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

Water Purification Performance and Operational Issues of the Constructed Wetland Treating Wastewater from a PET Bottle Recycle Plant

中村和徳, 森 拓馬, 中野和典

日本大学工学部土木工学科 / 〒963-8642 福島県郡山市田村町徳定字中河原1番地

KAZUNORI NAKAMURA, TAKUMA MORI, and KAZUNORI NAKANO
College of Engineering, Nihon University
/1 Nakagawara, Tokusada, Tamuramachi, Koriyama 963-8642 Japan

Abstract

The full-scale constructed wetland treating wastewater from PET bottle recycle plant was investigated and its treatment performance for 29 months was evaluated. This constructed wetland may be the first full-scale system to treat industrial wastewater other than from livestock industry. The lab-scale experiment reproducing the clogging happened in the constructed wetland was also performed to clarify factors causing clogging. It was found that the $BOD_5:N:P$ ratio in raw wastewater was $100:0.30-0.43:0.01-0.02$, which proportion of nitrogen and phosphorus against BOD_5 were significantly lower compared with reasonable proportion for biofilm formation and plant growth. The BOD_5 , COD_{Cr} , T-N, T-P, and SS removal efficiencies for 29 months were 78, 77, 76, 81, and 65%, respectively. The treatment performance fluctuated, and BOD_5 and COD_{Cr} removal efficiencies did not always satisfied National Effluent Standards. The treatment performances in the second year, especially during the winter seasons were quite low. It was because of overflow involved in clogging. Based on the biodegradable property of organic polymer flocculating agent (OPFA) and the results of lab-scale experiment, it was indicated that the clogging was caused by OPFA used for a pre-treatment of effluent from waste PET bottle washing process. These results suggest that the property of OPFA should be considered when coagulation sedimentation process is used for a pre-treatment of constructed wetland.

Keywords: clogging, constructed wetland, industrial wastewater, PET bottle recycle plant, organic polymer flocculating agent

1. はじめに

人工湿地は自然湿地での浄化メカニズムである沈殿、生物分解及び酸化と還元反応の連動を原理として、浄化の制限要因である酸素の移動速度を半自然的に制御した排水処理システムである¹⁾。人工湿地は、活性汚泥法と比較して低コストかつ省エネルギーな処理方法としてヨー

ロッパ諸国ではガイドラインが整備され、普及が推奨されている²⁾。わが国でも特に北海道の酪農排水処理への導入が進みつつあり、15箇所でも人工湿地を用いた排水処理が行われているが、現在のところ人工湿地による排水処理は畜産業由来の農業排水に限られている^{3),4)}。

平成23年度に環境省が行った産業分類別総排水量の平均値を比較すると、農業由来が $207.8 \text{ m}^3/\text{d}$ に対して、食

料品製造業 (1925.4 m³/d)、繊維工業 (6077.8 m³/d)、プラスチック製品製造業 (3969.8 m³/d) 等、非農業由来の排出は莫大な量となっている⁵⁾。これらの様々な産業排水の処理においても低コストかつ省エネルギーな処理方法である人工湿地は有効であると考えられ、その実用性が認識されれば人工湿地の利用拡大が見込まれる。

農業以外の産業排水への人工湿地の適用例は、海外ではすでに数多く報告されている。現在までに金属産業⁶⁾、なめし皮製造業⁷⁾、繊維工業⁸⁾、食料品製造業⁹⁾等の排水処理への適用事例が報告されている。これらの報告から人工湿地の産業排水への適用における長所と短所が明らかとなっている。産業排水は様々な汚濁物質を含み、特殊な有害成分を含有している可能性がある。金属産業排水の処理では除去された重金属の処分方法が問題となり、Maineらの報告では、人工湿地で捕捉された重金属は濾過層にとどまるよりも植物体に吸収されて蓄積されることが明らかにされた⁶⁾。このことから長期的な運用には定期的な植物体の収穫が必要と考察されている。なめし皮製造業排水では、高濃度のCr除去に焦点があてられている。Kasevaらは人工湿地で99.83% (HRT < 2 days) のCrが除去されたこと、及びCr除去に植物が貢献していることを報告しているが、処理水中の溶解性物質濃度と電気伝導率が高いことを問題として指摘している⁷⁾。繊維産業の場合には、化学的分解や生物学的分解が非常に困難な物質であるアゾ色素が高濃度に排水に含まれる。このため排水処理性能の持続性が懸念されるが、人工湿地による7年間の処理では十分な除去性能が達成されたことをDaviesらが報告している⁸⁾。これは植物がアゾ色素の分解に大きな役割を果たしたためと考えられている¹⁰⁾。このように人工湿地には微生物の生物学的分解作用だけでなく植物の生理作用や濾床の物理化学的作用が共存するため、一般的な活性汚泥法では処理が困難な様々な産業排水にも適用できる可能性を有している。

