPA による調査報告書『Water

Quality Event Detection System Challenge: Methodology and Findings (USEPA, Office of Water, EPA/817/R-13/002, March 2013)』¹⁾、及び Whitewater 社の説明資料に基づいて調査を行った。

2. 過去データを利用した EDS の評価

USEPA による調査で比較的评价の高かった Whitewater 社の BlueBox™ を Windows Azure (Microsoft のサーバー) にインストールし、クラウド環境で評価を行った。ソフトはレンタル契約に基づいて提供された。以下に Windows Azure の仮想マシンのスペックを記す。

サイズ : Large

CPU : 1.6 GHz

メモリ : 7 GB

ストレージ容量 : 1,000 GB

コア数 : 4

C. 研究結果および D. 考察

1. EDS に関する調査

(1) 背景

米国において EDS が評価された背景を以下に記す。

2001 年 9 月 11 日に発生した同時多発テロを受け、USEPA は Homeland Security Presidential Directive 7 (国土安全保障大統領令 7) により、水道インフラの安全保障にかかる取り組みを拡大し¹⁸⁾、The Bioterrorism Act of 2002 (主管 : US Department of Health and Human Services) に基づき、脆弱性評価やテロの脅威に対する対応準備を水道システムに要求した^{9),18)}。

続いて、USEPA は HSPD9 (the White House Office of the Press Secretary, February 2004)¹⁹⁾ により、水道システムにおける汚染リスクに対応するプログラムとして Water Security Initiative^{3),6),16),18)}を開始し(2005)、毒物等に対する早期発見が可能な監視システム等の開発を要求した。なお、Water Security Initiative は、Phase I (DESIGN)、Phase II (DEMONSTRATE)、Phase III (EXPAND) で構成された。

Phase I において、水道システムへの汚染の脅威を緩和するための方法として、上水道配水システムでの連続監視のための Contamination Warning System (CWS) が示され(2005)^{4),8),10),11),12),17)}、その監視システムとしてイベント検知システム (EDS) が開発された (USEPA では、CANARY の名で開発された)^{5),7)}。

Phase II では、the Greater Cincinnati Water Works (GCWW) の配水システムにおいて、

USEPA が開発した EDS (CANARY) を用いてパイロット試験が行われた(2005~2007)^{14),15)}。その成果は、Case Study Application of the CANARY Event Detection Software (USEPA, 2010)⁵⁾等に整理されている。

Phase III では、米国内の 4 水道事業体を実験場に米国内外の市販の EDS を対象として評価方法の開発等を目的とした調査が実施され(2008)、その成果は Water Quality Event Detection System Challenge: Methodology and Findings (USEPA, Office of Water, EPA/817/R-13/002, March 2013)¹⁾としてまとめられた。

(2) EDS の概要

ここでは、USEPA が開発した EDS ソフトである CANARY を例に説明する。

1) EDS の定義

EDS は、水道の配水システムに配置された水質計等で測定されたデータと、これまでに得られた過去の学習データにより得られた予測データとの違いの大きさに基づいて配水システムにおける水質異常を検知するシステムである。

2) 水質異常と水質変化の違い

ドレン排水や通信時のノイズ等を原因とする水質変化と汚染物質による水質異常を区別することは非常に重要である。図 1 は、観測された水質データにおいて、正常な水質変化と異常と判断される変化を示した例である。

水質変化①は、その発生初期の水質変化が小さく、突然ベースラインが変化しており、本事例ではドレン排水等運転操作による変化が原因とされている。また、水質変化②は、その発生期間が短いため SCADA (Supervisory Control And Data Acquisition) 等の通信時のノイズが原因と考えられることから、これら水質異常(イベント)とは認められない。一方、水質変化③は、これらの水質変化のパターンと異なり、水質異常の可能性がある。このようにデータを解析することで、水質異常であるかどうかを自動的に検知するのが EDS の目的の一つである。

3) 真実と予測結果の関係

EDS は水質の予測結果との比較により異常を判断するため、水質計から得られた水質変化を過大(異常でないのに異常と判断)又は過小(異常であるのに異常でないと判断)に評価することがある。この関係を図 2 に示す。False positive は、水質異常では“ない”のに水質異常で“ある”と判断したものである。運転管理者は、得られた情報が真実であるとして行動す

るので、誤った情報に基づく無駄な作業が発生する。False negative は、水質異常が“ある”のに水質異常が“ない”と判断したもので、運転管理者は水質異常を見逃すことになる。ここで、EDS の学習データを収集する際、過去の水質データが水質異常のない領域だけを使用することは、図2の右のカラムだけで予測システムを働かせることとなり、False negative を見逃すことに繋がるので注意が必要である。そのため、水質異常が発生した過去のデータを学習することが重要となるが、実際の配水システムにおける汚染物質による水質異常を検証することは困難であることから、擬似的な汚染物質による水質異常に関するデータの追加が EDS の学習データ収集時に必要となる。

4) 異常検知アルゴリズム

図3は CANARY の異常検知アルゴリズムの概要である。まず、線形フィルタリング²⁰⁾、最近傍多変量検定²¹⁾という手法により、過去のデータから予測値が演算される。次に水質項目毎に予測値と測定値との差分の最大値が求められる。この差分の最大値がユーザーにより設定されるしきい値を超えた場合には、異常値として区分され、次のステップでの水質予測に使用されるデータからは除外される。最後に監視ステーション毎に異常値の数が分析される。所定の時間内の異常値の数は、通常は二項分布に従う。ところが、センサの異常や通信異常によるものは、突発的な挙動を示すため、異常値の分布を解析することにより、真の異常を見極めることができる。

(3) USEPA による EDS の評価

連続自動水質計器は、浄水場内や配水系統の問題に由来した水質変化を捉えることができるものの、これらから得られる情報量は膨大であり、運転管理者が連続して監視することは不可能である。米国では、連続自動水質計器から得られるビッグデータを解析し、自動的に水質異常を判断するシステムが計画され、毒物等に対する早期発見が可能な監視システム等の開発が Water Security Initiative で要求された。そこで USEPA は、2008 年に Water Security Initiative の Phase III として、水質異常を自動的に判定するソフトウェアである EDS について実用化に向けた評価を行った。以下にその内容をまとめる。

1) 調査の目的

USEPA による評価の目的を以下に示す。

①有効な EDS を抽出し、その能力を調査する

こと

②EDS 開発者に膨大な生データを提供し、ソフトウェアの学習と評価の機会を与えること

③各 EDS を最適化するため、開発者による水質データ解析の支援をすること

④Invalid Alert (無効警告) を減らすと、水質異常検知の感度が低下し Valid Alert (有効警告) が減少することになるため、両警告の発生比率を考慮した評価手法を開発すること

