報 文

充填塔型生物脱臭装置の設計基準および
操作条件の考え方

樋口 能士 *・西田耕之助 **・大迫 政浩 ***・松井 三郎 ****

ABSTRACT

The method of design and operation of the packed tower biological deodorization plants is discussed. The limiting factor definition model is proposed as the model for the removal of gaseous odor components. This model, which is derived from the removal mechanism of odorants in the packed tower, is supposed to enable the plant design reasonably. Especially, the relationship between gas flow loads and spraying conditions can be expressed clearly. The constants of the removal model used in the design, and the operation conditions, are developed from previous findings and surveys. An example of their usage is also showed. Components and load fluctuations of odor gases could be estimated by the developed design procedure. In the treatment of mixed odor gases, one of the two design procedures should be selected. In one of the design procedures, a single odorant is considered major from the view point of removal, while in the other procedure two or more odorants are considered major and are given due consideration.

和 文 要 旨

悪臭処理方法の1つである充填塔型生物脱臭装置について、その設計および操作条件の決定手法の提示を目的に議論した。最初に、臭気成分除去モデルとして、新たに律速段階定義型モデルを提案した。従来の除去モデルを簡便に表現したこのモデルは、生物脱臭装置における臭気成分除去機構に基づいて導出された。このモデルの適用により、充填塔の通気条件と散水条件の関係を考慮した、合理的な装置設計が可能となると考えられる。さらに、既往の知見と筆者らの実態調査を加味した上で、設計に用いる数値および操作条件の決定手順を、実際例を挙げて提示した。この決定手法は、混合臭気、変動臭気といった臭気発生源の特性を考慮する点が大きな特徴である。特に、混合臭気を対象とした場合、主成分として1物質のみを考慮する手法と、複数の物質の除去を考慮する手法の2つの決定方法が考えられる。

キーワード：

- ・充填塔型生物脱臭装置 packed tower biological deodorization plant
- ・設計 design ・操作条件 operation condition
- ・律速段階定義型モデル limiting factor definition model ・混合臭気 mixed odor gas

1. はじめに

近年、悪臭ガスの処理技術として、微生物反応を利用する方法、すなわち生物脱臭法が急速に普及しつつある。生物脱臭法に関する歴史は古く、最初に土壌フィルタに関する特許が申請されてから、既に50年近

くが経過した¹⁾。その後、生物脱臭法には種々の改良が加わり、現在では、有効微生物の検索や除去特性の解析などの基礎的研究が積極的に行われている。その結果、より高い除去効率をより低い維持管理費で得られることが可能となったが、依然として多くの生物脱臭装置は、従来より経験的に用いられている種々の設

* 京都大学大学院工学研究科博士課程 Takashi HIGUCHI

** 京都大学工学部助教授 Konosuke NISHIDA

*** 国立公衆衛生院廃棄物工学部 Masahiro OSAKO

**** 京都大学工学部教授 Saburo MATSUI

計基準や操作条件の下に稼働している。したがって、生物脱臭装置の特性を把握し、簡便かつ合理的な設計手法や操作条件を提示することは、今後の悪臭防止技術の発展にとって不可欠であると考えられる。

本報では、これまでの生物脱臭法に関する知見を整理し、現時点で提示し得る設計基準および操作条件の考え方について議論する。最初に、設計に際して必要な臭気成分除去モデルとして、律速段階定義型の除去モデルを提案する。このモデルに基づいて、混合臭気に対するモデルの適用手法や散水条件の決定手法を加味した、生物脱臭装置の設計手法を紹介する。

2. 充填塔型生物脱臭装置の原理

生物脱臭装置の中でも、現在主流を占める形式は充填塔型生物脱臭装置である。装置の形状および想定される臭気成分の除去過程を図-1²⁾に示す。充填塔型生物脱臭装置では、充填層に通気されるガス中の臭気成分は、充填担体表層の液相あるいは固体表面へ収着（吸収および吸着の総称）し、収着した臭気成分は、

担体表層に生息する微生物の代謝作用により酸化（分解）される。また、微生物の生育に必要な水分補給、および代謝生成物の洗い流しの2つの目的により、通常、充填塔内には、連続的あるいは間欠的に水分が補給される。図のように想定されている臭気成分の除去機構は、生物脱臭法に関与する専門家、技術者のほぼ一致した意見³⁾ではあるものの、除去機構解明についての系統的な研究は少なく、また、除去機構と実際の脱臭装置の除去特性との関係についても、現時点では不明な点が多い。

また、図中に示すように、ガス中の臭気成分が除去される過程には、いくつかの経路が推定される。また多くの場合、臭気成分除去に対して、吸収と吸着が同時に関与している状態が想定される。気相から充填層への物質移動過程を収着と総称しているのはこのためである。したがって、充填塔型生物脱臭装置における臭気成分の物質移動過程を、臭気担体や散布水の物性値より外挿することは極めて困難であり、基礎となる数値は、実験的に求めることが不可欠であると考えられる。

3. 充填塔型生物脱臭装置の臭気成分除去モデル

3. 1 Michaelis-Menten 型の除去モデル

平井ら⁴⁾は、ピートバイオフィルター（繊維質泥炭）を用いた硫黄系臭気物質の除去実験を、以下の式に帰し、充填担体単位重量当たりの臭気成分除去速度を、表1中に示す Michaelis-Menten 型の除去速度式で表現した。

$$\ln \frac{C_L}{C_0} = - \frac{S_a \gamma L}{V} \frac{R_m}{K_s} + (C_0 - C_L) \quad (1)$$

C_L ; 出口臭気成分濃度 [g-odor/m³]

C_0 ; 入口臭気成分濃度 [g-odor/m³]

S_a ; 充填層断面積 [m²]

γ ; 充填密度 [kg-Packing Material/m³]

L ; 充填層長さ [m]

