

## ◆ 特集：道路の機能向上に資する技術開発 ◆

## 微生物を活用した脱硝装置の開発の現状と展望

大城 温\* 山本昌弘\*\* 松下雅行\*\*\* 並河良治\*\*\*\*

## 1. はじめに

大都市圏の特に幹線道路沿道では、窒素酸化物 ( $\text{NO}_x$ ) や浮遊粒子状物質 (SPM) 濃度は高く、自動車排出ガス規制等による対策にもかかわらず、依然として環境基準を達成できない地域が残っている。将来の排出ガス規制を考慮しても、今後 10~20 年程度は環境基準非達成地域が局地的に残ると考えられる。

そのため、道路事業者による沿道の局地的な大気汚染対策として、光触媒や土壌などを用いた沿道大気浄化技術の開発が進められている。しかし、既存技術は浄化能力、設置面積や費用の面で一長一短があり、フィールド実験を各地で実施している段階である。

そこで、国土技術政策総合研究所では、安価で設置面積が小さく大気浄化効率が良いことを目標として、微生物による大気浄化技術の開発を行っている。本稿では、この技術の概要及び沿道における実験で得られた大気浄化効果を紹介するとともに、実用化に向けた今後の展望を述べる。

## 2. 微生物による大気浄化技術の概要

微生物による大気浄化技術は、大気中の  $\text{NO}_x$  を水溶液に吸収させ下水道と同様に微生物により無害な窒素に変え、同時に大気中の SPM や硫酸酸化物 ( $\text{SO}_x$ ) 等も水溶液で捕捉するものである。

この大気浄化システムは、吸気部・吸収部・脱窒部に分かれており、大気浄化は以下のような流れで行われる (図-1 参照)。

- ① ブロワーにより自動車排ガスを含んだ沿道大気を浄化装置に送り込む。
- ② 送り込まれた空気におゾンを添加し、大気中の一酸化窒素 ( $\text{NO}$ ) を二酸化窒素 ( $\text{NO}_2$ ) に酸化する。
- ③  $\text{NO}_x$  吸収塔で  $\text{NO}_x$  吸収液と空気を接触させ、 $\text{NO}_2$  を硝酸イオン ( $\text{NO}_3^-$ ) 又は亜硝酸イオン ( $\text{NO}_2^-$ ) として吸収液に取り込む。SPM や  $\text{SO}_2$

も同時に吸収液に取り込む。浄化された空気は排気する。

- ④  $\text{NO}_x$  吸収液は循環利用し、その一部を微生物反応槽に送る。
- ⑤ 微生物反応槽で微生物が  $\text{NO}_3^-$  や  $\text{NO}_2^-$  を窒素に還元する。
- ⑥  $\text{NO}_3^-$  や  $\text{NO}_2^-$  が除去された水溶液は、再び吸収液として利用するため、貯留槽に戻す。

本研究で用いた実験装置では、オゾン酸化装置として紫外線照射法を用い、空気と吸収液の接触促進のためラシヒリングと呼ばれるポリプロピレン製の充填材を  $\text{NO}_x$  吸収塔に充填している。吸収液には、10mmol/L のリン酸緩衝液を用いている。また、炭素源としての微生物反応槽への酢酸の添加と、空気と吸収液の接触により蒸発した吸収液中の水分の貯留槽への補給は自動的に行われる仕組みである。

