

Environment Research and Technology Development Fund

## 環境研究総合推進費 終了研究成果報告書

小規模畜産農家のための低コスト・低炭素・グリーン化高度処理システムの  
構築に関する研究  
(5-1504)

平成27年度～平成29年度

Development of Low Cost and Energy Efficient Green Advanced Wastewater Treatment System for Small Scale Stockbreeding

〈研究代表機関〉  
日本大学工学部工学研究所

平成30年5月

## 目次

I. 成果の概要	1
1. はじめに (研究背景等)	
2. 研究開発目的	
3. 研究開発の方法	
4. 結果及び考察	
5. 本研究により得られた主な成果	
6. 研究成果の主な発表状況	
7. 研究者略歴	
II. 成果の詳細	
II-1 小規模畜産農家のための低コスト・低炭素・グリーン化高度処理システムの構築に関する研究 (日本大学工学部工学研究所)	17
要旨	
1. はじめに	
2. 研究開発目的	
3. 研究開発方法	
4. 結果及び考察	
5. 本研究により得られた成果	
6. 国際共同研究等の状況	
7. 研究成果の発表状況	
8. 引用文献	
III. 英文Abstract	37

## I. 成果の概要

課題名 5-1504 小規模畜産農家のための低コスト・低炭素・グリーン化高度処理システムの構築に関する研究  
 課題代表者名 中野 和典（学校法人日本大学工学部工学研究所 教授）  
 研究実施期間 平成27～29年度  
 累計予算額 38,163千円（うち平成29年度：11,633千円）  
     予算額は、間接経費を含む。  
 本研究のキーワード 小規模畜産農家、液状廃棄物、人工湿地、浄化処理原単位、エネルギー原単位、汚泥生成原単位、ナノシルバー

### 研究体制

(1) 小規模畜産農家のための低コスト・低炭素・グリーン化高度処理システムの構築に関する研究  
 (学校法人日本大学工学部工学研究所)

## 1. はじめに(研究背景等)

家畜排せつ物法における管理基準対象農家に占める管理基準適合農家の割合は、平成22年12月1日時点まで99.97%に上るが、全農家に対する管理基準対象農家は約51%に過ぎず、小規模経営体における家畜糞尿の処理は法令の適用外となっている。一方、水質汚濁防止法の対象となる畜産農家は、豚房50m<sup>2</sup>、牛房200m<sup>2</sup>、馬房500m<sup>2</sup>以上を有する農家であり、この法令においても小規模経営体が適用外となっており、小規模経営体での適正な汚水処理が長年未解決の課題となっている。

畜産廃水は一般的な下水と比較するとBODで約7.4倍、T-Nで約4.6倍、T-Pで約8.2倍の汚濁濃度を有しており、高い汚濁処理能力を持った廃水処理技術が必要とされる。また、畜産経営における廃水処理費用は総費用の12%に、廃水処理労働は総労働の13%に上ると試算されており、低コストで簡易な技術が求められる。しかし、現在の畜産現場で主に用いられている曝気式ラグーン法に代表される活性汚泥法は、維持管理費が高く、運転・維持管理技術も煩雑であるため、小規模経営体にはほとんど普及していないのが現状である。

このような背景から、本研究では、経済的に小規模経営体においても運用が可能で、低炭素・グリーン化と高度処理の両立が期待でき、近年世界各国での導入が進んでいる水質浄化法である人工湿地に着目し、経済的に小規模経営体に普及可能かつ畜産廃水処理の低炭素・グリーン化を推進する処理システムを確立することにより畜産由来の液状廃棄物の適正処理の徹底の実現を目指すこととした。

## 2. 研究開発目的

本研究では、我が国では数少ないフルスケールの人工湿地を対象として、特に中・長期的な運用における畜産廃水の高度処理性能の原単位を明らかにするとともに、リン除去性能の長期維持手法および人工湿地システムへの殺菌機能の付加手法を開発し、経済的に小規模経営体に普及可能かつ畜産廃水処理の低炭素・グリーン化を推進する処理システムを確立することを目的とした。

## 3. 研究開発の方法

### (1) 小規模畜産農家のための低コスト・低炭素・グリーン化高度処理システムの構築に関する研究

本研究で調査対象とした多段型人工湿地は5つの人工湿地ろ床で構成されている。その概要を図-1に示す。5つの人工湿地ろ床はすべて好気的処理に有利とされる鉛直流型のろ床である。総有効面積は111m<sup>2</sup>であり、上流から4つ目までの湿地面積は下流ほど小さく、ポリッシングを目的とした最終段の面積は1段目と同じ面積となっている。5段の人工湿地ろ床は、それぞれ異なる条件に設定された3区画に分画されている。BOD・窒素・リンの処理原単位の解明は、ヨシを植栽した植栽区（低水位）と遮光により植物の生長を抑制した無植栽区（低水位）を対象として行った。一方、ケイ酸カルシウム（軽量気泡コンク

リート(ALC)）の再投入によるリン除去性能の延命化効果の検証は、経年に伴ってリン除去性能の低下が顕著となった無植栽区（低水位）を対象として行った。5段の人工湿地のろ床の構成を表-1に示す。1段目から4段目の人工湿地のろ床厚は約0.7mであり、表層0.05mにはリンの保持とアルカリ度の安定を目的とした粒径約10mmのALCが敷き詰められている。下層の0.65mには汚濁成分の捕捉を目的としたろ材が充填されており、下流の人工湿地ろ床ほどろ材の粒径が小さくなるように材料を選択した。ポリッシングを目的とした5段目の人工湿地のろ床厚は0.15mであり、ろ材には粗砂を使用した。5段目にはALCの敷設は行わなかった。

BOD・窒素・リンの浄化処理原単位の解明のための水質モニタリングは、2009年9月より各区画につき毎月1回すべての段の流入水と流出水（処理水）を採水して実施した。サンプル水のBOD濃度、全窒素(TN)濃度、全リン(TP)濃度、懸濁物質(SS)濃度は、下水試験方法に従って測定した。人工湿地現地（宮城県大崎市）の気温、流入水温及び原水ポンプ稼動回数をデータロガーにより自動計測し、ポンプ稼動回数とポンプ稼動1回あたりの排出水量から人工湿地への流入水量を計算した。これらにより把握した8年間の畜産排水処理における流入負荷量と除去負荷量より、中長期的なBOD、窒素およびリンの浄化処理原単位を算出した。さらに、植栽区と無植栽区で得られた浄化処理原単位を比較することで、植物の存在の有無による中長期的な浄化処理原単位の違いを明らかにした。図-1に示されるように、本研究で調査対象とした多段型人工湿地は5つの人工湿地ろ床で構成されており、ろ床毎にポンプ枠や採水枠が存在している。このように5つの揚水ポンプにより、5つの人工湿地ろ床に送水される仕組みとなっており、処理運転に要した電力は、電気メーターの数値を毎月1回モニタリングすることで把握した。人工湿地の処理運転・維持管理に要するエネルギー原単位は、電気メーターにより把握した消費電力を、BOD、窒素およびリンの浄化処理量で除すことによって算出した。

本研究における調査対象とした多段型人工湿地の3区画の中で、経年に伴うリン除去性能の低下が顕著であった無植栽区を対象として、ALCの再投入によるリン除去性能の延命化の検討を実施した。無植栽区へのALCの再投入は2016年9月に実施した。本人工湿地による畜産排水の処理は2009年6月に開始していたことから、処理開始から7年を経てALCの再投入を行ったことになる。ALCの再投入は1段目から4段目のろ床に対して行い、ろ床表層にALCの厚さが約5cmとなるように粒径10mm以下のALCを投入した。ALCの再投入効果を検証するため、引き続き毎月1回すべての段の流入水と流出水（処理水）の採水を実施し、ALC投入前後の水質浄化性能の変化を検証した。

人工湿地で生じる汚泥（堆積物とろ床内の蓄積物）量を明らかにするために、直径約5cmの塩化ビニール管をろ床に打ち込み、ろ床上の堆積物とろ床のコアサンプルを採取した。コアサンプリングは、2015年10月に実施した。本人工湿地による畜産排水の処理は2009年6月に開始していたことから、処理開始から6年が経過しており、本コアサンプリングにより、6年間の畜産排水処理に伴って人工湿地に残存した汚泥量が明らかとなる。ろ床表層に堆積物が生じていたのは1段目だけであり、1段目表層のコアサンプルには、ろ材より上部に堆積層が含まれることが考えられた。そこで、1段目のコアサンプルの採取では、堆積層の存在を考慮して長さ15cmの塩化ビニール管を打ち込み、非破壊的にコアサンプルを取り出した。次いで、長さ10cmの塩化ビニール管を使用し、深さ10cm毎にろ床のコアサンプリングを行い、深さ65cmまでのサンプルを採取した。2段目から5段目の人工湿地では、表層を含む60cmまでのすべての深さに対

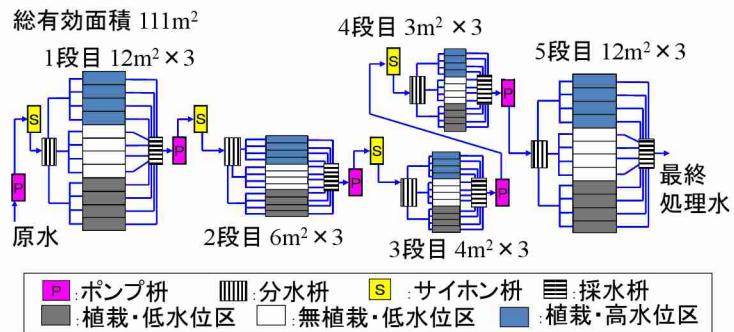


図-1 本研究で調査対象とした多段型人工湿地の概要

表-1 5段の人工湿地のろ床の構成

	1段目	2段目	3段目	4段目	5段目
表層ろ材	ALC*	ALC*	ALC*	ALC*	-
(層厚0.05m)	(粒径3-15mm)	(粒径3-15mm)	(粒径3-15mm)	(粒径3-15mm)	
メインろ材	貞岩	貞岩	粗砂	粗砂	粗砂**
(層厚0.65m)	(粒径5-10mm)	(粒径1-5mm)			

\*軽量気泡コンクリート(Autoclaved lightweight aerated concrete) \*\*5段目の層厚は0.15m

し、長さ10cmの塩化ビニール管を使用したコアサンプリングを行った。1段目表層の堆積層の厚さは、堆積層表層から堆積層とろ材の境界までの長さを測定することで求めた。コアサンプル中の有機物量として、強熱減量(VSS量)を測定した。コアサンプル中の全窒素及び全リン量は、委託分析により定量した。

人工湿地における窒素・リンの物質収支に占める植物バイオマスの割合を明らかにするために、一辺50cmのコドラートを用い、1段目から5段目の表層から植物を採取した。植物バイオマスに含まれる全窒素及び全リン量は、委託分析により定量した。植物バイオマス量が季節によって変化することを考慮し、植物バイオマスの採取は、コアサンプリングを実施した季節に合わせ、2016年10月に実施した。

多くの排水処理施設で適用されている塩素消毒は、処理水中に残留する遊離塩素が水生生態系に影響を及ぼすことが課題となっている。一方、ナノテクノロジーにより開発されたナノシルバーは650種以上の菌に殺菌効果があることが確認され、その活用により殺菌機能を有したろ材を開発することができれば、塩素消毒に頼らずに殺菌処理を行うことが可能となる。そこで本研究では、ナノシルバーを用いて殺菌機能を有するろ材を創出することを目指し、まず一般的なろ材にナノシルバーを付加することを試みた。次いでナノシルバーを付加したろ材の殺菌機能を発揮させるために必要な条件について検討を行った。安価で入手し易い材料であることを念頭に、ここでの供試ろ材は、ホームセンター等で手に入れることができるろ材とし、軽石、活性炭、ゼオライト、リサイクルガラス造粒砂、化粧石、ハイドロボール及び麦飯砂利の7種の材料を比較した。ナノシルバーとして、ナノサイズのシリカ粒子にナノシルバーが担持されているTSSC-2000((株)UVコート)を使用した。ナノシルバーの付加は、蒸留水で1000ppmの濃度に調整したTSSC-2000にろ材を約1分間浸することで行った。TSSC-2000に浸したろ材の乾燥は室温で行った。ナノシルバーを付加したろ材の殺菌性能を評価するための試験水として、日本大学工学部キャンパス内を流れる河川水を用いた。河川水には大腸菌群が存在しており、大腸菌群濃度の変化により殺菌性能を評価できる。殺菌試験においては、ナノシルバーを付加したろ材を80mLの目盛りまで充填した100mLコニカルビーカーに試験水を100mLの目盛りまで投入し、室温で24時間、ろ材と試験水を接触させた。接触前後の試験水中に生存する大腸菌群を平板培地法で測定することで殺菌率を求め、殺菌性能を検証した。

初年度の研究において、ろ材に担持したナノシルバーの殺菌機能を発揮させるためには、ろ材の乾燥が必要である反面、試験水との接触時間は長い方が良いことが明らかとなった。つまりろ材の乾燥と処理対象水との接触を効率的に実現する運転方法の開発が課題となった。そこで本研究では、ろ材の乾燥と処理対象水との接触を効率的に行う手法としてタイダルフローを利用したシステムを考案し、試作した実験装置による連続殺菌処理を試みた。タイダルフローとは、潮の満ち引きにおける水位変動のようにろ床内の水位の低下(干潮)と上昇(満潮)を交互に行う水位管理手法である。水位の低下時にはろ材が乾燥し、水位の上昇時には処理対象水との接触により殺菌が行われる。このように水面を変動させる操作を一定時間毎に交互に行うことで、ろ材の乾燥と処理対象水との接触を効率的に行うことができると考えられた。試作したタイダルフロー実験装置の外観の写真と概要を写真-1に示す。ろ材を充填した円筒カラムの入口と出口にタイマー制御した電磁弁を設置することで、カラム内の水位変動をコントロールし、カラム内の水面が潮の満ち引きのように上下に変動するタイダルフローを実現させた。このような実験装置を用いて、試験水とろ材との接触時間とろ材の乾燥時間との合計を24時間とした24hサイクルと、その合計を12時間とした12hサイクルの2つのタイダルフロー条件で連続殺菌処理実験を行った。実験開始から25日までのRun Aでは、接触時間と乾燥時間の比率を1:1とし、25日から53日目までのRun Bでは比率を3:1に、54日から66日までのRun Cでは比率を5:1とした。67日以後のRun Dでは、接触時間と乾燥時間の比率を再び1:1に戻した。試験水には、大腸菌群が検出される河川水を用いた。殺菌性能を評価するため、カラムから排出された処理水とカラムに供給せずに同時間放置した河川水の大腸菌群数を測定し、大腸菌群の生残率及び低減レベルを算出した。

#### 4. 結果及び考察

##### (1) 小規模畜産農家のための低成本・低炭素・グリーン化高度処理システムの構築に関する研究

###### 4-1 人工湿地の運転状況

畜産排水の流入を開始してから3か月間の馴致運転期間を含む8年間の日流入水量および積算流入水量の推移を図-2に示す。2011年2月7日から4月5日の58日間のデータは、東日本大震災により欠損した。このデータ欠損期間の流入水量を除いた馴致運転期間を含む全モニタリング期間（2017年8月31日まで）の積算流入水量は4927m<sup>3</sup>に達し、日流入水量の平均値は1.70m<sup>3</sup>であった。

#### 4-2 BOD・窒素・リンの中長期的な浄化処理原単位

畜産排水原水（流入水）と5段目の人工湿地の流出水（最終処理水）のBOD濃度とこれらの濃度から算出した除去率の8年間の推移を図-3に示す。8年間の流入水および最終処理水のBOD濃度および除去率の平均値は、植栽区ではそれぞれ1353mg/L、21mg/L、98.0%であった。一方、無植栽区ではそれぞれ1266mg/L、42mg/L、96.4%であった。図-3に示されるように、8年程度の中長期的な

BOD浄化性能は非常に安定しており、95%を超える高い浄化性能が持続することを実証することができた。一方、植栽区と無植栽区で8年間に得られた最終処理水濃度と除去率の双方において有意な差 ( $p < 0.05$ ) が認められ、植栽の有無が人工湿地のBOD除去性能に有意な差を生み

出すことが明らかとなった。初期3年間の比較では有意な差が見られなかったことから、このような植栽の効果は中長期的な経年に伴い現れることが分かった。

5段の人工湿地の各段におけるBOD除去量の割合の8年間の推移を植栽区と無植栽区で比較した結果を図-4に示す。1段目のBOD除去量の割合は、最初の5年間は経年により低下し、5年目では50%以下となったが、それ以降は増加して65%前後で落ち着く傾向が示された。8年間の傾向として、下流の人工湿地の除去量が占める割合は8年間の畜産排水処理を経ても低く、余裕を持ってBOD除去が行えていると言える。そのような傾向は植栽区と無植栽区で共通しており、植物の存在による傾向の違いは見られなかった。

本研究で調査対象とした多段型人工湿地の各段の面積は、図-1に示すように1段目から4段目では下流ほど小さく、ポリ

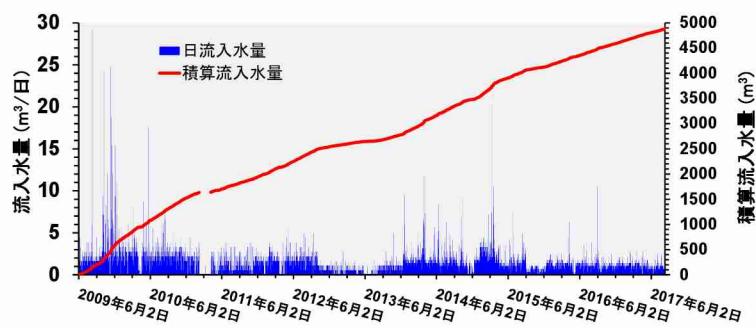


図-2 畜産排水の流入を開始してから3か月間の馴致運転期間を含む8年間の日流入水量および積算流入水量の推移

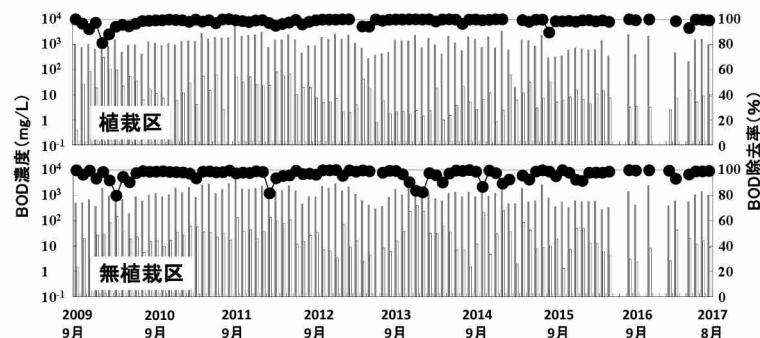


図-3 植栽区と無植栽区における8年間のBOD除去性能の推移。  
■, 流入水濃度; □, 最終処理水濃度; ●, 除去率

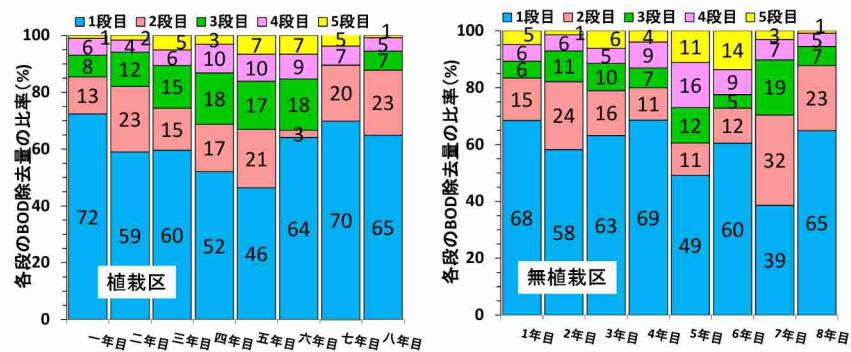


図-4 植栽区と無植栽区の各段での除去量の割合の8年間の推移

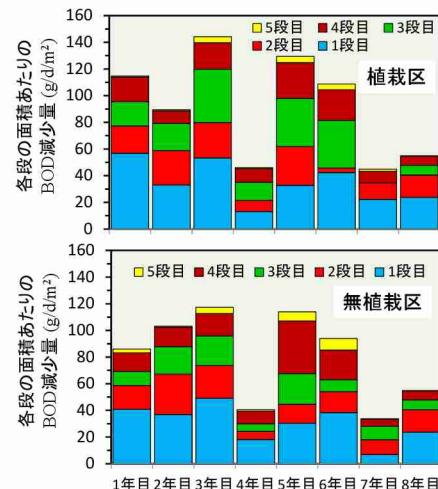


図-5 植栽区と無植栽区の各段における単位面積あたりのBOD除去量の推移

ッシングを目的とした5段目は1段目と同じ面積となっている。このように面積が異なるため、BOD除去に占める各段での除去量の割合が面積に依存していた可能性がある。そこで各段でのBOD除去量を各段の面積で除して単位面積あたりの除去量を求め、その経年変化を植栽区と無植栽区で比較した結果を図-5に示す。上流ほど面積あたりのBOD除去量が高い状況が3年目まで継続していたが、経年とともに上流と下流の人工湿地間の差は減少し、面積あたりのBOD除去量が逆転している箇所も確認された。しかし、8年間が経過しても5段目的人工湿地の面積あたりのBOD除去量は圧倒的に低く、5段目までにBODが十分に除去されていることが示された。このような傾向は植栽区と無植栽区で共通していた。

