

水道事業の流域連携の推進に伴う水供給システムにおける生物障害対策の強化に関する研究

研究代表者 秋葉 道宏 国立保健医療科学院 生活環境研究部 部長

研究要旨

本研究では「水道事業の流域連携の推進に伴う水供給システムにおける生物障害対策の強化」に資する成果を得ることを目指し、流域での障害生物の発生状況やそのメカニズムの把握、流域スケールでの生物障害発生の広域モニタリングシステムの開発、流域連携による水供給システムの生物障害適応性の強化方策の例示に関連する研究を実施した。

①流域での障害生物の発生状況把握とそのメカニズムの解明

流域での障害生物の発生状況把握とその予測を試みるために、まずカビ臭が発生した全国水源での原因調査を実施した。そして全国カビ臭発生水源より単離した藍藻株について、形態情報、遺伝子情報を蓄積し、カビ臭原因物質産生藍藻類ライブラリーを構築した。続いて、藻類発生予測モデルについて統計モデルを用いて検討した結果、新たに構築した SVM を用いた藻類発生予測モデルが、*Microcystis* 属、*Anabaena* 属においてダム湖における 1 週間後の藻類異常発生予測に有用であることが示された。次に、障害生物の発生メカニズムを把握するために、藻類の単離株を用いて、環境要因とカビ臭産生能の関係性について評価した結果、水温による影響は、カビ臭産生種ごとに傾向が異なると共に影響が大きい重要な環境因子であることが示された。

②生物障害発生の広域モニタリングシステムの開発

異臭味問題（カビ臭、生ぐさ臭）、藻類異常発生時の溶存有機物(DOM)組成の変化に着目し、それらをモニタリング可能な手法について検討した。まずカビ臭産生藍藻類に着目し、ジェオスミンおよび 2-MIB 産生藍藻類に対して whole-cell PCR 法ならびに whole-cell qPCR 法を開発し、迅速かつ簡便に検出可能となった。続いて、生ぐさ臭原因物質について、その全体構造として 4 個の異性体を示した。また、浄水場への導入が進んでいる汎用型 GC-MS を用いた同物質の簡便な分析方法を提案した。次に、精密質量分析による溶存有機物(DOM)の特性解析について、試料採水地点、時期、濃縮方法ごとの DOM の精密質量スペクトルの差異について示した。また、藻類等微生物の異常増殖時の DOM の極端な変化を検知できる可能性を指摘した。

③障害生物発生時の浄水処理での適用性強化

障害生物発生時の浄水処理での適用性強化へ向けて、ろ過障害等を引き起こす微生物の浄水場での挙動把握、粉末活性炭によるカビ臭原因物質除去に対する原水水質の影響評価を行った。まず、ろ過障害等を引き起こす微生物に着目し、PMA 処理を適用した 16S rRNA 遺伝子アンプリコンシーケンシングを用いることで、浄水場処理工程水中の生菌の挙動を評価できることが示された。続いて、粉末活性炭による 2-MIB 除去について、その除去率は水源ごと、また同水源でも採水時期で異なることが示された。また除去率低下に寄与する競合物質の一部として、フルボ酸(1 kDa 未満)が示された一方、2-MIB 除去率変動を評価可能な共通の水質指標はなく、水源ごとにカビ臭発生時期に合わせて調査・決定していく必要があることを指摘した。

④流域連携による水供給システムの生物障害適応性の強化方策

国内外での生物障害事例とその対策に関して整理すると共に、カビ臭に対する適用性の強化について検討した。まず、カビ臭発生に関する国内事例を調査した結果、国内におけるカビ臭発生と気温、降水量、日照時間との関連性について示した。続いて、中国での導水事業等による水環境改善に関する報告を収集し、水環境改善に関する様々な水域で実施された多様な手法について取りまとめた。次に、カビ臭に対する適用性の強化について水源での監視の観点から、新たに構築した PCR 系を用いたカビ臭原因物質産生藍藻類の簡易同定法の有用性を示した。また、浄水場での対策強化として、複数種の粉末活性炭の混合注入について検討し、2-MIB の除去効果と活性炭総使用量の視点から、その有用性について指摘した。

研究分担者	
西村修	東北大学大学院工学研究科 教授
柳橋泰生	福岡大学工学部 教授
藤本尚志	東京農業大学応用生物科学部 教授
高梨啓和	鹿児島大学学術研究院 理工学域工学系 准教授
下ヶ橋雅樹	国立保健医療科学院 上席主任研究官
越後信哉	京都大学大学院工学研究科 准教授
清水和哉	筑波大学生命環境系 准教授
浅田安廣	国立保健医療科学院 主任研究官

A. 研究目的

近年、地球温暖化の影響も考えられる水道原水水質悪化の報告例が目立つ。特に生物障害は、水中に生息する生物が引き起こすものであり、気候変化の影響を直接的に受けやすい。一方で、昨今の水道を取り巻く状況としては、水道施設の老朽化や職員の減少、給水収益の悪化の中で公共サービスとしての持続性の確保が課題となっており、その解決に向けた体制づくりが求められている。本研究課題では、このような水道事業の背景を踏まえながら、水道事業の流域連携の推進の視点から水供給システムにおける生物障害対策の強化に資する成果を得ることを最終的な目標とし、以下の3つの検討を実施した。

- ① 流域での障害生物の発生状況やそのメカニズムを把握
- ② 流域スケールでの生物障害発生の広域モニタリングシステムを開発
- ③ 浄水プロセスの適応性を高めながら、①、②と連携して、流域連携による水供給システムの生物障害適応性の強化方策を例示