このように、水分と炭素源の補給の他は電力だけが必要なシステムとなっており、廃棄物もほとんど出ないうえ、システムの設置場所の制約は少ないことが特徴である。

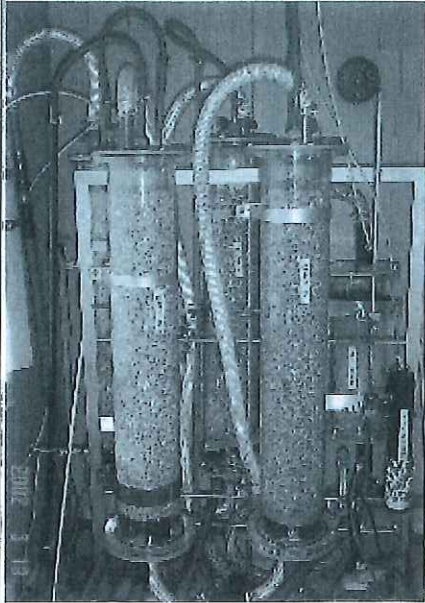
## 3. 開発の経緯と成果

本技術の研究は、平成 8 年度より実施している。まず、微生物による脱窒反応速度の測定を実施し、水溶液中の  $\text{NO}_3^-$  及び  $\text{NO}_2^-$  の除去効果と液温及びイオン濃度が除去効果に与える影響を確認した<sup>1),2)</sup>。平成 10 年度から吸収部の実験を実施し、 $\text{NO}_x$  吸収効率の良い吸収方式及び吸収液を選定するため、様々な条件で  $\text{NO}_x$  を  $\text{NO}_3^-$  及び  $\text{NO}_2^-$  として吸収液に取り込む実験を行った<sup>3),4)</sup>。

これらの実験結果に基づき、平成 11 年度に室内大気浄化実験装置を製作し、実験室内における連続大気浄化試験に成功した<sup>5)</sup>。

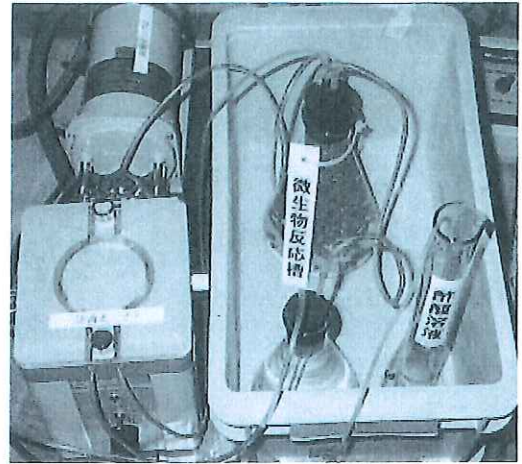
そこで、平成 12 年度に実際の幹線沿道に大気浄化装置を設置し、通気流量や吸収液温度等の条件を変えながら連続 2ヶ月間にわたり大気浄化試験を実施した結果、通気した  $\text{NO}_2$  の除去率は最高 35%であり<sup>6)</sup>、 $\text{NO}_x$  全体の除去率は約 12%であった。





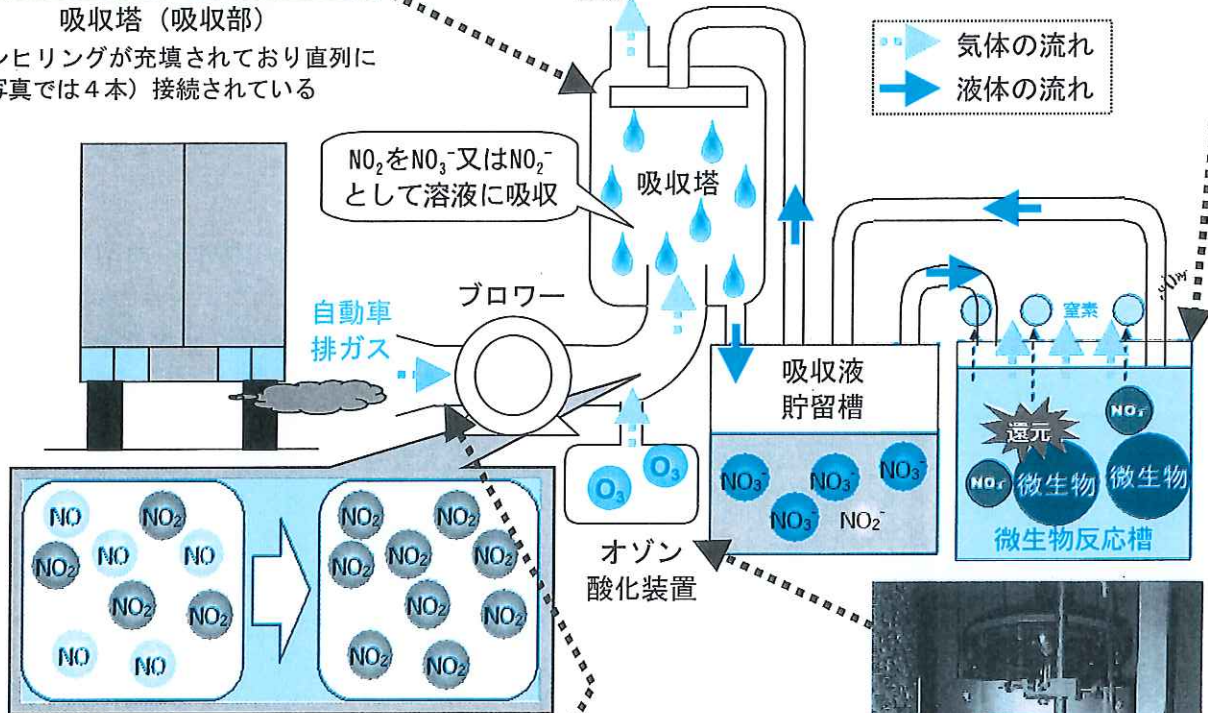
吸収塔 (吸収部)