畜舎排水原水（流入水）と5段目の人工湿地の流出水（最終処理水）の全窒素濃度とこれらの濃度から算出した全窒素の除去率の8年間の推移を図-6に示す。8年間の流入水および最終処理水の全窒素濃度および除去率の平均値は、植栽区ではそれぞれ87.5mg/L、7.5mg/L、88.6%であった。一方、無植栽区ではそれぞれ84.4mg/L、13.0mg/L、82.7%であった。図-6に示されるように、植栽区では、BODほどではなかったが、8年程度の中長期的な窒素浄化性能は高いレベルで安定しており、85%を超える高い浄化率が持続することを実証することができた。BODと異なり、窒素では、畜産排水の浄化処理開始から5年以降では、植栽区と無植栽区の最終処理水濃度と除去率の両方で单年度での比較でも有意な差 ( $p<0.01$ ) が認められており、植栽の有無による窒素除去性能の差異が、比較的早期により明確に現れることが明らかとなつた。

5段の人工湿地の各段における全窒素除去量の割合の8年間の推移を植栽区と無植栽区で比較した結果を図-7に示す。植栽区の結果に着目すると、全窒素除去量の割合は1段目が最大であるが、その割合は経年により低下し、5年目では50%未満となったが、それ以降は落ち着き、55%前後で安定する傾向となった。これはBODとほぼ同じ傾向であり、8年間の傾向として、下流の人工湿地の除去量が占める割合は8年間の畜産排水処理を経ても低く、余裕を持って窒素除去を行えていると言える。しかし、4年目の4段目では溶出量が除去量を上回ったため、負の値が示されている。一方、無植栽区では、全体の傾向は植栽区と同様であるが、1段目の全窒素除去量の割合がやや低下傾向にあり、8年間の中長期的な処理により、45%前後で安定する結果となつた。このように、植栽の存在による傾向の違いが、窒素除去においては現れた。

本研究で調査対象とした多段型人工湿地の各段の面積は、図-1に示すように各段で異なるため、総窒

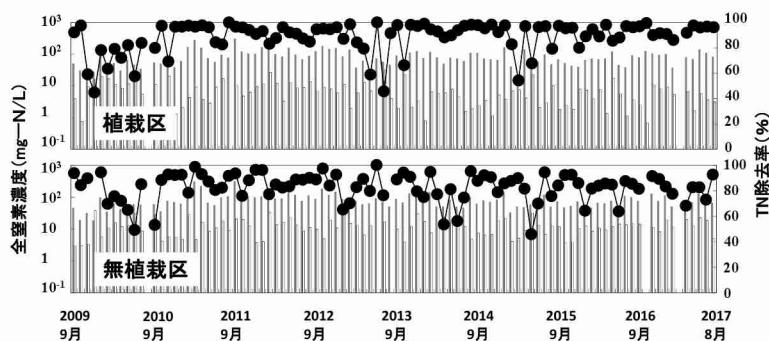


図-6 植栽区と無植栽区における8年間の窒素除去性能の推移。  
■,流入水濃度; □,最終処理水濃度; ●,除去率

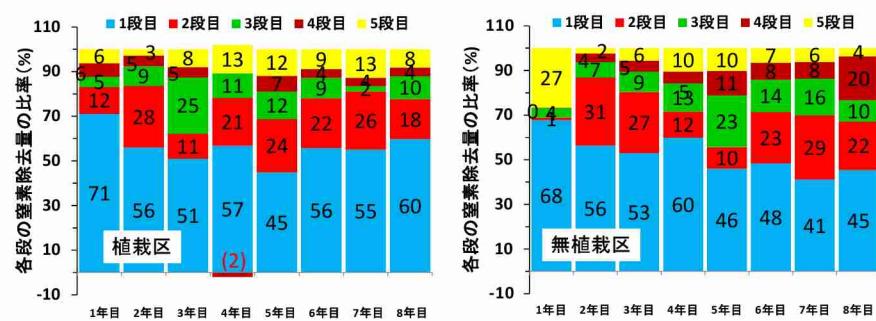


図-7 植栽区と無植栽区の各段での全窒素除去量の割合の8年間の推移

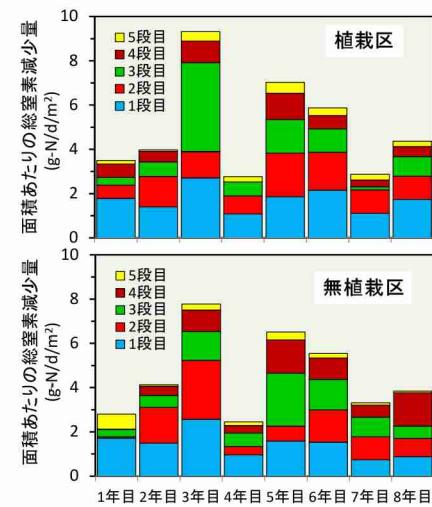


図-8 植栽区と無植栽区の各段における  
単位面積あたりの総窒素除去量の推移

素除去に占める各段での除去量の割合が面積に依存していた可能性がある。そこで各段での総窒素除去量を各段の面積で除して単位面積あたりの除去量を求め、その経年変化を植栽区と無植栽区で比較した結果を図-8に示す。上流ほど面積あたりの窒素除去量が高い状況は1年目だけであり、面積あたりの窒素除去量の逆転が2年目より見られた。これは窒素の除去反応が多段階（有機態窒素のアンモニア化反応、硝化反応および脱窒反応）であるためであり、BODとは異なり、中流に位置する人工湿地での面積あたりの除去量が大きくなることが明らかとなった。差は僅かであるが、5段目の人工湿地の面積あたりの窒素除去量は、植栽区の方が高くなる傾向が現れた。これは、最下流に位置する5段目の人工湿地では、脱窒に必要な有機物が不足していることが原因として考えられる。植栽区では植物の枯死体や根が分泌する有機物が利用可能であり、特に枯死体は経年により増加することから、その存在が植栽区と無植栽区の窒素除去性能の差異を生み出していたことが考えられた。

畜舎排水原水（流入水）と5段目の人工湿地の流出水（最終処理水）の全リン濃度とこれらの濃度から算出した全リン除去率の8年間の推移を図-9に示す。8年間の流入水および最終処理水の全リン濃度および除去率の平均値は、植栽区ではそれぞれ19.8mg/L、2.5mg/L、85.1%であった。一方、無植栽区ではそれぞれ18.2mg/L、4.3mg/L、75.0%であった。図-9に示されるように、植栽区におけるリン除去率は低下傾向にあるものの、平均では80%以上を維持しており、8年程度の期間であれば80%前後の浄化率の持続が可能であることを実証することができた。全窒素と同様に、植栽区と無植栽区で得られた最終処理水濃度と除去率の両方で有意な差

( $p < 0.01$ ) が認められ、植栽の有無が人工湿地のリン除去性能に有意な差を生み出すことが明らかとなった。そのような植栽の有無による差異は、リンでは処理運転開始2年目から確認されており、窒素よりも早く植栽の存在効果が現れることが示された。

5段の人工湿地の各段における全リン除去量の割合の8年間の推移を植栽区と無植栽区で比較した結果を図-10に示す。BODや全窒素での傾向と異なり、1段目の人工湿地での除去量が占める割合が経年に伴い低下する傾向が明らかであり、当初最大であった1段目の除去量が占める割合は、5年目の植栽区では僅かに1段目が2段目を上回っていたが、無植栽区では2段目の除去量が1段目を逆転していた。このように下流の段の除去量が占める割合が経年とともに増加する傾向はリンでは顕著であり、経年に伴う浄化処理性能の低下を、各段における除去量の変化

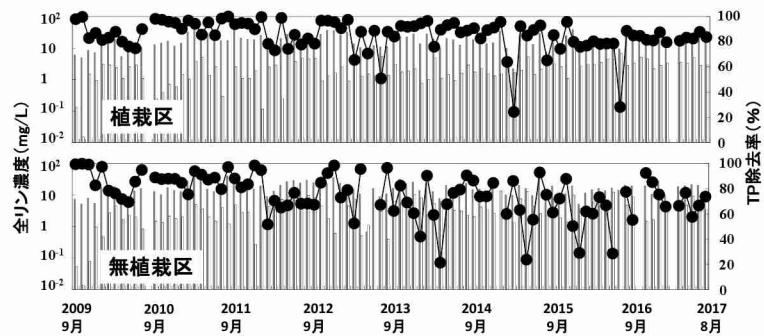


図-9 植栽区と無植栽区における8年間のリン除去性能の推移。  
■,流入水濃度; □,最終処理水濃度; ●,除去率

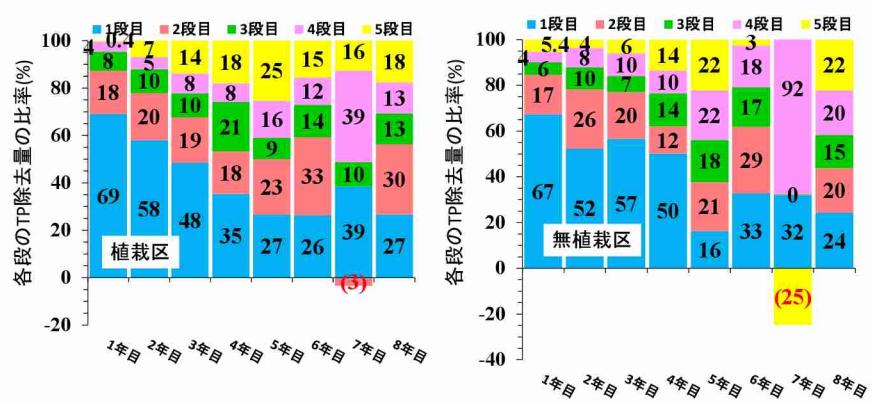


図-10 植栽区と無植栽区の各段での全リン除去量の割合の8年間の推移

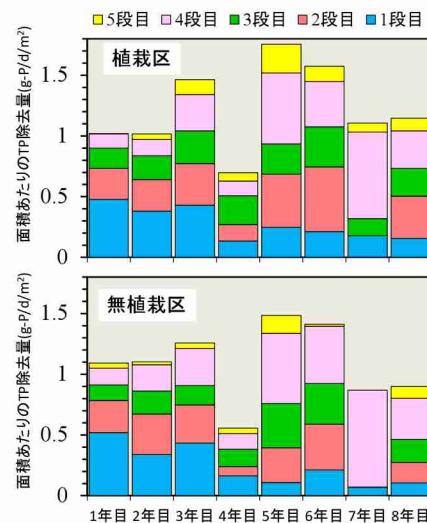


図-11 植栽区と無植栽区の各段における  
単位面積あたりの全リン除去量の推移

の推移により説明することができた。また、そのような変化は植栽区よりも無植栽区でより早くなることが示された。無植栽区の結果に着目すると、浄化処理開始から7年目では、1段目と4段目以外ではリンの除去が見られず、5段目では溶出量が除去量を大きく上回っており、グラフでは負の値が示されており、リン除去性能の経年に伴う低下を裏付ける結果となっている。8年目に各段におけるリン除去が回復しているのは、8年目の9月にALCを投入した効果であり、その結果については4-4において述べる。

本研究で調査対象とした多段型人工湿地の各段の面積は、図-1に示すように各段で異なるため、リン除去に占める各段での除去量の割合が面積に依存していた可能性がある。そこで各段での全リン除去量を各段の面積で除して単位面積あたりの除去量を求め、その経年変化を植栽区と無植栽区で比較した結果を図-11に示す。上流ほど面積あたりの除去量が高い状況は2年目までであり、面積あたりの全リン除去量の逆転が3年目より見られた。BOD成分や窒素と異なり、リンはガス化しないため、除去されたリンは人工湿地中に蓄積される。このため、蓄積されたリンが経年により溶出する可能性があるが、上流と下流の湿地のリン除去量の逆転は、そのような蓄積されたリンの溶出を反映しているものと考えられる。7年目の無植栽区において1段目と4段目以外でリン除去量がゼロとなっているのは、リン除去量と溶出量が同等であるためと考えられる。一方、7年間を経過しても植栽区においてそのような現象が見られないのは、植栽区では、溶出したリンを植物が吸収して植物体として保持するためであると考えられ、そのような植物の働きが、植栽区と無植栽区における中長期的なリンの浄化処理性能の差異を生み出していることが推察される。

8年間の処理水量：4927m<sup>3</sup>、8年間の処理日数：2893dayおよび人工湿地面積：111m<sup>2</sup>と8年間の原水および処理水の平均濃度より、8年間の中長期的な浄化処理の原単位を算出した。植栽区の原水および処理水の平均BOD濃度は、それぞれ1353および22mg/lであり、BODの浄化処理原単位は20.4g/d/m<sup>2</sup>となった。これに対し、無植栽区の原水および処理水の平均BOD濃度は、それぞれ1266および42mg/lであり、BODの浄化処理原単位は18.8g/d/m<sup>2</sup>となり、植栽の存在によりBODの浄化処理原単位が8.5%増加したことが明らかとなった。窒素では、植栽区の原水および処理水の平均濃度は、それぞれ87および7.5mg-N/lであり、窒素の浄化処理原単位は1.20mg-N/d/m<sup>2</sup>となった。無植栽区の原水および処理水の平均濃度は、それぞれ84および13mg-N/lであり、浄化処理原単位は1.09g-N/d/m<sup>2</sup>となったことから、植栽の存在により窒素の浄化処理原単位が10%増加したことが明らかとなった。リンでは、植栽区の原水および処理水の平均濃度は、それぞれ20および2.5mg-P/lであり、リンの浄化処理原単位は0.27mg-P/d/m<sup>2</sup>となった。これに対し、無植栽区の原水および処理水の平均濃度は、それぞれ18および4.3mg-P/lであり、浄化処理原単位は0.21g-P/d/m<sup>2</sup>となったことから、植栽の存在によりリンの浄化処理原単位は28.5%増加したことが明らかとなった。このように水質項目によって植栽の存在による効果は異なったが、どの水質項目に対しても植栽の存在がプラスに働き、浄化処理原単位を増加させることを明らかにできた。植栽の存在によるプラス効果はリンにおいて特に顕著であり、中長期的なリン除去性能の維持に植栽の存在が重要な役割を果たすことが示された。

#### 4-3 人工湿地の処理運転・維持管理に要するエネルギー原単位の解説

本研究で調査対象とした多段型人工湿地は5つの人工湿地ろ床で構成されており、それぞれの人工湿地ろ床へ送水する合計5基の揚水ポンプの稼働に要した電力が、処理運転に要したエネルギーであり、本プロジェクト期間の3年間（6年目から8年目まで）の平均消費電力である0.53kWh/dと各水質項目に対する浄化処理原単位（植栽区の値を使用）より、人工湿地の処理運転に要するエネルギー原単位を求めた結果、BODでは0.23Wh/g-BOD、全窒素では4.0Wh/g-N、全リンでは18.7Wh/g-Pとなった。これらの値の相対的な位置づけを評価するため、高度処理型浄化槽のエネルギー消費原単位（BOD:9.2Wh/g-BOD、全窒素:50.1Wh/g-N、全リン:405Wh/g-P）と比較すると、BODではマイナス97.5%、窒素ではマイナス92%、リンではマイナス94.5%の低炭素化が達成できることになり、提案する人工湿地法が極めて省エネルギーな汚水処理法であることが示された。

一方、本研究で明らかにした人工湿地のBODの浄化処理原単位（20.4g/d/m<sup>2</sup>）に基づくと、1日当たりのBOD処理負荷量は2264g-BODであり、ひとりが排出する生活排水のBOD原単位を40g/dとすると、約57人の生活排水に相当する。そこで、処理規模が同等の50人槽の通常型浄化槽の消費電力（10.6kWh/d）と

本研究で調査対象とした多段型人工湿地の平均消費電力 (0.53kWh/d) を比較評価すると、多段型人工湿地の消費電力はマイナス95%となり、高度処理型浄化槽との比較評価結果と同様に、従来技術である浄化槽と比較して人工湿地法が極めて省エネルギーな汚水処理法であることが示された。

8年間の畜産排水の処理において、人工湿地に蓄積する汚泥や植物バイオマスの除去や回収等の作業が不要であったことや従来技術である浄化槽と比してマイナス95%の消費電力で同等の浄化処理が可能であったことから、本研究で提案する人工湿地法が、経済的に小規模経営体においても運用が可能で、低炭素と高度処理の両立を推進する汚水処理システムとして大きな可能性を有していることを示すことができた。

#### 4-4 中長期的な人工湿地による搾乳排水処理において期待できる処理水質

環境基準や排水基準は、各水質項目の濃度で規制されている。そこで、人工湿地による中長期的な浄化処理における処理水の水質レベルを各水質項目の濃度に基づき評価した。植栽区で得られた8年間の搾乳排水による処理水質の分布と累積度数を図-12に、全データの上位から25、50、75%の順位における濃度を表-2に示す。BOD、全窒素、全リンの各濃度に加えて、人の健康の保護に関する環境基準の水質

項目のひとつである硝酸態窒素の濃度についても示した。BODに着目すると、一律排水基準の日間平均濃度120mg/lを超えたデータが8年間で1回あったが、それを除けば一律排水基準を満足する濃度が得られていた。75%値の濃度が22.4mg/lであったことから、通常型浄化槽で目標としている濃度レベル (20mg/l) とほぼ同等の処理水質が得られることが示された。全窒素に着目すると、一律排水基準の日間平均濃度60mg/lを超えたことは1回もなく、一律排水基準を余裕を持って満足する処理水質が得られていたことが示された。75%値の濃度が9.5mg-N/lであったことから、高度処理型浄化槽に匹敵するレベル (20mg-N/l) の処理水質が得られていたと言える。全リンにおいても、一律排水基準の日間平均濃度8mg/lを超えたことは1回もなく、一律排水基準を満足する水質が得られていたことが示された。75%値の濃度が3.3mg-P/lであったことから、高度処理型浄化槽に近いレベル (1mg-P/l) の処理水質が得られていたと言える。硝酸態窒素に着目すると、人の健康の保護に関する環境基準 (硝酸イオンの濃度に換算係数0.2259を乗じた値) を十分に満足する水質であり、75%値の濃度でも2.6mg-N/lと非常に低いレベルであったことから、畜産排水に由来する地下水の硝酸態窒素濃度の増加の問題解決にも資するものとなる。4-3で述べたように、人工湿地法は経済的に小規模経営体においても運用が可能であり、人工湿地法の導入により、一律排水基準を満足する適正な汚水処理が、これまで法令の適用外となっていた小規模経営体においても可能になることが期待できる。

#### 4-5 ALCの再投入によるリン除去性能の延命化効果の検証

本研究で調査対象とした多段型人工湿地の3区画の中で、経年に伴うリン除去性能の低下が顕著であった無植栽区を対象として、畜産排水の浄化処理を開始してから8年目の2016年9月にALCの再投入を実施し、リン除去性能の延命化効果を検討した。ALC投入後の1年間を含む8年間のリン除去性能の推移を図-13に、ALC再投入前後1年間の流入水と処理水の全リン濃度と除去率の平均値を比較した結果を表-3に示す。図-13に示されるように、ALC投入以後もリン除去率の変動は起きていたが、ALC投入以前に見られた月間のリン除去率が50%以下に低下するような変動は見られなくなり、ALCの再投入によってリン除去性能が

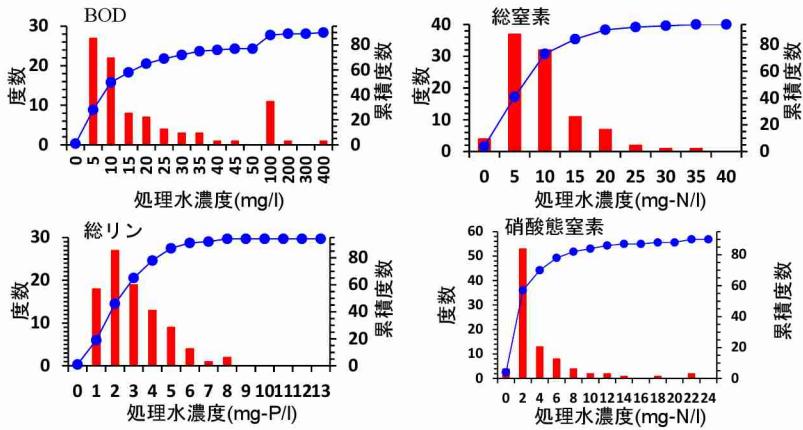


図-12 植栽区で得られた8年間の搾乳廃水処理水質の分布と累積度数

表-2 8年間の搾乳排水処理水質のレベル

	25%値	50%値	75%値
BOD (mg/l)	3.3	7.5	22.4
硝酸態窒素 (mg-N/l)	0.4	1.3	3.2
全窒素 (mg-N/l)	2.4	5.7	9.5
全リン (mg-P/l)	1.1	2.0	3.3

回復することが示された。ALC再投入前後1年間の全リン除去率は、60%から73%に改善されていた。ALCによる効果として、ALCに含まれるカルシウムが溶出することでリン酸カルシウムとしてリンが沈殿することが考えられ、ALCの再投入によりカルシウムの溶出が回復したことでリン除去性

能が改善されたことが示唆された。今後も、そのようなカルシウムの溶出が継続することで、効果が持続することが期待できる。今回実施したALCの再投入は、古いろ材を取り出すことなく、ろ床表層に新たにALCを投入しただけであり、複雑で高価な工事が不要な非常に簡易的な手法である。したがって、汚水処理に労働費や維持管理費を割くことができない小規模経営体にも十分に導入可能な手法であり、その実用性を示すことができた。

#### 4-6 人工湿地による汚水処理における中長期的な汚泥生成原単位

調査対象とした多段型人工湿地の1段目のろ床の植栽区と無植栽区それぞれから12本を採取したコアサンプルにより測定したろ床表層に蓄積した汚泥の厚さの分布を図-14に示す。汚泥の厚さは均一ではなく、最大値と最小値の差が植栽区で105mm、無植栽区で79mm存在した。排水の流入口を上流として、汚泥の厚さの平均値を上流、中間、下流で比較すると、図-14に示すように、植栽区では汚泥の厚さの平均値が上流側で明らかに高く、上流と下流の差が大きいのに対し、無植栽区では汚泥の厚さの平均値は均一であり、上流と下流の差が小さいことが明らかであった。この結果からも、植栽が障害となり堆積する汚泥の厚さが均一にならないことが示唆された。