V ; 通気ガス流速 [m³/sec]

R_m ; 充填担体単位重量当たりの臭気成分最大除去速度 [g-odor/kg-Packing Material/sec]

K_s ; 飽和定数 [g-odor/m³]

（最大除去速度の1/2の除去速度となる臭気成分濃度）

この式による解析では、流入負荷と除去率との関係は、2つのパラメータ（ R_m および K_s ）を用いて表現される。藤江ら⁴⁾は、各種の充填塔型生物脱臭装置に

図-1 充填塔型生物脱臭装置の形状および臭気成分の除去機構の概念²⁾

ついて、 R_m および K_s の値を、臭気成分および充填担体ごとに算出している。

この Michaelis-Menten 型の除去速度式では、臭気成分除去速度 R_v が臭気成分濃度 C に比例する領域（1 次反応、低濃度領域で観察される）、臭気成分除去速度 R_v が臭気成分濃度 C によらず一定の領域（0 次反応、高濃度領域で観察される）を両極として、 C と R_v との関係が、その中間段階として表現される。すなわち、臭気成分濃度が低い場合と高い場合における異なる除去特性を、1 つの式を用いて表現することが可能であり、広範囲の操作条件で行われた実験条件を回帰するためには非常に合理的な式である。しかし同時に、以下のような問題点が指摘される。

- (1) 操作条件や臭気成分の種類が変わるごとに、2 つのパラメータ (R_m と K_s) を求める必要がある。
- (2) 飽和定数 K_s については、その大小と生物脱臭装置としての性能の大小に相関はなく、あくまでも回帰のための係数である。
- (3) 特に実際の生物脱臭装置では、低濃度臭気の除去を目的とする場合が多いが、この式においては、低濃度から高濃度までの広範囲なデータを必要とする。

したがって、多種多様な組成の臭気を対象に、様々な充填担体が用いられている生物脱臭装置では、より

簡便かつ合理的に除去機構を説明し得るモデルの適用が不可欠と考えられる。

3. 2 律速段階定義型の除去モデル

生物脱臭装置の充填層内において、臭気成分分子の物質移動はいくつかの段階を経るが、このうち、脱臭装置の除去効率を直接支配する段階は、以下の 2 つと考えられている。

(1) 気相→液相（あるいは固体表層）への臭気成分分子の収着

(2) 生物膜相における臭気成分分子の酸化（分解）

この 2 つの段階のなかで、速度の遅い側の段階を律速段階と呼ぶ。以降、(1)の段階が支配する状態を収着律速領域、(2)の段階が支配する領域を生物反応律速領域と呼ぶ。

収着律速領域および生物反応律速領域における、臭気成分除去の関係式は、それぞれ表 1 に示す過程で導き出される。収着律速領域における臭気成分除去速度は、おおそ平衡収着量と実際の収着量との差を推進力とした、収着速度にしたがうと考えられる。また、収着した臭気成分の充填担体上での蓄積は、おおそ 0 に近似される。この時、脱臭装置における臭気成分除去は、以下の関係式で表される。

表 1 除去モデル式の導出過程

① Michaelis-Menten 型除去速度式	[1-a] 収着速度式	[1-b] 生物酸化速度式
$R_v = \frac{R_m C}{K_s + C}$	$\gamma \frac{\partial q}{\partial t} = K_f a_v (Q_e - Q)$	$-u \frac{\partial C}{\partial \ell} = R_m \gamma$
② 物質収支式	[1-a2] 気液平衡関係式	[2] 物質収支式
$-V \frac{dC}{d\ell} = \frac{R_m C}{K_s + C} S_a \gamma$	$C = H Q_e$	$-u \frac{\partial C}{\partial \ell} = \gamma \frac{\partial q}{\partial t}$
③ 上の 2 式より	[3-a] [1-a][1-a2]および[2]式より	[3-b] [1-b]および[2]式より
$\ell_n \frac{CL}{C_0} = -\frac{S_a \gamma L}{V} \frac{R_m}{K_s} + (C_0 - CL)$	$CL = C_0 \exp\left(-\frac{\pi d}{u} L\right)$	$C_0 - CL = \frac{\pi m}{u} L$
	収着律速領域	生物酸化律速領域
[4-a] 充填層での臭気成分濃度勾配 (収着律速領域)	$-\frac{dC}{d\ell} = \frac{\pi d}{u} C$	[5] 収着律速領域の成立条件 ([4-a]および[3-b]より)
[4-b] 充填層での臭気成分濃度勾配 (生物反応律速領域)	$-\frac{dC}{d\ell} = \frac{\pi m}{u} = \frac{R_m \gamma}{u}$	$C \leq \frac{\pi m}{\pi d} = \frac{R_m \gamma}{\pi d}$

— 記号 — C ; 臭気成分濃度 [g odor/m³]
 C_i ; 出口臭気成分濃度 [g odor/m³]
 C_0 ; 入口臭気成分濃度 [g odor/m³]
 ℓ ; 充填層のガス入口端からの距離 [m]
 L ; 充填層長さ [m]
 S_a ; 充填層断面積 [m²]
 γ ; 充填密度 [kg Packing Material/m³]
 u ; 通気線速度 [cm/sec]
 V ; 通気ガス流量 [m³/sec]

$\frac{\partial q}{\partial t}$; 臭気成分の収着速度
 [g odor/kg Packing Material/sec]
 $K_f a_v$; 総括移動容量係数 [kg Packing Material/m³/sec]
 Q ; 充填担体への臭気成分収着量
 [g odor/kg Packing Material]
 Q_e ; 気相濃度 C と平衡状態にある収着量
 [g odor/kg Packing Material]
 H ; 定数 [kg Packing Material/m³]
 R_v ; 充填担体単位重量当たりの臭気成分除去速度
 [g odor/kg Packing Material/sec]