ラシヒリングが充填されており直列に (写真では4本) 接続されている



微生物反応槽 (脱窒部)

写真右上に見える三角フラスコが微生物反応槽  
右に見えるメスシリンダーから微生物の炭素源  
として自動的に酢酸を供給する

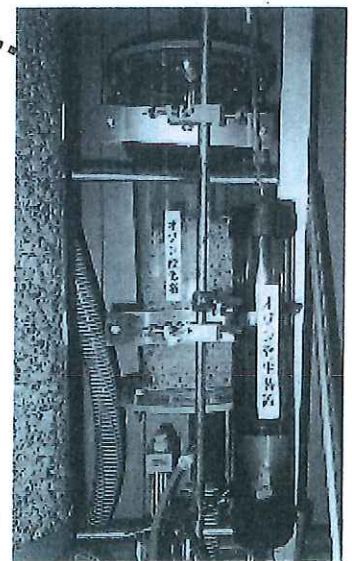


$\text{NO}_x$  中の  $\text{NO}$  はオゾンで酸化され  $\text{NO}_2$  に変化する



吸気口及び排気口

排気管高さの道路端に吸気口を設け  
高濃度の大气汚染物質を吸気する



オゾン酸化塔

右の装置でオゾンを発生させ中央の  
塔内に通気し  $\text{NO}$  を  $\text{NO}_2$  に酸化する

図-1 微生物による大気浄化システム





図-2 実験実施場所の位置



図-3 実験場所周辺の交通状況  
(平成11年度道路交通センサスより)

#### 4. 沿道における大気浄化実験

##### 4.1 実験の経緯

平成12年度までに行った実験では、水に溶解しにくいNOをほとんど吸収できなかった。しかし、自動車排ガス中の窒素酸化物の大部分を占めるNOも排出後に徐々に酸化されNO<sub>2</sub>に変換されることを考慮すると、NOを酸化しNO<sub>2</sub>として同時に吸収することが望ましい。全てのNOをNO<sub>2</sub>に酸化することとした場合、吸気中のNOとNO<sub>2</sub>の比が2:1から3:1程度であることから、NO<sub>x</sub>全体で70%程度の除去率が確保できないと、浄化した空気(排気)の方が吸気よりもNO<sub>2</sub>濃度が上昇してしまうことになる。

そこで、13年度の実験<sup>7)</sup>では、オゾン酸化工



写真-1 実験施設の設置状況

程を追加し、NOをNO<sub>2</sub>に酸化することによりNO<sub>x</sub>除去率70%を目標として除去率の向上を図った。具体的には、吸収塔(内径17cm、高さ100cm)を直列に数本つなぎ、かつ通気流量を抑制して接触時間を増加させた(図-1左上参照)。また、除去率とともに除去量を向上させるため、よりNO<sub>x</sub>濃度の高い大気を吸引できるように吸気口を車道端に設置した。

##### 4.2 実験の概要

実験は2002年2~3月の約1ヶ月間にわたって、後述する5条件で実施した。実験施設は、大阪府東大阪市内の国道308号と府道大阪中央環状線の交差する西荒本北交差点西側の中央分離帯内に設置した(写真-1)。当該交差点は、高架構造の阪神高速東大阪線と近畿自動車道が交差する東大阪ジャンクションがあり、複層構造となっている。

平成11年度の道路交通センサスによれば、交通量は実験施設を設置した国道308号で平日約7万5千台、休日約10万台とかなり多い。大型車混入率は11.5%である。また、西荒本北交差点及び東大阪ジャンクションを通過する交通量は、平日休日ともに30万台以上と非常に多い地点である。