汚泥の厚さの平均値は、植栽区及び無植栽区でそれぞれ97及び85mmとなり、植栽区が無植栽区を上回っていた。本人工湿地では植栽の刈り取りによる回収を行っていないため、この差異は人工湿地で生長し枯死した植物体が生み出したと

考えられたが、植栽区と無植栽区の汚泥厚さの間に統計学的な有意な差は認められなかった( $p>0.05$ )。コアサンプリングによる汚泥厚の調査は、畜産排水処理開始から6年が経過した2015年10月に実施しており、これらの汚泥厚は6年間の畜産排水処理によって生じたものである。畜産排水の処理に伴う汚泥の生成速度は、植栽区及び無植栽区でそれぞれ16.2及び14.2mm/yearであったことが推定された。これらの値は、生活排水原水を14年間受け入れたフランスの人工湿地における汚泥の生成速度(15mm/year)と同等であった。植栽区における平均汚泥厚が、無植栽区より12%大きかったことから、植栽の存在により汚泥生成量が12%増加することが示された。

植栽区で得られた平均汚泥生成速度16.2mm/yearより、1年間の汚泥堆積速度は2cm未満になると考えられる。また、2段目以降のろ床表層には、汚泥の堆積が見られない。これらのことから、汚水処理開始から10年間、汚泥を回収しないことを前提とすると、1段目のろ床の構造として、ろ床上部に20cmの余裕高を設ける等、20cmの堆積物の蓄積を考慮した構造とすれば十分であると考えられた。

植栽区及び無植栽区で得られた汚泥の厚さの平均値に1段目のろ床面積(12m<sup>2</sup>)を乗じることで、6年間の畜産排水の処理によって生成した汚泥体積を推算したところ、植栽区及び無植栽区でそれぞれ1.16及び1.02m<sup>3</sup>の値が得られた。6年間に1段目のろ床で除去されたSS負荷量は、植栽区及び無植栽区でそれ

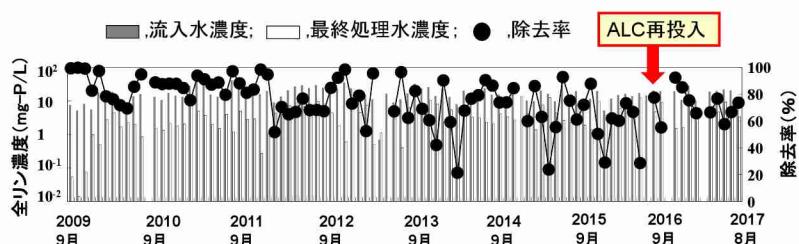


図-13 ALC投入前後の全リン除去性能の推移。

表-3 ALCの再投入前後1年間の全リン除去性能の比較

	流入水 (mg-P/l)	処理水 (mg-P/l)	除去率 (%)
投入以前	14.4	5.7	60.1
投入以後	18.2	4.9	73.2

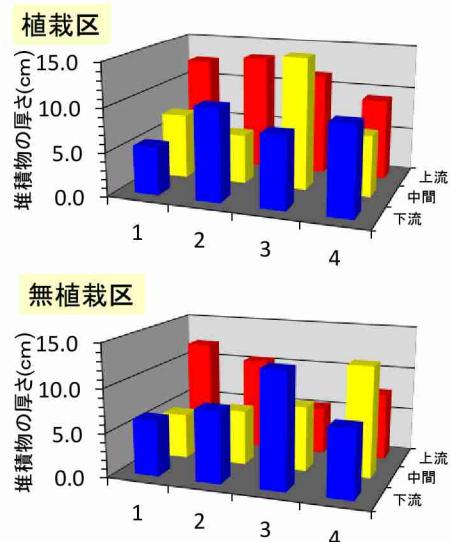


図-14 多段型人工湿地の1段目のろ床表層の汚泥厚の分布

ぞれ790および866kg-SSであり、SS除去量あたりの生成汚泥堆積原単位は、植栽区及び無植栽区でそれぞれ1473および1178cm<sup>3</sup>/kg-SSとなった。植栽区の生成汚泥堆積原単位は、無植栽区よりも25%大きく、植栽の存在により生成する汚泥堆積が25%増加することが示された。

同様にしてBOD除去量あたりの生成汚泥体積原単位を求めた。図-4に示すように、1段目のろ床の植栽区及び無植栽区で6年間に除去されたBODはそれぞれ1036および930kg-BODであったことから、生成汚泥体積原単位は、それぞれ1124および1097cm<sup>3</sup>/kg-BODとなった。植栽区の生成汚泥堆積原単位は、無植栽区よりも僅か2.5%大きいだけであり、除去負荷量のベースをBODとした場合には、植栽の存在による生成汚泥堆積の増加は僅かであることが明らかとなった。

#### 4-7 人工湿地における中長期的な有機物・窒素・リンの物質収支

6年間の畜産排水処理における有機物(BOD)の流入および流出負荷量、人工湿地における植物体としての存在量、ろ床表層の汚泥としての存在量、ろ床内における存在量より推定した植栽区における5段の人工湿地全体の有機物に関する物質収支を図-15に示す。6年間に1711.3kg-BODが流入し、40.4kg-BODが流出したことから、流入負荷量の97.6%が人工湿地により除去されたことになる。これに対し、人工湿地のろ床表層の汚泥として存在していた有機物量、ろ床内に存在していた有機物量および人工湿地の植物として存在していた有機物量を揮発性懸濁物質(VSS)として測定した結果、それぞれ11.3、72.0および18.02kg-VSSと推定され、その合計を全汚泥生成量とすると、除去BODあたりの全汚泥生成量の原単位は0.061kg-VSS/kg-BODとなった。標準活性汚泥法における汚泥生成量原単位は、およそ0.25kg-VSS/kg-BODであることから、人工湿地における汚泥生成原単位はその約24%に相当し、余剰汚泥の生成量が標準活性汚泥法の4分の1未満で済むことが示された。

一方、無植栽区では、6年間に1543.3kg-BODが流入し、58.7kg-BODが流出したことから、流入負荷量の96.2%が人工湿地により除去されたことになる。これに対し、人工湿地のろ床表層の汚泥として存在していた有機物量、ろ床内に存在していた有機物量および人工湿地の植物として存在していた有機物量を揮発性懸濁物質(VSS)として測定した結果、それぞれ10.53、53.50および0kg-VSSと推定され、その合計を全汚泥生成量とすると、除去BODあたりの全汚泥生成量の原単位は0.043kg-VSS/kg-BODとなった。植栽区における全汚泥生成量の原単位は、この約1.4倍であり、植栽の存在により全汚泥生成量の原単位が40%増加することが明らかとなった。

窒素の物質収支に着目すると、図-16に示されるように植栽区における6年間の流入窒素負荷量は97.8kg-Nであり、12.3kg-Nが流出したことから、流入負荷量の87.4%に相当する85.5kg-Nが人工湿地により除去されたことになる。これに対し、人工湿地のろ床表層の汚泥として存在していた窒素量、ろ床内に存在していた窒素量および人工湿地の植物として存在していた窒素量は、それぞれ9.0、12.7および0.5kg-Nと推定され、その合計は22.2kg-Nであった。したがって、人工湿地で除去された窒素の74%が、脱窒によるガス化や生物の移動による系外排出により消失し、人工湿地内の窒素の残存率は26%であることが明らか

	植栽区	無植栽区
流入負荷量	1711.3kg-BOD (100)	1543.3kg-BOD (100)
植物体量	18.02kg-VSS	0kg-VSS
堆積層内蓄積量	11.30kg-VSS	10.53kg-VSS
ろ床内蓄積量	72.00kg-VSS	53.50kg-VSS
流出負荷量	40.4kg-BOD (2.4)	58.7kg-BOD (3.8)

図-15 6年間の畜産排水処理における有機物(BOD)の流入および流出負荷量、人工湿地における植物体としての存在量、ろ床表層の汚泥としての存在量、ろ床内における存在量より推定した5段の人工湿地全体の有機物に関する物質収支

	植栽区	無植栽区
流入負荷量	97.8kg-N (100)	96.8kg-N (100)
植物体量	0.5kg-N (0.5)	0kg-N (0)
堆積層内蓄積量	9.0kg-N (9.2)	3.7kg-N (3.8)
ろ床内蓄積量	12.7kg-N (13.0)	9.2kg-N (9.5)
流出負荷量	12.3kg-N (12.6)	15.7kg-N (16.2)

図-16 6年間の畜産排水処理における全窒素の流入および流出負荷量、人工湿地における植物体としての存在量、ろ床表層の汚泥としての存在量、ろ床内における存在量より推定した5段の人工湿地全体の窒素に関する物質収支

となった。植物体として存在する窒素量は、全窒素除去量の約0.6%、人工湿地に残存する窒素量の3%未満に相当する量に過ぎないことが明らかとなった。

無植栽区における窒素の物質収支に着目すると、6年間の流入窒素負荷量は96.8kg-Nであり、15.7kg-Nが流出したことから、流入負荷量の83.8%に相当する81.1kg-Nが人工湿地により除去されたことになる。これに対し、人工湿地のろ床表層の汚泥として存在していた窒素量、ろ床内に存在していた窒素量および人工湿地の植物として存在していた窒素量は、それぞれ3.7、9.2及び0kg-Nと推定され、その合計は12.9kg-Nであった。したがって、人工湿地で除去された窒素の84%が、脱窒によるガス化や生物の移動による系外排出により消失し、人工湿地内の窒素の残存率は16%であることが明らかとなった。植栽区における窒素の残存率は、この約1.6倍であり、植栽の存在により窒素成分が人工湿地に残存する割合が60%増加することが明らかとなった。

リンの物質収支に着目すると、図-17に示されるように植栽区における6年間の流入リン負荷量は22.65kg-Pであり、2.61kg-Pが流出したことから、流入負荷量の88.5%に相当する20.04kg-Pが人工湿地により除去されたことが示された。人工湿地のろ床表層の汚泥として存在していたリン量、ろ床内に存在していたリン量および人工湿地の植物として存在していたリン量は、それぞれ1.33、8.04及び0.11kg-Pと推定され、その合計は9.48kg-Pであった。したがって、人工湿地で除去されたリンの53%が、生物の移動による系外排出等により消失し、人工湿地内のリンの残存率は47%であることが明らかとなった。植物体として存在するリン量は、全リン除去量の約0.6%、人工湿地に残存するリン量の約1%に相当する量に過ぎないことが明らかとなった。

	植栽区	無植栽区
流入負荷量	22.65kg-P (100)	22.52kg-P (100)
植物体量	0.11kg-P (0.5)	1.46kg-P (6.5)
堆積層内蓄積量	1.33kg-P (5.9)	6.87kg-P (30.5)
ろ床内蓄積量	8.04kg-P (35.5)	4.80kg-P (21.3)
流出負荷量	2.61kg-P (11.5)	

図-17 6年間の畜産排水処理における全リンの流入および流出負荷量、人工湿地における植物体としての存在量、ろ床表層の汚泥としての存在量、ろ床内における存在量より推定した5段の人工湿地全体のリンに関する物質収支

無植栽区におけるリンの物質収支に着目すると、6年間の流入リン負荷量は22.52kg-Pであり、4.80kg-Pが流出したことから、流入負荷量の78.7%に相当する17.72kg-Pが人工湿地により除去されたことが示された。人工湿地のろ床表層の汚泥として存在していたリン量、ろ床内に存在していたリン量および人工湿地の植物として存在していたリン量は、それぞれ1.46、6.87及び0kg-Pと推定され、その合計は8.33kg-Pであった。この推算に従うと、人工湿地で除去されたリンの53%が消失していることになり、人工湿地内のリンの残存率は53%となった。窒素と異なり、リンはガス化しないため、除去されたリンの大半は人工湿地内に残留すると考えられる。本研究で推算したリンの残存率は、そのような観点から想定すると低い値であり、過少評価となっている可能性があるが、現時点において原因は不明である。植栽区と無植栽におけるリンの残存率が全く同じ値であったことから、植栽の存在はリン成分が人工湿地に残存する割合に影響を与えないことが明らかとなった。

#### 4-8 殺菌作用を有するナノシルバーを担持させたろ材の殺菌効果の検証

ナノシルバーによる殺菌機構として、酸素がナノシルバーと接触することで生じる活性酸素が殺菌作用を発揮することから、ろ材表面が乾燥し易い方が活性酸素の生成に有利であり、高い殺菌率が得られることが考えられた。さらに、吸水性が少ないろ材であれば、ろ材の乾燥に必要な時間が短縮でき、効率的に殺菌処理を行えることが考えられた。そのような観点により、ナノシルバーの担持により撥水性が生じて吸水性が少なくなる軽石に着目し、その吸水特性と乾燥特性を市販の6種類のろ材（活性炭、ゼオライト、リサイクルガラス造粒砂、ハイドロボール、化粧石、麦飯砂利）と比較した。ナノシルバーを担持させたそれぞれのろ材を水に漬け込み、水から取り出した後の吸水量の変化を比較した結果を図-18に示す。水から取り出した直後の吸水量（0時間後の値）は、明らかに軽石が少なかった。乾燥の進行度を示す12時間後および24時間後の吸水量でも、7種のろ材の中で最少となったのは軽石であった。したがって、ろ材の乾燥と殺菌処理を1サイクルとする連続殺菌処理を想定すると、乾燥の進行が早い軽石

であれば、1サイクルに要する時間が最短になり、殺菌処理を効率的に進められることが考えられた。

吸水性が少ない軽石をナノシルバーを担持するろ材として用いた場合の殺菌性能を確認するため、ろ材の乾燥時間を24時間とし、同じろ材を繰り返し8回使用した場合の殺菌性能を検証した。ナノシルバーを担持した7種類のろ材の殺菌性能を比較した結果を図-19に示す。8回の殺菌試験の平均殺菌率が100%となったのは、軽石のみであった。次に優れた殺菌性能を有していた活性炭の平均殺菌率は99.8%であった。生残率で評価すると、軽石での大腸菌群平均生残率は4Logとなり、活性炭の2.8Logを卓越していた。活性炭の表面積が1112m<sup>2</sup>/gであるのに対し、軽石の表面積が1.56m<sup>2</sup>/gに過ぎず、活性炭と比較すると桁違いに小さいことから、軽石で得られた殺菌性能は多孔質で表面積が大きいことによるものではなく、撥水性が高く乾燥し易く、殺菌作用を発揮するに必要な活性酸素の生成に適していたためと考えられた。

#### 4-9 ナノシルバーを担持させたろ材の殺菌性能を維持するための運転方法の検討

本研究では、ろ材の乾燥と殺菌処理を連続的に効率的に行う手法としてタイダルフローを導入した。ろ材の乾燥時間と殺菌時間（接触時間）で構成される1工程を24時間とし、両者の時間比率を変化させて行ったナノシルバーを担持させた軽石を用いた連続殺菌処理実験の結果を図-20および表-4に示す。図-20に示されるように、接触・乾燥時間比率を1:1としたRun Aでは、当初低かった大腸菌群の生残率は処理回数に伴い徐々に高くなり、大腸菌群低減レベルの平均値は2.89Logとなった。接触・乾燥時間比率を3:1として接触時間の比率を増やしたRun Bでは、大腸菌群の生残率は増加せず、大腸菌群低減レベルの平均値は2.62Logとなった。接触・乾燥時間比率を5:1としてさらに接触時間の比率を増やしたRun Cでは、わずかに大腸菌群の生残率が増加する傾向となり、大腸菌群低減レベルの平均値は2.36Logとなった。このように接触時間の比率を増加させても殺菌性能は改善されないことがから、接触時間は12時間で十分であることが示唆された。接触・乾燥時間比率を5:1として接触時間の比率を増やしたRun Cにおける乾燥時間は4時間であった。Run Cにおいて大腸菌群の生残率が増加する傾向となったのは、乾燥時間が短すぎ

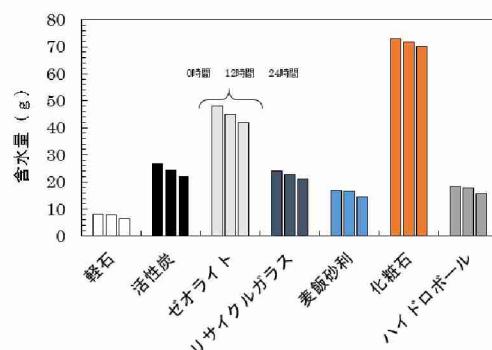


図-18 ナノシルバーを担持させたろ材を水から取り出した後の吸水量の変化の比較

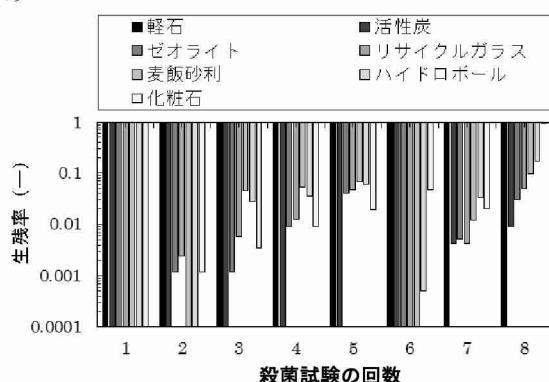


図-19 ろ材の乾燥時間を24時間としてろ材を繰り返し8回使用した場合の殺菌性能の比較

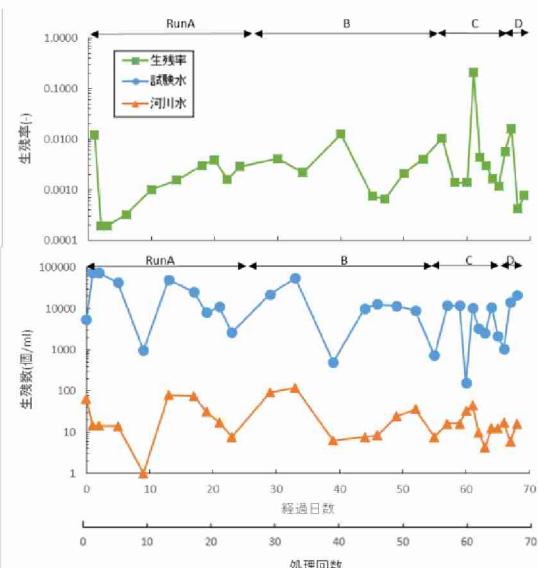


図-20 1工程を24時間とし接触時間と乾燥時間の比率を変えて行ったナノシルバー担持ろ材による連続殺菌処理における大腸菌群の生残濃度と生残率の推移

表-4 接触時間と乾燥時間の比率を変えて行ったナノシルバー担持ろ材による連続殺菌処理における大腸菌群の低減レベルの平均値

処理条件	接触時間と乾燥時間の時間比率(接触:乾燥)			
	RunA (1:1)	RunB (3:1)	RunC (5:1)	RunD (1:1)
24hサイクル	2.89Log	2.62Log	2.36Log	2.76Log
12hサイクル	2.56Log	2.47Log	1.41Log	2.14Log

たためと考えられ、Run Bにおける乾燥時間であった6時間程度の乾燥時間を確保すべきであることが示された。

ろ材の乾燥時間と殺菌時間（接触時間）で構成される1工程を12時間として、両者の時間比率を変化させて行った連続殺菌処理実験の結果を図-21および表-4に示す。接触・乾燥時間比率を1:1としたRun Aでは、大腸菌群の生残率は一定となる傾向を示し、大腸菌群低減レベルの平均値は2.56Logとなった。接触・乾燥時間比率を3:1として接触時間比率を増やしたRun Bでは処理回数に伴い大腸菌群の生残率が増加する傾向となり、大腸菌群低減レベルの平均値は2.47Logとなった。接触・乾燥時間比率を5:1としてさらに接触時間比率を増やしたRun Cでは、明らかに大腸菌群の生残率が増加し、大腸菌群低減レベルの平均値は1.41Logとなった。1工程を12時間として行った連続殺菌処理における大腸菌群低減レベルは、1工程を24時間とした場合よりも低く、処理サイクルの短縮が殺菌性能の低下につながったことが示唆された。明らかに殺菌性能が低下したRun Cにおける乾燥時間は2時間であり、ナノシルバーと空気中の酸素の接触による活性酸素の生成が不十分であったことが推察された。乾燥時間と接触時間がともに6時間であったRun A（1工程12時間）における殺菌性能は、乾燥時間が6時間、接触時間が18時間であったRun B（1工程24時間）や乾燥時間が12時間、接触時間が12時間であったRun A（1工程24時間）における殺菌性能よりも低い傾向にあり、その原因是接触時間にあることが推察された。これらの結果より、接触時間として12時間は十分であるが、6時間では短すぎることが示唆された。

1工程12時間で行った連続殺菌実験における処理回数は、1工程24時間で行った連続殺菌実験の2倍であり、Run B（1工程24時間）終了時の53日目までの処理回数は106回に達していた。Run B（1工程24時間）で得られた大腸菌群低減レベルの平均値は2.47Logであり、処理回数が100回を超えても2.47Logの大腸菌群低減レベルの維持が可能であることが示された。しかし、接触・乾燥時間比率を1:1に戻したRun D（1工程24時間）で得られた大腸菌群低減レベルはRun Aより明らかに低い2.14Logであり、殺菌性能は回復しなかった。これに対し、接触・乾燥時間比率を1:1に戻した1工程24時間でのRun Dでは、大腸菌群低減レベルがRun Aと同等の2.76Logまで改善されており、ナノシルバーと空気中の酸素との接触による活性酸素の生成能力が失われていないことが推察された。1工程24時間の条件であれば、Run Dを終了した69回以降でも殺菌性能は持続することが考えられた。

