

下部散水式生物脱臭装置の開発

Development of Biological Deodorizing System Sprayed from the Bottom

多田 羅 昌 浩
山 澤 哲¹⁾
東 郷 芳 孝

要 約

畜産経営にかかわる環境汚染問題のうち、悪臭関連問題の発生件数が最も多く、効率的な臭気防除技術の確立が急務となっている。本研究開発は、畜産農家が導入できる低コストで高効率な脱臭装置の開発を行うことを目的に行った。

装置の開発に当たり、現地調査、基礎実験から開始し、下部から散水する新規の脱臭装置の開発を行った。実規模本実証実験の結果、家畜排泄物の堆肥化過程で排出される臭気中で最も高濃度な成分であるアンモニア（平均濃度約 70ppm、最高濃度 200ppm）を、90%以上安定して除去することが可能であった。また、脱臭性能の低下する冬期の低温時でも90%以上の除去性能を維持することが可能であった。脱臭担体内の水分に溶解したアンモニアは、硝化菌などにより速やかに硝酸イオンまで酸化され、脱臭担体での窒素の蓄積は見られなかったため、脱窒反応も同時に進行していると考えられる。

目 次

- I. はじめに
- II. 実験方法
- III. 実験結果及び考察
- IV. おわりに

I. はじめに

近年、畜産経営の大規模化、専門化に伴う家畜排泄物の集中、偏在化が顕著となっている。このため、排泄物の不完全な処理、あるいは循環利用などに起因する環境負荷が増大し、悪臭、水質汚濁などの環境汚染問題が深刻化している。また、混住化の進展、環境問題に対する関心の高まり、環境汚染に関連する法律の規制強化など、畜産業を取り巻く諸情勢は年々厳しくなっており、これらの問題の解決は畜産農家の存続にかかわるきわめて重大で、緊急性を要するものである¹⁾。

我が国の悪臭問題の中でも、畜産業に起因するものはかねてより多く、1970年代前半までは総苦情件数の30~40%を占め、業種別の割合では最大であった。以後、件数、総件数に占める割合はともに漸減を続け、1992年以降はサービス業その他に由来する苦情件数を下回っているが、畜産農家戸数の減少傾向はこれを上回っており、年代を追って悪臭問題は相対的にはむしろ増加しているともいえる。この背景としては、都市近郊において畜産農家に住宅地が近接する場合（混住）が増えていることや、農家一戸あたりの家畜飼養頭羽数の増加などが考えられる。

しかし、個々の畜産農家が導入できる低価格で高効率な脱臭システムは確立されていない。そこで、本開発では、畜産業の中で最も臭気濃度が高いと考えられる堆肥化過程から発生する臭気の現状を調査し、基礎実験、実証実験を経て、新たに下部散水式脱臭装置の開発を行った。

II. 実験方法

1. 現地調査

堆肥化施設の臭気実態調査には、茨城県稲敷郡東手賀組新田にある東村堆肥センターの協力をいただいた。当センター内の処理工程の異なる3地点で臭気をサンプリングし、臭気濃度及び臭気成分の測定を行った。臭気濃度は3点比較式臭袋法、臭気成分はアンモニアについては検知管法による現地測定、その他の成分についてはガスクロマトグラフを用いて分析した。ガスクロマトグラフはGC-8A-FPD（硫黄系化合物）並びにGC-14A-FID（低級脂肪酸）、カラムはUniportHP 60/80 glass3mmφ×3m（硫黄系化合物）、UnicarbonB 60/80 glass3mmφ×1m（低級脂肪酸）を使用した。

2. 各臭気成分のカラム脱臭実験

臭気の実態調査の結果、臭気中濃度が高かったアンモニアと臭気閾値の低い硫化水素、メチルメルカプタン、硫化メチル、n-吉草酸について、カラム脱臭実験を行った。カラムは、内径50mm、高さ300mmの透明アクリル製パイプに、ビートモスとパーミキュライトを1:1で混合したものを0.4L充填してバイオフィルターとし、同一原臭源条件で6本のカラムを並列に接続して使用した。脱臭微生物は、活性汚泥をバイオフィルターと混合したものを東村堆肥センターの発酵初期段階のコンポスト臭気で6カ月馴養したものを使用した。

原臭の濃度[ppm]はアンモニア：10、20、30、硫化水素：1、5、10、メチルメルカプタン、硫化メチル：5、10、15、吉草酸：1、1.5、5で行った。空等速度(SV)[h]は100、150、250の3通りで行った。

3. 下部散水式脱臭装置のエンジニアリングデータの取得

本実験では、バイオフィルターの含水率、圧力損失などのエンジニアリングデータを取得した。実験は、Fig.1に示す装置を用いて、上部及び下部から散水した場合の圧力損失について検討した。また、下部から散水した場合のバイオフィルターの含水率、圧力損失、並