実験場所に最も近い自動車排出ガス測定局である東大阪市公害監視センター(府道大阪中央環状線沿道に所在)における平成2~11年度の10年間平均値は、NO<sub>2</sub>の年平均値で0.036ppm、日平均値の年間98%値で0.062ppm(環境基準0.06ppm)、SPMの年平均値で0.047mg/m<sup>3</sup>、日平均値の年間2%除外値で0.108mg/m<sup>3</sup>(環境基準0.100mg/m<sup>3</sup>)となっている。

吸気口は、効率的な大気浄化のためNO<sub>x</sub>及びSPM濃度が高いと予想される交差点の停止線後方脇の地上50cmに設置した。実験期間中における吸気口でのNO<sub>2</sub>濃度は1時間値で平均



表-1 実験条件

実験条件	通気流量	吸収塔本数	オゾン添加
①	50L/分	2	なし
②	50L/分	2	2.4mg/時
③	50L/分	4	なし
④	50L/分	4	2.2mg/時
⑤	100L/分	4	1.2mg/時
12年度	250L/分	2	なし

0.06~0.08ppm、NO<sub>x</sub> 濃度で平均 0.2~0.3ppm 程度、SPM 濃度で平均 0.06~0.07mg/m<sup>3</sup> 程度であった。

実験条件は表-1 に示すとおりである。比較ケースとして、平成 12 年度に実施した実験のうち今年度の試験条件と類似したものも示している。

オゾンの添加量は、装置の制約上周圍の NO<sub>x</sub> 濃度に関係なく一定とせざるを得なかったため、NO<sub>x</sub> 濃度の低い場合に余剰オゾンが発生しないように、室内実験に基づき少なめに設定した。これは、余剰オゾンが装置外に排出されると、オゾン自体が人体に有害なだけでなく光化学スモッグの原因でもあり新たな大気汚染を生じてしまうこと、また余剰オゾンにより NO<sub>2</sub> がさらに酸化され五酸化二窒素 (N<sub>2</sub>O<sub>5</sub>) が発生し、NO<sub>x</sub> 計で測定できなくなることが理由である。

### 4.3 実験の結果 (大気浄化効果)

実験における大気浄化試験の結果を図-4~7 に示す。図-4, 5 は吸気口及び排気口における NO<sub>x</sub>、SPM の平均濃度を示しており、図-6, 7 は NO<sub>x</sub>、SPM の 1 日あたりの除去量と平均の除去率 (排気口濃度/吸気口濃度) を示している。

今回の実験では通気流量を平成 12 年度と比較して 20~40% に落としたため、除去率は大幅に向上した。また、オゾンを追加しない条件①、③及び 12 年度の条件では NO がほとんど除去されないが、オゾンを追加した②、④、⑤では NO を NO<sub>2</sub> に酸化したため、NO<sub>x</sub> 全体の除去率が大幅に向上した。吸収塔の本数を増やした③~⑤では空気と吸収液の接触時間が倍増したため、SPM も含めて除去率が向上した。しかし、通気流量を①~④の 2 倍とした⑤では、除去率が半減したため NO<sub>x</sub> 除去量が④とあまり変わらず、消費エネルギーに対する浄化効率は悪化した。また、②ではオゾン添加量が多すぎたため、NO<sub>x</sub> 濃度は低くなったが NO<sub>2</sub> 濃度は逆に高まった。