これらの結果より、タイダルフローを導入したシステムにより、ナノシルバーを担持したろ材を用いた連続殺菌処理が可能となること、その殺菌性能を発揮させるために必要な接触時間および乾燥時間はそれぞれ12時間および6時間程度であること、処理回数が100回を超えてもナノシルバーを担持したろ材の殺菌性能は持続し、2.47Logの大腸菌群低減レベルの維持が可能であることを確認することができた。

## 5. 本研究により得られた主な成果

### （1）科学的意義

8年間の中期的な処理運転期間におけるBOD・窒素・リンの処理性能の推移を明らかにしたことで、BOD、窒素、リンそれぞれについて、人工湿地の処理性能がどの程度変動し、どのレベルで安定的処理が行われ、どの程度の処理水質が期待できるのかを明らかにすることができた。

8年間の処理運転で得られたデータをもとに算出したBOD・窒素・リンの浄化処理原単位（単位面積・時間あたりの浄化処理性能）は、8年間の人工湿地の水質浄化性能の季節変動や年変動を包括したもの

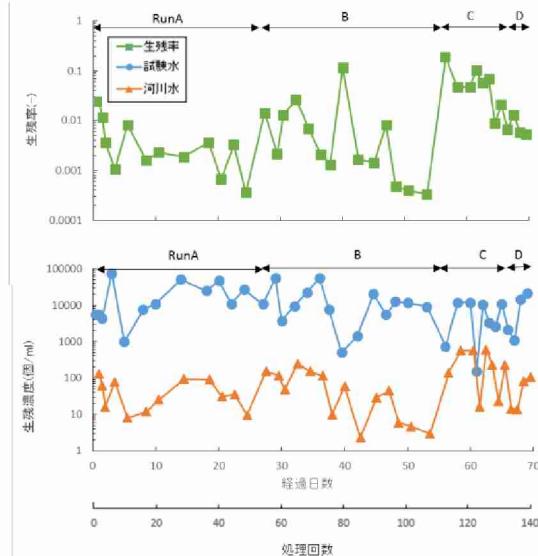


図-21 1工程を12時間とし接触時間と乾燥時間の比率を変えて行ったナノシルバー担持ろ材による連続殺菌処理における大腸菌群の生残濃度と生残率の推移

のであり、我が国の気象条件下における人工湿地の中長期的な浄化処理原単位として意義がある。

8年間の処理運転における消費電力をもとに算出したBOD・窒素・リンの浄化処理におけるエネルギー原単位（単位処理負荷量あたりに必要な電力）は、同レベルの汚濁負荷量を浄化処理する浄化槽のマイナス95%であり、人工湿地法が極めて省エネルギーな汚水処理法であり、汚水処理の低炭素化、省エネルギー化に大きく貢献するものであることを示すことができた。

さらに、8年間の処理運転における有機物・窒素・リンの流入および流出負荷量、人工湿地における植物体としての存在量、堆積物の存在量、ろ床内における存在量を把握したことで、5段の人工湿地全体の物質収支を明らかにすることことができた。人工湿地における汚泥生成原単位は、標準活性汚泥法の4分の1未満であり、非常に低く、人工湿地による処理において余剰汚泥の取り出しや処理の頻度が少なくとも済むことを裏付けるデータを取得することができた。さらに、人工湿地で除去された窒素およびリンの人工湿地内での残存率と行方（植物体、表層堆積物、ろ床内生物膜等）の割合を明らかにすることことができた。これらの知見は、BOD・窒素・リンの除去処理だけでなく、汚泥の生成や堆積物の有効利用までを考慮した人工湿地の設計や運用を検討する上で重要なものとなる。

また、遮光により植物の生育を抑制した無植栽区とその生育を抑制しなかった植栽区を比較することで、植物が存在することによる水質浄化性能の違い、水質浄化性能の安定性の違い、中長期的な物質収支の違いが明らかとなり、植物が存在することによるメリットとデメリットを提案するとともに、その根拠となる機構を示すことができた。

さらに、経年に伴い低下するリン除去性能の回復手法としてのケイ酸カルシウムの再投入の有効性を実証することができた。この知見は、リン除去における反応性ろ材の有効性を支持するものであり、人工湿地の弱点と言っていたリン除去性能の強化にも貢献するものとなる。提案するケイ酸カルシウムの再投入は、古いろ材を取り出すことなく、ろ床表層に新たにケイ酸カルシウムを投入するだけの簡易かつ低コストな手法であり、汚水処理に労働費や維持管理費を割くことができない小規模経営体にも十分に導入可能な手法としての実用性を示すことができた。

殺菌作用を有するナノシルバーを担持させたろ材の開発については、吸水性が少なく乾燥し易い軽石が、ナノシルバーによる活性酸素の生成に適したろ材として有効であり、ナノシルバーによる殺菌作用を最大限に引き出せる材料であることを見出すことができた。さらに、軽石を用いて行った連続殺菌試験により、ろ材の乾燥と処理対象水との接触を効率的に行える手法としてのタイダルフローの有効性を実証することができた。本手法を多段処理型人工湿地の最終段に導入することで、塩素殺菌に頼らない受動的な殺菌処理の実現が期待できる。

## (2)環境政策への貢献

### <行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

### <行政が活用することが見込まれる成果>

長年未解決の課題となっている家畜排せつ物法や水質汚濁防止法の適用外である小規模経営体の畜産農家に普及可能かつ畜産廃水処理の低炭素化を推進する処理システムとして、人工湿地を環境政策に組み入れる際に必用となると考えられる以下に関する根拠データを蓄積した。

- ①中長期的なBOD・全窒素・全リンの浄化処理性能と安定性
- ②中長期的な処理において達成可能な水質レベル
- ③中長期的な処理におけるBOD・全窒素・全リンの浄化処理原単位（単位面積・時間あたりの浄化処理性能）を明らかにした。
- ④BOD・全窒素・全リンの浄化処理におけるエネルギー原単位（単位処理負荷量あたりに必要な電力）
- ⑤中長期的なBOD・全窒素・全リンの浄化処理性能の安定性の機構
- ⑥中長期的な浄化処理における汚泥生成原単位（単位処理負荷量あたりに生成する汚泥量）
- ⑦中長期的な浄化処理における有機物・窒素・リンの物質収支

⑧経年に伴い低下するリン除去性能の回復手法

## 6. 研究成果の主な発表状況

### (1) 主な誌上発表

<査読付き論文>

- 1) 中村和徳、森 拓馬、中野和典：日本水処理生物学会誌, vol. 53, No. 2, pp. 47–55 (2017)  
ペットボトルリサイクル工場廃水処理への人工湿地の適用と課題
- 2) K. Nakamura, T. Yano, Y. Suyama, O. Nishimura, K. Nakano : Japanese Journal of Water Treatment Biology, Vol. 52, No. 3, pp. 45–54 (2016)  
Macrofauna in a Full-scale Vertical Flow Constructed Wetland during Vegetative Growth Stage

### (2) 主な口頭発表(学会等)

- 1) 中野和典、山寄元気、中村和徳：第52回日本水環境学会年会 (2018)  
「人工湿地の中長期的な水質浄化性能に及ぼす植物の影響」
- 2) 山寄元気、中村和徳、中野和典：第52回日本水環境学会年会 (2018)  
「人工湿地の中長期的な物質収支に及ぼす植物の影響」
- 3) 中村和徳、渡邊一輝、井川雄太、中野和典：第52回日本水環境学会年会 (2018)  
「下水汚泥堆肥中の重金属含量に及ぼすミミズの影響」
- 4) 平賀達也、中村和徳、中野和典：平成29年度土木学会東北支部技術研究発表会 (2018)  
「タイダルフローの干満比率が人工湿地の浄化性能に及ぼす影響」
- 5) 伊張田拓馬、中村和徳、中野和典：平成29年度土木学会東北支部技術研究発表会 (2018)  
「ミミズとろ過条件が下水汚泥の脱水速度に及ぼす影響」
- 6) 渡邊一輝、井川雄太、中村和徳、中野和典：平成29年度土木学会東北支部技術研究発表会 (2018)  
「ミミズによる下水汚泥の重層型堆肥化における副資材の効果」
- 7) 井川雄太、中村和徳、中野和典：平成29年度土木学会東北支部技術研究発表会 (2018)  
「下水汚泥由来の大腸菌群の生残に及ぼすミミズ類の共働的効果」
- 8) 遠藤直宏、中村和徳、中野和典：平成29年度土木学会東北支部技術研究発表会 (2018)  
「ナノ銀付着ろ材を用いた連続殺菌処理におけるタイダルフロー条件の影響」
- 9) 中野和典、山寄元気、中村和徳：第60回日本大学工学部学術研究報告会土木工学部会 (2017)  
「多段型人工湿地の水質浄化性能の持続性評価」
- 10) 山寄元気、中村和徳、中野和典：第60回日本大学工学部学術研究報告会土木工学部会 (2017)  
「人工湿地の植栽区と無植栽区の物質収支の比較」
- 11) 中村和徳、渡邊一輝、井川雄太、中野和典：第60回日本大学工学部学術研究報告会土木工学部会 (2017) 「下水汚泥のミミズによる堆肥化における基礎的研究」
- 12) 中村和徳、渡邊一輝、井川雄太、中野和典：日本土壤肥料学会2017年度仙台大会 (2017)  
「ミミズによる下水汚泥の堆肥化における副資材の役割」
- 13) 中村和徳、我妻佑亮、中野和典：第51回日本水環境学会年会 (2017)  
「人工湿地のミミズによる亜酸化窒素生成に及ぼす金属含量の影響」
- 14) 野村陸、中村和徳、谷口崇至、中野和典：第51回日本水環境学会年会 (2017)  
「ナノシルバーの殺菌作用を活用したろ材の創出と適用手法の開発」
- 15) 中野和典、山寄元気、谷口 崇至、中村和徳：第51回日本水環境学会年会 (2017)  
「多段型人工湿地の水質浄化性能の持続性評価」
- 16) 山寄元気、谷口崇至、中村和徳、中野和典：日本水環境学会第4回東北支部研究発表会 (2017)  
「畜産排水処理を6年間行った多段人工湿地における有機物・窒素・リンの物質収支の比較」
- 17) 山寄元気、中村和徳、中野和典：平成28年度土木学会東北支部技術研究発表会 (2017)  
「畜産排水処理を6年間行った人工湿地における有機物・窒素・リンの物質収支の比較」
- 18) 中野和典、秋田紘志、中村和徳：第50回日本水環境学会年会 (2016)

- 「人工湿地の堆積物に及ぼす植栽の影響」
- 19) 秋田紘志、中村和徳、中野和典：平成27年度土木学会東北支部技術研究発表会（2016）  
「多段型人工湿地における6年間のリン除去性能の変遷」
- 20) 野村 陸、中野和典：平成27年度土木学会東北支部技術研究発表会(2016)  
「ナノシルバーによる殺菌機能を有するろ材の創出」
- 21) 秋田紘志、中村和徳、中野和典:日本水環境学会第3回東北支部研究発表会(2016)  
「多段型人工湿地における6年間のリン除去性能の変遷」

## 7. 研究者略歴

### 研究代表者

中野 和典

筑波大学第2学群農林学類卒業、博士（農学）、現在、日本大学工学部 教授

## II. 成果の詳細

### II-1 小規模畜産農家のための低コスト・低炭素・グリーン化高度処理システムの構築に関する研究

日本大学工学部工学研究所

中野 和典

平成27~29年度累計予算額：38,163千円（うち平成29年度：11,633千円）

#### [要旨]

本研究開発の目的は、経済的に小規模経営体に普及可能かつ畜産廃水処理の低炭素・グリーン化を推進する処理システムを確立することであり、畜産由来の液状廃棄物の適正処理の徹底化を目指すものである。そのための汚水処理法として、本研究では人工湿地法を提案する。法令適用外の小規模畜産農家への人工湿地の導入を促進するためには、ユーザーとなる小規模畜産農家が理解できる人工湿地についてのマニュアルが必要である。本研究では、ユーザー向けマニュアルを作成するために必要な人工湿地の基礎データを取得するため、8年間に渡り搾乳排水の浄化処理を行ってきた人工湿地を調査対象としてデータを蓄積してきた。その成果として、①8年間の中長期的なBOD・全窒素・全リンの浄化処理性能と安定性を明らかにした。②中長期的な処理において達成可能な水質レベルを明らかにした。③中長期的な処理におけるBOD・全窒素・全リンの浄化処理原単位（単位面積・時間あたりの浄化処理性能）を明らかにした。④BOD・全窒素・全リンの浄化処理におけるエネルギー原単位（単位処理負荷量あたりに必要な電力）を明らかにした。⑤中長期的なBOD・全窒素・全リンの浄化処理性能の安定性の機構を明らかにした。⑥中長期的な浄化処理における汚泥生成原単位（単位処理負荷量あたりに生成する汚泥量）を明らかにした。⑦中長期的な浄化処理における有機物・窒素・リンの物質収支⑧経年に伴い低下するリン除去性能の回復手法を開発した。⑨ナノシルバーの担持により殺菌機能を発揮するろ材を開発した。⑩ナノシルバー担持ろ材による連続殺菌処理を可能にするタイダルフローシステムを開発した。

#### [キーワード]

小規模畜産農家、液状廃棄物、人工湿地、浄化処理原単位、エネルギー原単位

#### 1. はじめに

家畜排せつ物法における管理基準対象農家に占める管理基準適合農家の割合は、平成22年12月1日時点まで99.97%に上るが、全農家に対する管理基準対象農家は約51%に過ぎず、小規模経営体における家畜糞尿の処理は法令の適用外となっている。一方、水質汚濁防止法の対象となる畜産農家は、豚房50m<sup>2</sup>、牛房200m<sup>2</sup>、馬房500m<sup>2</sup>以上を有する農家であり、この法令においても小規模経営体が適用外となっており、小規模経営体での適正な汚水処理が長年未解決の課題となっている。

畜産廃水は一般的な下水と比較するとBODで約7.4倍、T-Nで約4.6倍、T-Pで約8.2倍の汚濁濃度を有しており、高い汚濁処理能力を持った廃水処理技術が必要とされる。また、畜産経営における廃水処理費用は総費用の12%に、廃水処理労働は総労働の13%に上ると試算されており、低コストで簡易な技術が求められる<sup>1)</sup>。しかし、現在の畜産現場で主に用いられている曝気式ラグーン法に代表される活性汚泥法は、維持管理費が高く、運転・維持管理技術も煩雑であるため、小規模経営体にはほとんど普及していないのが現状である<sup>2, 3)</sup>。

このような背景から、本研究では、経済的に小規模経営体においても運用が可能で、低炭素・グリーン化と高度処理の両立が期待でき、近年世界各国での導入が進んでいる水質浄化法である人工湿地に着目し<sup>4)</sup>、経済的に小規模経営体に普及可能かつ畜産廃水処理の低炭素・グリーン化を推進する処理システムを確立することにより畜産由来の液状廃棄物の適正処理の徹底の実現を目指すこととした。

## 2. 研究開発目的

本研究では、我が国では数少ないフルスケールの人工湿地を対象として、特に中・長期的な運用における畜産廃水の高度処理性能の原単位を明らかにするとともに、リン除去性能の長期維持手法および人工湿地システムへの殺菌機能の付加手法を開発し、経済的に小規模経営体に普及可能かつ畜産廃水処理の低炭素・グリーン化を推進する処理システムを確立することを目的とした。

## 3. 研究開発方法

### 3-1 多段型人工湿地の概要

本研究で調査対象とした多段型人工湿地は5つの人工湿地ろ床で構成されている。その概要を図-1に示す。5つの人工湿地ろ床はすべて好気的処理に有利とされる鉛直流型のろ床である。総有効面積は111m<sup>2</sup>であり、上流から4つ目までの湿地面積は下流ほど小さく、ポリッシングを目的とした最終段の面積は1段目と同じ面積となっている。5段の人工湿地ろ床は、それぞれ異なる条件に設定された3区画に分画されている。BOD・窒素・リンの処理原単位の解明は、ヨシを植栽した植栽区（低水位）と遮光により植物の生長を抑制した無植栽区（低水位）を対象として行った。一方、ケイ酸カルシウム（軽量気泡コンクリート(ALC)）の再投入によるリン除去性能の延命化効果の検証は、経年に伴ってリン除去性能の低下が顕著となった無植栽区（低水位）を対象として行った。5段の人工湿地のろ床の構成を表-1に示す。1段目から4段目の人工湿地のろ床厚は約0.7mであり、表層0.05mにはリンの保持とアルカリ度の安定を目的とした粒径約10mmのALCが敷き詰められている。下層の0.65mには汚濁成分の捕捉を目的としたろ材が充填されており、下流の人工湿地ろ床ほどろ材の粒径が小さくなるように材料を選択した。ポリッシングを目的とした5段目の人工湿地のろ床厚は0.15mであり、ろ材には粗砂を使用した。5段目にはALCの敷設は行わなかった。

### 3-2 8年間の人工湿地の運転状況と水質モニタリングによるBOD・窒素・リンの処理原単位の解明

多段型人工湿地に流入させた汚水は、乳牛30頭の搾乳を行っている畜舎で生じた排水である。図-1に示されるように、汚水はそれぞれの段に設置された分水枠を経て人工湿地に流入する仕組みであり、分水枠の水門の開閉により汚水を流入させる人工湿地の区画を選択できるようになっている。採水を行う際には、この分水枠の水門の開閉操作により、同一条件の区画で多段処理が行われるようにし、異なる区画由来の処理水が目的採水区画に混入しないようにした。水質モニタリングは2009年9月より各区画につき毎月1回すべての段の流入水と流出水（処理水）を採水して実施した。サンプル水のBOD濃度、全窒素(TN)濃度、全リン(TP)濃度、懸濁物質(SS)濃度は、下水試験方法に従って測定した。人工湿地現地（宮城県大崎市）の気温、流入水温及び原水ポンプ稼動回数をデータロガーにより自動計測し、ポンプ稼動回数とポンプ稼動1回あたりの排出水量から人工湿地への流入水量を計算した。これらにより把握した8年間の畜産排水処理における流入負荷量と除去負荷量より、中長期的なBOD、窒素およびリンの浄化処理原単位を算出した。さらに、植栽区と無植栽区で得られた浄化処理原単位を比較することで、植物の存在の有無による中長期的な浄化処理原単位の違いを明らかにした。

### 3-3 人工湿地の処理運転・維持管理に要するエネルギー原単位の解明

図-1に示されるように、本研究で調査対象とした多段型人工湿地は5つの人工湿地ろ床で構成されて

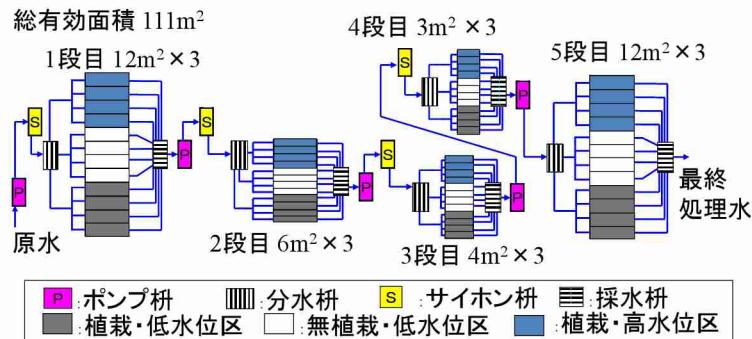


図-1 本研究で調査対象とした多段型人工湿地の概要

表-1 5段の人工湿地のろ床の構成

1段目	2段目	3段目	4段目	5段目
表層ろ材 ALC*	ALC*	ALC*	ALC*	-
(層厚0.05m) （粒径3-15mm）	（粒径3-15mm）	（粒径3-15mm）	（粒径3-15mm）	
メインろ材 貞岩	貞岩	粗砂	粗砂	粗砂**
(層厚0.65m) （粒径5-10mm）	（粒径1-5mm）			

\*軽量気泡コンクリート(Autoclaved lightweight aerated concrete) \*\*5段目の層厚は0.15m

おり、ろ床毎にポンプ枠や採水枠が存在している。このように5つの揚水ポンプにより、5つの人工湿地ろ床に送水される仕組みとなっており、人工湿地の処理運転に要するエネルギーは、これら5つの揚水ポンプの稼働に必要な電力である。人工湿地の運転に要した電力は、電気メーターの数値を毎月1回モニタリングすることで把握した。物質収支を把握するためのサンプリングを除き、8年間の畜産排水処理において、人工湿地に蓄積する汚泥や植物バイオマスの除去や回収は一切行わなかったことから、維持管理に要したエネルギーはゼロである。人工湿地の処理運転・維持管理に要するエネルギー原単位は、電気メーターにより把握した消費電力を、3-2で求めたBOD、窒素およびリンの浄化処理量で除することで算出した。

### 3-4 ALCの再投入によるリン除去性能の延命化効果の検証

本研究における調査対象とした多段型人工湿地の3区画の中で、経年に伴うリン除去性能の低下が顕著であった無植栽区を対象として、ALCの再投入によるリン除去性能の延命化の検討を実施した。一方、植栽区にはALCの投入は行わなかった。ALCを再投入した無植栽区とALC投入前の無植栽区の様子を写真-1に示す。このALCを投入しなかった植栽区を比較対照としてリン除去性能の変化を評価することで、ALCの再投入によるリン除去性能の延命化効果が明らかとなることが期待できる。無植栽区へのALCの再投入は2016年9月に実施した。本人工湿地による畜産排水の処理は2009年6月に開始していたことから、処理開始から7年を経てALCの再投入を行ったことになる。ALCの再投入は1段目から4段目のろ床に対して行い、ろ床表層にALCの厚さが約5cmとなるように粒径10mm以下のALCを投入した。1段目から4段目のろ床に投入したALCの総量は $1.25\text{ m}^3$ となった。ALCの再投入効果を検証するため、引き続き毎月1回すべての段の流入水と流出水（処理水）の採水を実施し、サンプル水のBOD濃度、全窒素濃度、全リン濃度を測定して、ALC投入前後の水質浄化性能の変化を検証した。