R_m ; 充填担体単位重量当たりの臭気成分最大除去速度
 [g odor/kg Packing Material/sec]
 K_s ; 飽和定数 [g odor/m³]
 (除去速度が $1/2 R_m$ となる時の臭気成分濃度)
 πd ; 収着速度係数 [1/sec] ($= \frac{K_f a_v}{u}$)
 πm ; 生物反応速度係数 [g odor/m³/sec] ($= R_m \gamma$)

$$C_L = C_0 \exp \left(-\frac{\pi d}{u} L \right) \quad (2)$$

πd ; 収着速度係数 [$1/\text{sec}$] ($= \frac{K_{f_{av}}}{H}$)

u ; 通気線速度 [cm/sec]

$K_{f_{av}}$; 総括移動容量係数 [$\text{kg-Packing Material}/\text{m}^3/\text{sec}$]

H ; 定数 [$\text{kg-Packing Material}/\text{m}^3$]

一方、生物反応律速領域では、単位充填担体重量当たりの臭気成分除去速度は、気相の臭気成分濃度によらず一定となる。この時、脱臭装置における臭気成分除去は、以下の式で表される。

$$C_0 - C_L = \frac{\pi m}{u} L \quad (3)$$

πm ; 生物反応速度係数 [$\text{g-odor}/\text{m}^3/\text{sec}$]

($= R_m \gamma$)

臭気成分濃度が低濃度の場合は(2)式を、高濃度の場合は(3)式を用いるが、その判断基準については表中の式により算出される。

Michaelis-Menten 型と律速段階定義型の双方の除去速度式の比較を図-2に示す。ここで新たに提案した律速段階定義型の除去速度式では、律速段階を定義した上で、それぞれ別個の式を用いる。したがって、対象となる臭気成分の濃度が低濃度から高濃度まで広範囲に及ぶ場合には、その状況に合わせて2つの式を使い分ける必要がある。しかし、通常の生物脱臭装置においては、収着律速領域での操作が多く、この時、律速段階定義型の除去速度式では、1つのパラメータ (πd) を用いた簡便な評価が可能となる。また、律

速段階定義型の除去速度式では、後述のように、代謝生成物の蓄積（臭気成分の酸化生成物）を定量的に考慮することが可能となる。

3. 3 通気条件と散水条件との関係

充填塔型生物脱臭装置では、微生物の生息環境の保持および代謝生成物の洗い流しの2つの目的により、散水が行われる。特に硫化水素 (H_2S)、メチルメルカプタン (MM ; $(\text{CH}_3)_2\text{SH}$)、硫化メチル (DMS ; $(\text{CH}_3)_2\text{S}$) に代表される硫黄系臭気物質を対象とする場合、充填層には、代謝生成物として硫酸 (H_2SO_4) が蓄積する。 H_2SO_4 の蓄積は、pHの低下を促し、またこれを中和することによっても塩類の蓄積が生じるために、特に H_2S を除く有機硫黄系臭気物質の除去に障害を及ぼす^{5, 6)}。したがって、散水条件は、通気条件との関係から、代謝生成物の排出に十分な速度で行う必要がある。

生物脱臭装置において、ガスと散布水が共に押し出し流れで向流接触すると考えれば、収着律速領域の条件下で、充填層内の代謝生成物蓄積量の分布は、以下の式で与えられる。

$$Ac(l) = \frac{VC_0}{Mw} n \left\{ \exp\left(-\frac{\pi d}{u} l\right) - \exp\left(-\frac{\pi d}{u} L\right) \right\} \quad (4)$$

$Ac(l)$; ガス流入端から l [m] 地点における代謝生成物蓄積量 [mol/L]

n ; 主要原子 (S, N など) の (臭気成分1分子中の数) / (代謝生成物1分子中の数) [-]

M ; 臭気成分および代謝生成物に共通する主要原子 (S, N など) の原子量 [-]

図-2 Michaelis-Menten 型の除去モデルと律速定義型の除去モデルの概念

W; 充填層への散水量 [L/sec]

さらに、代謝生成物が H_2SO_4 や硝酸 (HNO_3 ; 窒素系臭気物質の酸化により生成する) である場合、遊離する水素イオンによって、充填層の液相は酸性化する。ただし、この時の pH 低下の程度は、充填層に散布する液の組成に大きく依存する。特に、緩衝能力が高い散布液を使用した場合、液相の酸性化を抑制することができる。水処理施設に適用される多くの生物脱臭装置では、散布水に処理水を使用しているが、表 2 に示すように、アルカリ度の高い散布水の適用は、液相の酸性化抑制に効果が高いと考えられる。

4. 律速段階定義型除去モデルの適用手法

4. 1. 硫黄系混合臭気の除去に対する適用

生物脱臭装置による硫黄系混合臭気の除去においては、通常 $\text{H}_2\text{S} > \text{MM} > \text{DMS}$ の順に除去率が高い。著者らは、生物脱臭装置に関するアンケート調査⁶⁾を行ったが、ここで得られた H_2S 、MM、DMS の除去データより、(2)式に回帰し得るデータを抽出した。

本集計では、充填担体や通気ガス温度 (22 ± 4 [°C]) などの条件の違いによって、収着速度係数 πd の絶対値は様々であった。そこで、 H_2S の収着速度係数 $\pi d^{\text{H}_2\text{S}}$ を基準として、MM、DMS の収着速度係数の相対値を算出した。結果を図-3 に示す。図より、

表 2 各アルカリ度における H^+ 濃度と SO_4^{2-} との関係

図中の数値は SO_4^{2-} 濃度 [mg-S/L]