2) 参加企業とソフト名

当初は EDS を開発あるいは試作した 16 社 (研究機関を含む) が本調査に参加の意志を表明したが、実績不足等により 11 社が辞退し、最終的に 5 社が調査に参加した。各 EDS のソフト名と会社名を表1に示す。

なお、イベント検知のアルゴリズムは、正常な水質の範囲を予測値として定義し、その予測範囲と現在値の差に基づいて水質異常を判断するのが基本である (図4)。判断に当たっては無効な警告を除外するため、水質の変化速度の解析によるノイズの除去や、水質に加えてポンプ、バルブの状況等の学習データを利用し、複数の水質や機器の状況を多次元で頻度分布解析する技術を取り入れている場合もある。

3) 調査方法

米国内の4水道事業体の計6ヶ所の水質監視点 (Station A~G) において、1年間の水質データを評価した。なお、各 EDS とともに最初の3ヶ月が学習期間とされ、残りの9ヶ月間が試験データとされた。試験期間中には、疑似的な汚染物質による添加実験も行われた。

4) 調査結果

本項では、主要な結果のみ以下に紹介する。

①無効警告の結果

表2に各水質監視点にて出力された無効警告の発生状況を示す。Normal Variability は、運転管理で発生するポンプやバルブなどの変化に伴う通常の水質変化を誤検出したもの、Sensor Problem は、センサ本体の故障や試薬補充ミスによるもの、Communication Problem は、通信異常によるもの、No Clear Cause は原因不明によるものである。

監視点 F の無効警告数が他の監視点に比べて非常に多くなっており、無効警告の頻度は他の監視点が1件/day以下であるのに対し、監視点 F は3件/dayの無効警告を発生させている。その原因のほとんどが Normal variability である。ここで、Normal Variability による警告が有効されると、プラントが正常な状態にあるにもかかわらず、余計な確認作業を生じさせてしま

うので、最も避けたい無効警告である。一方、監視点 B では sensor problem の割合が高くなっているが、本件はセンサの保守管理によって発生頻度は抑制できる。このように、無効警告の発生原因は監視点によって状況が異なるため、EDS の導入にあたっては、連続自動水質計器の設置点に注意が必要である。

表 3 は無効警告の状況を EDS 毎にまとめたものである。EDS に応じて評価した監視点の数が異なるので、単純に比較は出来ないが、監視点 F を評価した CANARY、OptiEDS、Event Monitor の Normal Variability の割合が高くなっている。

②有効警告の結果

表 4 に各 EDS から出力された有効警告の発生状況を示す。Simulated Event は、疑似的な汚染物質を添加した際のイベント検知件数と検知できた割合（1 監視点当り 96 件が真の値）、Baseline Event は、通常の運転管理で偶然に発生した水質異常の検出件数と検知できた割合である。なお、各監視点における Baseline Event は A : 4 件、B : 4 件、D : 3 件、E : 1 件、F : 1 件、G : 0 件であった。Total Events Detected は、Simulated Event と Baseline Event の真の合計値に対するイベント検知の合計値の割合であり、約 50～80%の検出率であった。Total Alerts that were Valid Alerts は無効警告と有効警告の合計に対する有効警告の比であり、ana:tool と BlueBox™ が他のソフトと比較して高い値であった。しかしながら、EDS の総合的な性能を示す項目である Total Event Detected、及び Total Alerts that were Valid Alerts の数値は満足できるものではなく、無効警告を低い発生頻度に抑えた上で、水質異常を確実に検知するという目的を満足する結果ではなかった。

5) その他の検証内容

USEPA は上記の無効警告と有効警告の他、汚染物質の種類と濃度に対するイベント検知感度、汚染物質の添加パターン（濃度変化）による影響調査などを行っている。また、今回の試験では通常の異常のない状態においても、無効警告が多く検出される事例（Normal Variability）があったが、イベント検知の閾値を上昇させることで、無効警告は劇的に減少させることができるとしている。

6) まとめ

USEPA による 5 つの EDS の評価結果を以下にまとめる。

①適正な連続自動水質計器の設置場所を選定すれば、EDS による無効警告は約 1 件/day 以下に抑えることができる。

②汚染物質による模擬検知試験における有効警告は 50～80%の検知率であった。

③無効警告の件数を低減し、有効警告の検知率を上昇させる検討が必要である。

2. 過去データを利用した EDS の評価

(1) BlueBox の概要

実際の浄水場の過去データを用いて、USEPA の実験で比較的精度の高かった Whitewater 社の BlueBox™ を評価した。BlueBox™ の異常検知フローを図 5 に示す。

まず、複数の関連性の高い水質項目をユーザーが選定する。この水質の組合せは Sub Model といい、例えば、濁度、電気伝導率、遊離塩素、全塩素というように選定され、必要に応じて複数の Sub Model が定義される。

次に過去の水質データの学習を行い、Sub Model で選定された水質に関して、多次元頻度分布が解析される。続いて、多次元頻度分布空間における現在値近傍の所定範囲内の頻度を計数する。ここで、当該範囲は各水質の標準偏差により決定される。

次に監視点毎に定義された複数の Sub Model における現在値近傍の頻度を加算し、その結果が Model Density として定義される。例えば、簡単のため Sub Model の水質を 2 項目とした場合、図 6 に示すように、2 次元頻度分布において、現在値①の近傍は頻度が高いため、Model Density は比較的大きい値が維持される。一方、現在値②の近傍にはデータがほとんど存在せず、Model Density は著しく低い値となる。この Model Density があらかじめ設定された所定のしきい値より小さい場合に最終的な異常判定が行われる。

図 7 は Model Density の時間変化の事例である。Model Density の低下は自動的に検知され、しきい値を下回った場合にイベントの内容を定義する仕様になっている。イベントのパターンが同じであれば（Sub Model の変化状況が同様の場合）、それ以降は、自動的に想定されるイベントの内容が表示される。未定義のイベントが発生した場合には、図 7 中に◇のマークが表示される。イベント発生時の各水質の状況はチャートで表示させることが可能である（図 8）。今回の事例では濁度が大きく上昇するとともに、遊離塩素が低下傾向にあり、BrueBox™ では稀な事象として検知されたことが分かる。なお、本事例は明確な濁度上昇があったため、EDS による異常検知は必ずしも必要ではないが、多次元頻度分布解析による EDS は、初任技術者では判定するのが困難な事象について