B. 研究方法

1. 流域での障害生物の発生状況把握とそのメカニズムの解明

流域での障害生物の発生状況把握とその予測を試みるために、平成30年～令和2年度の間にかビ臭が発生した全国水源での原因調査を実施すると共に、ダム湖を対象として蓄積された水質・気象等のデータベースを用いて、藻類発生予測モデルの構築を検討した。また、障害生物の発生メカニズムを把握するために、藻類の単離株を

用いて、環境要因とカビ臭発生能の関係性について評価した。

1.1 全国水道水源でのカビ臭発生調査

カビ臭が発生した水源 21 か所の試料からピペット洗浄法とマイクロプレートを組み合わせた単離培養法により藍藻類を単離した。そして単離した藍藻株、国立環境研究所微生物系統保存施設に保有する藍藻株（以降、NIES株と記載）、水道事業体保有の藍藻株（以降、分譲株と記載）について培養、形態観察、遺伝子解析とカビ臭原因物質検出を行い、ライブラリーとして各種情報を取りまとめた。

1.2 藻類発生予測モデルの構築

奈良県宇陀市に位置する室生ダムを対象とし、藻類バイオマス量との相関の高いクロロフィル a 濃度を目的変数とした基盤となる予測モデルを構築した。予測モデル構築には状態空間モデルを適用し、実際の観測データとの比較をすることでモデルの検証を行った。

続いて、モデルの精度向上を目指し、4つのダム（室生ダム、阿木川ダム、寺内ダム、一庫ダム）を対象とし、機械学習手法のひとつであるサポートベクターマシン（Support Vector Machine: SVM）を用いて藻類異常発生予測を行った。そして、予測日から1週間後に藍藻類が発生するか否かを予測することを試みた。

1.3 藍藻類によるカビ臭発生に及ぼす環境要因の推定

ジェオスミン産生藍藻類として *Dolichospermum smithii* NIES-824、2-MIB産生藍藻類として *Pseudanabaena foetida* NIES-512 を用いて、カビ臭原因物質合成酵素遺伝子の発現量とカビ臭物質産生量に対する異なる環境因子による影響を評価した。さらに、実際に水源より単離したカビ臭産生藍藻株を用いて、培養温度によるカビ臭発生能への影響について評価した。

2. 生物障害発生の広域モニタリングシステムの開発

障害生物の発生による水道事業体への影響は、単一ではなく、流域全体で生じている。そして、その発生をモニタリングして情報を共有し、各事業体で対応する必要がある。ここでは、異臭味問題（カビ臭、生ぐさ臭）、藻類異常発生時の溶存有機物(DOM)組成の変化に着目し、それらをモニタリング可能な手法について検討した。

2.1 カビ臭産生藍藻類の簡易検出技術の開発

個体群数定量に必要なカビ臭物質合成遺伝子を用いた簡易なカビ臭物質産生藍藻類の検出および定量方法の開発を試みた。ここでは Whole Cell PCR 法ならびに Whole Cell qPCR 法に着目し、ジェオスミン産生藍藻類として

Dolichospermum smithii NIES-824, 2-MIB 産生藍藻類として *Pseudanabaena foetida* NIES-512 を用いて、その適用性について検証した。

2.2 生ぐさ臭原因物質の解明と簡易分析手法の開発

黄色鞭毛藻のウログレナ (*Uroglena americana*) による生ぐさ臭の被害が発生している際に採取された水道原水を固相抽出により濃縮・精製し、高分解能 LC-MS および高分解能 GC-O-MS を用いて分析し、原因物質の構造や分析条件について検討した。

2.3 精密分析による水道水原水中溶存有機物の特性解析

全国の水道原水について、Orbitrap 質量分析計による精密質量分析を適用し、水道原水の識別を試み、精密質量分析に基づいた DOM の変化検知のための基礎的知見を収集した。続いて、精密質量分析を行う際の試料濃縮方法（乾燥濃縮、固相抽出）を検討すると共に、差異解析による地点間と採水時期の違いについて評価した。

3. 障害生物発生時の浄水処理での適用性強化

水道水源での障害生物発生時に、浄水場では様々な対応が求められる。ここでは障害生物発生時の浄水処理での適用性強化に資する知見を収集すべく、ろ過障害等を引き起こす微生物の浄水場での挙動把握、粉末活性炭によるカビ臭原因物質除去に対する原水水質の影響評価を行った。

3.1 浄水処理プロセス中での微生物挙動

16S rRNA 遺伝子アンプリコンシーケンシングを用いて、浄水場処理工程水の微生物相を解析した。その際に、PMA 処理を行った系と行わない系の微生物相を比較し、処理工程水中の生菌の挙動について検討した。

3.2 粉末活性炭によるカビ臭原因物質除去に対する原水中有機物の影響

全国 21 か所の水道原水中での 2-メチルイソボルネオール(2-MIB)の粉炭への短時間接触による吸着量を比較した。続いて、フルボ酸、フミン酸、芳香族アミノ酸およびタンパク質、糖類の標準試料を用いて、粉末活性炭による 2-MIB 除去実験を行い、除去率の比較を行った。また、国内 5 箇所の水道原水を樹脂分画して得た腐植画分試料および非腐植画分試料についても同様の試験を実施した。2-MIB 除去に関するモニタリング試験を実施し、2-MIB 除去率の年間変動とその評価指標について調査した。

4. 流域連携による水供給システムの生物障害適応性の強化方策

1.-3.の取り組みにより、障害生物の発生とその制御・対策に関する知見が蓄積されてきた。ここでは、これらの知見に加え、国内外での生物障害

事例とその対策に関して整理すると共に、カビ臭に対する適用性の強化について検討した。

4.1 全国カビ臭発生事例に関する文献調査

全国のカビ臭発生状況（水源、原因物質、産生物質及び水源へ流出した要因等）や傾向を分析するため、平成 5 年から平成 30 年の約 25 年間において、カビ臭の発生報告が確認されている事例を公開されている各種文献やインターネットで収集し、気象等の要因との関係について解析を行った。