アルカリ度 pH	1[mg/L]	3[mg/L]	10[mg/L]	30[mg/L]	100[mg/L]
1.0	3201	3202	3206	3219	3264
1.3	1604	1606	1610	1623	1668
2.0	320.6	321.9	326.4	339.2	384.0
2.3	161.0	162.3	166.8	179.6	224.4
3.0	32.64	33.92	38.40	51.19	95.97
3.3	16.68	17.96	22.43	35.22	79.98
4.0	3.837	5.112	9.572	22.32	66.92
4.3	2.238	3.507	7.948	20.64	65.04
5.0	0.9327	2.158	6.447	18.70	61.59
5.3	0.7481	1.924	6.038	17.80	58.94
6.0	0.4746	1.360	4.461	13.32	44.32
6.3	0.3544	1.032	3.405	10.19	33.92
7.0	0.1174	0.3523	1.174	3.523	11.74
7.3	0.06000	0.1896	0.6431	1.939	6.474
8.0	—	0.01052	0.1090	0.3903	1.375

注) 算出に用いた式は以下の通り

$$[\text{SO}_4^{2-}] =$$

$$[\text{H}^+] + [\text{NaHCO}_3] - \text{kw} / [\text{H}^+] - \text{kc}_1, [\text{NaHCO}_3] / (\text{kc}_1 + [\text{H}^+])$$

$$\text{kw}; \text{水のイオン積}[(\text{mol/L})^2]$$

$$\text{kc}_1; \text{炭酸}(\text{H}_2\text{CO}_3 + \text{CO}_2, \text{総濃度}[\text{H}_2\text{CO}_3^*]) \text{の解離定数}[(\text{mol/L})]$$

$$(\text{HCO}_3^-) / [\text{H}^+] / [\text{H}_2\text{CO}_3^*] = 4.45 \times 10^{-7} \text{ at } 25[^\circ\text{C}]^{10)}$$

図-3 πd^{MM} および πd^{DMS} の $\pi d^{\text{H}_2\text{S}}$ に対する比率

$\pi d^{\text{MM}} / \pi d^{\text{H}_2\text{S}}$ は、0.3~0.8、 $\pi d^{\text{DMS}} / \pi d^{\text{H}_2\text{S}}$ は 0.2~0.5 程度であることがわかる。勝又⁷⁾は、生物脱臭装置の除去速度の解析に対して(2)式と同様の回帰式を用いているが、得られた πd に相当する係数についてはほぼ同様の傾向が得られている。

また、図では、生物脱臭装置の散布水の散布を循環式とした場合と一過式にした場合を区別した。循環して散布水を使用する場合、硫黄化合物の代謝生成物である H_2SO_4 を中和するため、 NaOH が注入されている。また一過式では、 H_2SO_4 は散布水による洗浄によって除去されている。本集計の範囲内では、 $\pi d^{\text{MM}} / \pi d^{\text{H}_2\text{S}}$ 、 $\pi d^{\text{DMS}} / \pi d^{\text{H}_2\text{S}}$ は、循環式の方でより小さい値となっている。すなわち、収着律速領域においても、特に循環式の条件下での MM および DMS の除去速度は、同条件における H_2S の除去速度と比較して著しく低くなることを示すものである。品部ら⁸⁾は、 H_2S の除去についてはむしろ循環式の方が有利であることを報告しており、また、MM および DMS の除去に対しては、液相 SO_4^{2-} の蓄積による阻害を受けやすい⁹⁾ことが知られており、これらは本集計結果と合致している。

表 3 単一臭気を用いた実験値からの πd の算出

臭気物質	文献名 (担体, 植種の種類)	
	趙ら ¹⁰⁾ (ピート, し尿汚泥)	Tanji ¹¹⁾ ら (発泡プロピレン, 硫酸酸化細菌懸濁液)
H_2S	0.107	0.36~0.48
MM	0.105	0.35~0.48
DMS	0.0447	0.40~0.44

注) 趙らのデータについては、Michaelis-Menten式より算出したもの

比較データとして、趙ら¹⁰⁾によるビートの脱臭実験結果から算出した収着速度係数 πd 、および Tanji ら¹¹⁾の培養菌を用いた脱臭実験結果より算出した収着速度係数 πd を表3に示す。ビート脱臭による結果は、 H_2S 、 MM 、 DMS をそれぞれ単独で通気したものであるが、 $\pi d^{MM}/\pi d^{H_2S}$ は1に近く、 MM の除去効率が H_2S の場合とほぼ同程度得られている。この差異は、混合臭気と単独臭気との違いに起因するものであると考えられる。 $\pi d^{DMS}/\pi d^{H_2S}$ については、集計結果と比較して大差ない値である。一方、培養菌による実験結果からは、 $\pi d^{MM}/\pi d^{H_2S}$ 、 $\pi d^{DMS}/\pi d^{H_2S}$ は、いずれも1に近い値となっている。培養菌を散布する条件下では、液相に高濃度の代謝微生物群が存在しており、 MM および DMS の除去に対して、極めて高い反応吸収の効果¹²⁾（気液界面における物質移動抵抗を減じる効果）が得られたと考えられる。

以上の結果より、生物脱臭装置による硫黄系混合臭気の除去に対して収着律速領域の除去モデルを適用する場合、阻害による除去率低下の影響が少ない H_2S の収着速度係数 πd^{H_2S} を基準として、 $\pi d^{MM}/\pi d^{H_2S} \approx 0.75$ 、 $\pi d^{DMS}/\pi d^{H_2S} \approx 0.45$ 程度が見込まれると考えられた。この数値は、実験的に得られた πd^{H_2S} を基準に、 MM の収着速度係数 πd^{MM} 、および DMS の収着速度係数 πd^{DMS} を外挿する際の指標となると考えられる。またこの数値は、 MM および DMS の除去速度が H_2S の除去速度と比較して著しく低いことを意味している。