も、熟年技術者が各水質の変化をトータルで判断するような判定と類似した結論を導き出せる可能性がある。その検証については今後の課題である。

(2) 評価方法

監視ポイントに各種水質計（遊離塩素、全塩素、塩化物、電気伝導率、溶存酸素、ORP、pH、濁度）を設置し、配管中に薬品を混入し、際に水質が変化した前後のデータを学習させた。表5は、注入された薬品と各水質の最大変化量を示している。ここで、本データはEPAから提供され、実際の実験では各薬品ともに3種類の濃度に調整されたものが試水とされた（表5には最大濃度の数値のみ示した）。

次に1種類の薬品を配管中に混入させた際のデータをオフラインで解析し、薬品の同定がBlueBox™で可能か判断した。なお、BlueBox™はWindows Azureにインストールし、学習データ、及び同定試験用データは、リモートでWhitewater社から入手した。

(3) 評価結果

同定試験における薬品混入前後の水質の変化を表6に示す。比較的大きく変化したのは、遊離塩素、全塩素、濁度であり、全塩素の変化が遊離塩素より大きかった。表5の学習データで、前記の3項目が変化し、さらに全塩素の変化が遊離塩素と同等以上であった薬品は、アルジカルブとチオ硫酸ナトリウムである。ここで、BlueBox™は多次元頻度分布解析により、上記薬品混入によるイベントの検知は可能であった。ただし、異常の内容はユーザーが決定し、入力する必要がある（次回からは異常の候補が表示される）。実際のデータはアルジカルブであったのだが、リアルタイムでの汚染物質の特定までは難しいと推察された。

ここで、BlueBox™を試験した際に運用上の課題と考えられた点を以下に記す。

- ① SubModelの作成（相関性の高いパラメータの選択）といった事前エンジニアリング作業は熟練者でないと困難である。
- ② イベント検知後、True・Falseの判断を行い、異常の内容を記録していく作業が発生する。
- ③ 実運用を始める前に、長期間の学習データが必要である（推奨は約6ヶ月）。
- ④ 季節変化によって水質は変化していくので、再学習を行わなければならない。

以上、今回評価したEDSによる異常検知手法は課題があるものの、イベントの検知自体は

可能であり、今後ソフトウェアのアルゴリズムに関して標準化が進み、より簡易的に利用できるようになれば、運転管理の質を高めることが期待できる。

E. 結論

EDSは浄水プロセスにおける水質異常の検知手法として、ISOやUSEPAにより検討されている。しかしながら、その性能は異常の判断を完全に委ねるレベルには到達しておらず、運転管理者の補助的な利用に留まると推察される。さらに、EDSの運用に当たっては、少なくとも数か月に及ぶ学習期間が必要であり、水質異常を検知するためのチューニングは、ICTの技術者の協力を仰がなければならない。したがって、EDSは研究開発のフェーズが今後も続くと予測される。

我が国では、近年のゲリラ降雨による原水水質の急変や熟年技術者不足がさらに進行している状況にあり、連続自動水質計器を利用した水質管理は必須である。そこで、本研究では今後、『原水安全度』、『浄水安定度』等の運転管理に役立つ指標を検討する予定だが、今回評価したEDSの考え方は、より簡便にリスクを把握できる指標を考案する上で、役立つものであると考えられる。

F. 健康危険情報

該当なし。

G. 研究発表

1. 論文発表
該当なし。
2. 学会発表
該当なし。

H. 知的財産権の出願・登録状況（予定も含む。）

1. 特許取得
該当なし。
2. 実用新案登録
該当なし。
3. その他
該当なし。

I. 参考文献

- 1) Water Quality Event Detection System Challenge: Methodology and Findings (USEPA,

- Office of Water, EPA/817/R-13/002, March 2013)
- 2) Water Security Initiative: Guidance for Building Laboratory Capabilities to Respond to drinking Water Contamination (USEPA, Office of Water, EPA/817/R-13/001, March 2013)
 - 3) EPA National Homeland Security Research Center Innovative Water Security Research (USEPA Office of R&D NHSRC, April 2011)
 - 4) Water Security Initiative: Commissioning Security Systems for Drinking Water Utilities (USEPA, Office of Water, EPA/817/R-12/002, February 2012)
 - 5) Case Study Application of the CANARY Event Detection Software (USEPA, 2010)
 - 6) Water Security Initiative Program Overview and Available Products (USEPA Office of Water, EPA/817/F-10/011, September 2010)
 - 7) Water Quality Event Detection Systems for Drinking Water Contamination Warning Systems (USEPA Office of R&D NHSRC, EPA/600/R-010/036, May 2010)
 - 8) User's Manual TEVA-SPOT toolkit VERSION 2.4(USEPA Office of R&D NHSRC, EPA/600/R-08/041B, October 2010)
 - 9) Drinking Water Security and Safety (USFDA, 2009)
 - 10) Sensor Network Design for Drinking Water Contamination Warning Systems (USEPA Office of R&D NHSRC, EPA/600/R-09/0141, 2009)
 - 11) Distribution System Water Quality Monitoring: Sensor Technology Evaluation Methodology and Results (USEPA Office of R&D NHSRC, EPA/600/R-09/076, October 2009)
 - 12) Water Security Initiative: Interim Guidance on Developing an Operational Strategy for Contamination Warning Systems (USEPA Office of Water, EPA/817/R-08/002, 2008)
 - 13) Water Security Initiative: Interim Guidance on Consequence Management Plans for Drinking water Utilities (USEPA Office of Water, EPA/817/R-08/001, October 2008)
 - 14) Water Security Initiative: Cincinnati Pilot Post-Implementation System Status (USEPA Office of Water, EPA/817/R-08/004, September 2008)
 - 15) Water Security Initiative: Interim Guidance on Planning for Contamination Warning System Deployment (USEPA Office of Water, EPA/817/R-07/002, May 2007)
 - 16) Water Security Initiative System Architecture (USEPA Water Security Division, EPA/817/D-05/003, December 2005)
 - 17) Technologies and Techniques for Early Warning Systems to Monitor and Evaluate Drinking Water Quality: A State-of-the-Art Review (USEPA Office of Water, Draft Final, 2005)
 - 18) The Water Security Research and Technical Support action Plan – Progress Report 2005 (USEPA NSHRC and Water Security Division, 2005)
 - 19) Homeland Security Presidential Directive/ HSPD-9 (the White House Office of the Press Secretary, February 2004)
 - 20) Random functions and hydrology, Bras, R. L., and Rodriguez-Iturbe, I. Dover Publications, Mineola, NY. (1993).
 - 21) Multivariate applications for detecting anomalous water quality. Klise, K. A., and McKenna, S. A. Proc., 8th Annual Water Distribution Systems Analysis Symposium, ASCE, Reston, VA. (2006).