### 3-5 人工湿地の堆積物、ろ床内蓄積物および植物バイオマスの調査

人工湿地で生じる汚泥（堆積物とろ床内の蓄積物）量を明らかにするために、直径約5cmの塩化ビニール管をろ床に打ち込み、ろ床上の堆積物とろ床のコアサンプルを採取した。コアサンプリングは、2015年10月に実施した。コアサンプリングの様子を写真-2に示す。本人工湿地による畜産排水の処理は2009年6月に開始していたことから、処理開始から6年が経過しており、本コアサンプリングにより、6年間の畜産排水処理に伴って人工湿地に残存した汚泥量が明らかとなる。

ろ床表層に堆積物が生じていたのは1段目だけであり、1段目表層のコアサンプルには、ろ材より上部に堆積層が含まれることが考えられた。そこで、1段目のコアサンプルの採取では、堆積層の存在を考慮して長さ15cmの塩化ビニール管を打ち込み、非破壊的にコアサンプルを取り出した。次いで、長さ10cmの塩化ビニール管を使用し、深さ10cm毎にろ床のコアサンプリングを行い、深さ65cmまでのサンプルを採取した。2段目から5段目の人工湿地では、表層を含む60cmまでのすべての深さに対し、長さ10cmの塩化ビニール管を使用したコアサンプリングを行った。1段目表層15cmのコアサンプリングでは、12本の塩化ビニール管を打ち込み、12本のサンプルを採取した。それ以外のすべてのコアサンプリングでは、それぞれ4本の塩化ビニール管を打ち込み、4本のサンプルを採取した。1段目表層の堆積層の厚さは、堆積層表層から堆積層とろ材の境界までの長さ



写真-1 ALCを再投入した無植栽区とALC投入前の無植栽区の様子



写真-2 コアサンプリングの様子(2015年10月16日撮影)

を測定することで求めた。堆積層とろ材の境界の様子を写真-3に示す。コアサンプル中の有機物量として、強熱減量（VSS量）を測定した。コアサンプル中の全窒素及び全リン量は、委託分析により定量した。

人工湿地における窒素・リンの物質収支に占める植物バイオマスの割合を明らかにするために、一辺50cmのコドラートを用

い、1段目から5段目の表層から植物を採取した。植物バイオマス採取の様子を写真-4に示す。植物バイオマスに含まれる全窒素及び全リン量は、委託分析により定量した。植物バイオマス量が季節によって変化することを考慮し、植物バイオマスの採取は、コアサンプリングを実施した季節に合わせ、2016年10月に実施した。

### 3-6 人工湿地の有機物・窒素・リンの物質収支の計算

6年間の畜産排水処理における有機物・窒素・リンの流入および流出負荷量は、1ヶ月の平均値を元に各年毎に6年分を計算した。有機物・窒素・リンそれぞれの植物バイオマスとしての存在量、堆積層としての存在量、濾床内における存在量は、式(1)～(3)に従って1～5段の各ろ床について計算した。

$$X = x \times \frac{w}{100} \times \frac{A}{A_c} \quad (1)$$

$$Y = v \times \rho \times (1-u) \times w \quad (2)$$

$$Z = Y \times \frac{V}{v} \quad (3)$$

ここでX:植物バイオマスとしての有機物・窒素・リン存在量 (kg)、x:採集植物バイオマスの乾燥重量 (kg)、w:有機物・窒素・リンの含有率 (%)、A:人工湿地面積、Ac:植物バイオマス採集面積、Y:コアサンプル内の有機物量 (g-VSS/cm<sup>3</sup>)、コアサンプル内の窒素量 (g-N/cm<sup>3</sup>)、コアサンプル内のリン量 (g-P/cm<sup>3</sup>)、v:コアサンプル体積 (cm<sup>3</sup>)、V:人工湿地の体積 (m<sup>3</sup>)、Z:人工湿地内に蓄積した有機物 (kg-VSS)、窒素(kg-N)、リン(kg-P)量、ρ:コアサンプル湿潤密度 (g-wet/c m<sup>3</sup>)、u:含水率とした。

### 3-7 殺菌作用を有するナノシルバーを担持させたろ材の殺菌効果の検証

多くの排水処理施設で適用されている塩素消毒は、処理水中に残留する遊離塩素が水生生態系に影響を及ぼすことが課題となっている。一方、ナノテクノロジーにより開発されたナノシルバーは650種以上の菌に殺菌効果があることが確認され、その活用により殺菌機能を有したろ材を開発することができれば、塩素消毒に頼らずに殺菌処理を行うことが可能となる<sup>5)</sup>。そこで本研究では、ナノシルバーを用いて殺菌機能を有するろ材を創出することを目指し、まず一般的なろ材にナノシルバーを付加することを試みた。次いでナノシルバーを付加したろ材の殺菌機能を発揮させるために必要な条件について検討を行った。安価で入手し易い材料であることを念頭に、ここでの供試ろ材は、ホームセンター等で手に入れることができるものとし、軽石、活性炭、ゼオライト、リサイクルガラス造粒砂、化粧石、ハイドロボール及び麦飯砂利の7種の材料を比較した。ナノシルバーとして、ナノサイズのシリカ粒子にナノシルバーが担持されているTSSC-2000((株)UVコート)を使用した。ナノシルバーの付加は、蒸留水で1000ppmの濃度に調整したTSSC-2000にろ材を約1分間浸すことを行った。TSSC-2000に浸したろ材の乾燥は室温で行った。ナノシルバーを付加したろ材の殺菌性能を評価するための試験水として、日本大学工学部キャンパス内を流れる河川水を用いた。河川水には大腸菌群が存在しており、大腸菌群濃度の変化により殺

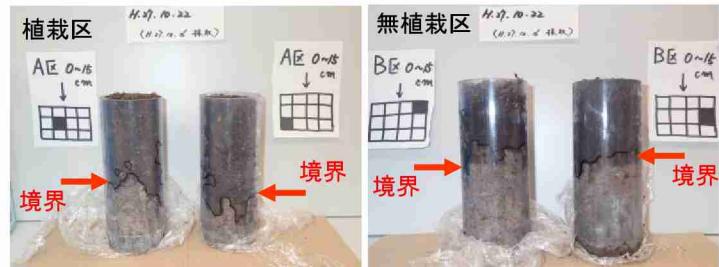


写真-3 コアサンプル内の堆積層とろ材の境界の様子



写真-4 植物バイオマスの採取の様子

菌性能を評価できる。殺菌試験においては、ナノシルバーを付加したろ材を80mLの目盛りまで充填した100mLコニカルビーカーに試験水を100mLの目盛りまで投入し、室温で24時間、ろ材と試験水を接触させた。接触前後の試験水中に生存する大腸菌群を平板培地法で測定することで殺菌率を求め、殺菌性能を検証した。

### 3-8 ナノシルバーを担持させたろ材の殺菌性能を維持するための運転方法の検討

初年度の研究において、ろ材に担持したナノシルバーの殺菌機能を発揮させるためには、ろ材の乾燥が必要である反面、試験水との接触時間は長い方が良いことが明らかとなった。つまりろ材の乾燥と処理対象水との接触を効率的に実現する運転方法の開発が課題となった。そこで本研究では、ろ材の乾燥と処理対象水との接触を効率的に行う手法としてタイダルフローを利用したシステムを考案し、試作した実験装置による連続殺菌処理を試みた。タイダルフローとは、潮の満ち引きにおける水位変動のようにろ床内の水位の低下（干潮）と上昇（満潮）を交互に行う水位管理手法である。水位の低下時にはろ材が乾燥し、水位の上昇時には処理対象水との接触により殺菌が行われる。このように水面を変動させる操作を一定時間毎に交互に行うことによって、ろ材の乾燥と処理対象水との接触を効率的に行うことができると考えられた。試作したタイダルフロー実験装置の外観と概要を写真-5に示す。ろ材を充填した円筒カラムの入口と出口にタイマー制御した電磁弁を設置することで、カラム内の水位変動をコントロールし、カラム内の水面が潮の満ち引きのように上下に変動するタイダルフローを実現させた。このような実験装置を用いて、試験水とろ材との接触時間とろ材の乾燥時間との合計を24時間とした24hサイクルと、その合計を12時間とした12hサイクルの2つのタイダルフロー条件で連続殺菌処理実験を行った。実験開始から25日までのRun Aでは、接触時間と乾燥時間の比率を1:1とし、25日から53日目までのRun Bでは比率を3:1に、54日から66日目までのRun Cでは比率を5:1とした。67日以後

のRun Dでは、接触時間と乾燥時間の比率を再び1:1に戻した。試験水には、大腸菌群が検出される河川水を用いた。殺菌性能を評価するため、カラムから排出された処理水とカラムに供給せずに同時に放置した河川水の大腸菌群数を測定し、式(4)-(5)に従って大腸菌群の生残率及び低減レベルを算出した。

$$\text{生残率} = \frac{\text{処理水中の生残数}}{\text{河川水中の生残数}} \quad (4)$$

$$\text{大腸菌群低減レベル} = -\log\left(\frac{\text{処理水中の生残数}}{\text{河川水中の生残数}}\right) \quad (5)$$

## 4. 結果及び考察

### 4-1 人工湿地の運転状況

畜産排水の流入を開始してから3か月間の馴致運転期間を含む8年間の日流入水量および積算流入水量の推移を図-2に示す。日流入水量の最高値が1年目に大きいのは、雨天時に発生する畜舎運動場からの流出水が畜舎排水と合流していたためである。2年目以降は、畜舎運動場からの流出水の合流がなくなっ

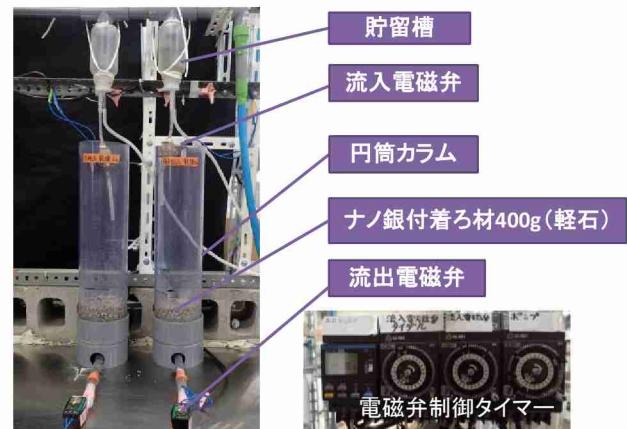


写真-5 試作したタイダルフロー実験装置の外観と概要

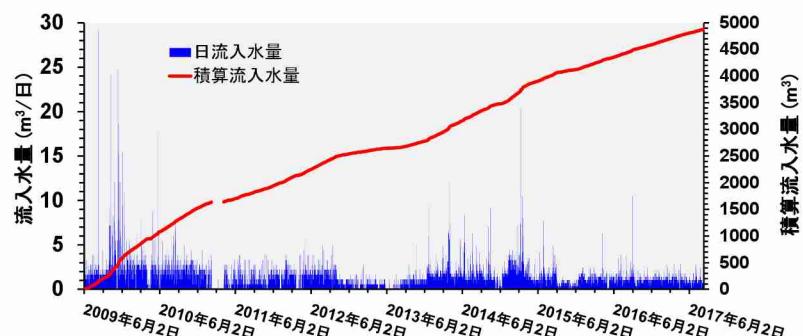


図-2 畜産排水の流入を開始してから3か月間の馴致運転期間を含む8年間の日流入水量および積算流入水量の推移

たために流入水量が低下している。また、2011年2月7日から4月5日の58日間のデータは、東日本大震災により欠損した。このデータ欠損期間の流入水量を除いた馴致運転期間を含む全モニタリング期間(2017年8月31日まで)の積算流入水量は4927m<sup>3</sup>に達し、日流入水量の平均値は1.70m<sup>3</sup>であった。

#### 4-2 BOD・窒素・リンの中長期的な浄化処理原単位

畜産排水原水(流入水)と5段目の人工湿地の流出水(最終処理水)のBOD濃度とこれらの濃度から算出した除去率の8年間の推移を図-3に示す。8年間の流入水および最終処理水のBOD濃度および除去率の平均値は、植栽区ではそれぞれ1353mg/L、21mg/L、98.0%であった。一方、無植栽区ではそれぞれ1266mg/L、42mg/L、96.4%であった。図-3に示されるように、8年程度の中長期的なBOD浄化性能は非常に安定しており、95%を超える高い浄化性能が持続することを実証することができた。一方、植栽区と無植栽区で8年間に得られた最終処理水濃度と除去率の双方において有意な差( $p<0.05$ )が認められ、植栽の有無が人工湿地のBOD除去性能に有意な差を生み出すことが明らかとなった。初期3年間の比較では有意な差が見られなかったことから、このような植栽の効果は中長期的な経年に伴い現れることが分かった。

5段の人工湿地の各段におけるBOD除去量の8年間の推移を植栽区と無植栽区で比較した結果を図-4に示す。各段におけるBOD除去量は、各段における流入水と処理水の濃度差と日平均流入水量の積より求めた毎月の各段でのBOD除去量の年平均値である。毎年BOD除去量に差異があるのは、年毎にBOD負荷量が異なったためであり、負荷量が最大であった3年目に最大の除去量が得られている。5段全体の中での各段での除去量に着目すると、8年間を通して1段目の人工湿地での除去量が最大であることは変わらなかった。その割合を明確にするため、5段全体での除去量に占める各段での除去量の割合を示したグラフを図-5に示す。1段目のBOD除去量の割合は、最初の5年間は経年により低下し、5年目では50%以下となつたが、それ以降は増加して65%前後で落ち着く傾向が示された。8年間の傾向として、下流の人工湿地の除去量が占める割合は8年間の畜産排水処理を経ても低く、余裕を持ってBOD除去が行えていると言える。そのような傾向は植栽区と無植栽区で共通しており、植物の存在による傾向の違いは見られなかった。

本研究で調査対象とした多段型人工湿地の各段の面積は、図-1に示すように1段目から4段目では下流ほど小さく、ポリッシングを目的とした5段目は1段目と同じ面積となっている。このように面積が異なるため、BOD除去に占め

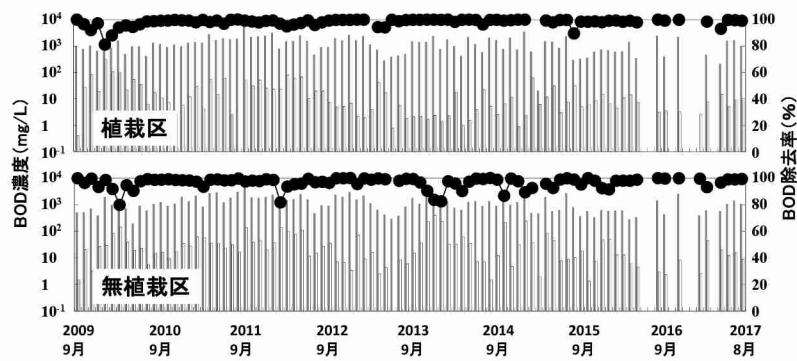


図-3 植栽区と無植栽区における8年間のBOD除去性能の推移。  
■, 流入水濃度; □, 最終処理水濃度; ●, 除去率

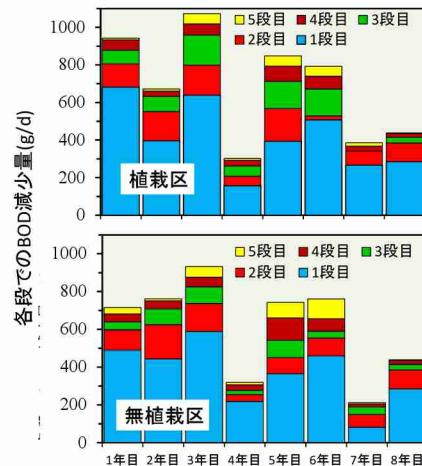


図-4 植栽区と無植栽区の各段におけるBOD除去量の8年間の推移

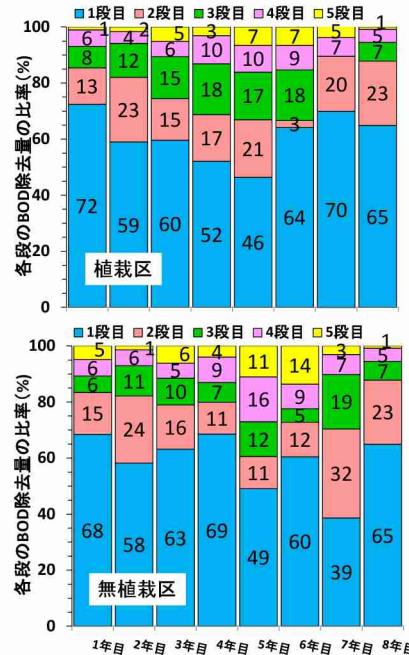


図-5 植栽区と無植栽区の各段での除去量の割合の8年間の推移

る各段での除去量の割合が面積に依存していた可能性がある。そこで各段でのBOD除去量を各段の面積で除して単位面積あたりの除去量を求め、その経年変化を植栽区と無植栽区で比較した結果を図-6に示す。上流ほど面積あたりのBOD除去量が高い状況が3年目まで継続していたが、経年とともに上流と下流の人工湿地間の差は減少し、面積あたりのBOD除去量が逆転している箇所も確認された。しかし、8年間が経過しても5段目の人工湿地の面積あたりのBOD除去量は圧倒的に低く、5段目までにBODが十分に除去されていることが示された。このような傾向は植栽区と無植栽区で共通していた。

畜舎排水原水（流入水）と5段目の人工湿地の流出水（最終処理水）の全窒素濃度とこれらの濃度から算出した全窒素の除去率の8年間の推移を図-7に示す。8年間の流入水および最終処理水の全窒素濃度および除去率の平均値は、植栽区ではそれぞれ87.5mg/L、7.5mg/L、88.6%であった。一方、無植栽区ではそれぞれ84.4mg/L、13.0mg/L、82.7%であった。図-7に示されるように、植栽区では、BODほどではなかったが、8年程度の中長期的な窒素浄化性能は高いレベルで安定しており、85%を超える高い浄化率が持続することを実証

することができた。BODと異なり、窒素では、畜産排水の浄化処理開始から5年以降では、植栽区と無植栽区の最終処理水濃度と除去率の両方で单年度での比較でも有意な差

( $p<0.01$ ) が認められており、植栽の有無による窒素除去性能の差異が、比較的早期により明確に現れることが明らかとなつた。

5段の人工湿地の各段における全窒素除去量の8年間の推移を植栽区と無植栽区で比較した結果を図-8に示す。各段における全窒素除去量は、各段における流入水と処理水の濃度差と日平均流入水量の積より求めた月毎の各段での全窒素除去量の年平均値である。年毎に全窒素除去量に差異があるのは、全窒素負荷量が異なったためであり、負荷量が最大であった3年目に除去量が最大となっている。5段全体の中での各段での除去量に着目すると、BODでの結果と同様に、8年間を通して1段目の人工湿地での除去量が最大であることは変わらなかった。その割合を明確にするため、5段全体での除去量に占める各段での除去量の割合を示したグラフを図-9に示す。植栽区の結果に着目すると、全窒素除去量の割合は1段目が最大であるが、その割合は経年により低下し、5年目では50%未満となつたが、それ以後は落ち着き、55%前後で安定する傾向となつた。これはBODとほぼ同じ傾向であり、8年間の傾向として、下流の人工湿地の除去量が占める割合は8年間の畜産排水処理を経ても低く、余裕を持って窒素除去が行えてい

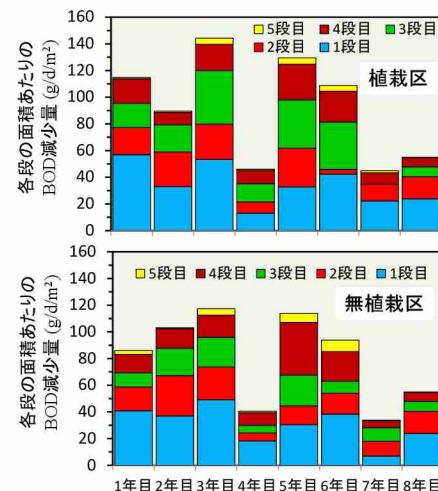


図-6 植栽区と無植栽区の各段における単位面積あたりのBOD除去量の推移

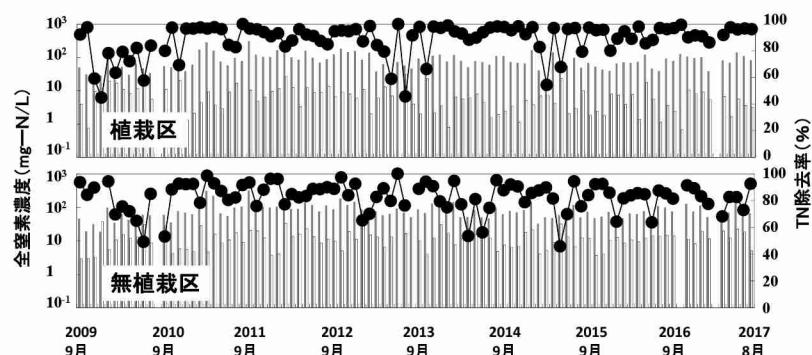


図-7 植栽区と無植栽区における8年間の窒素除去性能の推移.  
■,流入水濃度; □,最終処理水濃度; ●,除去率

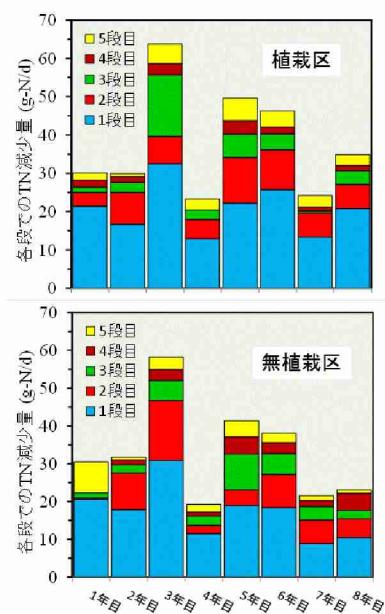


図-8 植栽区と無植栽区の各段における全窒素除去量の8年間の推移

ると言える。しかし、4年目の4段目では溶出量が除去量を上回ったため、負の値が示されている。一方、無植栽区では、全体の傾向は植栽区と同様であるが、1段目の全窒素除去量の割合がやや低下傾向にあり、8年間の中長期的な処理により、45%前後で安定する結果となった。このように、植栽の存在による傾向の違いが、窒素除去において現れた。