4. 2 アンモニアと硫黄系物質の混合臭気の除去に対する適用

先のアンケート調査⁶⁾に基づいて、充填塔型生物脱臭装置による NH_3 と硫黄系物質の混合臭気の除去における、各臭気成分の収着速度係数 πd を、 NH_3 と H_2S の場合について算出した。結果を図-4に示す。こ

のデータにおける NH_3 と H_2S の混合比は、1 : 3 ~ 1 : 20の範囲内にあり、おおそ H_2S 主体の混合臭気である。図より、実際の生物脱臭装置における NH_3 の収着速度係数 πd^{NH_3} は、 πd^{H_2S} と比較して低い傾向にある。 H_2S 主体臭気の除去においては、液相における $NH_3(NH_4^+) \rightarrow NO_3^-$ の酸化反応が観察されないことが多く、 $NH_3(NH_4^+)$ は H_2S の酸化反応により生成する H_2SO_4 との中和反応により除去される¹³⁾と考えられている。このことは同時に、 SO_4^{2-} の存在が NH_3 の酸化反応を阻害することを意味しており、 πd^{NH_3} が πd^{H_2S} と比較して低くなっている原因と考えられる。

一方、 NH_3 が主成分となる場合について、 NH_3 と硫黄系物質の混合臭気の除去で観察される NH_3 と H_2S の収着速度係数、 πd^{NH_3} および πd^{H_2S} を、著者らの実験結果¹²⁾より算出した結果を表4に示す。表より、 NH_3 主体臭気においては、 πd^{NH_3} は πd^{H_2S} と比較して高く、さらに、 πd^{H_2S} の値は、 NH_3 の存在しない硫黄系混合臭気の除去において観察された πd^{H_2S} と比較しても低い。したがって、 NH_3 主体臭気の除去においては、逆に硫黄系臭気の除去阻害を考慮する必要があると考えられる。

このように、 NH_3 と硫黄系物質の混合臭気の除去に際しては、その組成によって相互に与える影響が著しく異なると考えられ、今後さらに詳細な検討が必要である。

4. 3 変動臭気の除去に対する適用

著しく変動する臭気発生源に対して生物脱臭装置を適用する場合、ベース（定常時）とピーク（変動時）の間の変動幅、各ピーク間の時間間隔、および充填担体が持つ収着能力の3つの要素が重要となる。

濃度変動の範囲が収着律速領域にあり、変動幅が比較的小さい場合は、その平均的な濃度が定常的に流入すると扱って差し支えないと考えられる。収着律速領域では、充填担体表面に臭気成分が収着する容量が十分に確保されており、多少の変動幅によって収着量が

図-4 πd^{NH_3} と πd^{H_2S} との比較

表4 NH_3 主体混合臭気における NH_3 と H_2S の πd の比較¹²⁾

No.	臭気物質	πd [1/sec]	備考
1)	NH_3	2.55×10^{-4}	液相に存在する NO_3^- 濃度が高い場合
	H_2S	2.31×10^{-6}	
2)	NH_3	8.34×10^{-4}	液相に存在する NO_3^- 濃度が低い場合
	H_2S	4.08×10^{-4}	
3)	H_2S	4.51×10^{-4}	硫黄系混合臭気の場合

飽和収着量に対して大きく変動することではなく、また、充填担体表面に生息する微生物酸化速度は、平均的な臭気成分流入量に対して平衡の状態まで成長すると考えられるからである¹⁴⁾。一方、濃度変動の幅が著しく大きく、ピークが鋭角状に現れる場合には、充填層は極めて馴養されにくく、定常状態で説明される除去モデルおよび各種係数値を適用することは不可能となる¹⁵⁾。

ただし、多くの生物脱臭装置が変動特性の著しい臭気発生源に適用されている⁶⁾ものの、変動臭気に対する除去特性については極めて知見が少ない。今後は、充填担体および臭気成分ごとに詳細な検討を行い、生物脱臭装置で許容される（すなわち定常負荷の場合と同程度の除去率が期待される）変動特性の範囲を具体的に提示する必要がある。

5. 充填塔型生物脱臭装置の設計手法

5. 1 手順の概要

これまで、生物脱臭装置の設計には適切な方法が提示されておらず、単位充填容積当たりの最大臭気成分除去速度が、設計時の指標として提示されている場合も見受けられる。しかし、律速段階定義型の除去モデルで明確にしたように、単位充填容積当たりの臭気成分除去速度が一定となるのは、生物反応律速領域（高濃度臭気）の条件下においてのみである。一方、通常の実操作条件である収着律速領域（低濃度臭気）では、臭気成分除去速度は、およそ気相の臭気成分濃度に比例する。生物脱臭装置の設計においては、特にこの差異を把握した上で行われる必要がある。また、発生臭気の組成、あるいは臭気発生の変動特性を考慮することも重要である。これらを考慮した生物脱臭装置の設計手順の概要をAppendix（本文末）に示す。

ただし、Appendix.中では、律速段階定義型除去モデルにおける係数（ πd および πm ）の値が既知であることを前提としている。これらの値は、充填担体に固有の数値であり、新規の充填担体を適用する場合には、実験的にこれらの数値を求める必要がある。

5. 2 主成分の決定

多成分の臭気成分を含むガスを生物脱臭装置により処理する場合、以下の2つの場合に分けて、それぞれ適切な除去モデルを適用することが望ましいと考えられる。

(1) 1 主成分混合臭気

処理対象の臭気成分を1成分に限定可能な混合臭気

をいい、生物脱臭装置の設計は、この1成分の除去を目的に行う。ただし、ここで言う主成分は、必ずしもガス中の成分組成の中で最も高い濃度の成分を指すとは限らない。主成分は、装置内における除去速度の大小と、目標とする処理ガス中の濃度とを考慮して決定されるべきである。また、主成分を特定して除去モデルを適用する場合、他の成分が主成分の収着および微生物酸化に与える影響を無視でき、かつ主成分の除去に伴って容易に除去されることを前提とする。