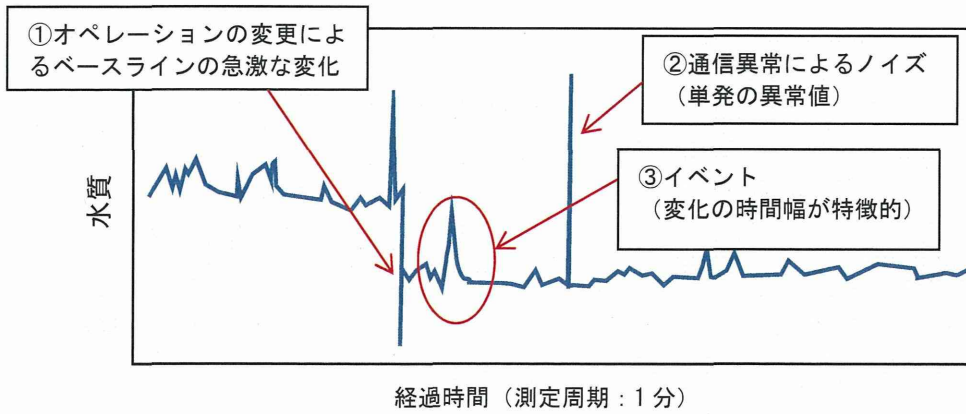


図1 水質異常と水質変化の事例

予測結果	正常	False Negative	Correct Decision
	異常	Correct Decision	False Positive
		異常	正常
		真の状況	

図2 真の状況と予測結果の関係

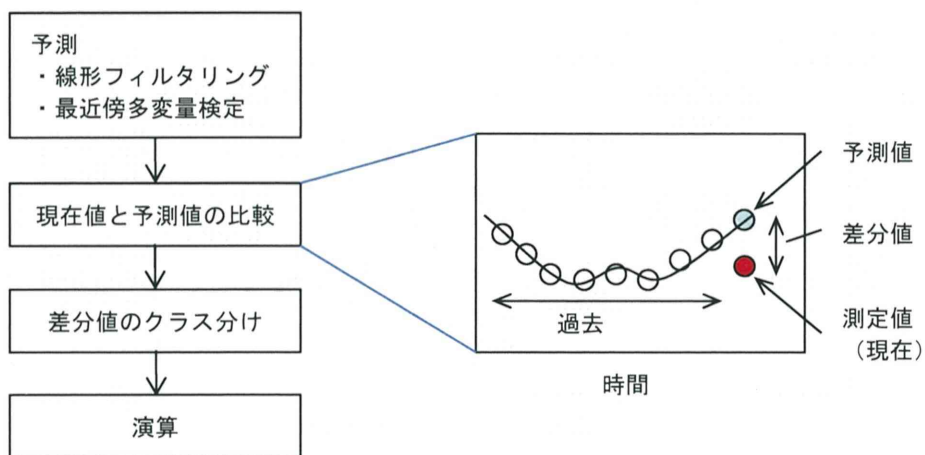


図3 CANARYによる異常検知

表1 評価されたEDS

EDS ソフト名	会社名	調査対象 station
CANARY	Sandia National Laboratory EPA, USA	A,B,D,E,F,G
OptiEDS	Opti water (Elad Salomons), Israel	A,B,D,E,F,G
ana::tool	s::can, Austria	A,B,D,E
BlueBox™	Whitewater Security, Israel	A,B,E
Event Monitor	Hach Company, USA	D,F,G

調査対象のstation数は、全米4水道事業者の6箇所(A,B,D,E,F,G)。

CANARYとOptiEDSは6箇所を対象。

ana::tool は、event data fileの問題により4箇所を対象。

BlueBox™ は、off-line modeでデータの取り込みに時間がかかるため、取り込み間隔の長い調査地点の3箇所を対象。

Event Monitor は、2分間隔でデータを取り込む3箇所を対象。

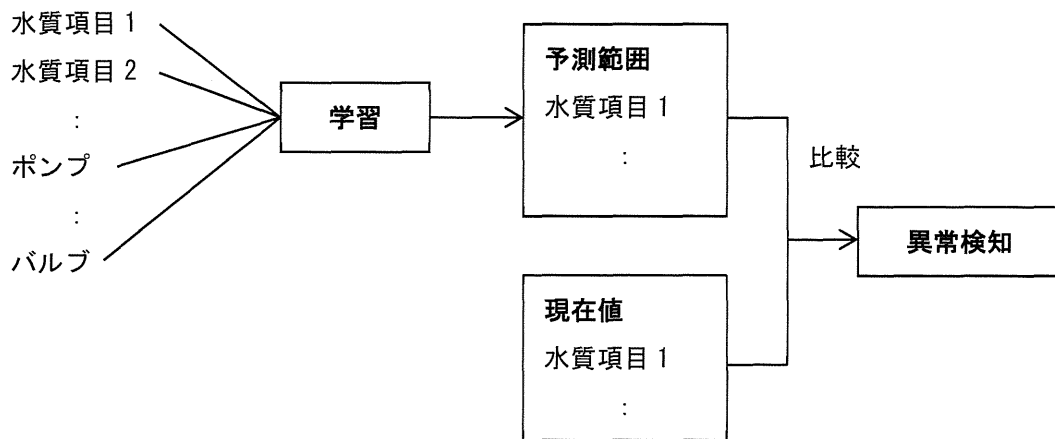


図 4 EDS による異常検知

表 2 各監視点における無効警告の発生状況

Station	Normal Variability		Sensor Problem		Communication Problem		No Clear Cause		Total # Invalid Alerts	Invalid Alert Rate (alerts/day)	EDS
	Total	%	Total	%	Total	%	Total	%			
A	160	50%	74	23%	23	7%	60	19%	317	0.33	CANARY,OptiEDS, ana::tool,BlueBoxTM
B	19	8%	181	74%	4	2%	42	17%	246	0.23	CANARY,OptiEDS, ana::tool,BlueBoxTM
D	376	71%	95	18%	19	4%	43	8%	533	0.52	CANARY,OptiEDS, ana::tool,Event
E	23	12%	89	47%	29	15%	50	26%	191	0.20	CANARY,OptiEDS, ana::tool,BlueBoxTM
F	3108	83%	503	13%	132	4%	3	0%	3746	3.88	CANARY,OptiEDS, Event Monitor
G	320	49%	306	47%	8	1%	20	3%	654	0.86	CANARY,OptiEDS, Event Monitor
Overall	4006	70%	1248	22%	215	4%	218	4%	5687	0.91	
Overall*	898	46%	745	38%	83	4%	215	11%	1941	0.41	excepting station F

