

## II. 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）

「水道の基盤強化に資する技術の水道システムへの実装に向けた研究」

分担研究報告書

### 水質管理の強化に係る既存・将来技術の文献調査と課題抽出（文献調査）

研究分担者 島崎 大 国立保健医療科学院 上席主任研究官

#### 研究要旨

海外の学術文献検索により、水質管理の強化に係る既存および将来的な要素技術に係る知見を収集し、近年の開発動向や課題点を抽出、考察を行った。病原体を含む微生物・ウイルスや、特定の溶存有機物群を対象に、迅速検出や連続測定を可能とする測定法の技術開発と適用が進展していた。検出の特異性の確保や検出感度の向上、ならびに、コストの適正化や維持管理の簡易化が課題として挙げられた。オンライン型水質センサーの技術開発は、①先端化学材料を用いた新規センサー開発、②既存センサーを組み合わせた新規対象物質への適用という方向に大別された。深層学習やビッグデータを用いた水質予測手法の開発では、水質測定データセットの特性により、特定のモデルにて予測精度が低下する場合があった。測定現場にて利用可能な資源やニーズ、得られた測定データの期間や項目等に応じて、適切な水質センサーや予測モデルを選択し、活用することが必要であると考えられた。

#### A. 研究目的

水質（代替）指標項目の連続測定や、小型水質センサー等の導入、深層学習等による早期水質予測といった先端的な開発技術を水道水源から給水末端に至る水質管理に活用することで、水道事業者の限られた技術系職員数であっても効果的かつ効率的な水質管理が可能となり、さらには従来よりも高度な水質管理が可能になると考えられる。本年度は、海外の文献調査に基づいて、①連続測定可能な（代替）水質指標、②水質変動の早期予測、③水質センサーの開発とデータ利活用に関する最新動向および課題点を抽出し、明らかにすることを目的とした。

#### B. 研究方法

国立保健医療科学院内にて利用可能な学術文献データベース（Web of Science Core Collection, JDream III, CiNii Articles, J-STAGE）を用い、下記キーワードにて文献検索を実施した。

○共通キーワード：

drinking, water, quality, management, data

○（代替）水質指標、（連続）測定：

(alternative) indicator,

(continuous) monitoring

○水質変動、（早期）予測

{variation | trend}, (early) prediction

○水質センサー、開発

{online | remote} sensor, development

ヒットした 26 文献のうち、要旨や結論等

の内容から判断して、当研究の趣旨に該当しない 13 文献を除外し、13 文献を対象とした。

### C. 調査結果

#### (1) 微生物に関する水質指標ならびに迅速モニタリング技術

従来、水質指標として用いられてきた各種微生物は、糞便汚染や細菌現存量の指標等として長年データが蓄積されており意義があるものの、耐塩素性の細菌群や、各種の水系感染性ウイルス等に対する指標性について課題がある。Saxena らは、水系の健康リスク管理における指標微生物の役割を考慮し、従来の指標微生物と代替指標微生物等の有用な点と課題点、ならびに、水環境中の病原体や指標微生物等のモニタリングのために提案されている、従来の培養法と分子生物学的手法等について、最新の情報レビューを行った 1)。代替指標として、嫌気性芽胞菌、ビフィドバクテリウム属、バクテロイデス、大腸菌ファージ、従属栄養細菌数、糞便性ステロールについて概説した。特に、 $\beta$ -グルクロニダーゼ活性測定法に基づいた大腸菌のオンライン測定は、すでに商品化されているものの、検出感度が優れない点を指摘した。

Bonadonna らは、水中の微生物やウイルスを対象とした迅速検出手法についてレビューを行った 2)。特に近年、分子生物学的手法に基づく方法（定性 PCR・定量 PCR）の発展が著しく、とりわけ次世代シーケンシング (NGS: Next generation sequencing) 技術は、環境微生物の検出、同定、相対定量を網羅的に実施できる貴重なツールとして有望視されており、水環境モニタリングの分野