1) 環境本部

キーワード：臭気、生物脱臭、バイオフィルター、堆肥化、アンモニア、散水

びに充填高を $SV[h]=100, 200, 300$ について測定した。

4. 中間規模脱臭実証実験

バイオフィルター容量 $0.7m^3$ の中規模脱臭実証実験装置(Fig.2)を作製し、九州農業試験場に設置されている堆肥化発酵装置(以下、発酵槽と記す)に接続し、堆肥化過程で発生する臭気の脱臭実験を行った。

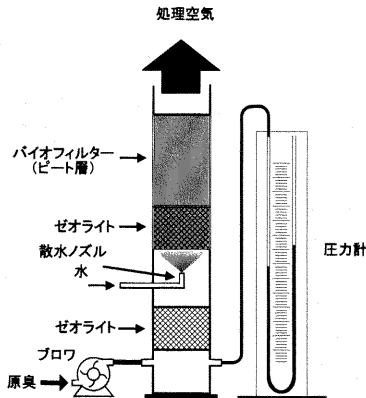


Fig.1 下部散水式脱臭実験装置の概略図

(Schematic Diagram of Biological Deodorizing System)

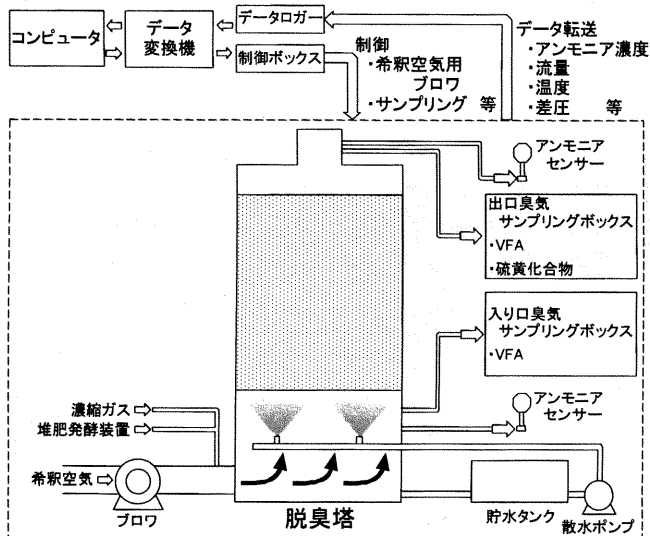


Fig.2 中間規模脱臭実証実験装置の概略フロー

(Schematic Diagram of Intermediate Scale Biological Deodorizing System)

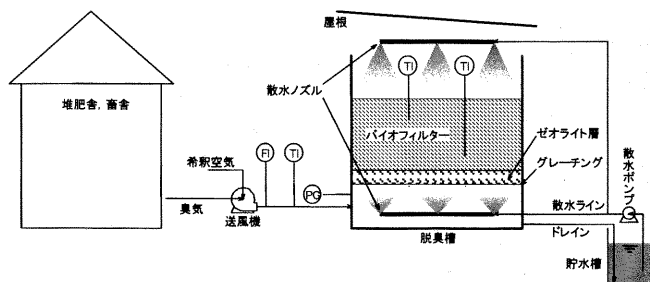


Fig.3 実規模実証実験装置の概略フロー

(Schematic Diagram of Real Scale Biological Deodorizing System)

5. 実規模実証実験

九州沖縄農業研究センター(前九州農業試験場)、大阪府立食とみどりの総合技術センター(前大阪府立農林技術センター)に建設した実規模脱臭実験装置(Fig.3)を用いて、堆肥舎から排出される臭気の脱臭実証実験を行った(以下、それぞれKプラント、Oプラントと記す)。

九州沖縄農業研究センターの堆肥舎は、1週間に45トンの乳牛糞尿を処理している密閉タイプの発酵槽である。実験では、脱臭装置(バイオフィルター容量: $48m^3$)の入口、出口のアンモニア、硫黄化合物、低級脂肪酸の濃度を測定し、脱臭性能の検討を行った。

食とみどりの総合技術センターに建設した下部散水式実規模プラント(バイオフィルター容量: $50m^3$, 最大処理風量: $200m^3/分$)は、牛糞、鶏糞及びアヒルの糞尿を処理するスクープ式の堆肥舎から排出される臭気の脱臭を行った。九州沖縄農業研究センターでの実験と同様に、脱臭装置入口、出口のアンモニア、硫黄化合物、低級脂肪酸の濃度を測定した。また、脱臭装置における窒素の挙動を解析するため、バイオフィルター中(バイオフィルター上部から10cm, 40cm, 90cmの深さ)、散水水中の窒素化合物濃度の測定を行った。

Ⅲ. 実験結果及び考察

1. 現地調査

東村堆肥センター堆肥発酵場周辺における臭気濃度、臭気成分の分析結果をTable 1に示す。堆肥発酵場から排出される臭気組成の中で、アンモニアの濃度が最も高かった。その他の成分については、サンプリングごとにばらつきがあった。本堆肥センターは、開放系で堆肥化させているため、風速、風向きなどがサンプリングに影響したと考えられる。また、本センターでは、7月から2ヵ月間、堆肥発酵工程を変更し、糞尿投入時に熟成コンポストを種菌として混合し、投入している。そのため、発酵が促進され、8月7日の臭気濃度、各臭気成分の濃度が低かったと考えられる。