本研究で調査対象とした多段型人工湿地の各段の面積は、図-1に示すように各段で異なるため、総窒素除去に占める各段での除去量の割合が面積に依存していた可能性がある。そこで各段での総窒素除去量を各段の面積で除して単位面積あたりの除去量を求め、その経年変化を植栽区と無植栽区で比較した結果を図-10に示す。上流ほど面積あたりの窒素除去量が高い状況は1年目だけであり、面積あたりの窒素除去量の逆転が2年目より見られた。これは窒素の除去反応が多段階（有機態窒素のアンモニア化反応、硝化反応および脱窒反応）であるためであり、BODとは異なり、中流に位置する人工湿地での面積あたりの除去量が大きくなることが明らかとなった。差は僅かであるが、5段目の人工湿地の面積あたりの窒素除去量は、植栽区の方が高くなる傾向が現れた。これは、最下流に位置する5段

目の人工湿地では、脱窒に必用な有機物が不足していることが原因として考えられる。植栽区では植物の枯死体や根が分泌する有機物が利用可能であり、特に枯死体は経年により増加することから、その存在が植栽区と無植栽区の窒素除去性能の差異を生み出していたと考えられた。

畜舎排水原水（流入水）と5段目の人工湿地の流出水（最終処理水）の全リン濃度とこれらの濃度から算出した全リン除去率の8年間の推移を図-11に示す。8年間の流入水および最終処理水の全リン濃度および除去率の平均値は、植栽区ではそれぞれ19.8mg/L、2.5mg/L、85.1%であった。一方、無植栽区ではそれぞれ18.2mg/L、4.3mg/L、75.0%であった。図-11に示されるように、植栽区におけるリン除去率は低下傾向にあるものの、平均では80%以上を維持しており、8年程度の期間であれば80%前後の浄化率の持続が可能であることを実証することができた。全窒素と同様に、植栽区と無植栽区で得られた最終処理水濃度と除去率の両方で有意な差

( $p < 0.01$ ) が認められ、植栽の有無が人工湿地のリン除去性能に有意な差を生み出しが明らかとなった。そのような植栽の有無による差異は、リンでは処理運転開始2年目から確認されており、窒素よりも早く植栽の存在効果が現れることが示された。

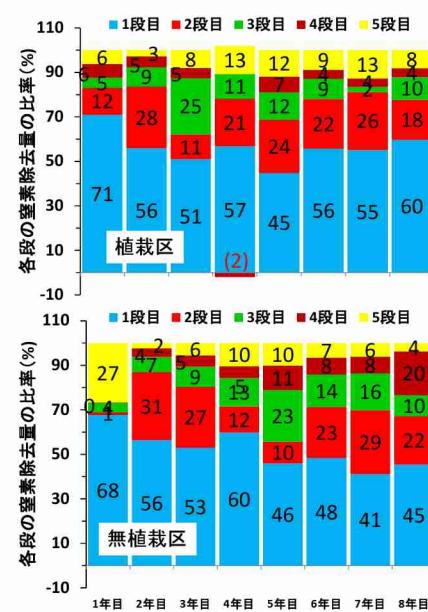


図-9 植栽区と無植栽区の各段での全窒素除去量の割合の8年間の推移

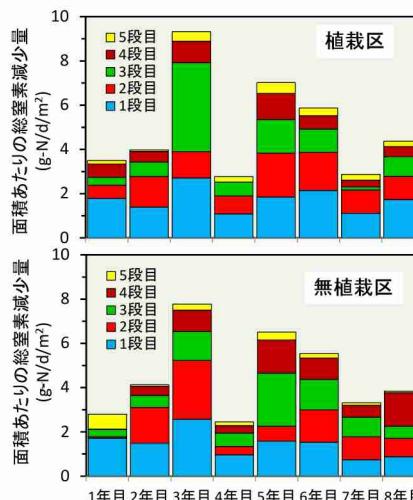


図-10 植栽区と無植栽区の各段における単位面積あたりの総窒素除去量の推移

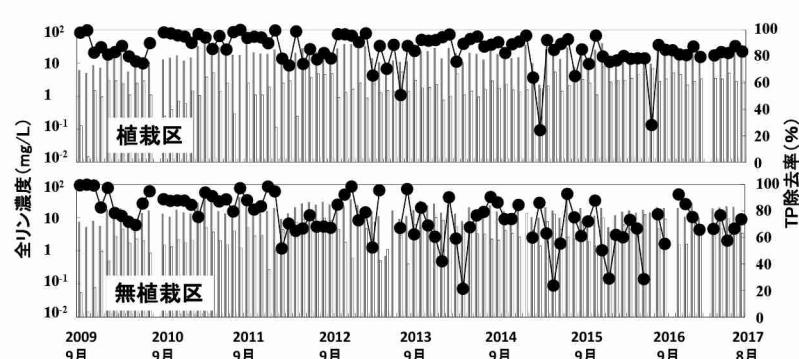


図-11 植栽区と無植栽区における8年間のリン除去性能の推移。  
■, 流入水濃度; □, 最終処理水濃度; ●, 除去率

5段の人工湿地の各段における全リン除去量の8年間の推移を植栽区と無植栽区で比較した結果を図-12に示す。各段における全リン除去量は、各段における流入水と処理水の濃度差と日平均流入水量の積より求めた毎月の各段での全リン除去量の年平均値である。年毎の全リン除去量の差異は、全リ

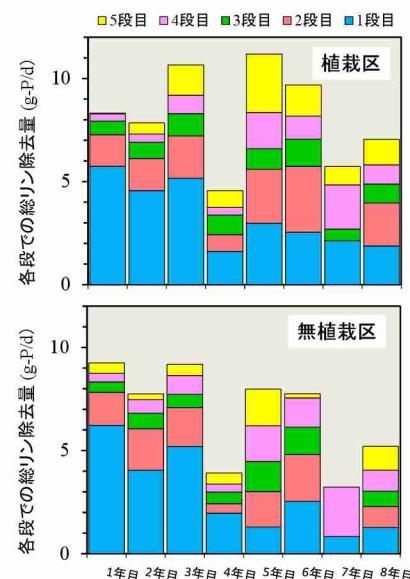


図-12 植栽区と無植栽区の各段における全リン除去量の8年間の推移

ン負荷量の差異を反映しており、負荷量が高い年に除去量も高くなる傾向となっている。5段全体の中での各段での除去量に着目すると、BODや全窒素での傾向と異なり、1段目の人工湿地での除去量が占める割合が経年に伴い低下する傾向が明らかであった。その割合を明確にするため、5段全体での除去量に占める各段での除去量の割合を示したグラフを図-13に示す。当初最大であった1段目の除去量が占める割合は経年により低下し、5年目では、植栽区では僅かに1段目が2段目を上回っていたが、無植栽区では2段目の除去量が1段目を逆転していた。このように下流の段の除去量が占める割合が経年とともに増加する傾向はリンでは顕著であり、経年に伴う浄化処理性能の低下を、各段における除去量の変化の推移により説明することができた。また、そのような変化は植栽区よりも無植栽区でより早くなることが示された。無植栽区の結果に着目すると、浄化処理開始から7年目では、1段目と4段目以外ではリンの除去が見られず、5段目では溶出量が除去量を大きく上回っており、グラフでは負の値となっており、リン除去性能の経年に伴う低下を裏付ける結果となっている。8年目に各段におけるリン除去が回復しているのは、8年目の9月にALCを投入した効果であり、その結果については4-4において述べる。

本研究で調査対象とした多段型人工湿地の各段の面積は、図-1に示すように各段で異なるため、リン除去に占める各段での除去量の割合が面積に依存していた可能性がある。そこで各段での全リン除去量を各段の面積で除して単位面積あたりの除去量を求め、その経年変化を植栽区と無植栽区で比較した結果を図-14に示す。上流ほど面積あたりの除去量が高い状況は2年目までであり、面積あたりの全リン除去量の逆転が3年目より見られた。BOD成分や窒素と異なり、リンはガス化しないため、除去されたリンは人工湿地中に蓄積される。このため、蓄積されたリンが経年により溶出する可能性があるが、上流と下流の湿地のリン除去量の逆転は、そのような蓄積されたリンの溶出を反映しているものと考えられる。7年目の無植栽区において1段目と4段目以外でリン除去量がゼロとなっているのは、リン除去量と溶出量

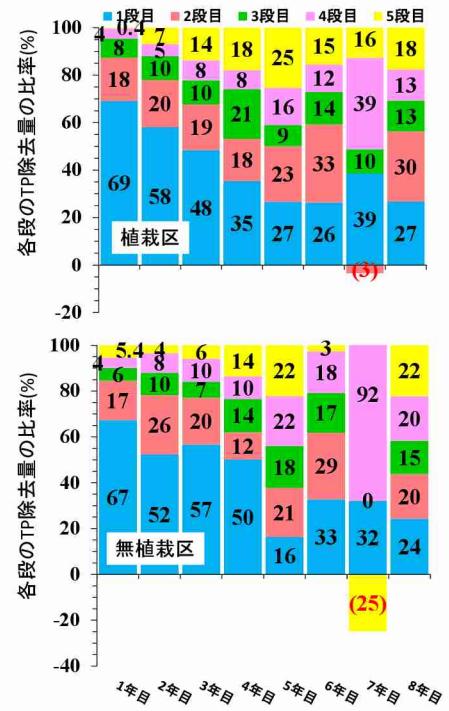


図-13 植栽区と無植栽区の各段での全リン除去量の割合の8年間の推移

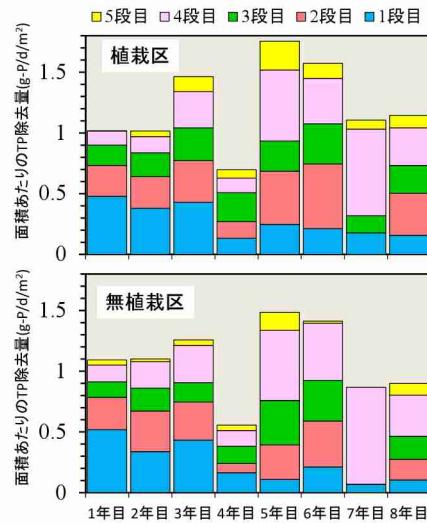


図-14 植栽区と無植栽区の各段における単位面積あたりの全リン除去量の推移

が同等であるためと考えられる。一方、7年間を経過しても植栽区においてそのような現象が見られないのは、植栽区では、溶出したリンを植物が吸収して植物体として保持するためであると考えられ、そのような植物の働きが、植栽区と無植栽区における中長期的なリンの浄化処理性能の差異を生み出していることが推察される。

8年間の処理水量：4927m<sup>3</sup>、8年間の処理日数：2893dayおよび人工湿地面積：111m<sup>2</sup>と8年間の原水および処理水の平均濃度より、8年間の中長期的な浄化処理の原単位を算出した。植栽区の原水および処理水の平均BOD濃度は、それぞれ1353および22mg/lであり、BODの浄化処理原単位は20.4g/d/m<sup>2</sup>となった。これに対し、無植栽区の原水および処理水の平均BOD濃度は、それぞれ1266および42mg/lであり、BODの浄化処理原単位は18.8g/d/m<sup>2</sup>となり、植栽の存在によりBODの浄化処理原単位が8.5%増加したことが明らかとなった。窒素では、植栽区の原水および処理水の平均濃度は、それぞれ87および7.5mg-N/lであり、窒素の浄化処理原単位は1.20mg-N/d/m<sup>2</sup>となった。無植栽区の原水および処理水の平均濃度は、それぞれ84および13mg-N/lであり、浄化処理原単位は1.09g-N/d/m<sup>2</sup>となったことから、植栽の存在により窒素の浄化処理原単位が10%増加したことが明らかとなった。リンでは、植栽区の原水および処理水の平均濃度は、それぞれ20および2.5mg-P/lであり、リンの浄化処理原単位は0.27mg-P/d/m<sup>2</sup>となった。これに対し、無植栽区の原水および処理水の平均濃度は、それぞれ18および4.3mg-P/lであり、浄化処理原単位は0.21g-P/d/m<sup>2</sup>となったことから、植栽の存在によりリンの浄化処理原単位は28.5%増加したことが明らかとなった。このように水質項目によって植栽の存在による効果は異なったが、どの水質項目に対しても植栽の存在がプラスに働き、浄化処理原単位を増加させることを明らかにすることことができた。植栽の存在によるプラス効果はリンにおいて特に顕著であり、中長期的なリン除去性能の維持に植栽の存在が重要な役割を果たすことが示された。

#### 4-3 人工湿地の処理運転・維持管理に要するエネルギー原単位の解明

3-3で述べたように、8年間の畜産排水処理において人工湿地に蓄積する汚泥や植物バイオマスの除去や回収は一切行わなかったことから、労働コストと維持管理に要したエネルギーはゼロとした。一方、図-1に示されるように、本研究で調査対象とした多段型人工湿地は5つの人工湿地ろ床で構成されており、それぞれの人工湿地ろ床へ送水する合計5基の揚水ポンプの稼働に要した電力が、処理運転に要したエネルギーであり、本プロジェクト期間の3年間（6年目から8年目まで）の平均消費電力である0.53kWh/dと4-2で明らかにした各水質項目に対する浄化処理原単位（植栽区の値を使用）より、人工湿地の処理運転・維持管理に要するエネルギー原単位を求めた結果、BODでは0.23Wh/g-BOD、全窒素では4.0Wh/g-N、全リンでは18.7Wh/g-Pとなった。これらの値の相対的な位置づけを評価するため、高度処理型浄化槽のエネルギー消費原単位（BOD:9.2Wh/g-BOD、全窒素:50.1Wh/g-N、全リン:405Wh/g-P）と比較すると、BODではマイナス97.5%、窒素ではマイナス92%、リンではマイナス94.5%の低炭素化が達成できることになり、提案する人工湿地法が極めて省エネルギーな汚水処理法であることが示された。

一方、本研究で明らかにした人工湿地のBODの浄化処理原単位（20.4g/d/m<sup>2</sup>）に基づくと、1日当たりのBOD処理負荷量は2264g-BODであり、ひとりが排出する生活排水のBOD原単位を40g/dとすると、約57人分の生活排水に相当する。そこで、処理規模が同等の50人槽の通常型浄化槽の消費電力（10.6kWh/d）と本研究で調査対象とした多段型人工湿地の平均消費電力（0.53kWh/d）を比較評価すると、多段型人工湿地の消費電力はマイナス95%となり、高度処理型浄化槽との比較評価結果と同様に、従来技術である浄化槽と比較して人工湿地法が極めて省エネルギーな汚水処理法であることが示された。

8年間の畜産排水の処理において、人工湿地に蓄積する汚泥や植物バイオマスの除去や回収等の作業が不要であったことや従来技術である浄化槽と比してマイナス95%の消費電力で同等の浄化処理が可能であったことから、本研究で提案する人工湿地法が、経済的に小規模経営体においても運用が可能で、低炭素と高度処理の両立を推進する汚水処理システムとして大きな可能性を有していることを示すことができた。

#### 4-4 中長期的な人工湿地による搾乳排水処理において期待できる処理水質

環境基準や排水基準は、各水質項目の濃度で規制されている。そこで、人工湿地による中長期的な浄化処理における処理水の水質レベルを各水質項目の濃度に基づき評価した。植栽区で得られた8年間の搾乳

排水による処理水質の分布と累積度数を図-15に、全データの上位から25%、50%、75%の順位における濃度を表-2に示す。BOD、全窒素、全リンの各濃度に加えて、人の健康の保護に関する環境基準の水質項目のひとつである硝酸態窒素の濃度についても示した。BODに着目すると、一律排水基準の日間平均濃度120mg/lを超えたデータが8年間で1回あつたが、それを除けば一律排水基準を満足する濃度が得られていた。

75%値の濃度が22.4mg/lであったことから、通常型浄化槽で目標としている濃度レベル(20mg/l)とほぼ同等の処理水質が得られることが示された。全窒素に着目すると、一律排水基準の日間平均濃度60mg/lを超えたことは1回もなく、一律排水基準を余裕を持って満足する処理水質が得られていたことが示された。

75%値の濃度が9.5mg-N/lであったことから、高度処理型浄化槽に匹敵するレベル(20mg-N/l)の処理水質が得られていたと言える。全リンにおいても、一律排水基準の日間平均濃度8mg/lを超えたことは1回もなく、一律排水基準を満足する水質が得られていたことが示された。75%値の濃度が3.3mg-P/lであったことから、高度処理型浄化槽に近いレベル(1mg-P/l)の処理水質が得られていたと言える。硝酸態窒素に着目すると、人の健康の保護に関する環境基準(硝酸イオンの濃度に換算係数0.2259を乗じた値)を十分に満足する水質であり、75%値の濃度でも2.6mg-N/lと非常に低いレベルであったことから、畜産排水に由来する地下水の硝酸態窒素濃度の増加の問題解決にも資するものとなる。4-3で述べたように、人工湿地法は経済的に小規模経営体においても運用が可能であり、人工湿地法の導入により、一律排水基準を満足する適正な汚水処理が、これまで法令の適用外となっていた小規模経営体において也可能になることが期待できる。

#### 4-5 ALCの再投入によるリン除去性能の延命化効果の検証

本研究で調査対象とした多段型人工湿地の3区画の中で、経年に伴うリン除去性能の低下が顕著であった無植栽区を対象として、畜産排水の浄化処理を開始してから8年目の2016年9月にALCの再投入を実施し、リン除去性能の延命化効果を検討した。ALC投入後の1年間を含む8年間のリン除去性能の推移を図-16に、ALC再投入前後1年間の流入水と処理水の全リン濃度と除去率の平均値を比較した結果を表-3に示す。図-16に示されるように、ALC投入以後もリン除去率の変動は起きていたが、

ALC投入以前に見られた月間のリン除去率が50%以下に低下するような変動は見られなくなり、ALCの再投入によってリン除去性能が回復することが示された。ALC再投入前後1年間の全リン除去率は、60%から73%に改善されていた。ALCによ

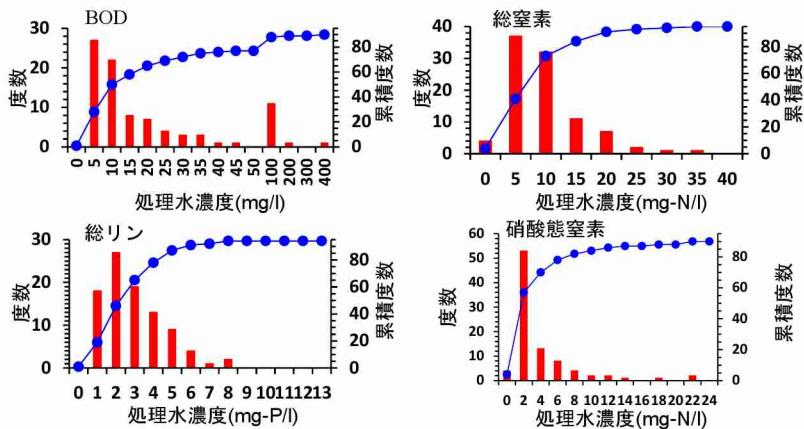


図-15 植栽区で得られた8年間の搾乳廃水処理水質の分布と累積度数

表-2 8年間の搾乳排水処理水質のレベル

	25%値	50%値	75%値
BOD (mg/l)	3.3	7.5	22.4
硝酸態窒素 (mg-N/l)	0.4	1.3	3.2
全窒素 (mg-N/l)	2.4	5.7	9.5
全リン (mg-P/l)	1.1	2.0	3.3

示された。75%値の濃度が9.5mg-N/lであったことから、高度処理型浄化槽に匹敵するレベル(20mg-N/l)の処理水質が得られていたと言える。全リンにおいても、一律排水基準の日間平均濃度8mg/lを超えたことは1回もなく、一律排水基準を満足する水質が得られていたことが示された。75%値の濃度が3.3mg-P/lであったことから、高度処理型浄化槽に近いレベル(1mg-P/l)の処理水質が得られていたと言える。硝酸態窒素に着目すると、人の健康の保護に関する環境基準(硝酸イオンの濃度に換算係数0.2259を乗じた値)を十分に満足する水質であり、75%値の濃度でも2.6mg-N/lと非常に低いレベルであったことから、畜産排水に由来する地下水の硝酸態窒素濃度の増加の問題解決にも資するものとなる。4-3で述べたように、人工湿地法は経済的に小規模経営体においても運用が可能であり、人工湿地法の導入により、一律排水基準を満足する適正な汚水処理が、これまで法令の適用外となっていた小規模経営体において也可能になることが期待できる。

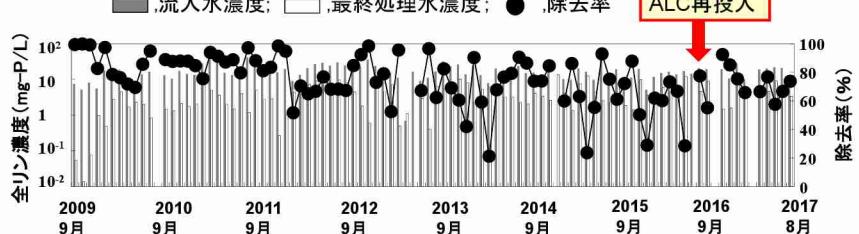


図-16 ALC投入前後の全リン除去性能の推移.