にも急速に展開されている。また、フローサイトメトリー法 (FCM: Flow cytometry) や免疫磁気分離 (IMS: Immunomagnetic separation) 法などの従来の手法でも、核酸プローブや免疫蛍光交替と組み合わせることで生残性を評価でき、迅速かつ定量的で汎用性の高い方法であるとしている。その他、アデノシン三リン酸 (ATP) 法、各種バイオセンサー、マトリックス支援レーザー脱離イオン化 (MALDI-TOF MS) による微生物種の同定法を紹介した。

中でも FCM 法については、2000 年代以降、国内外で水道の水処理プロセス等における適用が進んでいる。Safford らは、水処理・配水プロセスや排水の再利用における FCM 法の適用に関して、2000 年から 2018 年までに発表された約 300 件の文献を対象に、各適用分野における FCM 利用による水質管理の利点と課題を解説した 3)。課題点として、水系感染症ウイルスの検出感度の向上、標的病原体を特異的に検出するための測定手法の最適化、リアルタイム FCM を可能にするための、サンプル前処理と染色処理の自動化、データ分析を支援する計算ツールの開発、異なる機器や設定条件を使用して得られた各結果の再現性や比較を支援する、標準的な手法の開発の必要性を指摘した。また、Adomat らは、FCM 法、細胞内外 ATP 測定法、アルカリホスファターゼ全酵素活性 (ALP-TEA) 測定法を用いて、細菌現存量に関する指標を対象に、3 箇所のバンクフィルトレーション処理を実施している地点にて測定を行った 4)。加えて、限外ろ過 (UF) パイロットプラントの微生物除去能力を、オンライン FCM 法を用いて調査した。FCM 法と ALP-TEA 法による各

測定結果の相関性は良好であったが、乖離も観察された。これらは、FCM 法における核酸染色や、ATP 法・ALP-TEA 法における阻害イオンなど、手法上の制約に依るものと考えられた。

### (2) 溶存有機物に関する水質指標ならびに連続モニタリング技術

近年、河川水や湖沼水等の水環境を対象として、三次元励起蛍光スペクトル法 (EEM: three dimension excitation-emission matrix) により溶存性有機物のデータを網羅的に取得し、多変量解析の一種である平行因子分析 (PARAFAC: Parallel Factor Analysis) や主成分分析 (PCA: principal component analysis) を用いて個々の蛍光ピークを分離、同定する手法が発展しており、各種の溶存有機物の挙動解析や汚染源の推定などに適用されている。Yang らは、オンタリオ湖にある浄水場の取水口における下水処理場排水の存在状況を、連続モニタリングにより取得した蛍光データを用いて EEM-PARAFAC 法により調べるとともに、排水の指標であるスクラロースの分析を行った 5)。主たる蛍光成分は、水生生物由来フミン様物質、微生物由来フミン様物質、トリプトファン様物質であった。また、排水検出の回帰モデルを開発し、1 箇所の取水口にて採取した連続蛍光データに適用したところ、下水排水の混和率は 1%未満と推定され、スクラロースの分析結果と一致した。

Bedell らは、トリプトファン様物質 (トリプトファンおよびインドール) の蛍光波長特性 (励起波長:280nm、蛍光波長:355nm) に注目し、遠隔地向けオンライン大腸菌検出センサーの初期プロトタイプ開発を試み

た。トリプトファン様物質の蛍光波長と大腸菌数との応答に高い相関を確認した。純水を用いた卓上型プロトタイプ機器による検討ではあるものの、大腸菌の検出下限として 4CFU/mL を達成した 6)。

### (3) オンライン型水質センサーの開発・適用に関する動向

水質管理の現場への適用を目指した、小型かつ維持管理が容易であるような水質センサーの開発が進展している。主な開発の方向性は、①先端化学材料等を用いた新規センサー開発、②既存のセンサーを組み合わせた新規対象物質への適用である。

前者として、Zubiarrain-Laserna らはグラフェン様物質を用いた水質センサーの基礎・応用開発のレビューを行った 7)。グラフェンとは、炭素原子が六角形格子構造を形成し、1 原子の厚みを有するシート状の形態である。グラフェンを用いた電界効果トランジスタ (FET: field-effect transistors) や化学抵抗センサー (chemiresistive sensor) は、基準電極が必要ない、電子物性を容易に変化できる等、今後最も有望な新技術の一つであるとした。これまでに鉛、水銀、硝酸塩、有機リン、六価クロム、抗菌剤、病原体 (大腸菌、ロタウイルス) 等が開発の対象となっている。グラフェンを用いた水質センサー開発における今後の課題は、①分析対象の拡大、②センサーの再設定・再利用性、③長期安定性、④現場での校正を挙げた。