2. 各臭気成分のカラム脱臭実験

アンモニア、硫化水素、メチルメルカプタン、硫化メチルに関しては、 $SV(\text{空塔速度})=150[h]$ までは良く除去できた。しかし、高濃度条件(アンモニア: 29ppm, 硫化水素: 15ppm, メチルメルカプタン: 10ppm, 硫化メチル: 10ppm)では、 $SV=250[h]$ において

Table 1 堆肥発酵場周辺における臭気組成
(Composition of Odor Components)

サンプリング日時	1995/1/17	1995/6/5	1995/8/7	1995/11/7
気温	9.5	25.2	29.5	19.4
湿度	25.6	67.1	43.2	26.4
風速	0.5	0.1	0.05	0.6
臭気濃度	550	310	41	1300
アンモニア(ppm)	6	2	5	1
硫黄化合物				
硫化水素(ppm)	0.00640	0.173	0.00010	0.00001
メチルメルカプタン(ppm)	N.D.	0.0276	0.00110	N.D.
硫化メチル(ppm)	N.D.	0.00090	0.00040	N.D.
二硫化メチル(ppm)	0.00080	N.D.	N.D.	N.D.
低級脂肪酸				
プロピオン酸(ppm)	N.D.	0.00574	N.D.	0.101
ノルマル酪酸(ppm)	0.00030	0.0674	N.D.	0.138
ノルマル吉草酸(ppm)	N.D.	0.00810	N.D.	0.0274
イソ吉草酸(ppm)	N.D.	0.00700	N.D.	0.0104

出口濃度の上昇が観察され除去率が低下したことから、 $SV=250[h]$ 以上では除去が困難であると示唆された。吉草酸に関しては、本検討での最大入口濃度 $5ppm$ における除去率は、全ての SV 条件で 100% であった。本検討から得られた各成分の最大分解反応速度を Table 2 に示す。

脱臭装置を設計する場合は以上の結果を考慮し、対象臭気中の各組成の濃度から、 SV を決定する必要がある。

3. 下部散水式脱臭装置のエンジニアリングデータの取得

生物脱臭法は水分中に一旦、臭気成分を溶解させる必要があるため、バイオフィルタに含まれる水分の均一性によって、脱臭効率が決定されるといっても過言ではない。従来のピートモス脱臭法に代表される固定床型脱臭装置では Fig.4 左側に示す上部散水式が一般的であるが、散水による水分の浸透方向と臭気ガスの流れが対向流になるため、バイオフィルタ下部まで十分に水分が供給されず、バイオフィルタ下部が乾燥し、効率が低下していた。また、水量を増やすと散水した水分の一部がホールドアップ（水溜）し、圧力損失が増大するため、運転不能になることがあった。そこで、ピートモス式生物脱臭装置で培った技術をベースに新たな下部散水式脱臭装置の開発を行った (Fig.4 右側)。下部散水式脱臭装置の特長を以下に示す。

- バイオフィルタは、ピートモスを主成分に数種の資材を配合しており、保水性が非常に高く、微生物が増殖しやすい環境になっている。また、土壌に比べ通気に伴う圧力損失が低い。
- 担体下部から散水することで臭気ガスと散水水が並行流となり、バイオフィルタ下部にできる水膜に臭気ガスが接触するため臭気ガスが加湿され、バイオフィルタの含水率を均一に保てる。
- 散水によるバイオフィルタ部での水のホールドアップがないため散水時も圧力損失が上昇しない。
- 上部からの散水に比べ圧密が生じ難いため、バイオフィルタに圧密防止材を使用する必要がなく、低コスト化が可能である。
- バイオフィルタの圧密による臭気ガスのショートパス（特定の決まった部分をすり抜ける現象）を防止することができ、バイオフィルタの切り返しなどのメンテナンス頻度を少なくすることが可能である。
- 畜産系臭気ガスで問題となっている粉塵や、塩類の結晶によるバイオフィルタの目詰まりを防止することができる。