次に、実験条件中で最も除去率及び除去量が高

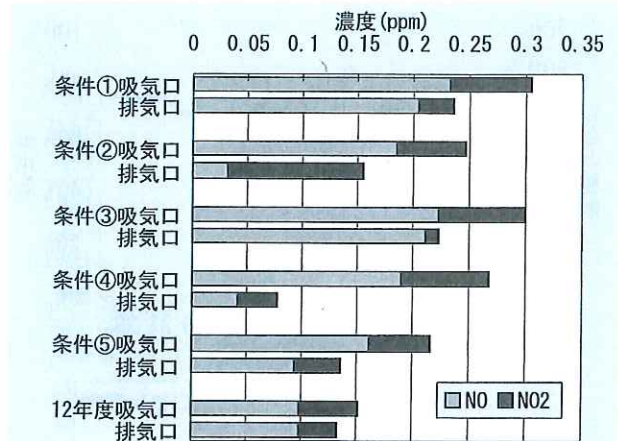


図-4 吸気口及び排気口における NO<sub>x</sub> 平均濃度

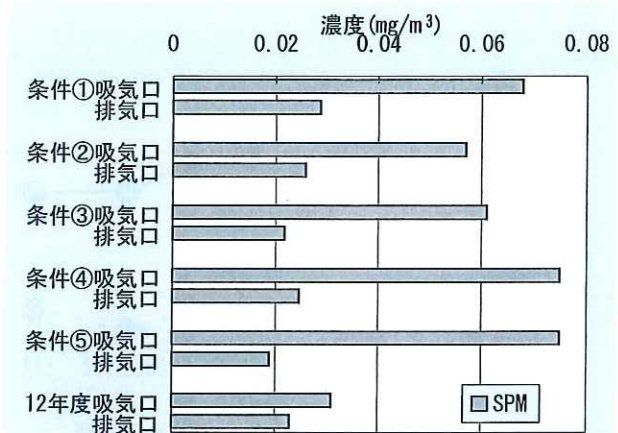


図-5 吸気口及び排気口における SPM 平均濃度

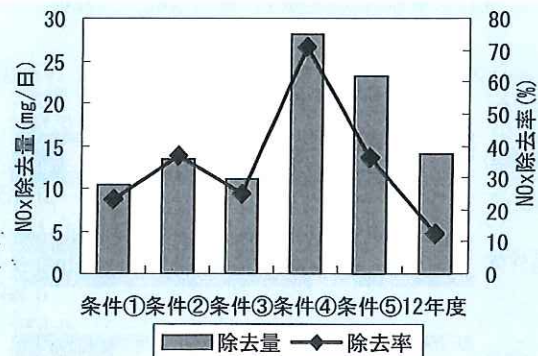


図-6 1日あたり NO<sub>x</sub> 除去量と平均除去率

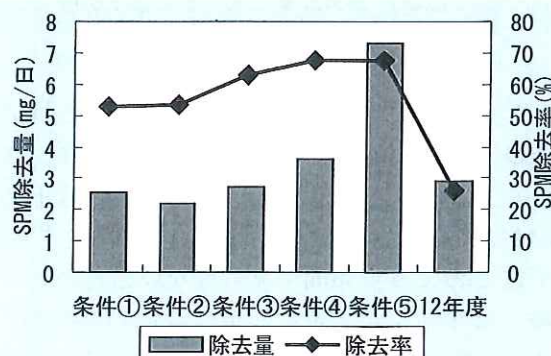


図-7 1日あたり SPM 除去量と平均除去率



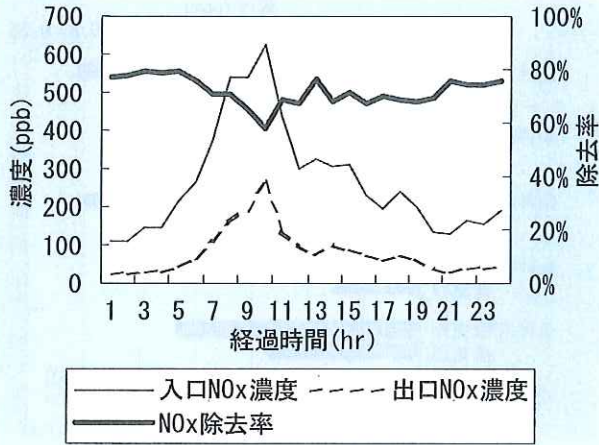


図-8 NO<sub>x</sub> 濃度と除去率の推移の一例 (条件④)

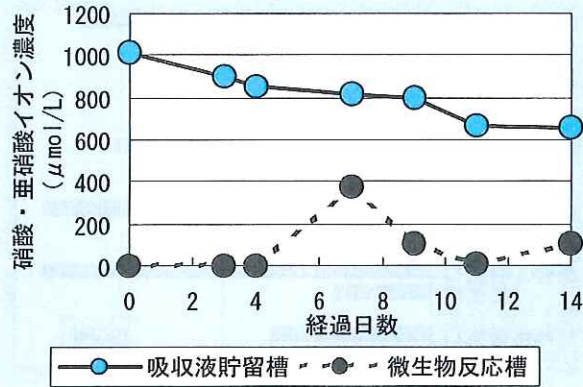


図-9 脱窒前後の NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 及び NO<sub>2</sub><sup>-</sup> の推移