4.2 国外における生物障害対策に関する文献調査

文献データベースにおいて「water diversion」をキーワードとして検索し文献を入手し、とりまとめた。また中国学術雑誌全文データベースにおいて、導水事業を示す「調水」で検索し、文献を入手し、翻訳・整理した。

4.3 生物障害適応性の強化方策の提案

カビ臭対策の強化として、水源での監視、浄水場での対応（粉末活性炭処理）について検討した。

カビ臭産生藍藻類の水源監視では、1.で構築したカビ臭原因物質産生藍藻類ライブラリーに基づき、遺伝子検査として PCR による同藍藻類の簡易同定法を検討した。

続いて、カビ臭原因物質除去対策の強化として、複数種の粉末活性炭混合注入に着目し、3 種類の粉末活性炭を組み合わせる 2-MIB 除去実験を行い、混合注入による効果について評価した。

C. 研究結果および D. 考察

1. 流域での障害生物の発生状況把握とそのメカニズムの解明

1.1 全国水道水源でのカビ臭発生調査

全国カビ臭発生水源で単離したカビ臭産生藍藻類は、ジェオスミン産生種として *Aphanizomenon* 属と *Dolichospermum* 属、*Microcoleus* 属、*Geitlerinema* 属、2-MIB 産生種として *Pseudanabaena* 属、*Phormidium* 属、*Microcoleus* 属、*Planktothricoides* 属が確認された。単離・同定したカビ臭産生藍藻株の中には、今まで産生種として確認されていなかった株もあり、本調査によりカビ臭産生藍藻類について情報を新たに蓄積することができた。これらの形態情報についてライブラリーとして形態情報、遺伝子情報を整理・比較した結果、*Aphanizomenon* 属と *Dolichospermum* 属については種の同定にアキネートの存在が重要であることが示された一方、その他の株については形態情報のみでは種同定が難しいケースがあることが明らかとなった。そのため、産生種、非産生種の形態的類似性よりカビ臭原因物質産生種の判定までは、顕微鏡観察のみで判定することは難しいことが示唆された。しかし、カビ臭が発生した場合の産生種を絞り込む判断に対しては、本調査により構築したライブラリ

一は非常に有益であることが示された。

1.2 藻類発生予測モデルの構築

まず、ダム湖内のクロロフィル a 濃度は対数正規分布に従うと仮定し、前 7 日間最高気温平均値、1 か月前全リン濃度 (mg/L)、1 か月前全窒素濃度、および曝気装置運転の有無を説明変数としたモデルを構築した。階層ベイズを用いて構築したモデルで予測精度の向上が確認された。

続いて、予測モデル構築に新たに状態空間モデルを用い、予測精度を評価するために、予測値-測定値プロットによる視覚的評価と決定係数 R^2 、および二乗平均平方根誤差 Root Mean Squared Error (RMSE) による定量的評価を行った。室生ダムの網場と取水口付近の 2 地点で評価を行った結果、取水口付近については、大きく予測を外れた 2 点は例年とは発生時期が異なることを考慮し、これらのデータを除き再計算したところ、予測精度の向上が確認された。

最後に機械学習手法のひとつであるサポートベクターマシン (Support Vector Machine : SVM) を用いて、ダム湖での藍藻類の発生を事前に予測するための統計モデルを構築した。*Microcystis* 属については 4 つのダム全てにおいて非常に高い予測性能が得られた。一方で、*Anabaena* 属の予測では寺内ダムを除く 3 つのダムにおいては高い予測性能が得られ、本検討で構築した藻類発生予測モデルの有用性が示された。

1.3 藍藻類によるカビ臭発生に及ぼす環境要因の推定

藍藻類のカビ臭原因物質産生量、同合成酵素遺伝子の発現量に対する環境因子の影響について評価した結果、窒素濃度と水温による影響が大きく、それぞれの株に最適な窒素濃度と水温が存在する可能性を示した。

またカビ臭発生水源より単離した株を複数株用いて、培養温度と増殖量、カビ臭原因物質産生量を比較した結果、2-MIB 産生株でも種が異なれば傾向は異なり、*Pseudanabaena limnetica* は培養温度による最大増殖量の違いは見られなかった一方で、2-MIB 総濃度の変化は温度の影響が大きいことが明らかとなった。また *Microcoleus autumnalis* については増殖に及ぼす温度の影響が大きく 25°C で最も増殖速度が大きかった。一方 2-MIB 産生については 25°C で低くなる傾向がみられた。

以上、カビ臭産生藍藻類は、各種ごとに環境因子に対するカビ臭産生の影響が異なることが示された。そして、その中でも水温に関する影響は共通しており、実環境中のカビ臭産生藍藻類の増殖・カビ臭産生状況に大きく影響する要因と推察される。

2. 生物障害発生の広域モニタリングシステムの開発

2.1 カビ臭産生藍藻類の簡易検出技術の開発

まず、水源におけるカビ臭物質産生藍藻類のモニタリングのために、カビ臭原因物質合成酵素遺伝子を対象として、形態観察では困難なカビ臭物質産生藍藻類の識別に有効と期待できる whole-cell PCR 法を開発し、その実用性が確認された。続いて、遺伝子量の把握まで可能な whole-cell qPCR 法について検討し、ジェオスミンおよび 2-MIB 産生藍藻類共に迅速かつ簡便に定量可能となった。今後、モバイル qPCR 装置や完全自動 qPCR 装置を組み合わせることで、水源中のカビ臭産生藍藻類をさらに迅速かつ簡便に定量可能であると考えられる。