Fig.1 に示す下部散水式脱臭実験装置を用いて通気中に上部また

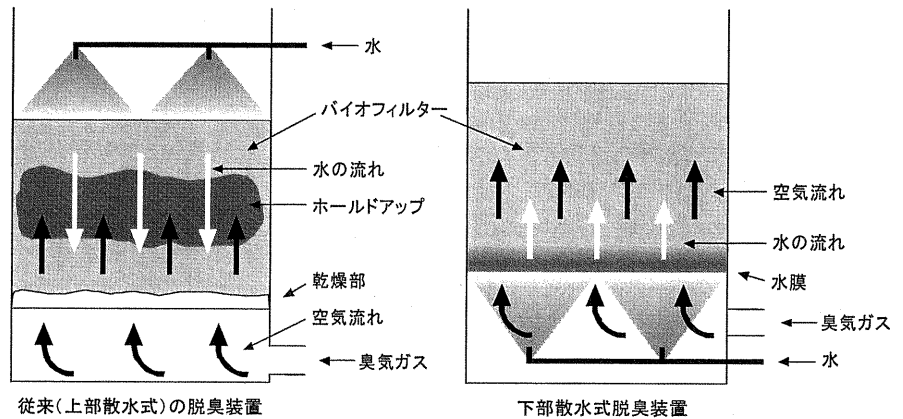


Fig.4 従来式と下部散水式の脱臭装置の比較
(Comparison Biological Deodorizing System Sprayed from the Top and Bottom)

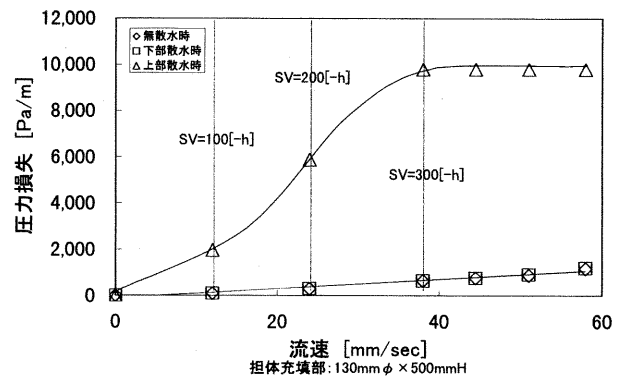


Fig.5 流速と圧力損失の関係
(Correlation between the Flow Rate and Pressure Drop)

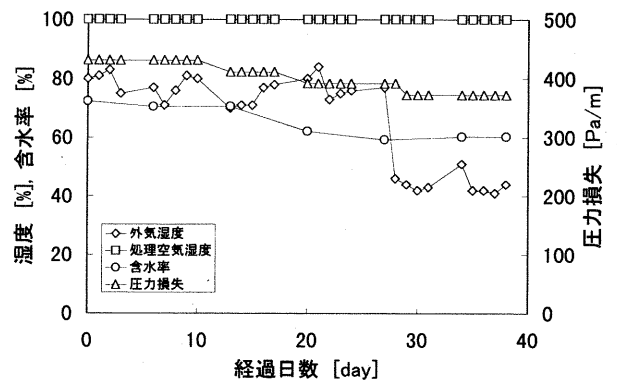


Fig.6 含水率と圧力損失の経日変化 ($SV=300[h]$)
(Time Course of Water Content and Pressure Drop)

は下部から $1L/min$ の流量で 1 分間連続して散水した後の圧力損失を Fig.5 に示す。上部から散水した場合、 $40mm/sec$ 以上の流速では、散水した水分が下部まで流れず、バイオフィルタ内でホールドアップし、圧力損失が急激に上昇した。下部から散水した場合の圧力損失は、無散水時とほぼ同様であり、下部からの散水は圧力損失の上昇を防ぐことができ、高 SV で運転している場合でも、散水が可能であることが確認できた。

次に、 $SV=100, 200, 300[h]$ で連続運転し、バイオフィルタの含水率、圧力損失、処理空気湿度を測定した。 $SV=300[h]$ で運転した場合の含水率と圧力損失の経日変化を Fig.6 に示す。バイオフィルタの含水率は、約 60 から 70% で安定しており、散水時の圧

Table 2 臭気成分の最大分解反応速度
(Maximum Decomposition Rate of Odorous Compounds)

成分名	最大分解反応速度
アンモニア	$0.89 \text{ g-N/day/kg-担体}$
硫化水素	$1.13 \text{ g-S/day/kg-担体}$
メチルメルカプタン	$0.39 \text{ g-S/day/kg-担体}$
硫化メチル	$0.40 \text{ g-S/day/kg-担体}$

力損失、バイオフィルターの充填高に変化は見られなかった。また、高 SV で運転でき、バイオフィルターの圧密を防止できることが確認できた（本方式は、1998 年度に特許取得）。

4. 中間規模脱臭実証実験

Fig. 7 に夏期（高温時）における脱臭塔入口、出口アンモニア濃度の経日変化を示す。発酵開始直後から、急激に発酵槽出口温度、アンモニア濃度ともに上昇したため、SV=250[-h]程度となるように希釈ブロウを運転し、実験を行った。しかし、発酵槽排気温度が 70℃以上であり、希釈空気も夏期のため 30℃前後であるため、脱臭塔の担体温度が 40℃を越え、アンモニア除去率が急激に低下した。しかしながら、実験開始 4 日後から発酵槽排気温度、アンモニア濃度が低下する傾向を示した。そのため、SV を下げ実験を継続したところ、アンモニア除去率は上昇し、その後脱臭性能はそのまま維持された。