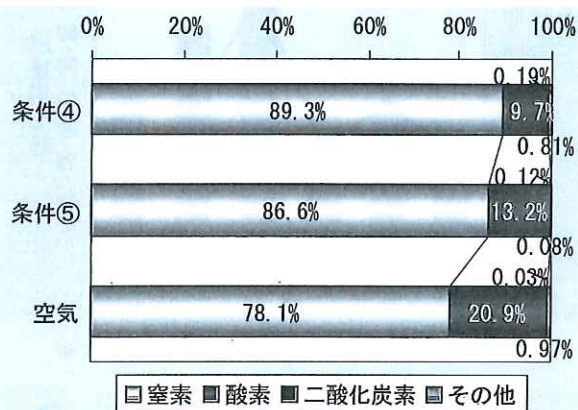


図-10 微生物反応槽から発生したガス成分

かった条件④について、実験装置吸気口と排気口の NO<sub>x</sub> 濃度と除去率の推移を図-8 に示す。この図から、高い NO<sub>x</sub> 濃度の時に除去率が低下する傾向があることがわかる。オゾン添加をしない条件ではこのような傾向が見られないことから、本実験ではオゾン添加量を一定に設定したため、高い NO<sub>x</sub> 濃度の時に NO の NO<sub>2</sub> への酸化に必要なオゾンが不足し、除去率が低下したと考えられる。

#### 4.4 実験の結果 (脱窒工程)

吸収塔で吸収された NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 及び NO<sub>2</sub><sup>-</sup> は吸収液貯留槽から微生物反応槽に送られ脱窒される。各槽内の NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 及び NO<sub>2</sub><sup>-</sup> 濃度変化を図-9 に示す。図からわかるように微生物反応槽で脱窒しきれない場合もあったが、微生物がほとんど処理していた。

また、微生物反応槽から発生した気体をガスタイトシリンジにより外部の気体が混入しないように採取して分析を行った。その結果、地球上の平均的な空気と比較して微生物反応槽から発生した気体に占める窒素の割合が高いことから、微生物反応槽から脱窒により窒素が発生していることが示唆された(図-10)。

#### 4.5 実験の結果 (運転管理)

大気浄化装置を長期間運転した場合、吸収塔内において大気中の粒子状物質や繁殖した微生物等により目詰まりや処理能力の低下が懸念されるが、最長2ヶ月間の運転では、目立った問題は生じなかった。13年度の実験において、吸収塔内の充填材に付着した残留懸濁物質の量は約1ヶ月間の運転で約7.6g/Lであった。このことから、数ヶ月に1回程度は充填材の交換もしくは洗浄を行うことが望ましいと考えられる。

本装置では、吸収液に用いているリン酸緩衝液や、大気中の NO<sub>x</sub> 起源の NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 及び NO<sub>2</sub><sup>-</sup> により、リンと窒素が豊富であるため、微生物の増殖がしやすい環境である。また、吸収液が循環していることも微生物の増殖に適した環境であり、有害な微生物が繁殖した場合、排気とともに飛散する危険性がある。

本装置に類似した空調用冷却塔では、近年循環型浴槽などが原因で死亡者を含む多くの感染者を出しているレジオネラ菌が増殖する可能性がある。そこで、吸収液を対象としてレジオネラ菌の検査も実施した。その結果、吸収液中からはレジオネラ菌は検出されなかった。本実験は2~3月に実施したため、今後、夏季の運転でも発生しないかどうか確認する必要があると考えられる。

### 5. 大気浄化効果の評価

本実験の結果、最も大気浄化効果が高かった条件④で、大気浄化装置を中央分離帯に長さ50m × 幅10m × 高さ2mで設置すると想定し大気浄化効果を試算した。

その結果、設置区間(50m)内を走行する自動車の平均走行速度を40km/hとし文献<sup>8)</sup>に基づき



表-2 他の大気浄化システムとの性能の比較

	微生物による大気浄化	土壌による大気浄化	トンネル低濃度脱硝
通気流量 (m <sup>3</sup> /hr)	36,000	36,000	160,000
吸気口 NO <sub>x</sub> 濃度 (ppm)	0.267	0.247	0.81
NO <sub>x</sub> 除去率 (%)	71	88	87
NO <sub>x</sub> 除去量 (g/日)	336	386	5,557
浄化施設体積 (m <sup>3</sup> )	979	835	3,500
運用コスト (円/日)	11,840	13,888	124,032
運用コストあたりの NO <sub>x</sub> 除去量 (mg/円)	28.4	27.8	44.8
体積あたりの NO <sub>x</sub> 除去量 (mg/日/m <sup>3</sup> )	343	462	1,590