このように海外では様々な産業排水での報告例があるが、我が国においては産業排水への適用例が畜産業に限られているため、その実用性は認識されていない。そのため産業排水への適用事例の収集が望まれている。そのような我が国における現状を鑑みて、本研究では畜産業以外の産業排水への実規模レベルでの適用例として我が国で初めての事例と考えられるペットボトルリサイクル工場廃水を浄化処理する実規模の人工湿地での状況を調査し、その水質浄化性能や課題について報告することにした。調査は稼動開始から29ヶ月間行い、ペットボトルリサイクル工場廃水の特性和その処理性能について明ら

かにした。さらに調査で明らかとなった濾床の目詰まりの季節性について実験室において再現実験を行い、濾床の目詰まりの原因について考察した。

2. 実験材料並びに方法

2.1 人工湿地の概要

調査対象はペットボトルリサイクル工場で2012年5月より稼働している人工湿地である。調整濾床 (48 m²)、濾床1 (40 m²)、濾床2 (28 m²) 及び濾床3 (27 m²) の4つの鉛直流型人工湿地で構成され、その総有効濾床面積は143 m²である。ペットボトルリサイクル工場で生じる日量50 m³の廃水を処理する計画を下に設計されたものであり、表層にはヨシ (*Phragmites australis*) が植栽されている。

ペットボトルリサイクル工場廃水の処理工程をFig. 1に示す。本人工湿地で処理対象とした廃水は2種類の廃水の混合物である。1つはペットボトルを粉碎したフレークの洗浄工程で発生する低濃度の廃水に由来する。ペットボトルフレーク洗浄工程で発生した低濃度廃水はまず凝集沈殿槽に送られ、ポリ塩化アルミニウムと有機系高分子凝集剤を用いた凝集沈殿による前処理が行われる。その上澄み (洗浄廃水) が調整濾床に送られる。もう1つの廃水はペットボトル内に残されていた飲み残しや異物を回収した高濃度の廃水 (残留廃水) である。残留廃水は手で1日に数回調整濾床に投入される。調査期間中の洗浄廃水のBOD₅、COD_{Cr}、T-N、T-PおよびSSの平均濃度は、それぞれ187、188、1.63、0.06および63 mg/Lであった。一方、残留廃水ではそれぞれ38、159、31、980、93、6.88および1,731 mg/Lであった。洗浄廃水及び残留廃水は各濾床の上部から人工湿地に流入し、湿地の濾床を鉛直方向に浸透して濾床下部に設置された排水パイプから排出される。人工湿地の各濾床は遮水シートで分画されており、廃水が湿地外や地下に浸出することはない。調整濾床を通過した廃水は、3つの濾床 (濾床1、濾床2、及び濾床3) に順次送られ、浄化される仕組みとなっている。また、濾床が目詰まりした場合、汚水が人工湿地外に溢れ出すことがないように有孔管を通じたオーバーフローが起こる仕組みとなっている。

各濾床の構成と層厚をFig. 2に示す。全ての濾床の表層0.05 mの濾材は粒径50–100 mmの多孔質軽量発砲資材 (スーパーソル、株式会社トリム) である。深さ0.05–0.45 mの濾材は、調整濾床と濾床1では粒径5–15 mmの火山礫、濾床2と濾床3では粒径3–5 mmの火山礫であ

Fig. 1 Treating process of wastewater from PET bottle recycle plant: P, pump; CW, constructed wetland.