Fig. 8～10 に冬季（低温時）の脱臭塔入口、出口アンモニア濃度、硫黄化合物濃度、有機酸濃度の経日変化を示す。大気温度が低かったため、担体温度が上昇せず（20℃程度で安定）、アンモニア除去率は、おおむね 90%以上であった（Fig. 8）。脱臭塔入口では硫化水素、二硫化メチル、n-酪酸、i-吉草酸はほとんど検出されなかった。プロピオン酸、n-吉草酸は、脱臭塔の入口側で、4～7ppm 検出されることがあったが、脱臭塔の出口ではほとんど検出されず、ほぼ全量が分解されることが確認できた（Fig. 10）。臭気除去率は、おおむね 90%以上であった（Table 3）。脱臭塔出口における臭気濃度は、数百から数千を示しており、脱臭塔出口で検出される硫黄化合物濃度とほぼ同じ増減を示していた。

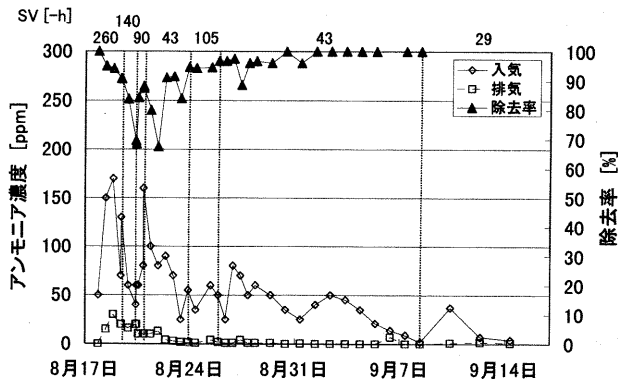


Fig. 7 夏期におけるアンモニア濃度の経日変化
(Time Course of Ammonia Concentration in Summer)

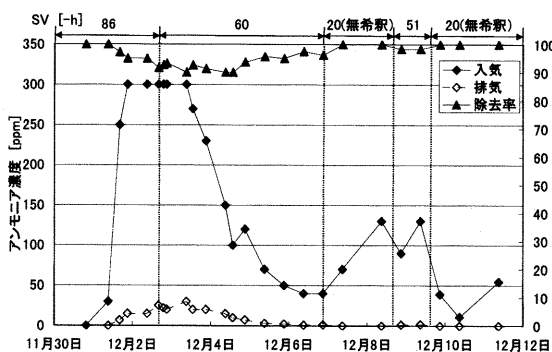


Fig. 8 冬季におけるアンモニア濃度の経日変化
(Time Course of Ammonia Concentration in Winter)

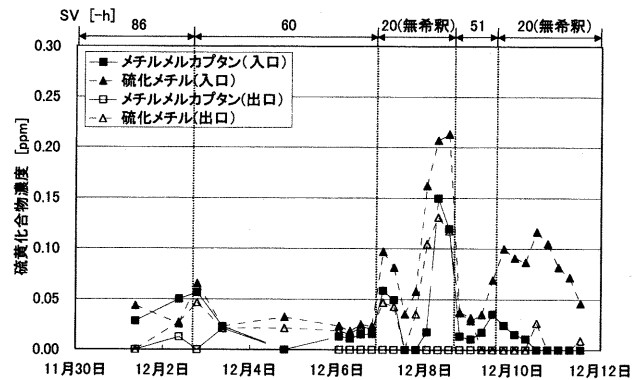


Fig. 9 冬季における硫黄化合物濃度の経日変化
(Time Course of Sulfur Compound Concentration in Winter)

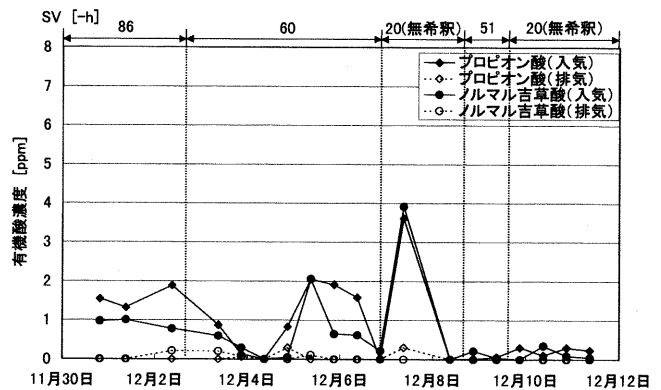


Fig. 10 冬季における有機酸濃度の経日変化
(Time Course of Organic Acids Concentration in Winter)

Table 3 冬季における脱臭性能
(Performance of Deodorization in Winter)

	臭気濃度		除去率
	入口	出口	
12月1日	3,011	77	97.4%
12月2日	5,973	1,062	82.2%
12月3日	7,758	1,121	85.6%
12月4日	3,803	239	93.7%
12月7日	2,449	143	94.2%
12月8日	24,495	573	97.7%
12月9日	22,497	3,568	84.1%
12月10日	1,342	107	92.0%
12月11日	6,000	383	93.6%