※ 運用コストには、電気料金と水道料金のみを考慮  
 ※※微生物による大気浄化は、土壌による大気浄化と同じ通気流量にスケールアップした場合で比較

排出量を求めると、設置区間内から排出される NO<sub>x</sub> を約 21,000 台/日 (小型車換算)、SPM を約 40,000 台/日 (小型車換算) 除去する能力があると試算された。これは、実験場所の国道 308 号の設置区間内から排出される NO<sub>x</sub> の約 12%、SPM の約 18%にあたる。

### 6. 他の大気浄化技術との効果の比較

本実験の条件④の結果から、微生物による大気浄化システムの性能と、沿道で試験が実施されている他の大気浄化システムとの比較を行った (表-2)。運用コストについては、電気料金と水道料金のみを考慮した。その結果、比較的高濃度の NO<sub>x</sub> を浄化するトンネル低濃度脱硝システムが最も効率が良かった。

しかし、類似した場所に適用が想定される土壌による大気浄化システム<sup>9)</sup>と比較すると、圧力損失の小さい微生物による大気浄化システムは運用コスト及び装置体積あたりの NO<sub>x</sub> 除去量は遜色がないことがわかった。また、建設コストも必要な設備・規模が類似していることから、同等と想定される。加えて、微生物による大気浄化システ

ムは、土壌によるものと異なり、必ずしも広い平面を必要としないため、中央分離帯や高架下などへのフレキシブルな配置が可能であり、有望な大気浄化技術であると考えている。

### 7. 実用化に向けた今後の展望

本研究では、オゾン酸化工程を加えるなど改良した「微生物による大気浄化システム」を沿道で試験的に運転し大気浄化効果を計測した。その結果、既存の土壌による大気浄化システムと同程度の運用コストで同等の大気浄化効果を得られた。

今後は、NO<sub>x</sub> 濃度に応じてオゾン添加量を調整することにより大気浄化効率を向上させ、実用化に向け一層の改良を図り、より大規模な実験装置で実験を実施したいと考えている。

#### 参考文献

- 1) 稲沢、大西：微生物による窒素酸化物の酸化、還元速度の測定, 大気環境学会年会講演要旨集, Vol.38, p.613, 1997.
- 2) 稲沢、大西：微生物脱硝の反応速度の測定, 日本道路会議・一般論文集 (A), 第 22 回, pp.60-61, 1997.
- 3) 大西、山田、大城：微生物を利用した大気中の窒素酸化物除去に関する基礎実験, 土木技術資料, Vol.41, No.8, pp.26-31, 1999.
- 4) 大城ほか：微生物による沿道大気中の NO<sub>x</sub> 除去システムに関する基礎実験, 大気環境学会年会講演要旨集, Vol.42, p.491, 2001.
- 5) 山本ほか：微生物による沿道大気中の NO<sub>x</sub> 除去システムに関する室内実験, 大気環境学会年会講演要旨集, Vol.42, p.492, 2001.
- 6) 松下ほか：微生物による沿道大気中の NO<sub>x</sub> 除去システムに関する沿道実験, 大気環境学会年会講演要旨集, Vol.42, p.493, 2001.
- 7) 大城、並河、松下、山本：微生物による沿道大気浄化システムの浄化効率向上に関する研究, 環境工学研究フォーラム講演集, Vol.40, 2002(予定).
- 8) 大城、小根山、山田、大西：沿道における大気汚染予測に用いる自動車の排出係数について, 土木技術資料, Vol.42, No.1, pp.60-63, 2000.
- 9) 公害健康被害補償予防協会：土壌を用いた大気浄化システムの実用性に関する調査, p.59, p.98, 1998.

大城 温\*



国土交通省国土技術政策  
総合研究所環境研究部道  
路環境研究室研究官  
Nodoka OSHIRO

山本昌弘\*\*



同 道路環境研究室交流  
研究員  
Masahiro YAMAMOTO

松下雅行\*\*\*



同 道路環境研究室研究官  
Masayuki MATSUSHITA

並河良治\*\*\*\*



同 道路環境研究室長  
Yoshiharu NAMIKAWA