※表中の割合は監視点毎の警告の合計を母数として各原因の割合を計算した結果である。

表 3 各 EDS の無効警告の発生状況

EDS	Station	Normal Variability		Sensor Problem		Communication Problem		No Clear Cause		Total # Invalid Alerts	Invalid Alert Rate (alerts/day)
		Total	%	Total	%	Total	%	Total	%		
CANARY	A,B,D,E,F,G	1113	77	245	17	54	4	35	2	1447	0.92
OptiEDS	A,B,D,E,F,G	1279	69	500	27	37	2	46	2	1862	1.19
ana::tool	A,B,D,E	28	24	34	29	20	17	37	31	119	0.12
BlueBoxTM	A,B,E	39	15	111	43	20	8	88	34	258	0.35
Event Monitor	D,F,G	1547	77	358	18	84	4	12	1	2001	2.41
Overall		4006	70	1248	22	215	4	218	4	5687	1.00

表 4 各 EDS の有効警告の発生状況

EDS	Station	Simulated Event		Baseline Event		Total % Events Detected	% Total Alerts that were Valid Alerts
		Total	%	Total	%		
CANARY	A,B,D,E,F,G	406	70	4	31	70	22
OptiEDS	A,B,D,E,F,G	405	70	8	62	70	18
ana:tool	A,B,D,E	178	45	1	8	45	60
BlueBoxTM	A,B,E	236	82	2	22	80	48
Event Monitor	D,F,G	224	78	1	25	77	10
Overall		1449	69	16	31	67	32