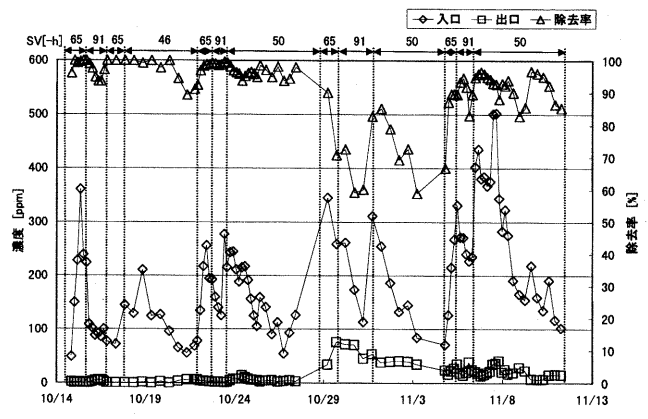
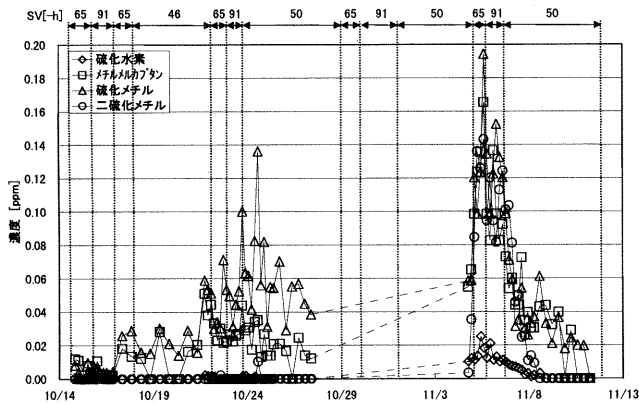
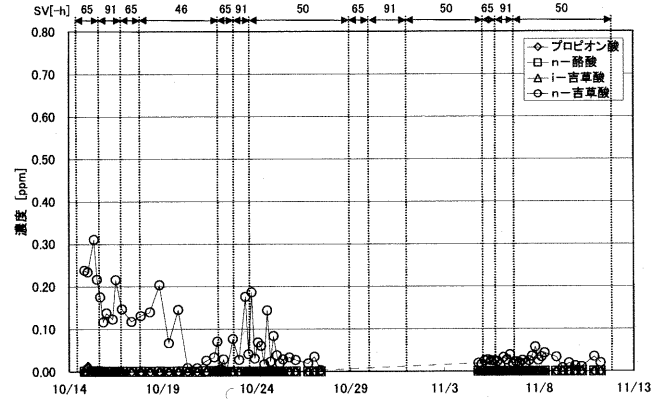
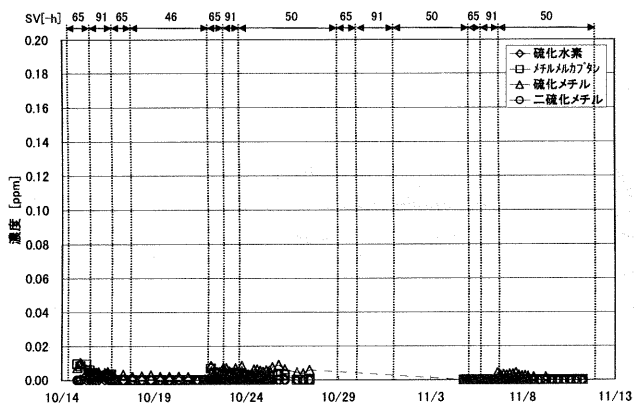
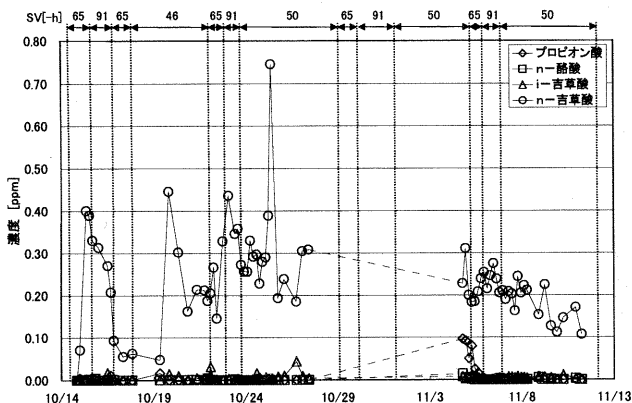


Fig. 11 アンモニア濃度の経日変化 (Kプラント)
(Time Course of Ammonia Concentration on K Plant)

Table 4 Kプラントにおける除去性能
(Deodorizing Performance at K Plant)