Fig. 2 Filtration media and thickness of filtration bed in each constructed wetlands: CW, constructed wetland.

る。全ての濾床の深さ0.45-0.65 mは粒径15-30 mmの火山礫であり、その下に穴の開いた排水パイプが設置されている。

2.2 調査方法

2012年6月から2014年11月までの29ヶ月間にわたり毎月1回、調整濾床および濾床3からの処理水を柄杓を用いて集水槽から採取した。本調査では調整濾床を通過した処理水を原水とした。

採水試料の浮遊物質 (SS)、生物化学的酸素要求量 (BOD_5)、化学的酸素要求量 (COD_{Cr})、全窒素 (T-N)、及び全りん (T-P) 濃度を下水試験方法¹¹⁾に従って測定した。気温と水温は現地に設置したデータロガー (S&DL

mini MODEL-4800、応用地質株式会社)を用いて測定した。また設置したデータロガーにより集水槽内のサイフォンの稼働回数を測定して、日処理水量と積算処理水量を算出した。人工湿地稼働率は人工湿地への流入が確認できた日数から算出した。

2.3 目詰まりの再現実験及び透水試験方法

本調査で明らかとなった人工湿地の目詰まりの仕組みを解明するために透水試験を行った。本人工湿地で使われている濾材と同等の粒径 (3-5 および 5-15 mm) を有する2種類の砂利をそれぞれカラム (断面積: 約83.3 cm^2) に約2.3 kgずつ充填し、これに有機系高分子凝集剤を投入して濾床の目詰まりの再現を試みる実験を行っ

た。目詰まりの評価は定水位透水試験により有機系高分子凝集剤投入前後の透水係数の変化を測定することで行った。まず砂利を充填したカラムに水を加えて密封し、真空ポンプを用いて脱気操作を行った。脱気を促すため、30分間隔で透水試験機の底部をゴムハンマーで叩き、脱気を6時間行った。脱気完了後、濾材の固有の透水速度を定水位条件下で測定した。測定は約180秒水道水を透水する条件下で5回行った。測定完了後、カラムを5℃及び25℃のインキュベーター内に静置し、有機系高分子凝集剤（60 mg/L）500 mLをカラムに投入する操作を1日10回、2日間行った（有機系高分子凝集剤の積算負荷量1.2 g）。その後再び透水係数を測定し、有機系高分子凝集剤投入前後の透水性を比較した。

3. 実験結果及び考察

3.1 ペットボトルリサイクル工場廃水の特徴

日刊経済通信社の調査¹²⁾によると2010年に我が国で生産・出荷されたペットボトル飲料114,970万箱の品目別内訳は、茶系飲料、スポーツドリンク、ミネラルウォーター及び炭酸飲料の順で多く、それらが全体の約80%を占めている。これらの飲料に含まれる窒素成分は、最も多い茶で0.32 g-N/Lであり、スポーツドリンクと炭酸飲料には主成分の糖類の他に窒素含有成分がほとんど含まれていない¹³⁾。またリン含有成分についても同様に極めて少ない¹³⁾。従って、ペットボトルリサイクル工場で発生する残留廃水は、窒素及びリンが炭素に対して極めて少ないと考えられた。さらに残留廃水に対して多量に発生するペットボトルフレック洗浄工程に由来する洗浄廃水は、窒素・リンがほとんど含まれないと考えられた。実際、洗浄廃水のBOD₅、T-N、及びT-P平均濃度は、それぞれ187、1.63及び0.06 mg/Lであった。一方、残留廃水ではそれぞれ38,159、93及び6.88 mg/Lであった。BOD₅の流入負荷量を100とすると、重量比でT-Nは0.30から0.43、T-Pは0.01から0.02となる。生物の成長に必要なC:N:Pは100:15:0.9といわれており¹⁴⁾、偏ったCNP比を有する廃水であった。このようにペットボトルリサイクル工場から排出される廃水はT-NとT-Pが水質汚濁防止法の排水基準¹⁵⁾以下である一方で、Cに対してNPが極めて低いという特性を示すことが明らかとなった。

3.2 人工湿地の運転条件及び処理水量

2012年6月から2014年11月までの29ヶ月間における温度条件および処理水量の推移をFig. 3に示す。稼働開始

Fig. 3 Variations in temperature (a) and hydraulic loading (b) during twenty nine months. Solid and dotted line in (a) indicate air and water temperature, respectively. Bar graph and dotted line in (b) indicate daily and cumulative hydraulic loading, respectively.