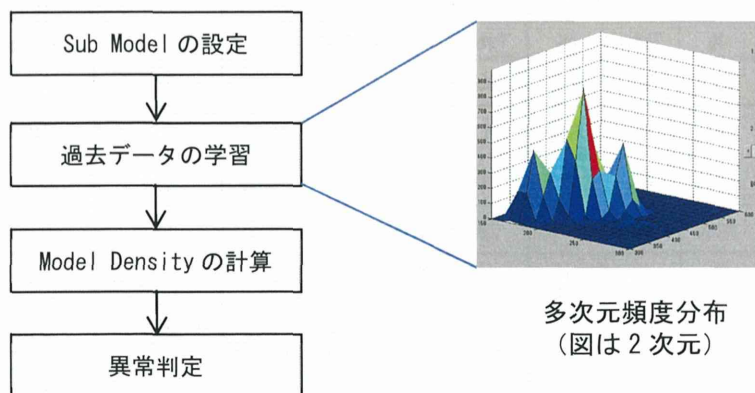


図 5 BlueBox による異常検知

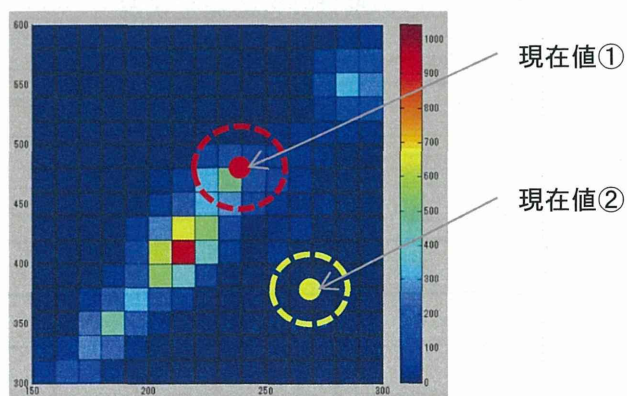


図 6 Model Density の概要

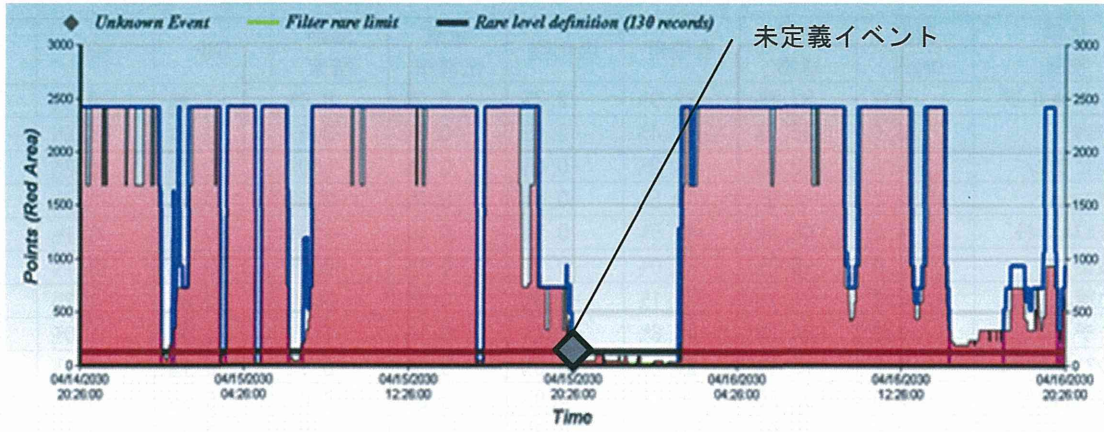


図 7 Model Density の変化の事例

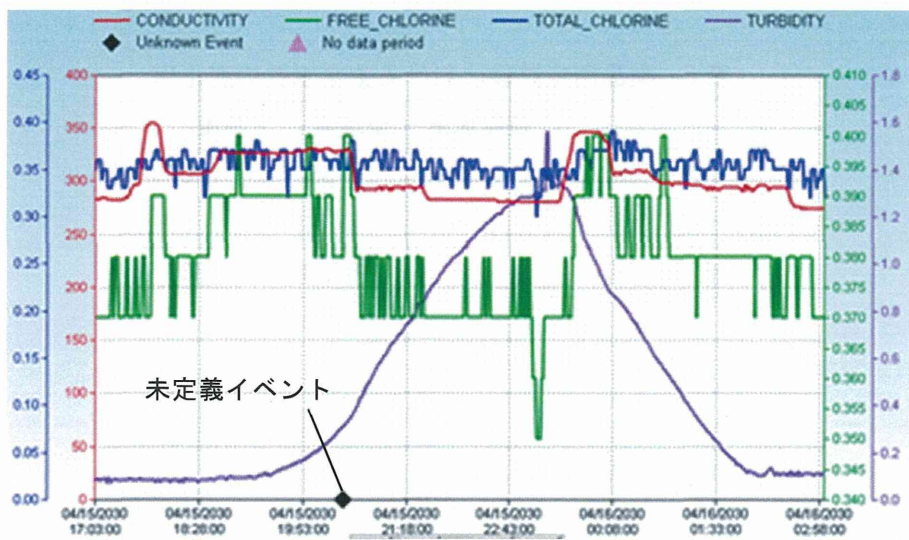


図 8 未定義イベントが発生した期間の水質の変化の事例

表 5 配管中に薬品を注入したときのセンサで測定された水質の変化率

化学物質	濃度 (mg/L)	遊離塩素	全塩素	塩化物	電気伝導率	溶存酸素	ORP	pH	濁度
アルジカルブ	2.2	-87.6%	-82.9%	2.7%	0.0%	0.1%	-1.2%	-0.1%	-100.0%
グリフォート	3.0	-95.2%	-52.4%	2.6%	0.0%	0.6%	-2.6%	-4.6%	-100.0%
コルヒチン	3.6	-5.6%	-4.2%	-0.6%	0.0%	-5.0%	-0.7%	0.2%	111.0%
ジカンバ	2.6	-1.9%	0.5%	-0.6%	0.2%	-0.6%	0.5%	-0.7%	-7.1%
ジメチルスルホキシド	4.0	-46.9%	-42.5%	0.1%	0.1%	-1.3%	-0.3%	0.1%	2.0%
硝酸鉛	1.4	-0.3%	-2.0%	-0.7%	-0.1%	-0.9%	-0.9%	-0.1%	538.4%
塩化第二水銀	2.2	-1.1%	0.1%	-2.3%	0.4%	-8.0%	0.8%	-1.2%	-1.4%
ニコチン	3.8	-84.7%	-47.8%	2.4%	0.1%	-1.5%	-4.8%	1.0%	143.4%
フェリシアニ化カリウム	3.2	-15.1%	-21.2%	26.3%	0.8%	-0.1%	-0.1%	-0.1%	50.0%
チオ硫酸ナトリウム	2.6	-98.8%	-95.1%	4.9%	0.8%	-2.6%	-5.3%	0.1%	646.2%
蔗糖	3.6	-2.6%	-0.1%	-0.7%	0.0%	-3.8%	0.4%	-0.1%	433.3%
コントロール ブランク	0	1.7%	0.9%	3.1%	0.8%	0.8%	1.9%	0.2%	62.1%

表 6 薬品同定試験における主な水質の変化率

	遊離塩素	全塩素	濁度
h°-スライム (mg/L)	0.38	0.35	0.09
h°-ク値 (mg/L)	0.35	0.3	1.56
変化率 (%)	-7.9	-15.3	1633

分担研究報告書 6

三次元蛍光スペクトルを用いた
浄水プロセスでの溶存有機物の特性解析

研究代表者	小坂	浩司
研究協力者	中井	喬彦

厚生労働科学研究費補助金（健康安全・危機管理対策総合研究事業）
「水道における連続監視の最適化および浄水プロセスでの処理性能評価に関する研究」
分担研究報告書

研究課題：三次元蛍光スペクトルを用いた浄水プロセスでの溶存有機物の特性解析

研究代表者 小坂 浩司 国立保健医療科学院生活環境研究部水管理研究領域
研究協力者 中井 喬彦 国立保健医療科学院生活環境研究部水管理研究領域

研究要旨

三次元蛍光スペクトル（EEM）の原水の変動や浄水プロセスの評価への活用に向けて、浄水プロセスでの EEM の変化について検討した。浄水プロセスによって、蛍光強度の明確な減少、特にオゾン処理での減少が認められた。しかし、今回の検討範囲では、励起波長/蛍光波長の組み合わせの違いによる違いについては必ずしも認められなかった。フルボ酸様成分由来とされる励起波長/蛍光波長での蛍光強度と紫外部吸光高度のいずれも、簡易分画による疎水性酸の濃度との関連性も認められた。今後、より多くの原水や、時間変動のデータを取得し、EEM の活用性について検討が必要であると考えられた。

A. 研究目的

環境水中の有機物の特性は、その浄水処理性や消毒副生成物の生成に関係するため、特性を表す指標について、これまで多くの研究者によって検討されてきた。環境水中の有機物は混合物であるため、共通的な性質として疎水性酸、親水性酸等の視点での分類は、代表的な特性解析手法である。最近では、簡易分画法も提案されているが、分画には労力と試料を有する。

より簡単な指標として、紫外部の吸光光度がある。二重結合、芳香族の量の指標として用いられ、疎水性酸との関連性や消毒副生成物生成能との関連性などが検討されている。また、連続水質計としても利用されている。最近では、有機物の指標として、吸光光度より感度が高い蛍光強度、特に三次元蛍光スペクトル（EEM）が注目されている。ある特定の励起波長/蛍光波長による評価では、紫外部吸光光度のような指標として用いられてきたが、EEM ではより多くの情報が得られ、また、視覚的にもその違いが理解しやすい点もあると考えられる。

本研究では、オゾン処理が導入されている2浄水場を対象に、浄水プロセスにおける分画、紫外部吸光光度、EEM の比較を行い、原水の変動や浄水プロセスの評価への活用に向けた予備的検討を行った。

B. 研究方法

1. 試料

2014年8および9月に、それぞれオゾン処理を導入しているAおよびB浄水場の工程水を採取した。A、B浄水場は、いずれも、試料採取日は活性炭処理後のみ、塩素を添加していた。試料のうち、原水、沈殿水は、ガラス繊維ろ紙（GF/F；ワットマン）でろ過後に実験に用いた。

2. 市販カートリッジを用いた NOM の簡易分画

NOM の特性解析の手法の一つに、性質の異なる樹脂を用いた分画がある。画分の数、研究によって異なるが、疎水性酸、親水性酸等に分けられる。樹脂としては、XAD-8等が用いられているが、近年、簡易な方法として、市販カートリッジを用いた方法が提案されている。本研究では、池本¹⁾の方法を基に、AおよびB浄水場の各工程水を対象に、2種の市販カートリッジを用いた分画を行った。このとき、分画前と分画された各試料のDOCから、3画分（疎水性酸、親水性酸、親水性中性+親水性塩基）の濃度を評価した。