2.2 生ぐさ臭原因物質の解明と簡易分析手法の開発

高分解能 LC-MS 分析および多変量解析の結果、水道原水とウログレナ培養液に共通する臭気成分を 1 成分発見し、同物質の分子式を $C_{13}H_{20}O_3$ と推定した。続いて、構造解析を試みた結果、まず LC-HRMS による試料水の分析により、生ぐさ臭原因物質はアルデヒド基を有しておらず、2 個のカルボニル基はいずれもケトンであること、そのうち 1 個は末端ケトン構造であることが示唆され、原因物質の全体構造として 4 個の異性体が推定された。

簡易分析法の検討では、GC-O による試料の分析の結果、候補物質以外の有臭成分のカラム保持時間を特定することができ、得られた情報に基づき、装置コストが安価、かつ操作が容易であり広く普及している GC/MS を用いた簡便な化学分析方法を示した。

2.3 精密分析による水道水原水中溶存有機物の特性解析

全国水道原水調査を実施した結果、精密質量スペクトルを因子分析により原水の DOM のグループ分けを行うこと可能であり、特に湖沼の影響を捉えることができることを示した。

続いて、試料濃縮方法について検討した結果、乾燥濃縮は PPL カートリッジを用いた濃縮よりも有機物の回収率が高く、共存する塩分による阻害も少なく、平等かつ高感度で濃縮できる方法であることが示された。一方で、乾燥濃縮は作業時間を要することから、試料量が必要な解析や実験を併用する場合には PPL カートリッジを用いることが選択肢にもなりうると考えられた。

次にこれらの濃縮方法の比較も踏まえた上で、DOM の精密質量スペクトル解析での地点間、季節間の差を検証した。その結果、地点間の差は濃縮方法 (固相抽出、乾燥濃縮) に間で類似した差を見出すことができ、また各地点の特性と矛盾のないものであった。一方で、同一地点での季節間

の変化は、地点間の差よりも総じて小さく、濃縮方法によって異なる傾向が得られる場合があった。

DOMの精密質量スペクトル解析を適用することで、藻類異常発生による有機物組成の変化を検知できる可能性は示された。今後、濃縮方法による差の検討も含め、長期的なモニタリングを継続して行い、精密質量スペクトルに関する情報を蓄積することが望ましいと考えられる。

3. 障害生物発生時の浄水処理での適用性強化

3.1 浄水処理プロセス中での微生物挙動

PMA処理を適用した16S rRNA遺伝子アンプリコンシーケンシングによる微生物相解析手法を構築した。本手法を浄水処理の工程水に適用した結果、原水においてPMA処理の有無による微生物相の違いは、綱レベルでも属レベルでもみられなかったが、沈殿処理水、ろ過水ではPMA処理にともない微生物相の違いが確認された。沈殿処理水における主要な生菌は、*Sphingomonas* 属、*Methylocystis* 属、*Methylobacterium* 属であった。ろ過水における主要な生菌は、*Sphingomonas* 属、*Methylocystis* 属であり、本手法を適用することで浄水処理工程での生菌状態の微生物の挙動把握ならびに微生物種ごとの処理効果の評価に有用であると考えられる。

3.2 粉末活性炭によるカビ臭原因物質除去に対する原水中有機物の影響

超純水及び高水温期・低水温期の水道原水を用いた2-MIB吸着実験による2-MIB除去率に関する全国調査について、全ての水道原水中では超純水と比較して2-MIB除去率が低下することが確認できた。高水温期原水の除去率は26%~55%、低水温期原水の除去率は27%~51%であり、水源により除去率が大きく変化することが明らかとなった。

続いて、標準試料を用いた2-MIB除去実験より、同程度の溶存有機炭素(DOC)濃度ではフルボ酸低分子物質(1 kDa以下)が強い吸着競合作用を示すことが示された。また腐植画分、非腐植画分での2-MIB除去率を評価した結果、試料の特性に関係なく吸着競合が観察され、各画分共に同程度の競合影響があることが確認できた。

これらの実験結果を踏まえ、粉末活性炭処理による2-MIB除去に対する水質の影響評価指標を探索した結果、本調査で用いた原水では競合影響を評価可能な共通指標は存在しないことが示された。また、年間を通して競合影響を評価する水質指標も確認できなかった一方、原水ごとに時期を水温により区切ることで相関性を示す水質指標が一部確認された。

以上、粉末活性炭による2-MIB除去と競合する原水中有機物の一部は明らかになったものの、原

水、時期ごとに競合物質の存在状況が異なることが明らかとなった。そのため、年間ではなくカビ臭が発生する時期について、競合物質による2-MIB除去率への影響を把握可能な指標を水源ごとに選択する必要があることが示された。

4. 流域連携による水供給システムの生物障害適応性の強化方策

4.1 全国カビ臭発生事例に関する文献調査

文献調査の結果(全76件)、カビ臭原因物質としては、2-MIBが45%と最も多く、次にジェオスミンが29%であった。産生物としては、70%が藍藻類によるものであった。発生要因としては、63%が自然発生であったが、人為的要因も約11%あった。発生水域は、河川が42%、ダム湖が39%、池・沼が19%であった。

原因藻類の種ごとにカビ臭発生時期(その前数週間も含む)と気象要因について解析を行ったところ、種ごとにカビ臭を発生させる気温が異なることが示された。この結果は、1.3の実験結果でも示されている。また降水量では平年より少ない場合または短時間で強い降雨があった場合にカビ臭が発生している傾向があった。日照時間では、月間日照時間が平年より長い場合に発生している傾向が確認された。

以上、文献調査により、カビ臭発生と気象要因について整理ができた。その中でも、水温がカビ臭産生種の違いにより異なることがラボ試験も含め、監視項目として重要な因子の一つであることが示された。