から29ヶ月間の現地の日平均気温と日平均流入水温は18.3℃および19.0℃であった。日平均気温の最高及び最低値はそれぞれ32.6℃および1.3℃を示した。日平均流入水温の最高及び最低値は、それぞれ27.5℃および8.4℃だった。日処理水量は最初の2ヶ月では平均3.1 m³であったが、その後、工場の稼働率の上昇に伴い増加し、稼働開始から29ヶ月間の積算処理水量は5,707 m³に達した。平均日処理水量は8.01 m³となり、最大日処理水量は39.1 m³であった。また、調査を行った2012年6月から2014年11月までの29ヶ月間（913日）に人工湿地への流入が確認できたのは713日であったことから、人工湿地の稼働率は78.1%であった。

3.3 人工湿地の浄化性能の推移

29ヶ月間に渡る原水と処理水のBOD₅濃度の推移をFig. 4(a)に示す。原水の平均、最大及び最小BOD₅濃度はそれぞれ2,014、8,847及び5 mg/Lである一方、処理水の平均、最大及び最小BOD₅濃度はそれぞれ440、1,770及び3 mg/Lであり、水質汚濁防止法の排水基準（160 mg/L）¹⁵⁾を満たすことができない時期があった（分析試料22点中11点）。水質汚濁防止法の排水基準は排出水量50 m³/dの工場を対象としているために、最大日処理水量が39.1 m³である本研究で調査を行ったペットボトルリサイクル工場は規制対象外である。しかしながら、29ヶ月間の平均

値から求めたBOD₅の除去率は78%であり、また稼働開始から29ヶ月間を経過してもBOD₅の除去性能が安定しなかった。中野ら¹⁶⁾は畜舎排水を処理する実規模の鉛直流型人工湿地の2年間を通した調査から、2年目には水温の低い冬季の浄化性能が向上し、年間を通した浄化性能の安定性が向上することを報告している。従って本人工湿地ではそのような気候条件に適応した頑健性を有する浄化性能が発揮されていないことが明らかであった。

29ヶ月間に渡る原水と処理水のCOD_{Cr}濃度の推移をFig. 4 (b) に示す。原水の平均、最大及び最小COD_{Cr}濃度はそれぞれ2,096、7,490及び5 mg/Lであり、一方、処理水の平均、最大及び最小COD_{Cr}濃度はそれぞれ487、1,970および0 mg/Lであり、COD_{Cr}の除去率は77%であった。COD_{Cr}は易分解性有機物と難分解性有機物の総量を反映しているのに対し、BOD₅は易分解性有機物のみを反映している。それにも関わらず平均COD_{Cr}濃度及びCOD_{Cr}除去率の推移がBOD₅とはほぼ一致していたことから、本人工湿地に流入するペットボトルリサイクル工場廃水に占める易分解性有機物の割合が高いことが推察された（原

水の平均BOD₅/COD_{Cr} = 1.0 ± 0.40)。

29ヶ月間に渡る原水と処理水のSS濃度の推移をFig. 4 (c) に示す。原水の平均、最大及び最小SS濃度はそれぞれ140、480および0 mg/Lであり、一方処理水の平均、最大及び最小SS濃度はそれぞれ49、173および0 mg/Lであった。従って水質汚濁防止法の排水基準 (200 mg/L)¹⁵⁾を満たすことができていたが、除去率は65%と低かった。