以下に操作手順を示す。

(1) 疎水性酸

Bond Elut Plexa カートリッジ（充填剤 500 mg、カラム容量 6 mL；アジレントテクノロジー）をメタノール 20 mL、0.01 N HCl 1000 mL でコンディショニングを行った。続いて、HCl（1：10）で pH を 2 に調製した試料を 25 mL/min で通水した。溶出液の一部を採取して DOC を測定し、この値を DOC₁ とした。分画前の試料の DOC と DOC₁ の差を疎水性酸の DOC とした。

(2) 親水性酸

Strata X-A カートリッジ（充填剤 1 g、カラム容量 20 mL；島津ジーエルシー）をメタノール 20 mL、HCl（1：10）20 mL でコンディショニングを行った。続いて、1 N NaOH で pH を 7 に調製した試料を 25 mL/min で通水した。溶出液の一部を採取して DOC を測定し、この値を DOC₂ とした。DOC₁ と DOC₂ の差を親水性酸の DOC とした。

(3) 親水性中性+親水性塩基

DOC₂ の値を、親水性中性+親水性塩基の DOC とした。

3. EEM による NOM の特性解析

A および B 浄水場の各工程水について、EEM の測定を行った。EEM の測定は、蛍光測定装置 (Aqualog ; 堀場製作所) を用い、励起波長、蛍光波長の範囲は、それぞれ 240~800、244~826 nm とした。

4. その他の分析

試料の DOC の測定は、TOC 計 (TOC-V CPH ; 島津製作所) により行った。

C. 研究結果および D. 考察

図 1 に、A、B 浄水場の浄水プロセスにおける有機物の特性変化を示す。いずれの浄水場でも、処理にしたがって、DOC は減少している。組成を見ると、凝集沈殿まででは、その構成はあまり変わっていないが、オゾン処理によって、疎水性酸の割合が減少した。このため、全親水性画分 (親水性酸、親水性中性+親水性塩基) の割合が増加した。

図 2、3 にそれぞれ A、B 浄水場の浄水プロセスにおける EEM の変化について示す。処理にしたがって、全体的に蛍光強度が減少した。ただし、A 浄水場の活性炭処理水の蛍光強度は、オゾン処理水よりも高かった。いずれの場合も蛍光強度が低い値だったためと考えられるが、蛍光強度は感度がいいため、活性炭からの若干の有機物の溶出を確認したためとも考えられた。

EEM には、成分由来のピークがあることが報告されている。このうち、フルボ酸様成分由来のピーク ((フルボ酸様 (蛍光)) とタンパク質のトリプトファン様成分由来のピーク (トリプトファン様 (蛍光))) を採り上げ、浄水プロセスでの挙動を見た (図 4)。また、水中の芳香族の量として用いられる紫外部吸光光度 (UV260) についても、同様に見た (図 4)。いずれも、処理にしたがって減少し、オゾン処理で大きく減少した。フルボ酸様 (蛍光) と紫外部吸光光度は、類似の指標として用いられることもあるが、本研究でも関連性が認められた ($R^2=7803$) (図 5)。フルボ酸様 (蛍光) とトリプトファン様 (蛍光) は、由来が異なると言われていたため、浄水プロセスでの挙動に違いがある可能性も考えられたが、今回の検討では両者は関連性が認められた ($R^2=0.9577$)。

図 5(a) に、疎水性酸と蛍光強度 (フルボ酸様)、

UV260 の関連性を示す。 R^2 はそれぞれ 7894、6216 と UV260 の方が大きかったが、いずれも疎水性酸と関連性は認められた。

E. 結論

原水の変動や浄水プロセスの評価への活用に向けた予備的検討として、浄水プロセスでの EEM の変化について検討した。

浄水プロセスでの EEM の変化については認められたが、今回の検討範囲では、励起波長/蛍光波長の組み合わせの違いによる挙動の違いについては必ずしも認められなかった。UV260 との比較では、特定の励起波長/蛍光波長での強度と UV260 のいずれも、疎水性酸との関連性も認められたが、 R^2 は若干小さかった。

今後、より多くの原水や、時間変動のデータを取得し、EEM の活用性について検討が必要であると考えられた。

F. 健康危険情報

該当なし。

G. 研究発表

1. 論文発表

該当なし。

2. 学会発表

該当なし。

H. 知的財産権の出願・登録状況 (予定も含む。)

1. 特許取得

該当なし。

2. 実用新案登録

該当なし。

3. その他

該当なし。

I. 参考文献

- 1) 池本沙希, 越後信哉, 伊藤禎彦. 簡易型溶存有機物分画手法を用いた浄水酸化処理の特性評価. 第 22 回日本オゾン協会年次研究講演会講演集, 83~86, 2013.

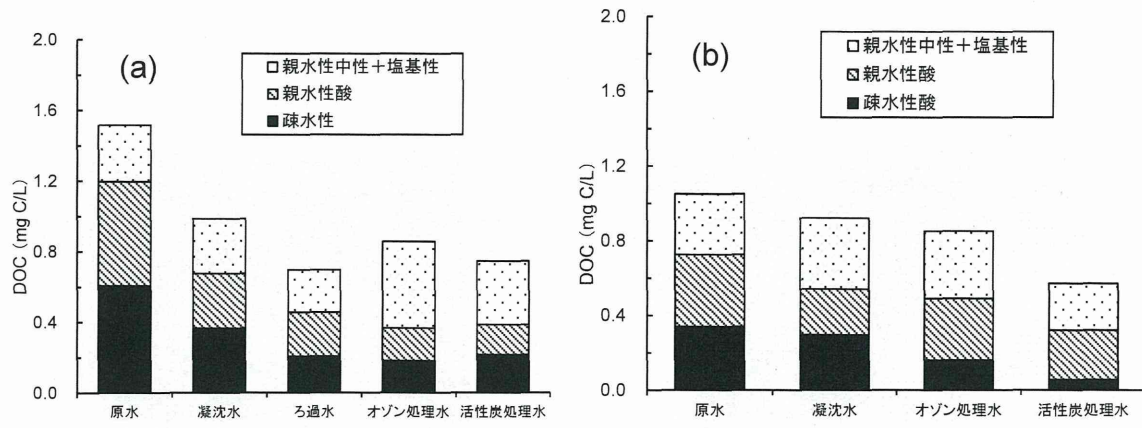


図1 浄水プロセスにおける有機物の特性変化 [(a) A 浄水場、(b) B 浄水場]