後者として、Zamyadi らは、カナダ国ケベック州の水道水源を対象に、既存のオンライン型水質センサーを用いて、シアノバクテリアの連続監視を行った 8)。細胞内フィコシアニンおよびクロロフィル *a* を、蛍光

光度法による市販のマルチプローブで測定、これと並行して pH、溶存酸素、電気伝導率、水温、濁度を連続測定した。フィコシアニンおよびクロロフィル *a* 両方を対象とすることで、連続測定の精度を向上し、応答性を改善することができた。

また、Bono らは、遠隔水質センサーに求められる性能や機能について、使用者のニーズおよび趣向に関する現場調査をインド農村部にて行い、微生物を対象とした遠隔水質センサーの設計における優先順位を決定するフレームワーク構築を試みた 9)。微生物の汚染濃度と推奨される行動（例えば飲用可能であること）を統合して報告する機能、センサーが再利用可能である、添加する試薬が 1 種類であること、検査当日に結果が判明すること、検体あたりのコストが安価であることに対する趣向が強かった。開発途上国の農村部など、人的ならびに経済的な資源が限られている条件においては、使用者のニーズや趣向を把握した上でセンサーの開発を行うことで、費用対効果が高くなると結論づけた。

#### (4) 深層学習やビッグデータの活用等による水質予測手法の開発

計算機の演算能力や内部記憶装置、外部記録媒体等の記憶容量および記録速度が飛躍的に増大したことにより、近年、深層学習やビッグデータを活用した予測技術が発展し、水質モニタリングデータを活用した将来の水質予測が多く試みられている。

Zhang らは、中国全国の水質場の総合的な性能を予測することを目的として、人工ニューラルネットワーク (ANN: Artificial neural network) と遺伝的アルゴリズム (GA:

Generic algorithm) を組み合わせたハイブリッド統計モデル「HANN」を構築した 10)。国内 45 カ所の浄水場の月次データを使用し、入力変数として温度や COD などの水質パラメータと電力消費量や薬品消費量などの運転パラメータを選択し、出力変数として浄水量を採用した。当 HANN モデルの予測精度は、決定係数 ( $R^2$ ) を指標とした場合に多層 ANN モデルよりも常に高い性能を示し、複雑な非線形関係や外挿が可能であるとした。シナリオ分析の結果、HANN モデルは水質及び運転パラメータ等の変動に基づいて浄水量の変動を予測できるとした。

Liu らは、中国揚州市長江における水道原水取水口の自動水質監視ステーションで収集した水質データ (2016 年 1 月～2017 年 12 月) を元に、LSTM (long short-term memory) ディープニューラルネットワークを用いた水質予測手法を提案し、データの前処理、パラメータ設定、学習手順を検討した 11)。当水質予測モデルは、6 ヶ月後 (2018 年 1 月～6 月) の水源水質 (pH, DO, 電気伝導率, 濁度,  $\text{COD}_{\text{Mn}}$ ,  $\text{NH}_3\text{-N}$ ) を良好に予測でき、古典的な時系列分析モデルである自己回帰和分移動平均 (ARIMA: Auto Regressive Integrated Moving Average) モデルや、サポートベクター回帰 (SVR: Support Vector Regression) モデルよりも高精度であるとした。

Delpla らは、人工ニューラルネットワークモデルを用いて、カナダ国ケベック市の水道水源である Saint Charles 流域における濁度平均濃度とピーク濃度の予測を行った 12)。2012-2016 年における日平均濁度、ならびに、降雨量・降雨間隔や湿度に関する気象データを使用した。トレンド分析によって、

取水口における濁度のピークは、水源域の水質モニタリング地点と比較して、夏季は中央値で約 25 分、冬季は約 85 分の遅れを生じていた。気象データを導入した当モデルにより、将来的には、一日の平均濁度の予測や気候変動による降水パターン変化の影響を評価することが可能になるとした。