4.2 国外における生物障害対策に関する文献調査

湖沼の水質保全対策としては、日中とも、工場排水の規制、下水道の整備、流入河川の浄化対策、浚渫、水生生物による水質浄化対策など総合的な対策が取られているが、中国における特徴的な対策として導水事業があげられ、重点対策湖沼である巢湖でも事業が計画されている。また、中国での水質保全対策に関する研究で、ここ1年余の間に30件を超す報告が行われていた。それらの研究は、様々な水域について各富栄養化、重金属汚染、硫酸塩汚染、再生水利用との比較、ウォーターフットプリント、生態系等であり、研究内容や手法が多様なものとなっていた。国内の対策でもこれらの対策の一部は取り入れられており、今後も引き続き、様々な観点からの湖沼での水質改善対策が望まれる。

4.3 生物障害適応性の強化方策の提案

水源でのカビ臭産生藍藻類の監視方法として、カビ臭原因物質合成酵素遺伝子を対象としたPCRによるカビ臭産生藍藻類の簡易同定法について、カビ臭が発生した46水源試料を用いて検討した。その結果、ほとんどの水源試料で単離した産生株と同じ属の遺伝子のみが検出する結果

となった。そのため、新たに構築した手法により培養よりも早く産生種を属レベルで判定できることが示された。本手法は、試料水を 100 mL 濃縮して行っていることから、顕微鏡で観察できないレベルでもカビ臭産生藍藻類を把握可能であり、また 2.1 で開発した whole-cell qPCR 法等と組み合わせることで、より迅速かつ簡便に水源でのカビ臭産生藍藻類を属レベルで監視可能であるといえる。さらに、カビ臭発生時には、1.1 でカビ臭産生藍藻類の形態情報をまとめたライブラリーを用いた顕微鏡観察と PCR による簡易同定を行うことで、カビ臭発生の原因種を迅速に同定可能となる。

浄水場でのカビ臭原因物質除去対策として、複数種の粉末活性炭混合注入を検討した結果、2-MIB 除去性の高い粉炭を混合利用することで、2-MIB 除去率を向上でき、さらに同等の 2-MIB 除去率の達成に必要な活性炭総使用量を低減できることが示された。3.2 で示したように、原水、あるいは時期ごとに競合物質の影響は変化することから、粉末活性炭の混合使用は粉炭使用量を抑えつつ一時的に除去効果を高める上では非常に有効な手段であると考えられる。

以上、カビ臭発生に対する適応性の強化として、監視方法として本研究で構築した PCR によるカビ臭産生藍藻類の存在実態把握の組み入れ、浄水場での対応として複数種の粉末活性炭の混合注入について、その有用性を示した。

E. 結論

水道事業の流域連携の推進の視点から水供給システムにおける生物障害対策の強化に資する成果を得ることを最終的な目標とし、下記の通り新たな知見を得た。

①流域での障害生物の発生状況把握とそのメカニズムの解明

- 全国カビ臭発生水源より単離した藍藻株等について、形態情報、遺伝子情報を蓄積し、カビ臭原因物質産生藍藻類ライブラリーを構築した。そして、構築したライブラリーはカビ臭が発生した場合の産生種を絞り込む判断に対して有益であることが示された。
- SVM を用いた藻類発生予測モデルをダム湖における 1 週間後の藻類異常発生予測に適用したところ、*Microcystis* 属、*Anabaena* 属に関しては高い予測性能が得られ、本研究で構築したモデルの有用性が示された。
- 環境因子（窒素、水温）がカビ臭物質産生藍藻類の増殖と同物質の産生量に与える影響が大きいことを示した。また、カビ臭発生水源より単離した 2-MIB 産生株について、2-MIB 産生に及ぼす温度の影響が大きいことが明らかとなった。水温は、カビ臭産生種ごとに傾向が異なる

と共に影響が大きい重要な環境因子であることが示された。

②生物障害発生の広域モニタリングシステムの開発

- ジェオスミンおよび 2-MIB 産生藍藻類を迅速かつ簡便に検出可能な手法として、whole-cell PCR 法ならびに whole-cell qPCR 法を開発し、その実用性が確認された。
- 生ぐさ臭原因物質の分子式を $C_{13}H_{20}O_3$ と推定し、その構造として生ぐさ臭原因物質はアルデヒド基を有しておらず、2 個のカルボニル基はいずれもケトンであること、そのうち 1 個は末端ケトン構造であることが示唆され、原因物質の全体構造として 4 個の異性体が示された。また、浄水場への導入が進んでいる汎用型 GC-MS を用いた生ぐさ臭原因物質の簡便な分析方法を提案した。
- DOM の精密質量分析により、微生物の異常増殖等 DOM の極端な変化を検知できる可能性を指摘した。また、試料採水地点、時期、濃縮方法ごとの DOM の精密質量スペクトルの差異が明らかとなった。

③障害生物発生時の浄水処理での適用性強化

- PMA 処理を適用した 16S rRNA 遺伝子アンプリコンシーケンシングを用いて、浄水場処理工程水の微生物相を解析した結果、沈澱処理水、ろ過水における主要な生菌を抽出することに成功した。以上の結果から PMA-PCR 法により浄水場処理工程水中の生菌の挙動を評価できることが示唆された。
- 粉末活性炭による 2-MIB 除去について、その除去率は水源ごと、また同水源でも季節ごとに異なることが示された。また除去率低下に寄与する競合物質の一部として、フルボ酸(1 kDa 未満)が示された一方、2-MIB 除去率変動を評価可能な水質指標は、水源ごとにカビ臭発生時期に合わせて調査・決定していく必要があることが指摘された。

④流域連携による水供給システムの生物障害適応性の強化方策

- 全 76 件のカビ臭発生事例調査結果から国内におけるカビ臭発生と気温、降水量、日照時間との関連性について示した。
- 中国での導水事業等による水環境改善に関する報告として、特にここ 1 年余の間で 30 件を超す研究報告が行われており、それらの研究は、様々な水域について多様な手法を用いて実施されていた。
- 新たに構築した PCR 系を用いたカビ臭原因物質産生藍藻類の簡易同定法を適用することで、水源試料でのカビ臭産生藍藻類を簡易同定可能であることを示した。また、whole-cell PCR 法ならびに whole-cell qPCR 法と組み合わせるこ