29ヶ月間に渡る原水と処理水のT-N及びT-P濃度の推移をFig. 4 (d) と (e) に示す。原水の平均、最大及び最小T-N濃度はそれぞれ9.8、49.2及び1.6 mg/Lであり、一方処理水の平均、最大及び最小T-N濃度はそれぞれ2.4、13.6及び0 mg/Lであった。また原水の平均、最大及び最小T-P濃度はそれぞれ0.32、1.31および0 mg/Lであり、一方処理水の平均、最大及び最小T-P濃度はそれぞれ0.06、0.21および0 mg/Lであった。従ってT-N及びT-Pの除去率はそれぞれ76及び81%であり、BOD₅の除去率と同等であった。

Fig. 4 Variations in concentrations and removal efficiencies of BOD₅ (a), COD_{Cr} (b), SS (c), T-N (d) and T-P (e). Symbols: ■, concentration in raw wastewater; □, concentration in treated water.

3.4 人工湿地の浄化性能に及ぼす流入水温の影響

BOD₅の除去性能が安定しなかったことから、十分な浄化性能は発揮されていないことが明らかであった。この原因として人工湿地での微生物による分解活性が水温低下の影響を大きく受けた³⁾ことが考えられるが、生物的处理が活発になるはずの夏季の2014年7月～2014年9月でも処理能力の低下が観察された。また物理的除去作用によるSS除去性能は、堆積層や濾床内の生物膜形成により向上するため、人工湿地の稼働年数に伴って向上すると考えられる¹⁶⁾。しかしながら、29ヶ月間の処理期間を経てもSS除去率は80%以上を示した後、10%以下に低下す

るといった乱高下を繰り返し、SS除去性能は安定しなかった。

その要因を検討するため、各除去率を平均月水温に対してプロットして評価した (Fig. 5)。1年目のBOD₅の除去率は水温との関係はほとんど無かったのに対し、2年目では明らかな差が生じた。2年目では15℃以上の期間の除去率は89%以上であったが、15℃未満の期間では僅か7%未満に低下した。3年目では15℃以上の期間でも30%未満の除去率となる月があった。一方、SS、COD_{Cr}、TN及びTP除去率はBOD₅と同様であり、2年目の15℃未満の期間の除去率は低くなり、65%未満であった。以上により、ペットボトルリサイクル工場廃水を浄化処理

Fig. 5 Effect of water temperature on BOD₅ (a), COD_{Cr} (b), SS (c), TN (d) and TP (e) removal efficiencies. Symbols: ○, Jun/2012-Mar/2013; △, Apr/2013-Mar/2014; □, Apr/2014-Nov/2014. BOD₅ and COD_{Cr} removal efficiencies in January 2014 are not shown in the Figure, due to large negative values. TP removal efficiencies in September 2012 could not be calculated, due to 0 mg/L in raw wastewater.

する人工湿地の浄化性能は、2年目の水温15℃未満の期間を境に低下し、特に15℃未満の期間の浄化性能が著しく低かったことが明らかとなった。本人工湿地は濾床が目詰まりした場合、汚水が人工湿地外に溢れ出すことがないように有孔管を通じたオーバーフローが起こる仕組みとなっている。15℃未満の期間において顕著に低い浄化性能となったのは、人工湿地の濾床で目詰まりが発生し、流入した処理対象水が濾床を通過せずにオーバーフローしていたためと考えられる。BOD₅及びSS除去率の著しい低下が同時に起きた結果もオーバーフローにより説明が可能である。

3.5 目詰まりを引き起こした原因の探索

低温において顕著に低い浄化性能となったのは、人工湿地の濾床で目詰まりが発生し、流入した排水が濾床を通過せずにオーバーフローしていたことが考えられた。目詰まりを引き起こしたと考えられた時期における濾床の目視調査により、濾床からの流出水を排除するパイプや集水柵に粘性物質の付着が観察された(Fig. 6)。この粘性物質は下流の人工湿地よりも上流の人工湿地で多く確認された。そこで粘性物質の起源について検討した結果、洗浄廃水の前処理として行われる凝集沈澱に使用されている有機系高分子凝集剤であることが示唆された。そこで、まず有機系高分子凝集剤の生物分解性を評価するために、洗浄廃水と有機系高分子凝集剤のBOD₅/COD_{Cr}比を比較したところ、洗浄廃水の平均BOD₅/COD_{Cr}比は0.995である一方で、有機系高分子凝集剤のBOD₅/COD_{Cr}比は0.279であった。これより有機系高分子凝集剤の生物分解性が洗浄廃水と比較して明らかに低いことが分かった。このように生物分解性が低いことから有機系高分子凝集剤が人工湿地の濾床内に蓄積し、2年目の低水温と

Fig. 6 The viscous substance adhered to the data logger in collective basins.