(2) 複合主成分混合臭気

特に、ある臭気成分が生物脱臭装置で除去される過程が、他の臭気成分の存在により著しく損なわれる場合、生物脱臭装置の充填層の中で、複数の主成分が異なる部位で順次除去されると仮定する。すなわち、除去モデルにより推定される必要充填層高は、各主成分の除去に必要な充填層高の和として考える。この考え方では、除去の過程で他の成分による阻害を受けない主成分が、充填層の流入側で除去され、その主成分が十分に除去された後に通過する充填層部分で、他の成分が除去されると仮定している。

低濃度（収着律速領域）の硫黄系臭気の除去を例に挙げて、主成分を1物質に限定する場合を考える。この時考慮されるべき点は、各臭気成分の収着速度係数 πd と、処理ガスで目標とされる各臭気成分の感覚的強度（臭気強度）である。H₂S、MM、DMS の3成分の濃度比と、主成分として扱うべき臭気物質との関係を表5に示す。硫黄系臭気の組成は、多くの場合H₂S濃度が最も高いために、脱臭装置の設計においてもH₂Sの除去を基準に策定する場合が多い。しかし、同じ臭気強度を達成するためには、MM、DMSはより低い濃度まで処理する必要がある。また、脱臭装置内での除去速度も低い傾向にある。したがって、H₂S濃度に対するMM濃度の比率が0.02以上である場合はMMを、H₂S濃度に対するDMS濃度の比率が0.01以上である場合はDMSを基準に、脱臭装置を設計することが望ましいと考えられる。

5. 3 脱臭装置の設計手法の一例

これまで述べてきた設計の手順を総括する目的で、充填塔型生物脱臭装置の設計の具体例を挙げてみる。

表6に、対象とする臭気の組成および処理風量を示す。充填担体にはピート担体を用いる。ピート担体の通気線速度（空塔速度：LV）は0.05 [m/sec] 程度が適当とされているので、充填層の断面積は3.33 [m²]と決定される。一方、臭気組成より表5を用い

表5 H₂S, MM, DMS 3成分の混合臭気の組成比と1主成分除去モデル適用時の主成分との関係

$\frac{C_{DMS}}{C_{H_2S}}$	$\frac{C_{MM}}{C_{H_2S}}$	0.002	0.005	0.01	0.02	0.05	0.1	0.2	0.5	1	2	5
0.002	H ₂ S	H ₂ S	H ₂ S	MM	MM	MM	MM	MM	MM	MM	MM	MM
0.005	H ₂ S	H ₂ S	H ₂ S	MM	MM	MM	MM	MM	MM	MM	MM	MM
0.01	DMS	DMS	DMS	MM	MM	MM	MM	MM	MM	MM	MM	MM
0.02	DMS	DMS	DMS	DMS	MM	MM	MM	MM	MM	MM	MM	MM
0.05	DMS	DMS	DMS	DMS	DMS	MM	MM	MM	MM	MM	MM	MM
0.1	DMS	DMS	DMS	DMS	DMS	DMS	MM	MM	MM	MM	MM	MM
0.2	DMS	DMS	DMS	DMS	DMS	DMS	DMS	MM	MM	MM	MM	MM
0.5	DMS	DMS	DMS	DMS	DMS	DMS	DMS	DMS	MM	MM	MM	MM
1	DMS	DMS	DMS	DMS	DMS	DMS	DMS	DMS	DMS	MM	MM	MM
2	DMS	DMS	DMS	DMS	DMS	DMS	DMS	DMS	DMS	DMS	MM	MM
5	DMS	DMS	DMS	DMS	DMS	DMS	DMS	DMS	DMS	DMS	DMS	DMS

- 1) 収着律速領域（低濃度臭気）においてのみ適用可能
- 2) $\pi d^{MM} / \pi d^{H_2S} = 0.75$, $\pi d^{DMS} / \pi d^{H_2S} = 0.45$ と仮定
- 3) 処理ガスは臭気強度2.5を目標とし、臭気強度2.5における3成分の濃度は、それぞれH₂S; 0.02[ppm], MM; 0.002[ppm], DMS; 0.01[ppm]と仮定

表6 設計の対象とする混合臭気と処理風量

処理風量	10[m ³ /min]
流入H ₂ S濃度	10[ppm]
流入MM濃度	0.15[ppm]
流入DMS濃度	0.05[ppm]
流入NH ₃ 濃度	1[ppm]

て判断すると、硫黄系3物質の中での主成分はH₂Sとなる。また、NH₃濃度は、H₂S濃度と比較して十分低く、H₂S酸化で生じるH₂SO₄により中和除去されることを期待して設計の際には考慮しない。そこで、ここで対象とする臭気は1主成分（H₂S）混合臭気であると判断する。また、表7の手順に従って、充填層全体が収着律速領域となる入口臭気成分濃度の最大値を求め、対象とする臭気組成と比較する。表より、ここで対象とする臭気については、充填層全体が収着律速領域であると考えられる。また、処理ガス中のH₂S濃度は0.02[ppm]を目標とする。

最初に、充填層高を決定する。 $u=0.05$, $\pi d=0.18$ [1/sec], $C/C_0=0.02/10=2.0 \times 10^{-3}$ [-] を(2)式に代入することにより、 $L=1.73$ [m]と算出される。

次に散水方法および散水量を設定する。充填層高の決定の際にはH₂Sのみを考慮したが、散水方法および散水量は、MMおよびDMSの除去を考慮に入れて設定する。H₂S除去ではpH1.0, SO₄²⁻濃度20000~40000 [mg/L]の条件でも著しい阻害を受けない^{8, 9, 16)}が、MMについてはpH5.0以上、DMSに