とで、迅速かつ簡便にカビ臭発生藍藻類を監視でき、かつ顕微鏡観察と組み合わせることで早期にカビ臭発生藍藻類の同定が可能であることから、本手法の監視手法としての有用性について指摘した。

- 複数種の粉末活性炭の混合注入による 2-MIB の除去効果について、2-MIB 除去性の高い粉炭を少量だけ混合使用することで 2-MIB 除去率を向上でき、活性炭総使用量を低減できることが示され、その有用性について指摘した。

F. 健康危険情報

該当なし

G. 研究発表

1. 論文発表

井上拓也，浅田安廣，田代新，船橋康史，岡本朗，下ヶ橋雅樹，秋葉道宏. 全国の水道原水中における 2-メチルイソボルネオール の粉末活性炭への非平衡吸着. 水道協会雑誌. 89(6), 2-10, 2020.

江崎敦，浅田安廣，藤本尚志，早坂泰彦，鈴木孝俊，山田晃平，秋葉道宏. 形態学的特徴と遺伝子解析に基づく全国水道水源でのカビ臭原因物質発生藍藻類の存在調査. 水道協会雑誌. 90(5), 2-12, 2021.

Shinfuku Y, Takanashi H, Nakajima T, Ogura A, Kitamura H, Akiba M. Exploration of an Odorous Aldehydes and Ketones Produced by *Uroglena americana* Using High Resolution Mass Spectrometry, GC-Olfactometry, and Multivariate Analysis. *Chemosphere*, 257, 127174, 2020.

Shinfuku Y, Nakamura T, Takanashi H, Nakajima, Ueda T, Akiba M. A Method to Purify a DNPH-derivatized Sample Using Solid Phase Extraction. *Environmental Science*, 33(5), 70-78, 2020.

Shen Q, Shimizu K, Miao H, Tsukino S, Utsumi M, Lei Z, Zhang Z, Nishimura O, Asada Y, Fujimoto N, Takanashi H, Akiba M. Effects of elevated nitrogen on the growth and geosmin productivity of *Dolichospermum smithii*. *Environmental Science and Pollution Research*, 28, 177-184, 2021.

2. 学会発表

八島将太，西村修，今本博臣，佐野大輔. 半閉鎖性水域における藻類発生を予測する統計モデルの構築. 土木学会東北支部・技術研究発表会（平成 30 年度），2019.3，仙台市.

浅田安廣，藤本尚志，高橋可穂美，井上拓也，

秋葉道宏. カビ臭発生藍藻類のライブラリ作成に向けた試み-琵琶湖流域に生息する藍藻類の調査-. 第 53 回日本水環境学会年会，2019.3，甲府市.

井上拓也，浅田安廣，田代新，船橋康史，岡本朗，秋葉道宏. 水道原水水質の違いが粉末活性炭によるカビ臭原因物質 2-MIB 吸着に与える影響. 第 53 回日本水環境学会年会，2019.3，甲府市.

新福優太，高梨啓和，中島常憲，秋葉道宏. LC-HRMS および GC-O-MS による水道水生ぐさ臭原因物質の探索. 第 53 回日本水環境学会年会，2019.3，甲府市.

柳橋泰生，楊露. 中国におけるアオコ等の水質汚濁に関する文献調査. 第 53 回日本水環境学会年会，2019.3，甲府市.

渡邊英梨香，清水瑠花，藤本尚志，蔣紅与，大西章博，志波優，藤瀬大輝，秋葉道宏. PMA 処理を用いた浄水場処理工程水の微生物相解析. 第 53 回日本水環境学会年会，2019.3，甲府市.

新福優太，高梨啓和，中島常憲，秋葉道宏. LC-HRMS および GC-O-HRMS と多変量解析の組み合わせによる水道水生ぐさ臭原因物質の探索. 第 67 回質量分析総合討論会，2019.5，つくば市.

Yuta Shinfuku, Hirokazu Takanashi, Tsunenori Nakajima, Michihiro Akiba, Exploration of a causative compound of fishy-smell in raw water for taps by combining a LC-HRMS, a GC-O-HRMS, and multivariate analyses. 第 28 回環境化学討論会，2019.6，さいたま市.

楊露，柳橋泰生. 日本および中国における水源汚染の状況および対策の比較. 第 41 回京都大学環境衛生工学研究会シンポジウム，2019.7，京都市.

新福優太，高梨啓和，中島常憲，秋葉道宏. LC-HRMS と多変量解析の組み合わせによる水道水中の生ぐさ臭原因物質の探索および構造推定. 第 22 回日本水環境学会シンポジウム，2019.9，札幌市.

新福優太，高梨啓和，中島常憲，秋葉道宏. 多変量解析と LC-HRMS および GC-O-HRMS の組み合わせによる水道水中の生ぐさ臭原因物質の探索. 環境科学会 2019 年会，2019.9，名古屋市.

柳橋泰生，楊露. 流域間連携政策としての導水事業の水質改善効果と影響，環境経済・政策学会 2019 年大会，2019.9，福島市.