表-3 ALCの再投入前後1年間の全リン除去性能の比較

	流入水 (mg-P/l)	処理水 (mg-P/l)	除去率 (%)
投入以前	14.4	5.7	60.1
投入以後	18.2	4.9	73.2

る効果として、ALCに含まれるカルシウムが溶出することでリン酸カルシウムとしてリンが沈殿することが考えられ、ALCの再投入によりカルシウムの溶出が回復したことでリン除去性能が改善されたことが示唆された。今後も、そのようなカルシウムの溶出が継続することで、効果が持続することが期待できる。今回実施したALCの再投入は、古いろ材を取り出すことなく、ろ床表層に新たにALCを投入しただけであり、複雑で高価な工事が不要な非常に簡易的な手法である。したがって、汚水処理に労働費や維持管理費を割くことができない小規模経営体にも十分に導入可能な手法であり、その実用性を示すことができた。

#### 4-6 人工湿地による汚水処理における中長期的な汚泥生成原単位

調査対象とした多段型人工湿地の1段目のろ床の植栽区と無植栽区それぞれから12本を採取したコアサンプルにより測定したろ床表層に蓄積した汚泥の厚さの分布を図-17に示す。汚泥の厚さは均一ではなく、最大値と最小値の差が植栽区で105mm、無植栽区で79mm存在した。排水の流入口から人工湿地の奥行は僅か3mであり、間欠的に約1m<sup>3</sup>の畜舎排水が流入する際には、人工湿地表層全体を水面が覆い尽くし、排水は行き渡っていた。しかし、汚泥の厚さには明らかな差異が存在し、植栽区においてより大きな差異が生じたことから、人工湿地表層全体に排水が行き渡るようにまとまった量の排水を流入させても、人工湿地表層の起伏や植栽の存在により汚泥の厚さは均一にならないことが示された。排水の流入口を上流として、汚泥の厚さの平均値を上流、中間、下流で比較すると、図-17に示すように、植栽区では汚泥の厚さの平均値が上流側で明らかに高く、上流と下流の差が大きいのに対し、無植栽区では汚泥の厚さの平均値は均一であり、上流と下流の差が小さいことが明らかであった。この結果からも、植栽が障害となり堆積する汚泥の厚さが均一にならないことが示唆された。

汚泥の厚さの平均値は、植栽区及び無植栽区でそれぞれ97及び85mmとなり、植栽区が無植栽区を上回っていた。本人工湿地では植栽の刈り取りによる回収を行っていないため、この差異は人工湿地で生長し枯死した植物体が生み出したと考えられたが、植栽区と無植栽区の汚泥厚さの間に統計学的な有意な差は認められなかった( $p>0.05$ )。コアサンプリングによる汚泥厚の調査は、畜産排水処理開始から6年が経過した2015年10月に実施しており、これらの汚泥厚は6年間の畜産排水処理によって生じたものである。畜産排水の処理に伴う汚泥の生成速度は、植栽区及び無植栽区でそれぞれ16.2及び14.2mm/年であったことが推定された。これらの値は、生活排水原水を14年間受け入れたフランスの人工湿地における汚泥の生成速度(15mm/year)と同等であった。植栽区における平均汚泥厚が、無植栽区より12%大きかったことから、植栽の存在により汚泥生成量が12%増加することが示された。

植栽区で得られた平均汚泥生成速度16.2mm/年より、1年間の汚泥堆積速度は2cm未満になると考えられる。また、2段目以降のろ床表層には、汚泥の堆積が見られない。これらのことから、汚水処理開始から10年間、汚泥を回収しないことを前提とすると、1段目のろ床の構造として、ろ床上部に20cmの余裕高を設ける等、20cmの堆積物の蓄積を考慮した構造とすれば十分であると考えられた。

植栽区及び無植栽区で得られた汚泥の厚さの平均値に1段目のろ床面積(12m<sup>2</sup>)を乗じることで、6年間の畜産排水の処理によって生成した汚泥体積を推算したところ、植栽区及び無植栽区でそれぞれ1.16及び1.02m<sup>3</sup>の値が得られた。6年間に1段目のろ床で除去されたSS負荷量は、植栽区及び無植栽区でそれぞれ790および866kg-SSであり、SS除去量あたりの生成汚泥堆積原単位は、植栽区及び無植栽区でそれぞれ1473および1178cm<sup>3</sup>/kg-SSとなった。植栽区の生成汚泥堆積原単位は、無植栽区よりも25%大きく、植栽の存在により生成する汚泥堆積が25%増加することが示された。

同様にしてBOD除去量あたりの生成汚泥体積原単位を求めた。図-4に示すように、1段目のろ床の植栽

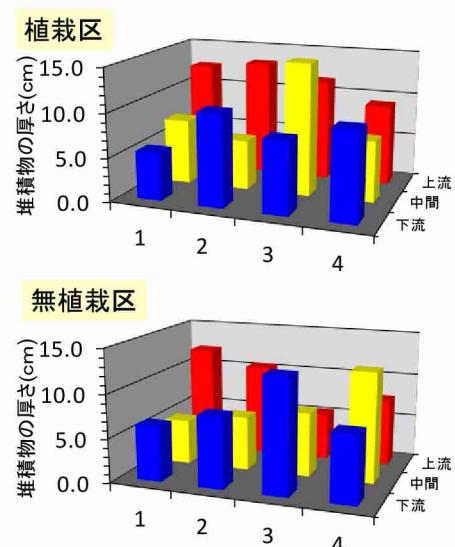


図-17 多段型人工湿地の1段目のろ床表層の汚泥厚の分布

区及び無植栽区で6年間に除去されたBODはそれぞれ1036および930kg-BODであったことから、生成汚泥体積原単位は、それぞれ1124および $1097\text{cm}^3/\text{kg-BOD}$ となった。植栽区の生成汚泥堆積原単位は、無植栽区よりも僅か2.5%大きいだけであり、除去負荷量のベースをBODとした場合には、植栽の存在による生成汚泥堆積の増加は僅かであることが明らかとなった。

#### 4-7 人工湿地における中長期的な有機物・窒素・リンの物質収支

6年間の畜産排水処理における有機物(BOD)の流入および流出負荷量、人工湿地における植物体としての存在量、ろ床表層の汚泥としての存在量、ろ床内における存在量より推定した植栽区における5段の人工湿地全体の有機物に関する物質収支を図-18に示す。6年間に1711.3kg-BODが流入し、40.4kg-BODが流出したことから、流入負荷量の97.6%が人工湿地により除去されたことになる。これ

に対し、人工湿地のろ床表層の汚泥として存在していた有機物量、ろ床内に存在していた有機物量および人工湿地の植物として存在していた有機物量を揮発性懸濁物質(VSS)として測定した結果、それぞれ11.3、72.0および18.02kg-VSSと推定され、その合計を全汚泥生成量とすると、除去BODあたりの全汚泥生成量の原単位は $0.061\text{kg-VSS/kg-BOD}$ となった。標準活性汚泥法における汚泥生成量原単位は、およそ $0.25\text{kg-VSS/kg-BOD}$ であることから、人工湿地における汚泥生成原単位はその約24%に相当し、余剰汚泥の生成量が標準活性汚泥法の4分の1未満で済むことが示された。

一方、無植栽区では、6年間に1543.3kg-BODが流入し、58.7kg-BODが流出したことから、流入負荷量の96.2%が人工湿地により除去されたことになる。これに対し、人工湿地のろ床表層の汚泥として存在していた有機物量、ろ床内に存在していた有機物量および人工湿地の植物として存在していた有機物量を揮発性懸濁物質(VSS)として測定した結果、それぞれ10.53、53.50および0kg-VSSと推定され、その合計を全汚泥生成量とすると、除去BODあたりの全汚泥生成量の原単位は $0.043\text{kg-VSS/kg-BOD}$ となった。植栽区における全汚泥生成量の原単位は、この約1.4倍であり、植栽の存在により全汚泥生成量の原単位が40%増加することが明らかとなった。

窒素の物質収支に着目すると、図-19に示されるように植栽区における6年間の流入窒素負荷量は97.8kg-Nであり、12.3kg-Nが流出したことから、流入負荷量の87.4%に相当する85.5kg-Nが人工湿地により除去されたことになる。これに対し、人工湿地のろ床表層の汚泥として存在していた窒素量、ろ床内に存在していた窒素量および人工湿地の植物として存在していた窒素量は、それぞれ9.0、12.7および0.5kg-Nと推定され、その合計は22.2kg-Nであった。したがって、人工湿地で除去された窒素の74%が、脱窒によるガス化や生物の移動による系外排出により消失し、人工湿地内での窒素の残存率は26%であることが明らかとなった。植物体として存在する窒素量は、全窒素除去量の約0.6%、人工湿地に残存する窒素量の3%未満に相当する量に過ぎないことが明らかとなった。

無植栽区における窒素の物質収支に着目すると、6年間の流入窒素負荷量は96.8kg-Nであり、15.7kg-Nが流出したことから、流入負荷量の83.8%に相当する81.1kg-Nが人工湿地により除去されたことになる。これに対

	植栽区	無植栽区
流入負荷量	1711.3kg-BOD (100)	1543.3kg-BOD (100)
植物体量	18.02kg-VSS	0kg-VSS
堆積層内蓄積量	11.30kg-VSS	10.53kg-VSS
ろ床内蓄積量	72.00kg-VSS	53.50kg-VSS
流出負荷量	40.4kg-BOD (2.4)	58.7kg-BOD (3.8)

図-18 6年間の畜産排水処理における有機物(BOD)の流入および流出負荷量、人工湿地における植物体としての存在量、ろ床表層の汚泥としての存在量、ろ床内における存在量より推定した5段の人工湿地全体の有機物に関する物質収支

	植栽区	無植栽区
流入負荷量	97.8kg-N (100)	96.8kg-N (100)
植物体量	0.5kg-N (0.5)	0kg-N (0)
堆積層内蓄積量	9.0kg-N (9.2)	3.7kg-N (3.8)
ろ床内蓄積量	12.7kg-N (13.0)	9.2kg-N (9.5)
流出負荷量	12.3kg-N (12.6)	15.7kg-N (16.2)

図-19 6年間の畜産排水処理における全窒素の流入および流出負荷量、人工湿地における植物体としての存在量、ろ床表層の汚泥としての存在量、ろ床内における存在量より推定した5段の人工湿地全体の窒素に関する物質収支

し、人工湿地のろ床表層の汚泥として存在していた窒素量、ろ床内に存在していた窒素量および人工湿地の植物として存在していた窒素量は、それぞれ3.7、9.2及び0kg-Nと推定され、その合計は12.9kg-Nであった。したがって、人工湿地で除去された窒素の84%が、脱窒によるガス化や生物の移動による系外排出により消失し、人工湿地内の窒素の残存率は16%であることが明らかとなった。植栽区における窒素の残存率は、この約1.6倍であり、植栽の存在により窒素成分が人工湿地に残存する割合が60%増加することが明らかとなった。

リンの物質収支に着目すると、図-20に示されるように植栽区における6年間の流入リン負荷量は22.65kg-Pであり、2.61kg-Pが流出したことから、流入負荷量の88.5%に相当する20.04kg-Pが人工湿地により除去されたことが示された。人工湿地のろ床表層の汚泥として存在していたリン量、ろ床内に存在していたリン量および人工湿地の

植物として存在していたリン量は、それぞれ1.33、8.04及び0.11kg-Pと推定され、その合計は9.48kg-Pであった。したがって、人工湿地で除去されたリンの53%が、生物の移動による系外排出等により消失し、人工湿地内のリンの残存率は47%であることが明らかとなった。植物体として存在するリン量は、全リン除去量の約0.6%、人工湿地に残存するリン量の約1%に相当する量に過ぎないことが明らかとなった。

無植栽区におけるリンの物質収支に着目すると、6年間の流入リン負荷量は22.52kg-Pであり、4.80kg-Pが流出したことから、流入負荷量の78.7%に相当する17.72kg-Pが人工湿地により除去されたことが示された。人工湿地のろ床表層の汚泥として存在していたリン量、ろ床内に存在していたリン量および人工湿地の植物として存在していたリン量は、それぞれ1.46、6.87及び0kg-Pと推定され、その合計は8.33kg-Pであった。この推算に従うと、人工湿地で除去されたリンの53%が消失することになり、人工湿地内のリンの残存率は53%となった。窒素と異なり、リンはガス化しないため、除去されたリンの大半は人工湿地内に残留すると考えられる。本研究で推算したリンの残存率は、そのような観点から想定すると低い値であり、過少評価となっている可能性があるが、現時点において原因は不明である。植栽区と無植栽におけるリンの残存率が全く同じ値であったことから、植栽の存在はリン成分が人工湿地に残存する割合に影響を与えないことが明らかとなった。

#### 4-8 殺菌作用を有するナノシルバーを担持させたろ材

##### の殺菌効果の検証

ナノシルバーを担持したリサイクルガラス造粒砂で得られた大腸菌群の殺菌性能を図-21に示す。同一のリサイクルガラス造粒砂により繰り返し8回行った殺菌試験の平均殺菌率は82%であり、担持したナノシルバーの殺菌機能が持続したことが確認できた。しかし、図-21の結果に示されるように、繰り返し8回行った殺菌試験で得られた殺菌率は大きく変動していた。これは各試験でろ材の乾燥状態が異なったためと考えられた。1、3、6、7回目の殺菌試験前の放置時間は1週間と長くろ材が乾燥していたのに対し、2、4、5、8回目の放置時間は短く、ろ材の乾燥は不十分であった可能性があることから、両者を分けて殺菌率の平均値を算出したところ、殺菌試験前にろ

	植栽区	無植栽区
流入負荷量	22.65kg-P (100)	22.52kg-P (100)
植物体量	0.11kg-P (0.5)	1.46kg-P (6.5)
堆積層内蓄積量	1.33kg-P (5.9)	6.87kg-P (30.5)
ろ床内蓄積量	8.04kg-P (35.5)	4.80kg-P (21.3)
流出負荷量	2.61kg-P (11.5)	

図-20 6年間の畜産排水処理における全リンの流入および流出負荷量、人工湿地における植物体としての存在量、ろ床表層の汚泥としての存在量、ろ床内における存在量より推定した5段の人工湿地全体のリンに関する物質収支

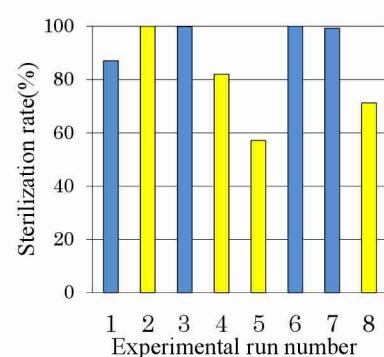


図-21 ナノシルバーを付加したリサイクルガラス造粒砂で行った連続した8回の大腸菌群の殺菌実験の結果。■は殺菌試験前のろ材の乾燥時間が1週間のものを、■は乾燥時間が短いものを示す。

材が十分に乾燥していた場合の平均殺菌率が97%であったのに対し、ろ材が十分に乾燥していなかった場合の平均殺菌率は78%であり、殺菌率が大きく異なった。この結果より、ナノシルバーの殺菌機能を発揮させるためには、ろ材の乾燥が重要であることが示唆された。ナノシルバーによる殺菌機構として、酸素がナノシルバーと接触することで生じる活性酸素が殺菌作用を発揮していることが考えられ、ろ材が十分に乾燥することによって、活性酸素の生成量が増加し、高い殺菌率が得られたことが推察された。

ろ材に担持したナノシルバーの殺菌性能の発揮にはろ材の乾燥が重要であることが示されたことから、吸水性が少ないろ材であれば、ろ材の乾燥に必要な時間が短縮でき、効率的に殺菌処理を行えることが考えられた。そのような観点により、ナノシルバーの担持により撥水性が生じて吸水性が少なくなる軽石に着目し、その吸水特性と乾燥特性を市販の6種類のろ材（活性炭、ゼオライト、リサイクルガラス造粒砂、ハイドロボール、化粧石、麦飯砂利）と比較した。ナノシルバーを担持させたそれぞれのろ材を水に漬け込み、水から取り出した後の吸水量の変化を比較した結果を図-22に示す。水から取り出した直後の吸水量（0時間後の値）は、明らかに軽石が少なかった。乾燥の進行度を示す12時間後および24時間後の吸水量でも、7種のろ材の中で最少となったのは軽石であった。したがって、ろ材の乾燥と殺菌処理を1サイクルとする連続殺菌処理を想定すると、乾燥の進行が早い軽石であれば、1サイクルに要する時間が最短になり、殺菌処理を効率的に進められることが考えられた。

吸水性が少ない軽石をナノシルバーを担持するろ材として用いた場合の殺菌性能を確認するため、ろ材の乾燥時間を24時間とし、同じろ材を繰り返し8回使用した場合の殺菌性能を検証した。ナノシルバーを担持した7種類のろ材の殺菌性能を比較した結果を図-23に示す。8回の殺菌試験の平均殺菌率が100%となったのは、軽石のみであった。次に優れた殺菌性能を有していた活性炭の平均殺菌率は99.8%であった。生残率で評価すると、軽石での大腸菌群平均生残率は4Logとなり、活性炭の2.8Logを卓越していた。活性炭の表面積が $1112\text{m}^2/\text{g}$ であるのに対し、軽石の表面積が $1.56\text{m}^2/\text{g}$ に過ぎず、活性炭と比較すると桁違いに小さいことから、軽石で得られた殺菌性能は多孔質で表面積が大きいことによるものではなく、撥水性が高く乾燥し易く、殺菌作用を発揮するのに必要な活性酸素の生成に適していたためと考えられた。

#### 4-9 ナノシルバーを担持させたろ材の殺菌性能を維持するための運転方法の検討

ナノシルバーを担持させたろ材による大腸菌群の殺菌に必要な接触時間を明らかにするため、ナノシルバーを担持した7種類のろ材を用いて、異なる接触時間条件における殺菌性能を比較した。その結果を図-24に示す。ろ材との接触時間が3時間までは大腸菌群の生残率が高く、6時間以後に殺菌が進行することが明らかとなった。大腸菌群の生

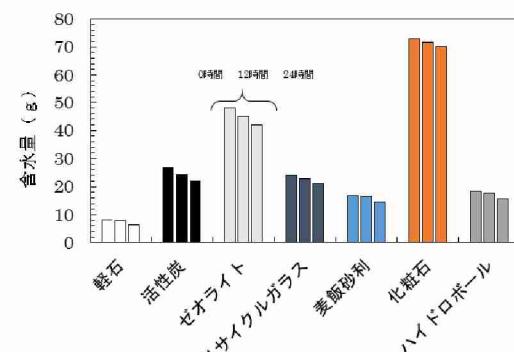


図-22 ナノシルバーを担持させたろ材を水から取り出した後の吸水量の変化の比較

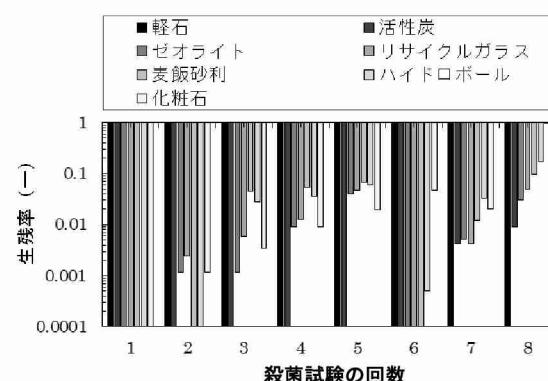


図-23 ろ材の乾燥時間を24時間としてろ材を繰り返し8回使用した場合の殺菌性能の比較

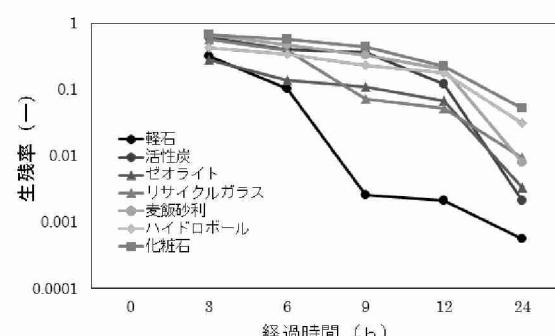


図-24 大腸菌群の殺菌に必要な接触時間の比較

残率が最短で2Log以下に達したのは軽石であり、接触時間9時間で生残率は2.6Logとなった。この結果より、軽石であれば12時間の接触時間で殺菌率99%の達成が十分に可能であることが示された。

本研究では、ろ材の乾燥と殺菌処理を連続的に効率的に行う手法としてタイダルフローを導入した。ろ材の乾燥時間と殺菌時間(接触時間)で構成される1工程を24時間とし、両者の時間比率を変化させて行った連続殺菌処理実験の結果を図-25および表-4に示す。図-25に示されるように、接触・乾燥時間比率を1:1としたRun Aでは、当初低かった大腸菌群の生残率は処理回数に伴い徐々に高くなり、大腸菌群低減レベルの平均値は2.89Logとなった。接触・乾燥時間比率を3:1として接触時間の比率を増やしたRun Bでは、大腸菌群の生残率は増加せず、大腸菌群低減レベルの平均値は2.62Logとなった。接触・乾燥時間比率を5:1としてさらに接触時間の比率を増やしたRun Cでは、わずかに大腸菌群の生残率が増加する傾向となり、大腸菌群低減レベルの平均値は2.36Logとなった。このように接触時間の比率を増加させても殺菌性能は改善されないことから、接触時間は12時間で十分であることが示唆された。接触・乾燥時間比率を5:1として接触時間の比率を増やしたRun Cにおける乾燥時間は4時間であった。Run Cにおいて大腸菌群の生残率が増加する傾向となったのは、乾燥時間が短すぎたためと考えられ、Run Bにおける乾燥時間であった6時間程度の乾燥時間を確保すべきであることが示された。