表7 ピート充填層において収着律速領域の除去が行われるための最大臭気成分濃度の算出

	H ₂ S	MM	DMS
収着速度定数 πd [1/sec]	0.180	0.135	0.081
最大除去速度 R_m [g-S/kg-Packing Material/sec]	5.79×10^{-5}	1.04×10^{-5}	4.40×10^{-5}
収着律速領域となるための 最大臭気成分濃度 C_m^* [ppm]	17	4.0	2.8

*) $C_m = \frac{R_m \gamma}{\pi d}$, $\gamma = 67.4$ [kg-Packing Material/m³] より算出

ついてはpH6.0以上に保たなければ、除去率は著しく低下する⁹⁾。そこで、散水方法はMMおよびDMSの除去を考慮に入れて一過式とし、気液接触は向流式とする。さらにMMおよびDMSの除去層として、pH低下の少ない領域を充填層上部（ガス流出側）に確保するよう散水量を決定する。MMの除去に必要な充填層高は、処理ガス濃度を0.002[ppm]と設定すると、 $\pi d^{MM}=0.135$ [1/sec], $C/C_0=0.002/0.15=1.3 \times 10^{-2}$ [-] より、 $L=1.61$ [m], DMSの除去に必要な充填層高は、処理ガス濃度を0.01[ppm]と設定すると、 $\pi d^{DMS}=0.081$ [1/sec], $C/C_0=0.01/0.05=0.2$ [-]より、 $L=0.99$ [m]であるため、ほぼ充填層全体をpH5.0以上、充填層ガス入口端（ガス流入側）より0.74 [m]以上の地点をpH6.0以上に保つ必要がある。そこで、アルカリ度30[mg/L]の二次処理水を充填層に向流接触させるとすると、表2よりpH5.0となるSO₄²⁻濃度は18.7[mg-S/L]であるから、(4)式を用いて $Ac(\ell) = 18.7$ [mg-S/L] = 5.84×10^{-4} [mol/L], さらに、 $V=0.167$ [m³/sec], $C_0=1.33 \times 10^{-2}$ [g-S/m³] (H₂S入口濃度), $M=32$ [-], $\ell=0$ [m], $L=1.73$ [m], $\pi d^{H_2S}=0.18$ [1/sec], $u=0.05$ [m/sec]を代入すると、 $W=0.119$ [L/sec]が得られる。この時、充填層全体でpH5.0以上の条件が満たされるが、ガス入口端より0.74[m]の地点でのSO₄²⁻濃度は 3.95×10^{-5} [mol/L] = 1.26 [mg-S/L], pHは約7.5となり、0.74[m]地点での条件も満たしている。

6. 結 論

本報では、充填塔型生物脱臭装置の設計に関わる事項をまとめ、現時点で考えられる最適な設計手法を提案した。得られた知見は以下の通りである。

(1) 充填塔型生物脱臭装置における臭気成分除去モデルとして、新たに律速段階定型の除去モデルを提案した。このモデル式は、低濃度臭気の除去機構と高濃度

臭気の除去機構を個別に扱う点が特徴である。このモデルの適用によって、混合臭気を対象とした装置設計や散水条件の決定手法が、より合理的になると考えられる。

(2) 収着律速領域での臭気成分除去において、硫黄系臭気物質の収着速度係数 πd は、通常、 H_2S の πd を基準として、 $\pi d^{\text{MM}} / \pi d^{\text{H}_2\text{S}} \approx 0.75$ 、 $\pi d^{\text{DMS}} / \pi d^{\text{H}_2\text{S}} \approx 0.45$ 程度が見込まれる。この数値は、 $\pi d^{\text{H}_2\text{S}}$ から πd^{MM} および πd^{DMS} を類推する指標となると考えられる。また、MM および DMS の除去速度は、 H_2S の除去速度と比較して極めて遅く、濃度比では H_2S の比率が高い硫黄系混合臭気であっても、MM や DMS を主成分とした方が妥当である場合も想定される。

(3) 散水条件は、通常、代謝生成物の洗い流しに必要な十分な散水速度を設定する必要があるが、律速段階定義

型の除去モデルの適用により、至適散水条件は、充填層内の代謝生成物濃度の分布を考慮した上で、理論的に推算することが可能となる。また、アルカリ度を考慮した pH 低下の予測も可能となる。

(4) 生物脱臭装置で除去の対象となる臭気は、主成分（除去の対象あるいは指標とする臭気成分）が 1 物質に限定可能な組成、すなわち 1 主成分混合臭気として扱う場合と、複数の臭気成分を主成分として考慮する組成、すなわち複合主成分混合臭気として扱う場合とが考えられる。主成分は、装置内における除去速度の大小と、目標とする処理ガス中の濃度とを考慮して決定されるべきであり、さらに、目標とする処理ガス濃度は、各臭気成分の感覚的強度を基準に考慮する必要があると考えられる。

ただし、依然として装置設計に必要なデータは不足しており、特に、変動負荷に対する設計指針については不確定な部分が残っている。したがって、より確固たる設計手法を確立し、生物脱臭法をさらに普及させるためには、今後も細部にわたった系統的検討が不可欠である。

参 考 文 献

- 1) Pruss M., Blunk H.; German Patent No. 710954, 1941
- 2) 樋口能士：生物脱臭法における除去機構，環境技術，21 (8)，485-488, 1992
- 3) (社) 臭気対策研究協会編：生物脱臭の基礎と応用，p.36, (社) 臭気対策研究協会技術委員会生物脱臭部会，1988
- 4) 平井光代，寺沢真琴，稲村功，藤江幸一，正田誠，久保田宏：ピートを用いた有機硫黄系化合物の生物脱臭，臭気の研究，19 (6)，305-312, 1988
- 5) 柴山昌和，藤江幸一，立川一水：悪臭物質除去速度に対する影響因子の解明，第 29 回下水道研究発表会講演集，818-820, 1992
- 6) 大迫政浩，樋口能士，田中 勝：アンケート調査にもとづく生物脱臭法の技術的評価（その 2）-操作条件と除去率-，臭気の研究，25 (4)，245-251, 1994
- 7) 勝又和信：横浜市における生物脱臭法について，月刊下水道，16 (2)，33-38, 1993
- 8) 品部和宏，岩部秀樹，桶谷 智，鳥山明夫：イオウ系臭気成分を対象とした充填塔式生物脱臭塔の散水方式について，第 29 回下水道研究会講演集，809-811, 1992