	アンモニア	硫黄化合物				低級脂肪酸			
		硫化水素	メチルメルカプタン	硫化メチル	二硫化メチル	プロピオン酸	n-酪酸	i-吉草酸	n-吉草酸
入口濃度 [ppm]	272	0.00750	0.0635	0.0709	0.0541	0.0129	0.00187	0.00389	0.206
入気量 [mg/min]	10,500	0.674	7.69	11.1	13.1	2.63	0.380	0.795	47.6
出口濃度 [ppm]	21.5	N.D.	N.D.	0.00127	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	0.0256
排気量 [mg/min]	873	0	0	0.139	0	0	0	0	5.75
除去率 [%]	91.7	100	100	98.7	100	100	100	100	87.9

Fig.12 脱臭塔入口の硫黄化合物濃度の経日変化 (Kプラント)
(Time Course of Inlet Sulfur Compound Concentrations at K Plant)Fig.15 脱臭塔出口の有機酸濃度の経日変化 (Kプラント)
(Time Course of Outlet Organic Acid Concentrations at K Plant)Fig.13 脱臭塔出口の硫黄化合物濃度の経日変化 (Kプラント)
(Time Course of Outlet Sulfur Compound Concentrations at K Plant)Fig.14 脱臭塔入口の有機酸濃度の経日変化 (Kプラント)
(Time Course of Inlet Organic Acid Concentrations at K Plant)

5. 実規模実証実験

乳牛糞尿の脱臭実証実験として、九州沖縄農業研究センターで行った実験結果を Fig.11 から 15 に示す (Kプラント)。脱臭塔入口、出口のアンモニア濃度、硫黄化合物濃度、低級脂肪酸濃度について示す。アンモニアは、脱臭実験開始2週間後の10月28日頃から急激に除去率が低下した (Fig.11)。バイオフィルター部でのショートパスが懸念されたため、バイオフィルター各部で通気状況を確認したところ、1/4の部分でほとんど通気されていないことがわかった。そのため、圧密した部分を掘り起こし、再充填したところ、アンモニアの除去率も上昇した。実験開始約1ヵ月後の1週間の平均除去率は約92%であった (Table 4)。硫黄化合物は、脱臭開始直後は出口でも検出されたが、実験を進めるに従い徐々に検出されなくなった。脱臭実験開始1ヵ月後の除去率は、硫化水素、メチルメルカプタン、二硫化メチルが100%、硫化メチルが約99%であった。低級脂肪酸は、n-吉草酸の濃度が、他成分の濃度に比べ非常に高かった (Fig.15)。実験開始1ヵ月後の除去率は、n-吉草酸が約88%、その他の低級脂肪酸は100%であった。

既存の堆肥舎への本システムの適用、及び牛糞、鶏糞及びアヒルの糞尿の堆肥化過程で発生する臭気の脱臭実証実験のため、2000年にOプラントを建設し、2001年4月5日から、脱臭装置の馴養を行うため、送入アンモニア濃度=約10ppm、SV(空間速度で滞留時間の逆数)=45[h]で運転を行った。

運転を開始後2001年12月までは、硫黄化合物及び低級脂肪酸の除去率は、実験開始から徐々に高くなり、実験開始後約4ヵ月で90%以上の除去性能を確保できることが確認できた。なお、実験期間中を通して、入口での硫黄化合物濃度は数十~数百ppb、低級脂肪酸濃度は数十ppbであった。

冬期における脱臭装置入口、出口のアンモニア濃度、硫黄化合物

Table 5 脱臭槽内での窒素の挙動

(Behavior of Nitrogen in Biofilter)

経過日数	積算送入窒素量[kg]	バイオフィルター中残存窒素量[kg]					散水水中窒素量[kg]				除去量[kg]
		NH3-N+NH4-N	NO2-O	NO3-N	合計		NH3-N+NH4-N	NO2-O	NO3-N	合計	
0	0	0	0	0	0		0	0	0	0	0
34	23.6	0.0154	0.00151	1.62	1.64		0.310	0.740	0.880	1.93	20.0
77	47.5	0.0125	0.000148	6.64	6.65		0.590	0	2.47	3.06	37.8
112	70.9	0.00860	0	7.15	7.16		0.870	0	3.32	4.19	59.6
139	89.1	0.00820	0.00160	9.75	9.76		1.02	0	3.30	4.32	75.0
175	124	0.0730	0.00271	6.32	6.40		1.38	0.0200	3.68	5.08	112

積算送入窒素量: (送入アンモニア態窒素量) - (排出アンモニア態窒素量) の積算値
 除去量: (積算送入窒素量) - (バイオフィルター中残存窒素量) - (散水水中窒素量)