Mohammed らは、ノルウェー国オスロ市の水道水源を対象に、4 種類の糞便汚染指標（大腸菌群, *E.coli*, 腸球菌, 嫌気性芽胞菌）の濃度予測を行った<sup>13)</sup>。2009 年から 2015 年までの水質データ (pH, 温度, 電気伝導度, 濁度, 色度, アルカリ度) と集水域の降水量データを用い、4 種類の予測モデル (ZIP: zero-inflated Poisson, ZINB: zero-inflated negative binomial, RF: Random Forest regression, ANFIS: Adaptive Neuro-fuzzy Inference System) を構築、比較した。原水の pH, 温度, 濁度, 電気伝導度が、各糞便汚染指標との相関性が高かった。ANFIS モデルは原水中の各糞便汚染指標の変動予測に優れていたが、低濃度の予測精度が低かった。浄水場の運転管理においては、ANFIS モデル以外の 3 モデルを用い、信頼性の高い糞便汚染指標の推定が可能であるとした。

## D. 考察

### (1) 微生物に関する水質指標ならびに迅速モニタリング技術

従来の培養法による指標微生物に加えて、直接的に糞便系病原体の指標となる項目や、迅速に検出が可能となる測定手法の開発と適用が進展していたと考えられた。とりわけ、分子生物学的手法を中心に、特定の微生物を特異的かつ迅速に検出する技術開発が試みられ、医療現場等への導入が進展して

いる技術もあった。水道や水環境を対象とした微生物のオンライン連続測定法として、フローサイトメトリー法、ATP 測定法、酵素的蛍光反応法、電気化学蛍光法等が検討されていた。今後の研究開発の課題として、特異性や感度が十分に確保されること、コストや維持管理が適当であることが重要だと考えられた。

### (2) 溶存有機物に関する水質指標ならびに連続モニタリング技術

河川水等の水道水源を対象とした EEM-PARAFAC 解析の適用により、溶存有機物の構成や存在状況や季節変動を捉えることが可能であること、そのうち、トリプトファン様物質は大腸菌との相関を有することが示された。水道の水質管理において留意すべき溶存有機物群（例えば消毒副生成物前駆物質であるフミン様物質等）を対象とした連続監視にも適用できる可能性があると考えられた。

### (3) オンライン型水質センサーの開発・適用に関する動向

グラフェン様物質を用いた水質センサーは基準電極が必要でない、薬品を要しないオンライン水質分析への展開が今後有望であると考えられた。一方で、現時点では分析感度や安定性の確保など、研究開発上の課題が見受けられた。市販の水質分析プローブの組み合わせにより、水道水源におけるシアノバクテリア連続監視など、特定の水質汚染物質を有効に迅速測定する方向での検討も進められていた。加えて、予算や人員が限られている状況下においては、現場のニーズや趣向を把握した上で、オンライン

水質システムを企画設計することが望ましいと考えられた。

#### (4) 深層学習やビッグデータの活用等による 水質予測手法の開発

深層学習に代表される機械学習を用いた水質予測モデルの開発により、水道水源の水質予測や、浄水場の浄水量予測が試みられていた。多くの場合、従来の時系列予測モデルよりも予測精度に優れた。一方で、一部の予測モデルは、ゼロ値の測定値が数多く観察される糞便汚染指標を対象とした場合、低濃度の予測精度に問題を生じる事例もあった。各モデルの特性ならびに水道の運転管理・水質管理を行う現場のニーズに応じ、適切なシミュレーションモデルを選択することが肝要と考えられた。

### E. 結論

海外の文献調査に基づき、水質指標項目の連続測定や、深層学習による早期の水質予測、小型水質センサー等の開発状況について最新動向を把握し、課題点を抽出した。糞便由来の病原体を含む微生物・ウイルスや、特定の溶存有機物群を対象とした、迅速検出や連続測定を可能とする測定手法の技術開発と適用が進展していた。検出の特異性の確保や検出感度の向上、ならびに、コストの適正化や維持管理の簡易化が課題として挙げられた。オンライン型水質センサーについては、先端化学材料等を用いた新規センサー開発、ならびに、既存の水質センサーを組み合わせた新規対象物質への適用という方向に大別された。深層学習やビッグデータを用いた水質予測手法の開発では、水質測定データセットの特性により、特定