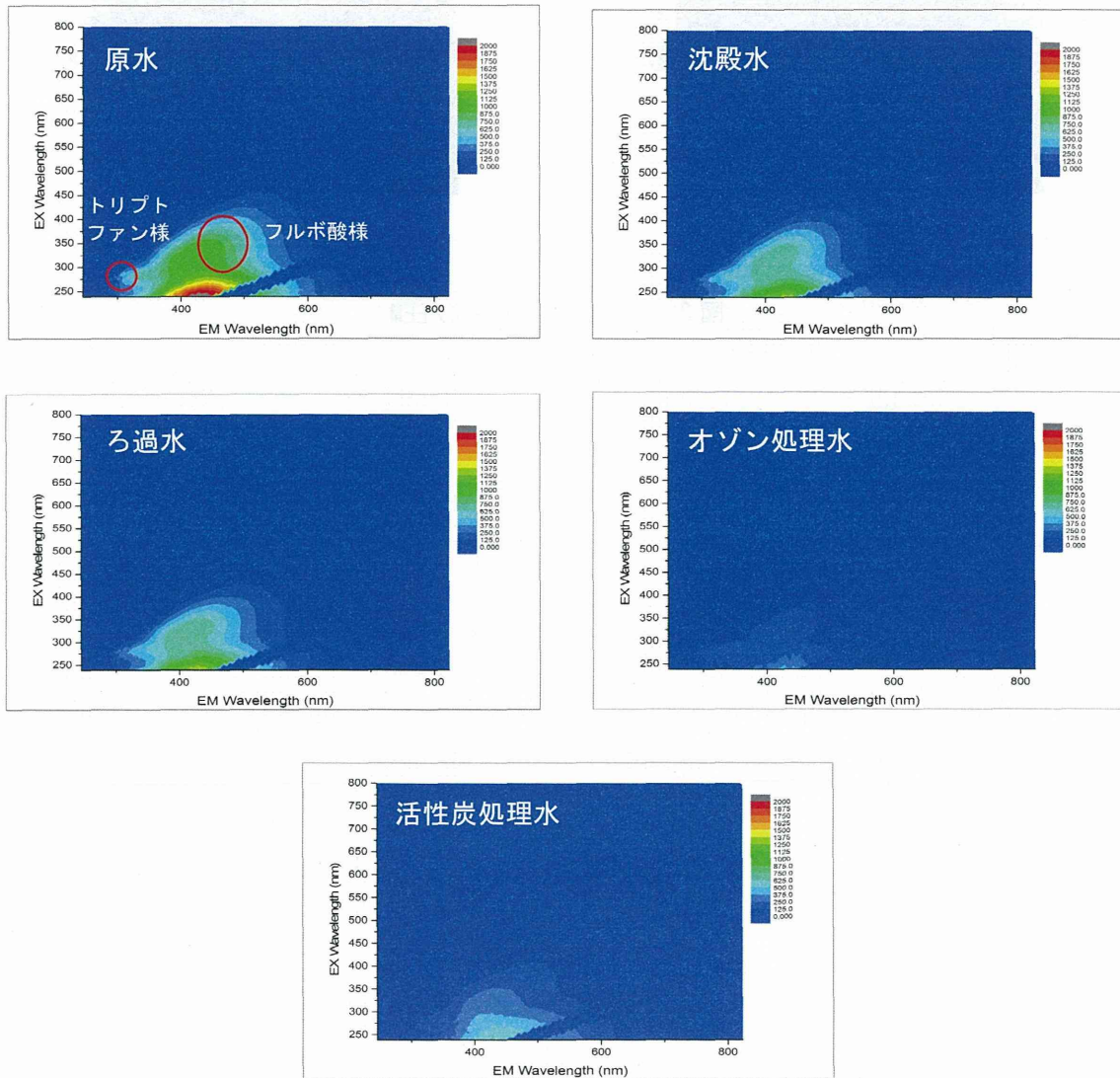


図2 A 浄水場工程水の EEM

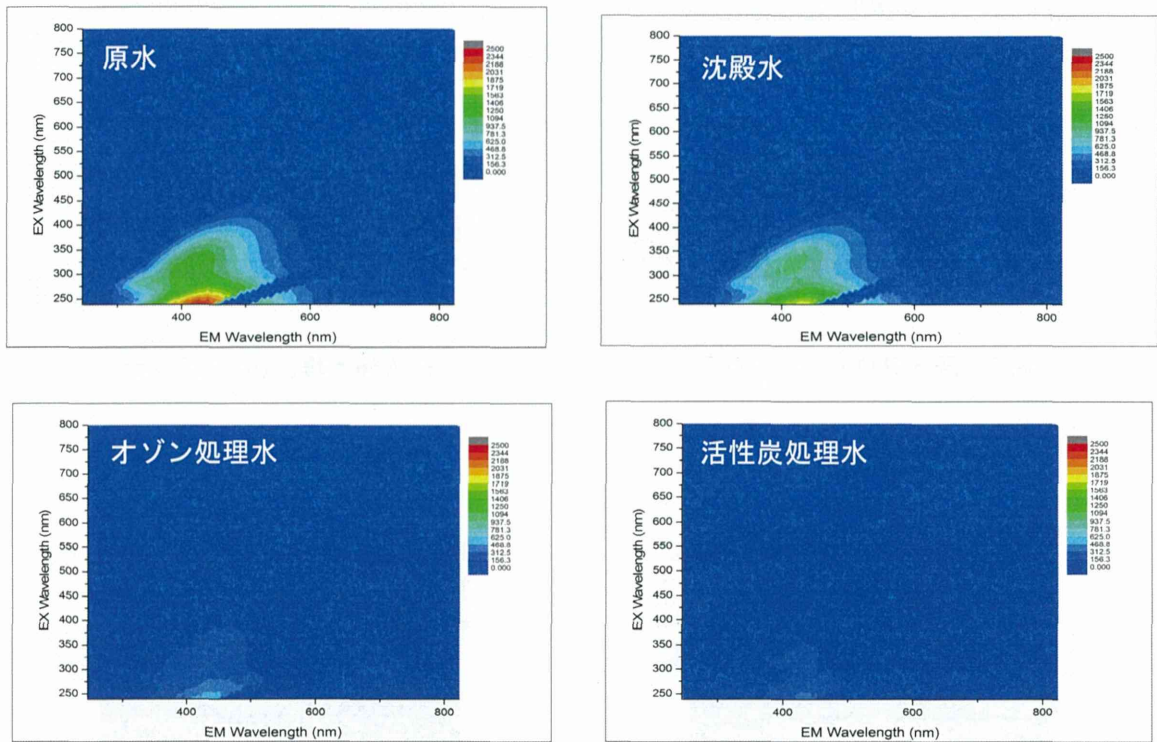


図3 B 浄水場工程水のEEM