Appendix. 充填塔型生物脱臭装置の設計手順の概要

- 9) 藤江幸一, 野澤満実枝, 中込浩樹, 浦野紘平; 硫黄系悪臭物質の生物脱臭に対する pH および硫酸イオン濃度の影響, 臭気の研究, 24 (1), 15-23, 1993
- 10) 趙 敬淑, 平井光代, 正田 誠; ビートバイオフィルターから単離した硫黄酸化微生物の特性および生物脱臭への応用 [1] ビートバイオフィルターにおける硫黄系悪臭物質の除去特性及び微生物相一, 臭気の研究, 23 (5), 215-221, 1992
- 11) Tanji Y., Kanagawa T., & Mikami E.; Removal of dimethyl sulfide, methyl mercaptan and hydrogen sulfide by immobilized Thiobacillus thioautotrophicus TK-m, J. Ferment. Bioeng., 67, 280, 1989
- 12) 樋口能士, 樋口隆哉, 西田耕之助, 松井三郎; 充填塔型生物脱臭装置による混合臭気の除去特性に関する実験的研究, 下水道協会誌論文集, 31 (379), 1-15, 1994
- 13) 藤枝幸一, 立澤弘久, 浦野紘平, 久保田宏, 小西功三, 藤田勝美; 固定化微生物による脱臭装置の開発, 臭気の研究, 21 (2), 98-109, 1990
- 14) 樋口能士, 西田耕之助, 松井三郎, 大迫政浩, 充填塔型生物脱臭法におけるH₂S除去の動力学モデル, 土木学会論文集, No. 456, II-21, 75-82, 1992
- 15) 投稿準備中
- 16) 樋口能士, 樋口隆哉, 西田耕之助, 松井三郎; 生物脱臭法による硫化水素とアンモニアの同時除去を目的とした実験的検討, 環境工学研究論文集, Vol. 29, 9-16, 1992
- 17) W. Stumm & J. J. Morgan; Aquatic chemistry 2nd edition, p205, John Wiley & sons, 1981

第4回カナダ自然環境プログラム

UBC ENVIRONMENTAL SUMMER SCHOOL

●留学先・・・THE UNIVERSITY OF BRITISH COLUMBIA, VANCOUVER B.C. (CANADA)

●期間・・・1995年8月6日(日)～8月19日(土)14日間

●費用・・・220,000円(授業料、宿泊費、一部食費)

※航空代金は含まれておりません。

●定員・・・40名(最少催行人数25名)

●対象・・・15歳以上の心身ともに健康な一般社会人・学生で、自然環境に関心のある方。

スケジュール(予定)

	日付	内容	宿泊
1	8月6日(日)	UBC 学生寮集合 オリエンテーション	バンクーバー
2	8月7日(月)	全日レクチャー、ウェルカムランチパーティー	バンクーバー
3	8月8日(火)	午前:リサイクル 午後:野鳥	バンクーバー
4	8月9日(水)	終日 森林学	バンクーバー
5	8月10日(木)	午前:生態学 午後:漁業	バンクーバー
6	8月11日(金)	自由行動 (オプションルツアー)	バンクーバー
7	8月12日(土)	自由行動 (オプションルツアー)	バンクーバー
8	8月13日(日)	自由行動 (オプションルツアー)	バンクーバー
9	8月14日(月)	トフィノ移動 エコロジーセンター訪問	トフィノ
10	8月15日(火)	海洋生物学 ホエールウォッチング他	トフィノ
11	8月16日(水)	PACIFIC RIM 国立公園訪問	バンクーバー
12	8月17日(木)	自由行動	バンクーバー
13	8月18日(金)	原生・郊外林 フェアウェルパーティー	バンクーバー
14	8月19日(土)	UBC 学生寮解散	

予告なしに内容が変更になることがあります。

プログラム概要

特徴: 本プログラムは早稲田エクステンションセンターとブリティッシュコロンビア大学(UBC)生涯教育センターがジョイントして開催するサマースクールです。自然環境分野への入門編ととらえており、講義よりも屋外での実習が中心となる非常にアクティブかつ盛り沢山のプログラムです。また、通訳がつかますので、英語力に自信のない方でも参加できます。

構成: プログラムは原則週4日(1日約7時間のフィールドワーク)で、自由行動を有効に使うと、カナダの大自然が満喫できる行程となっています。

内容: UBC講師あるいは関係機関の専門家による講義とフィールドワーク(通訳つき)

テーマ

①環境問題②環境問題専門用語③リサイクル④野鳥
⑤森林学⑥生態学⑦漁業⑧海洋生物学⑨原生林⑩郊外林
⑪生物種多様性・天文学(オプション)

・イブニングカルチュラルプログラム(自由参加)

例: 博物館見学、スポーツ観戦、観劇 他

・オプションルツアー(ウィスラー)

・パーティー(ウェルカム&フェアウェル)

・修了証書授与

訪問予定地: ①UBCキャンパス②Reifel Bird Sanctuary③UBC Research Forest ④Lynn Canyon Ecology Centre⑤Tofino ⑥Clayoquot Sound ⑦Kayak ⑧Pacific RIM National Park ⑨Pacific Spirit Park

申込: 早稲田大学エクステンションセンター TEL 03-3208-2248 FAX 03-3205-0559