のモデルにおいて予測精度が低下する場合があった。測定現場にて利用可能な資源やニーズ、得られた測定データの期間や項目等に応じて、適切な水質センサーや予測モデルを選択し、活用することが必要であると考えられた。

### F. 研究発表

1. 論文発表  
(該当なし)
2. 学会発表  
(該当なし)

### G. 知的財産権の出願・登録状況（予定を含む）

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)

### 参考文献

- 1) Saxena, G, *et al.*: Microbial indicators, pathogens and methods for their monitoring in water environment, JOURNAL OF WATER AND HEALTH, 13(2), 319-339, 2015, DOI: 10.2166/wh.2014.275
- 2) Bonadonna, L, *et al.*: Innovative analytical methods for monitoring microbiological and virological water quality, MICROCHEMICAL JOURNAL, 150, 104160, 2019, DOI: 10.1016/j.microc.2019.104160
- 3) Safford, HR, *et al.*: Flow cytometry applications in water treatment, distribution, and reuse: A review, WATER RESEARCH,

- 151, 110-133, 2019, DOI: 10.1016/j.watres.2018.12.016
- 4) Adomat, Y, *et al.*: New Methods for Microbiological Monitoring at Riverbank Filtration Sites, *WATER*, 12(2), 584, 2000, DOI: 10.3390/w12020584
- 5) Yang, YZ, *et al.*: Towards real-time detection of wastewater in surface waters using fluorescence spectroscopy, *JOURNAL OF ENVIRONMENTAL SCIENCES*, 86, 195-202, 2019, DOI: 10.1016/j.jes.2019.06.002
- 6) Bedell, E, *et al.*: Demonstration of Tryptophan-Like Fluorescence Sensor Concepts for Fecal Exposure Detection in Drinking Water in Remote and Resource Constrained Settings, *SUSTAINABILITY*, 12(9), 3768, 2020, DOI: 10.3390/su12093768
- 7) Zubiarrain-Laserna, A, *et al.*: Review-Graphene-Based Water Quality Sensors, *JOURNAL OF THE ELECTROCHEMICAL SOCIETY*, 167(3), 37539, 2020, DOI: 10.1149/1945-7111/ab67a5
- 8) Zamyadi, A, *et al.*: Monitoring of potentially toxic cyanobacteria using an online multi-probe in drinking water sources, *JOURNAL OF ENVIRONMENTAL MONITORING*, 14(2), 579-588, 2012, DOI: 10.1039/c1em10819k
- 9) Bono, MS, *et al.*: Fieldwork-based determination of design priorities for point-of-use drinking water quality sensors for use in resource-limited environments, *PLOS ONE*, 15(1), e0228140, 2020, DOI: 10.1371/journal.pone.0228140
- 10) Zhang, YY, *et al.*: Integrating water quality and operation into prediction of water production in drinking water treatment plants by genetic algorithm enhanced artificial neural network, *WATER RESEARCH*, 164, 114888, 2019, DOI: 10.1016/j.watres.2019.114888
- 11) Liu, P, *et al.*: Analysis and Prediction of Water Quality Using LSTM Deep Neural Networks in IoT Environment, *SUSTAINABILITY*, 11(7), 2058, 2019, DOI: 10.3390/su11072058
- 12) Delpla, I, *et al.*: Drinking Water Source Monitoring Using Early Warning Systems Based on Data Mining Techniques, *WATER RESOURCES MANAGEMENT*, 33(1), 129-140, 2019, DOI: 10.1007/s11269-018-2092-4
- 13) Mohammed, H, *et al.*: Comparative predictive modelling of the occurrence of faecal indicator bacteria in a drinking water source in Norway, *SCIENCE OF THE TOTAL ENVIRONMENT*, 628-629, 1178-1190, 2018, DOI: 10.1016/j.scitotenv.2018.02.140