八島将太，西村修，今本博臣，三浦尚之，秋葉道宏，佐野大輔. 状態空間モデルを用いたダム湖におけるクロロフィル a 濃度予測モデルの構築. 令和元年度全国会議（水道研究発表

- 会), 2019.11, 函館市.
- 浅田安廣, 藤本尚志, 井上拓也, 秋葉道宏. 遺伝子解析に基づいた水環境中のカビ臭原因物質産生藍藻類同定の試み. 令和元年度全国会議(水道研究発表会), 2019.11, 函館市.
- 井上拓也, 浅田安廣, 田代新, 船橋康史, 岡本朗, 下ヶ橋雅樹, 秋葉道宏. 2-メチルイソボルネオール粉末活性炭への非平衡吸着における水道原水中有機物の影響- 全国の水道原水を用いた検討-. 令和元年度全国会議(水道研究発表会), 2019.11, 函館市.
- 館祥之, 西村修, 坂巻隆史, 野村宗弘, 秋葉道宏. ピコ植物プランクトンの凝集処理におけるフロック特性. 日本水処理生物学会第56回大会, 2019.11, 金沢市.
- Hanchen Miao, Ji Zhang, Yasuhiro Asada, Motoo Utsumi, Zhongfang Lei, Hirokazu Takanashi, Naoshi Fujimoto, Michihiro Akiba, Zhenya Zhang, Kazuya Shimizu. Monitoring of geosmin-producing *Anabaena* by whole cell PCR. 日本水処理生物学会第56回大会, 2019.11, 金沢市.
- 八島将太, 西村修, 今本博臣, 三浦尚之, 秋葉道宏, 佐野大輔. ダム湖における藻類異常発生予測モデルの構築. 第54回日本水環境学会年会, 2020.3, 誌上発表.
- 館祥之, Khodseewong Sirapat, 野村宗弘, 坂巻隆史, 西村修, 秋葉道宏. ピコ植物プランクトンの除去における二段凝集の効果. 第54回日本水環境学会年会, 2020.3, 誌上発表.
- Sirapat Khodseewong, Yoshiyuki Yakata, Munehiro Nomura, Takashi Sakamaki, Michihiro Akiba, Osamu Nishimura. The Effect of Pre-chlorination on Coagulation of Picophytoplankton. 第54回日本水環境学会年会, 2020.3, 誌上発表.
- 江崎敦, 浅田安廣, 藤本尚志, 田中美帆, 早坂泰彦, 鈴木孝俊, 山田晃平, 秋葉道宏. 全国水道水源を対象としたカビ臭原因物質産生藍藻類の同定. 第54回日本水環境学会年会, 2020.3, 誌上発表.
- 野口暁生, 横井貴大, 船岡英彰, 小倉明生, 浅田安廣. 琵琶湖で発生した *Anabaena* 属の形態的特徴による種分類及びカビ臭産生能評価の試み. 第54回日本水環境学会年会, 2020.3, 誌上発表.
- 神里良太, 浅田安廣, 高篠鮎人, 浦上正, 茂田裕充, 小松一弘, 秋葉道宏. 粉末活性炭処理での吸着競合影響-2-MIB 除去低下要因の推定-. 第54回日本水環境学会年会, 2020.3, 誌上発表.
- 新福優太, 高梨啓和, 中島常憲, 秋葉道宏. 多変量解析, LC-HRMS, GC-O および GC-HRMS による水道水生ぐさ臭原因物質の探索. 第54回日本水環境学会年会, 2020.3, 誌上発表.
- Ji Zhang, Hanchen Miao, Yasuhiro Asada, Zhongfang Lei, Hirokazu Takanashi, Satoshi Ichise, Naoshi Fujimoto, Michihiro Akiba, Zhenya Zhang, Kazuya Shimizu. Rapid Detection and Quantification of Musty Odor Production by Cyanobacteria. 第54回日本水環境学会年会, 2020.3, 誌上発表.
- 新福優太, 高梨啓和, 中島常憲, 秋葉道宏. LC-HRMS, GC-O, GC-HRMS, 多変量解析の組み合わせによる水道水生ぐさ臭原因物質の探索, 第68回質量分析総合討論会, 2020.5, オンライン.
- 柳橋泰生, 周張弛, 白亦, 楊露. 中国における導水による水環境保全対策, 第42回京都大学環境衛生工学研究会シンポジウム, 2020.7, オンライン.
- 山下優輝, 新福優太, 高梨啓和, 中島常憲, 秋葉道宏. ガスクロマトグラフ-高分解能質量分析計を用いた水道水中の生ぐさ臭原因物質の構造推定. 環境科学会2020年会, 2020.9, オンライン.
- 松本恭太, 浅田安廣, 江崎敦, 藤本尚志, 秋葉道宏. PCR法によるカビ臭原因物質産生 *Phormidium autumnale* の遺伝子検出に関する検討. 令和2年度水道研究発表会, 2020.11, 誌上発表.
- 江崎敦, 浅田安廣, 藤本尚志, 秋葉道宏. 遺伝子解析に基づくカビ臭原因物質藍藻類の同定. 令和2年度水道研究発表会, 2020.11, 誌上発表.
- 高篠鮎人, 浅田安廣, 神里良太, 茂田裕充, 浦上正, 秋葉道宏. 粉末活性炭処理における2-メチルイソボルネオールとの競合吸着物質の推定. 令和2年度水道研究発表会, 2020.11, 誌上発表.
- 柳橋泰生, 白亦, 周張弛. 環境試料の臭気指数測定方法におけるベルヌーイ試行明白率の試算, 第33回におい・かおり環境学会, 2020.12, オンライン.
- 八島将太, 門屋俊祐, 西村修, 今本博臣, 三浦尚之, 秋葉道宏, 佐野大輔. 浄水障害を引き起こす藻類の水源域における異常発生予測モデルの開発, 第55回日本水環境学会年会, 2021.3, オンライン.
- Sirapat Khodseewong, Gissela Pascual, Munehiro Nomura, Takashi Sakamaki, Osamu Nishimura, Michihiro Akiba. The Mechanism of Aluminium Floccs Formation in Coagulation Process. 第55回日本水環境学会年会, 2021.3, オンライン.
- 柳橋泰生, 周張弛. 中国における導水事業による水環境改善に関する研究の状況, 第55回日本水環境学会年会, 2021.3, オンライン.
- 松本恭太, 浅田安廣, 江崎敦, 藤本尚志, 秋葉

道宏. カビ臭原因藍藻類の簡易同定に向けた合成酵素遺伝子検出の有用性評価. 第 55 回日本水環境学会年会, 2021.3, オンライン.