なる期間に濾床の目詰まりを引き起こしたことが示唆された。

次いで有機系高分子凝集剤が人工湿地の濾床の透水性に与える影響を確認する目的で行ったカラム試験の結果をFig. 7に示す。本実験でカラムに投入した有機系高分子凝集剤1.2 gは、人工湿地面積当りの負荷量に換算するとペットボトルフレック洗浄工程で発生する洗浄水を処理する工場での使用量の4年分に相当する。しかしながら、Fig. 7(a)に示されるように25℃では負荷量1.2 gでは粒径3-5 mm及び5-15 mmのいずれの条件でも透水係数の低下は確認されなかった。一方、5℃ではFig. 7(b)に示されるように負荷量0.6 g(現場での使用量の2年分に相当)で、粒径5-15 mmでは透水係数が20%低下し、負荷量1.2 gでは、粒径5-15 mmと粒径3-5 mmの両方で透水係数がそれぞれ30%及び10%低下した。これらの結果は、有機系高分子凝集剤による濾床の目詰まりが低温条件下での粘度の低下で引き起こされることを示唆しており、冬期間において人工湿地の濾床で目詰まりが発生した現場での現象と一致する傾向となった。

本再現試験は工場廃水に含まれる有機物が存在しない条件で行っており、濾材表面の生物膜の形成やSS成分の

Fig. 7 Relations between the loading of organic polymer flocculating agent and relative permeability coefficient at water temperature of 25°C (a) and 5°C (b). Symbols: ○, 3-5 mm of gravel; △, 5-15 mm of gravel.

蓄積が再現されていない。実際の人工湿地では、有機系高分子凝集剤だけでなく生物膜の形成や固形分の蓄積が透過速度の低下を増長させ、濾床の目詰まりを引き起こしたと考えられる。

人工湿地における水質浄化は、濾床による物理的濾過に大きく依存し、濾床の微生物による生物学的分解は濾過作用を継続させる役割を果たしていると考えられる。生物分解性が低だけでなく粘性が強い有機系高分子凝集剤は、そのような機構を破綻させるリスクを有する。人工湿地の前処理として凝集沈殿処理を採用する場合には、そのような凝集剤が有するリスクを考慮する必要性のあることが本調査により明らかとなった。

4. 結論

畜産業以外の産業排水への実規模レベルでの適用としてわが国で初めての事例と考えられるペットボトルリサイクル工場廃水を浄化処理する実規模の人工湿地を調査対象として、稼働開始から29ヶ月間の処理性能を評価するとともに、その結果判明した濾床の目詰まりの季節性とその要因を明らかにするための再現実験を行った。以下に本研究の結論を示す。

- 1) 調査対象としたペットボトルリサイクル工場廃水の $BOD_5:N:P$ は、 $100:0.30-0.43:0.01-0.02$ であり、窒素とリンの比率が極めて低い特性を有することが明らかとなった。
- 2) 稼働開始から29ヶ月間の人工湿地による処理における BOD_5 、 COD_{Cr} 、 $T-N$ 、 $T-P$ 及び SS の除去率は、それぞれ78、77、76、81及び65%であった。処理開始から2年を経ても安定した浄化性能は達成されず、 BOD_5 では排水基準を満たせない時期があった。
- 3) 調査対象とした人工湿地の浄化性能は稼働開始から2年目に低下し、特に15℃未満の期間の浄化性能が著しく低かったことが明らかとなった。これは有機系高分子凝集剤に起因する目詰まりによって処理対象水が濾床を通過せずに系外に排出されるオーバーフローが起きていたことによることが明らかとなった。
- 4) 人工湿地の前処理で用いられている有機系高分子凝集剤の生物分解性と有機系高分子凝集剤による人工湿地濾床の目詰まりの再現実験の結果より、人工湿地で発生した濾床の目詰まりは有機系高分子凝集剤の流入が引き金となって生じたことが示唆された。