ろ材の乾燥時間と殺菌時間(接触時間)で構成される1工程を12時間として、両者の時間比率を変化させて行った連続殺菌処理実験の結果を図-26および表-4に示す。接触・乾燥時間比率を1:1としたRun Aでは、大腸菌群の生残率は一定となる傾向を示し、大腸菌群低減レベルの平均値は2.56Logとなった。接触・乾燥時間比率を3:1として接触時間比率を増やしたRun Bでは処理回数に伴い大腸菌群の生残率が増加する傾向となり、大腸菌群低減レベルの平均値は2.47Logとなった。接触・乾燥時間比率を5:1としてさらに接触時間比率を増やしたRun Cでは、明らかに大腸菌群の生残率が増加し、大腸菌群低減レベルの平均値は1.41Logとなった。1工程を

12時間として行った連続殺菌処理における大腸菌群低減レベルは、1工程を24時間とした場合よりも低く、処理サイクルの短縮が殺菌性能の低下につながったことが示唆された。明らかに殺菌性能が低下したRun

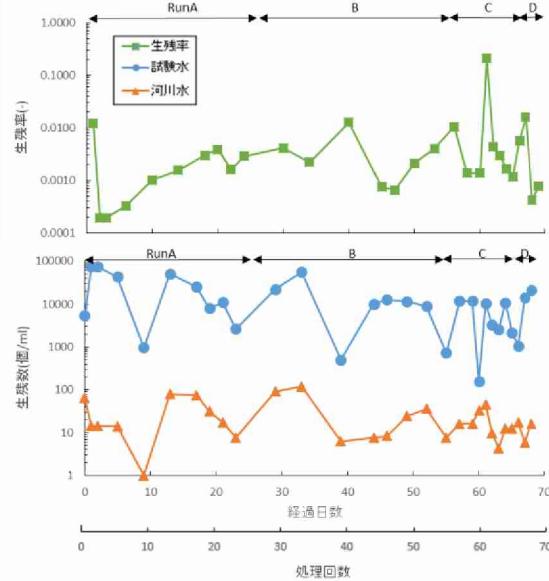


図-25 1工程を24時間とし接触時間と乾燥時間の比率を変えて行ったナノシリバー担持ろ材による連続殺菌処理における大腸菌群の生残濃度と生残率の推移

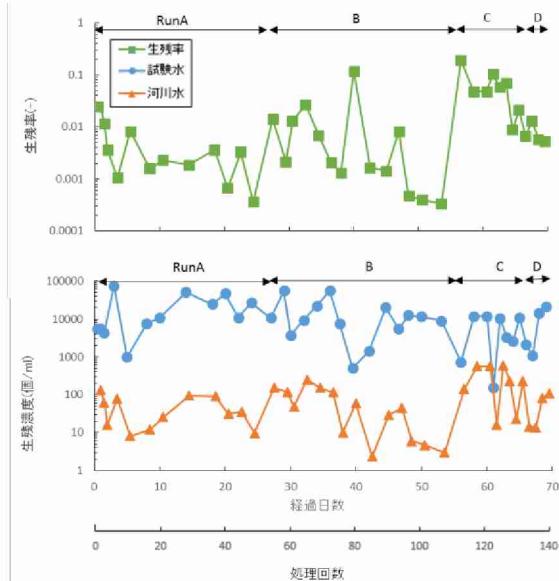


図-26 1工程を12時間とし接触時間と乾燥時間の比率を変えて行ったナノシリバー担持ろ材による連続殺菌処理における大腸菌群の生残濃度と生残率の推移

表-4 接触時間と乾燥時間の比率を変えて行ったナノシリバー担持ろ材による連続殺菌処理における大腸菌群の低減レベルの平均値

処理条件	接触時間と乾燥時間の時間比率(接触:乾燥)			
	RunA (1:1)	RunB (3:1)	RunC (5:1)	RunD (1:1)
24hサイクル	2.89Log	2.62Log	2.36Log	2.76Log
12hサイクル	2.56Log	2.47Log	1.41Log	2.14Log

接觸時間と乾燥時間の比率を変えて行ったナノシリバー担持ろ材による連続殺菌処理における大腸菌群低減レベルは、1工程を24時間とした場合よりも低く、処理サイクルの短縮が殺菌性能の低下につながったことが示唆された。明らかに殺菌性能が低下したRun

Cにおける乾燥時間は2時間であり、ナノシルバーと空気中の酸素の接触による活性酸素の生成が不十分であったことが推察された。乾燥時間と接触時間がともに6時間であったRun A（1工程12時間）における殺菌性能は、乾燥時間が6時間、接触時間が18時間であったRun B（1工程24時間）や乾燥時間が12時間、接触時間が12時間であったRun A（1工程24時間）における殺菌性能よりも低い傾向にあり、その原因は接触時間にあることが推察された。これらの結果より、接触時間として12時間は十分であるが、6時間では短すぎることが示唆された。

1工程12時間で行った連続殺菌実験における処理回数は、1工程24時間で行った連続殺菌実験の2倍であり、Run B（1工程24時間）終了時の53日目までの処理回数は106回に達していた。Run B（1工程24時間）で得られた大腸菌群低減レベルの平均値は2.47Logであり、処理回数が100回を超えても2.47Logの大腸菌群低減レベルの維持が可能であることが示された。しかし、接触・乾燥時間比率を1:1に戻したRun D（1工程24時間）で得られた大腸菌群低減レベルはRun Aより明らかに低い2.14Logであり、殺菌性能は回復しなかった。これに対し、接触・乾燥時間比率を1:1に戻した1工程24時間でのRun Dでは、大腸菌群低減レベルがRun Aと同等の2.76Logまで改善されており、ナノシルバーと空気中の酸素との接触による活性酸素の生成能力が失われていないことが推察された。1工程24時間の条件であれば、Run Dを終了した69回以降でも殺菌性能は持続することが考えられた。

これらの結果より、タイダルフローを導入したシステムにより、ナノシルバーを担持したろ材を用いた連続殺菌処理が可能となること、その殺菌性能を発揮させるために必要な接触時間および乾燥時間はそれぞれ12時間および6時間程度であること、処理回数が100回を超えてもナノシルバーを担持したろ材の殺菌性能は持続し、2.47Logの大腸菌群低減レベルの維持が可能であることを確認することができた。

## 5. 本研究により得られた成果

### (1) 科学的意義

8年間の中長期的な処理運転期間におけるBOD・窒素・リンの処理性能の推移を明らかにすることで、BOD、窒素、リンそれぞれについて、人工湿地の処理性能がどの程度変動し、どのレベルで安定的処理が行われ、どの程度の処理水質が期待できるのかを明らかにすることができた。

8年間の処理運転で得られたデータをもとに算出したBOD・窒素・リンの浄化処理原単位（単位面積・時間あたりの浄化処理性能）は、8年間の人工湿地の水質浄化性能の季節変動や年変動を包括したものであり、我が国の気象条件下における人工湿地の中長期的な浄化処理原単位として意義がある。

8年間の処理運転における消費電力をもとに算出したBOD・窒素・リンの浄化処理におけるエネルギー原単位（単位処理負荷量あたりに必要な電力）は、同レベルの汚濁負荷量を浄化処理する浄化槽のマイナス95%であり、人工湿地法が極めて省エネルギーな汚水処理法であり、汚水処理の低炭素化、省エネルギー化に大きく貢献するものであることを示すことができた。

さらに、8年間の処理運転における有機物・窒素・リンの流入および流出負荷量、人工湿地における植物体としての存在量、堆積物の存在量、ろ床内における存在量を把握することで、5段の人工湿地全体の物質収支を明らかにすることことができた。人工湿地における汚泥生成原単位は、標準活性汚泥法の4分の1未満であり、非常に低く、人工湿地による処理において余剰汚泥の取り出しや処理の頻度が少なくても済むことを裏付けるデータを取得することができた。さらに、人工湿地で除去された窒素およびリンの人工湿地内での残存率と行方（植物体、表層堆積物、ろ床内生物膜等）の割合を明らかにすることことができた。これらの知見は、BOD・窒素・リンの除去処理だけでなく、汚泥の生成や堆積物の有効利用までを考慮した人工湿地の設計や運用を検討する上で重要なものとなる。

また、遮光により植物の生育を抑制した無植栽区とその生育を抑制しなかった植栽区を比較することで、植物が存在することによる水質浄化性能の違い、水質浄化性能の安定性の違い、中長期的な物質収支の違いが明らかとなり、植物が存在することによるメリットとデメリットを提案するとともに、その根拠となる機構を示すことができた。

さらに、経年に伴い低下するリン除去性能の回復手法としてのケイ酸カルシウムの再投入の有効性を実証することができた。この知見は、リン除去における反応性ろ材の有効性を支持するものであり、人

工湿地の弱点と言われていたリン除去性能の強化にも貢献するものとなる。提案するケイ酸カルシウムの再投入は、古いろ材を取り出すことなく、ろ床表層に新たにケイ酸カルシウムを投入するだけの簡易かつ低コストな手法であり、汚水処理に労働費や維持管理費を割くことができない小規模経営体にも十分に導入可能な手法としての実用性を示すことができた。

殺菌作用を有するナノシルバーを担持させたろ材の開発については、吸水性が少なく乾燥し易い軽石が、ナノシルバーによる活性酸素の生成に適したろ材として有効であり、ナノシルバーによる殺菌作用を最大限に引き出せる材料であることを見出すことができた。さらに、軽石を用いて行った連続殺菌試験により、ろ材の乾燥と処理対象水との接触を効率的に行える手法としてのタイダルフローの有効性を実証することができた。本手法を多段処理型人工湿地の最終段に導入することで、塩素殺菌に頼らない受動的な殺菌処理の実現が期待できる。

## (2) 環境政策への貢献

### <行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

### <行政が活用することが見込まれる成果>

長年未解決の課題となっている家畜排せつ物法や水質汚濁防止法の適用外である小規模経営体の畜産農家に普及可能かつ畜産廃水処理の低炭素化を推進する処理システムとして、人工湿地を環境政策に組み入れる際に必用となると考えられる以下に関する根拠データを蓄積した。

- ①中長期的なBOD・全窒素・全リンの浄化処理性能と安定性
- ②中長期的な処理において達成可能な水質レベル
- ③中長期的な処理におけるBOD・全窒素・全リンの浄化処理原単位（単位面積・時間あたりの浄化処理性能）を明らかにした。
- ④BOD・全窒素・全リンの浄化処理におけるエネルギー原単位（単位処理負荷量あたりに必要な電力）
- ⑤中長期的なBOD・全窒素・全リンの浄化処理性能の安定性の機構
- ⑥中長期的な浄化処理における汚泥生成原単位（単位処理負荷量あたりに生成する汚泥量）
- ⑦中長期的な浄化処理における有機物・窒素・リンの物質収支
- ⑧経年に伴い低下するリン除去性能の回復手法

## 6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

## 7. 研究成果の発表状況

### (1) 誌上発表

#### <論文（査読あり）>

- 1) 中村和徳, 森 拓馬, 中野和典 : 日本水処理生物学会誌, vol. 53, No. 2, pp. 47-55 (2017), ペットボトルリサイクル工場廃水処理への人工湿地の適用と課題
- 2) K. Nakamura, T. Yano, Y. Suyama, O. Nishimura, K. Nakano : Japanese Journal of Water Treatment Biology, Vol. 52, No. 3, pp. 45-54 (2016), Macrofauna in a Full-scale Vertical Flow Constructed Wetland during Vegetative Growth Stage

#### <その他誌上発表（査読なし）>

- 1) 中野和典:財界ふくしま, vol. 46, No. 9, pp. 133-140 (2017)  
「ロハスの花壇が拓く下水処理のグリーン化」
- 2) 中野和典、大附遼太郎、中村和徳、橋本 純 : 用水と廃水, 57(11), pp. 835-843 (2015)  
「人工湿地を活用した生活排水の高度処理」

(2) 口頭発表（学会等）

- 1) 中野和典、山寄元気、中村和徳：第52回日本水環境学会年会（2018）  
「人工湿地の中長期的な水質浄化性能に及ぼす植物の影響」
- 2) 山寄元気、中村和徳、中野和典：第52回日本水環境学会年会（2018）  
「人工湿地の中長期的な物質収支に及ぼす植物の影響」
- 3) 中村和徳、渡邊一輝、井川雄太、中野和典：第52回日本水環境学会年会（2018）  
「下水汚泥堆肥中の重金属含量に及ぼすミミズの影響」
- 4) 平賀達也、中村和徳、中野和典：平成29年度土木学会東北支部技術研究発表会（2018）  
「タイダルフローの干満比率が人工湿地の浄化性能に及ぼす影響」
- 5) 伊張田拓馬、中村和徳、中野和典：平成29年度土木学会東北支部技術研究発表会（2018）  
「ミミズとろ過条件が下水汚泥の脱水速度に及ぼす影響」
- 6) 渡邊一輝、井川雄太、中村和徳、中野和典：平成29年度土木学会東北支部技術研究発表会（2018）  
「ミミズによる下水汚泥の重層型堆肥化における副資材の効果」
- 7) 井川雄太、中村和徳、中野和典：平成29年度土木学会東北支部技術研究発表会（2018）  
「下水汚泥由来の大腸菌群の生残に及ぼすミミズ類の共働的効果」
- 8) 遠藤直宏、中村和徳、中野和典：平成29年度土木学会東北支部技術研究発表会（2018）  
「ナノ銀付着ろ材を用いた連続殺菌処理におけるタイダルフロー条件の影響」
- 9) 中野和典、山寄元気、中村和徳：第60回日本大学工学部学術研究報告会土木工学部会（2017）  
「多段型人工湿地の水質浄化性能の持続性評価」
- 10) 山寄元気、中村和徳、中野和典：第60回日本大学工学部学術研究報告会土木工学部会（2017）  
「人工湿地の植栽区と無植栽区の物質収支の比較」
- 11) 中村和徳、渡邊一輝、井川雄太、中野和典：第60回日本大学工学部学術研究報告会土木工学部会（2017）  
「下水汚泥のミミズによる堆肥化における基礎的研究」
- 12) 中村和徳、渡邊一輝、井川雄太、中野和典：日本土壤肥料学会2017年度仙台大会（2017）  
「ミミズによる下水汚泥の堆肥化における副資材の役割」
- 13) 中村和徳、我妻佑亮、中野和典：第51回日本水環境学会年会（2017）  
「人工湿地のミミズによる亜酸化窒素生成に及ぼす金属含量の影響」
- 14) 野村陸、中村和徳、谷口崇至、中野和典：第51回日本水環境学会年会（2017）  
「ナノシルバーの殺菌作用を活用したろ材の創出と適用手法の開発」
- 15) 中野和典、山寄元気、谷口 崇至、中村和徳：第51回日本水環境学会年会（2017）  
「多段型人工湿地の水質浄化性能の持続性評価」
- 16) 山寄元気、谷口崇至、中村和徳、中野和典：日本水環境学会第4回東北支部研究発表会（2017）  
「畜産排水処理を6年間行った多段人工湿地における有機物・窒素・リンの物質収支の比較」
- 17) 山寄元気、中村和徳、中野和典：平成28年度土木学会東北支部技術研究発表会（2017）  
「畜産排水処理を6年間行った人工湿地における有機物・窒素・リンの物質収支の比較」
- 18) 中野和典、秋田紘志、中村和徳：第50回日本水環境学会年会（2016）  
「人工湿地の堆積物に及ぼす植栽の影響」
- 19) 秋田紘志、中村和徳、中野和典：平成27年度土木学会東北支部技術研究発表会（2016）  
「多段型人工湿地における6年間のリン除去性能の変遷」
- 20) 野村 陸、中野和典：平成27年度土木学会東北支部技術研究発表会（2016）  
「ナノシルバーによる殺菌機能を有するろ材の創出」
- 21) 秋田紘志、中村和徳、中野和典：日本水環境学会第3回東北支部研究発表会（2016）  
「多段型人工湿地における6年間のリン除去性能の変遷」

(3) 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

#### (4) 「国民との科学・技術対話」の実施

- 1) 環境機能利用工学（三菱マテリアル）寄附講座最終シンポジウム「環境機能利用工学のこれから」  
(主催：東北大学工学研究科、平成27年3月24日、ホテルメトロポリタン仙台、観客約50名) にて講演：演題「低炭素社会と環境機能利用工学」
- 2) 第10回人工湿地ワークショップ（主催：日本水環境学会東北支部人工湿地井研究会、平成27年8月28日、北海道中標津町総合文化会館“しるべっと”、観客約50名）にて講演：演題「多段型人工湿地一段目におけるミミズの役割の検証」
- 3) 白石・島づくり委員会勉強会（主催：白石・島づくり委員会、平成28年7月17日、岡山県笠岡市白石公民館、観客約30名）にて講演：演題「自然を活用した水質浄化技術」
- 4) 平成28年度つくば学生研究交流会（主催：化学工学会関東支部つくば化学技術懇話会、平成29年2月23日、筑波大学総合研究A棟、観客約100名）にて講演：演題「生態系の浄化機能を活かした廃水処理技術の開発」
- 5) 福島県立安達高等学校における特別授業「生態系の機能を生かした水環境デザイン」環境問題とは何か？物質循環から考えてみよう！（平成29年4月26日、聴講者約50名）
- 6) 公益社団法人福島県浄化槽協会第5回定時総会特別講演（主催：公益社団法人福島県浄化槽協会、平成29年6月9日、ウエディング エルティ、観客約150名）にて講演：演題「生態系の浄化機能を活かした廃水処理技術の開発」
- 7) 日本大学工学部 高大連携講座「生態系の機能を生かした水環境デザイン」環境問題とは何か？物質循環から考えてみよう！（平成29年6月17日、聴講者約200名）
- 8) 平成29年度郡山市勤労青少年ホーム事業 市民講座「ナイトカレッジ～生活をカガクする～」（平成29年9月5日、聴講者10名）にて話題提供：演題「水を浄化する花壇～自然の浄化機能とその活用」
- 9) 第12回人工湿地ワークショップ（主催：日本水環境学会東北支部人工湿地研究会、平成29年9月12日、道の駅あさひかわ会議室、観客約50名）にて講演：演題「人工湿地の植栽区と無植栽区の物質収支の比較」
- 10) 日本水処理生物学会第54回大会シンポジウム「植物を利用した水環境の保全・修復」（主催：日本水処理生物学会、平成29年11月8日、大阪大学吹田キャンパス 銀杏会館、観客約150名）にて講演：演題「人工湿地における植物の役割」

#### (5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

#### (6) その他

- 1) 日本水環境学会第3回東北支部研究発表会 奨励賞受賞、秋田紘志、中村和徳、中野和典、「多段型人工湿地における6年間のリン除去性能の変遷」、平成28年1月9日、東北大学青葉山キャンパス

### 8. 引用文献

- 1) 農林水産省：畜産物生産費調査報告、1997
- 2) (社)中央畜産会：畜産環境保全マニュアル改訂版、pp. 38-39, 2003
- 3) 羽賀清典：尿汚水処理の技術課題、農山漁村文化協会編、畜産環境対策大辞典、pp. 547-551, 1995
- 4) 中野和典、大附遼太郎、中村和徳、橋本 純：人工湿地を活用した生活排水の高度処理、Vol. 57, pp. 835-843, 2015
- 5) Thammarat Koottatep, Saroj Kumar Chapagain, Jaruwat Watanatanachart, Chongrak Polprasert : Application of nano-silver coated granular activated carbon for inactivation of septic tank effluent, Vol. 5, pp. 632-637, 2015

### III. 英文Abstract

## **Development of Low Cost and Energy Efficient Green Advanced Wastewater Treatment System for Small Scale Stockbreeding**

Principal Investigator: Kazunori NAKANO

Institution: Research Institute of Engineering, Nihon University

1 Nakagawara, Tokusada, Tamura, Koriyama-City, Fukushima  
963-8642, JAPAN

Tel: +81-24-956-8719 / Fax: +81-24-956-8858

E-mail: knakano@civil.ce.nihon-u.ac.jp

### [Abstract]

**Key Words:** Small scale livestock farming, Liquid waste, Constructed wetland, Specific water purification rate, Specific energy consumption rate

This study aimed to develop a low cost and energy efficient green advanced wastewater treatment system which could be introduced into a small scale stockbreeding so that adequate treatment of stockbreeding wastewater would be realized thoroughly. The constructed wetland (CW) technology for wastewater purification was proposed in this study. To promote introduction of a CW into a small scale stockbreeding not covered by effluent standard, a manual for stockbreeding farmer to understand about the CW was necessary. Therefore, a long term monitoring of treatment performance of the CW treatings stockbreeding wastewater had been conducted for 8 years and necessary basic data for a manual of the CW had been collected. Main accomplishments were as follows. The medium- and long-term water purification efficiency and its stability were elucidated based on the water purification performance for 8 years. An attainable water quality during medium- and long-term period was investigated based on the treated water quality obtained during 8 years of treatment. A medium- and long-term specific water purification rate for BOD, total nitrogen (TN) and total phosphorus (TP) were elucidated based on the water purification performance for 8 years. A medium- and long-term specific energy consumption rate for removing BOD, TN and TP were elucidated based on the consumed electrical power during 8 years of treatment. A medium- and long-term specific sludge formation rate was investigated based on the sludge formation during 6 years of treatment. The medium- and long-term mass balances concerning organic compounds, nitrogen and phosphorus in the constructed wetland were investigated based on the core sampling research of filtration bed of the CW and the treatment performance for 6 years. The mechanisms of the medium- and long-term stability of the treatment performance of BOD, TN and TP were investigated based on the results of mass balance investigation and the treatment performance for 8 years. An easy and cost effective method to recover phosphorus removal performance in the CW was successfully developed. A filtration media enabling aqueous sterilization was developed by introducing silver nanoparticle. A tidal flow system enabling a continuous sterilization treatment in the CW with a filtration media introducing silver nanoparticle was developed.