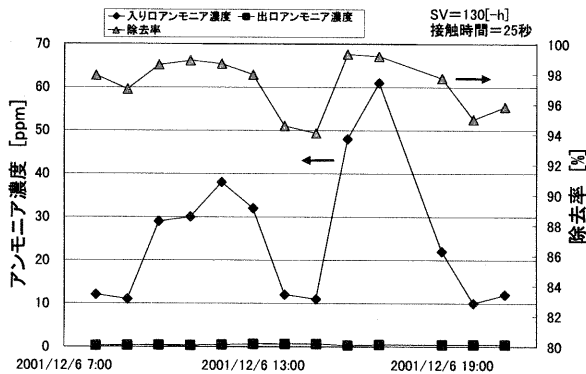


Fig.16 冬季におけるアンモニア濃度の経時変化 (O プラント)
 (Time Course of Ammonia Concentration s in Winter at O Plant)

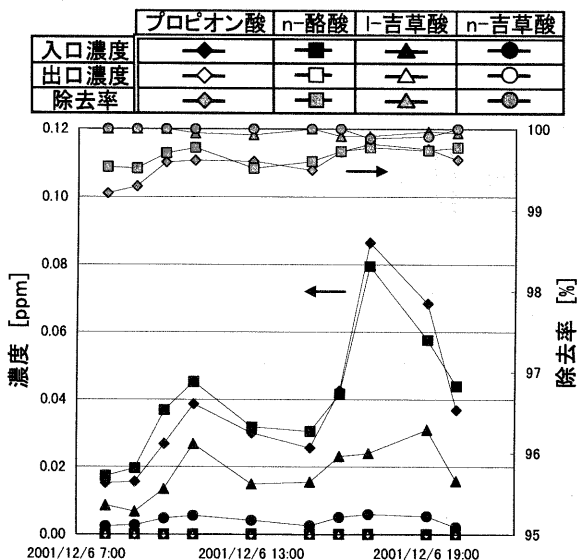


Fig.17 脱臭塔出口の硫黄化合物濃度の経日変化 (Kプラント)
 (Time Course of Outlet Sulfur Compound Concentrations at K Plant)

濃度、低級脂肪酸濃度の日変化を Fig.16 から 18 に示す。グラフ中の入口濃度が高くなっている部分は、堆肥の攪拌を行っている期間である。測定した全ての成分で、攪拌中は大幅な入口濃度の上昇が見られた。このような高濃度状態においても出口側濃度は低い値を維持し、冬期でも良好な除去性能を示している。なお、測定日の 12 月 6 日の平均気温は 10℃、最高気温は 15℃であった。

実験期間中の窒素の収支について検討した結果を Table 5 に示す。バイオフィルター中の窒素量は 7kg (900mg-N/kg-dry バイオフィルター) で安定することがわかった。散水に使用した水は、有効容

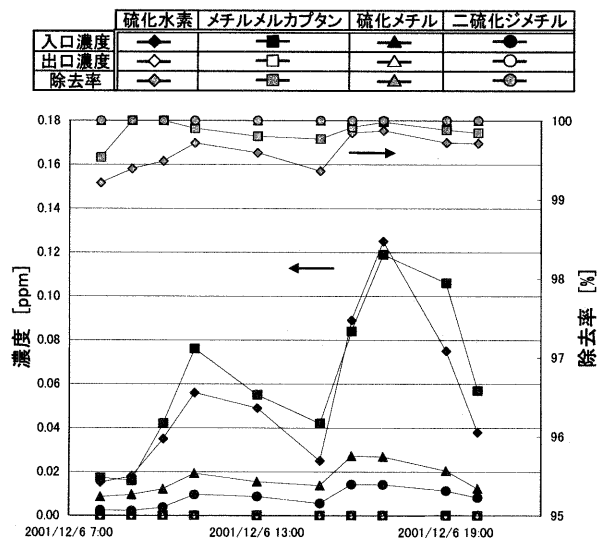


Fig.18 脱臭塔出口の硫黄化合物濃度の経日変化 (Kプラント)
 (Time Course of Outlet Sulfur Compound Concentrations at K Plant)

積 1.5m³ の貯水槽に貯留した水を循環使用し、ドレインは貯水槽に流入するようになっている。実験期間中、貯留水は減少傾向にあったため、水道水を加え常に 1.5m³ となるように制御した。そのため、貯留水をドレインすることによる窒素の系外への排出はなかった。また、バイオフィルター、散水水中の窒素はほとんど NO₃⁻ として存在していることがわかった。したがって、脱臭塔内でアンモニアが速やかに硝化されていることが確認できた。また、脱臭塔に送り込まれたアンモニアは速やかに酸化され、バイオフィルター、散水水中に窒素が蓄積すること無く、ほとんどが除去されていることが確認できた。

IV. おわりに

近年、家畜ふん尿管理・リサイクル法、食品リサイクル法などの有機性廃棄物処理に関する法律が公布、施行されている。このような状況の中、本技術は、これらの施設の悪臭対策として広く適用可能であると考えられる。

なお、本研究開発は、農水省のプロジェクトの一環として、独立行政法人中央農業総合研究センター及び九州沖縄農業研究センターから受託して実施した。

参考文献

- 1) 黒田和孝; 畜産業における当面の課題と展望, 臭気の研究, 第 29 巻 3 号, (1998), pp.141-146.