本研究により、人工湿地の前処理として凝集沈殿を採用する場合には、凝集剤の有するリスクを考慮する必要があることが明らかとなった。

謝辞

本研究の一部は環境省環境研究総合推進費（5-1504）の支援を受けて実施した。ここに記して謝意を表する。

引用文献

- 1) 中野和典：自然生態系の浄化機能の限界と応用——人工湿地を事例として——，環境バイオテクノロジー学会誌，10(2)，53-57（2010）
- 2) Brix, H., Arias, C. A.: Danish guidelines for small-scale constructed wetland systems for onsite treatment of domestic sewage, *Water Sci. Technol.*, 59(9), 1-9（2005）
- 3) Nakano, K., Chigira, J., Song, H.-L., Yano, T., Maruo, C., Nomura, M., Aikawa, Y., Nishimura, O.: Start-up water purification performance of multi-stage vertical flow constructed wetland treating milking parlor wastewater and paddock run-off, *Japanese J. Wat. Treat. Biol.*, 47(3), 103-110（2011）
- 4) Kato, K., Inoue, T., Ietsugu, H., Koba, T., Sasaki, H., Miyaji, N., Kitagawa, K., Sharma, P. K., Nagasawa, T.: Performance of six multi-stage hybrid wetland systems for treating high-content wastewater in the cold climate of Hokkaido, Japan, *Ecol. Eng.*, 51, 256-263（2013）
- 5) 環境省水・大気環境局水環境課：平成23年度水質汚濁物質排出量総合調査・調査結果報告書（2012）
- 6) Maine, M. A., Suñe, N., Hadad, H., Sánchez, G., Bonetto, C.: Nutrient and metal removal in a constructed wetland for wastewater treatment from a metallurgic industry, *Ecol. Eng.*, 26, 341-347（2006）
- 7) Kaseva, M. E., Mbuligwe, S. E.: Potential of constructed wetland systems for treating tannery industrial wastewater, *Water Sci. Technol.*, 61(4), 1043-1052（2010）
- 8) Davies, L. C., Pedro, I. S., Ferreira, R. A., Freire, J. M., Novais, J. M., Martins-Dias, S.: Constructed wetland treatment system in textile industry and sustainable development, *Water Sci. Technol.*, 58(10), 2017-2023（2008）
- 9) Vrhovšek, D., Kukanja, V., Bulc, T.: Constructed wetland (CW) for industrial waste water treatment, *Water Res.*, 30(10), 2287-2292（1996）
- 10) Davies, L. C., Carias, C. C., Novais, J. M., Martins-Dias, S.: Phytoremediation of textile effluents containing azo dye by using *Phragmites australis* in a vertical flow intermittent feeding constructed wetland, *Ecol. Eng.*, 25, 594-605（2005）
- 11) 日本下水道協会：下水試験方法上巻，東京（1997）

-
- 12) ㈱日刊経済通信社調査出版部：酒類食品産業の生産・販売シェア―需給の動向と価格変動―2013年度版，日刊経済通信社，478-482，東京（2013）
 - 13) 文部科学省：日本食品標準成分表2015年版（七訂），
http://www.mext.go.jp/a_menu/syokuhinseibun/1365297.htm（閲覧日 2016/12/29）
 - 14) Kadlec, R. H., Wallace, S. D.: Treatment Wetlands, CRC press, Boca Raton, FL, 349（1996）
 - 15) 日本下水道協会：下水試験方法下巻，475-481，東京（2012）
 - 16) 中野和典，千木良純貴，中村和徳，矢野篤男，西村修：2年目の人工湿地における水質浄化性能の向上，土木学会論文集G(環境)，68(7)，Ⅲ_87-Ⅲ_92（2012）
（受付 2017. 1 .25）
（受理 2017. 4 .14）