早坂俊一, 浅田安廣, 三好太郎, 秋葉道宏. カビ臭除去対応時における複数種の粉末活性炭混合注入を通じた使用量低減効果. 第 55 回日本水環境学会年会, 2021.3, オンライン.

山下優輝, 新福優太, 高梨啓和, 中島常憲, 秋葉道宏, 生ぐさ臭を呈する水道原水から発見されたカルボニル化合物の構造推定, 第 55 回日本水環境学会年会, 2021.3, オンライン.

新福優太, 高梨啓和, 中島常憲, 秋葉道宏, ガスクロマトグラフ高分解能質量分析計による水道水生ぐさ臭原因物質の構造推定, 第 55 回日本水環境学会年会, 2021.3, オンライン.

Yuta Shinfuku, Hirokazu Takanashi, Tsunenori Nakajima, Michihiro Akiba. Exploration of a Causative Substance of Fishy-Smell in Raw Water for Taps by Combining a LC-HRMS, a GC-O-HRMS, and Multivariate Analyses. Water and Environment Technology Conference 2019, 2019.7, Osaka, Japan.

Yuta Shinfuku, Hirokazu Takanashi, Tsunenori Nakajima, Michihiro Akiba. Exploration of an odorous metabolite of urogena americana using high resolution mass spectrometry, GC-Olfactometry, and multivariate analyses, Water and Environment Technology Conference 2019, 2019.7, Osaka, Japan.

Yuta Shinfuku, Hirokazu Takanashi, Tsunenori Nakajima, Michihiro Akiba, An Exploration of the Causative Substance of Fishy Smell in Raw Water for Taps by Combining High Resolution Mass Spectrometry and Multivariate Analysis, The 23rd Symposium of Japan Society on Water Environment Online, 2020.9, online.

Yuta Shinfuku, Hirokazu Takanashi, Tsunenori Nakajima, Michihiro Akiba, An Exploration of the Causative Substance of Fishy Smell in Raw Water for Taps by Combining High Resolution Mass Spectrometry with Multivariate Analysis, Water and Environment Technology Conference 2020 Online, 2020.11, online.

Qingyue Shen, Kazuya Shimizu, Hanchen Miao, Shinya Tsukino, Motoo Utsumi, Zhongfang Lei, Zhenya Zhang, Osamu Nishimura, Yasuhiro Asada, Naoshi Fujimoto, Hirokazu Takanashi, Michihiro Akiba, Effect of TN/TP ratio on growth and geosmin productive activity in cyanobacteria, The 4th International Conference on Resent Advancements in Sustainable Management of Livestock Waste and Rural Environment (Livestock Waste 2020), 2021.3, Tsukuba, Japan.

Hanchen Miao, Qingyue Shen, Satoshi Ichise, Marie Shimada, Naoshi Fujimoto, Yasuhiro Asada, Hirokazu Takanashi, Michihiro Akiba, Zhongfang Lei, Zhenya Zhang, Kazuya Shimizu, Monitoring

of geosmin-producing cyanobacteria by whole-cell PCR, The 4th International Conference on Resent Advancements in Sustainable Management of Livestock Waste and Rural Environment (Livestock Waste 2020), 2021.3, Tsukuba, Japan.

Ji Zhang, Qingyue Shen, Satoshi Ichise, Marie Shimada, Naoshi Fujimoto, Yasuhiro Asada, Hirokazu Takanashi, Michihiro Akiba, Zhongfang Lei, Zhenya Zhang, Kazuya Shimizu, Rapid detection for 2-MIB-producing cyanobacteria, The 4th International Conference on Resent Advancements in Sustainable Management of Livestock Waste and Rural Environment (Livestock Waste 2020), 2021.3, Tsukuba, Japan.

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. 実用新登録

該当なし

3. その他

該当なし

I. その他 (受賞等)

新福優太, 公益社団法人日本水環境学会博士研究奨励賞 (オルガノ賞), An Exploration of the Causative Substance of Fishy Smell in Raw Water for Taps by Combining High Resolution Mass Spectrometry and Multivariate Analysis, 2020.9, 公益社団法人日本水環境学会.

山下優輝, 2020 年会優秀発表賞 (富士電機賞), ガスクロマトグラフ-高分解能質量分析計を用いた水道水中の生ぐさ臭原因物質の構造推定, 2020.9, 公益社団法人環境科学会.

山下優輝, 第 55 回日本水環境学会年会学生ポスター発表特別賞 (ライオン特別賞), 生ぐさ臭を呈する水道原水から発見されたカルボニル化合物の構造推定, 2021.3, 公益社団法人日本水環境学会.

Shen Q ら, ポスタープレゼンテーション賞, Effect of TN/TP ratio on growth and geosmin productive activity in cyanobacteria, The 4th International Conference on Resent Advancements in Sustainable Management of Livestock Waste and Rural Environment, 2021.3.

Miao H ら, ポスタープレゼンテーション賞, Monitoring of geosmin-producing cyanobacteria by whole-cell PCR, The 4th International Conference on Resent Advancements in Sustainable Management of Livestock Waste and Rural Environment, 2021.3.

Zhang J ら, ポスタープレゼンテーション賞, Rapid detection for 2-MIB-producing

cyanobacteria, The 4th International Conference on Recent Advancements in Sustainable Management of Livestock Waste and Rural Environment, 2021.3.