

土壌通気による汚染大気中のNOx浄化技術に関する研究

— 東京都目黒区大坂橋における汚染大気実証実験結果 —

小柳 聡^{*1}・樋口 雄一^{*1}・伊藤 雅子^{*1}・副島 敬道^{*2}

Keywords : nitrogen oxides, soil-filtering, activated carbon, microbial decomposition, oxidizing materials

窒素酸化物, 土壌通気, 活性炭, 微生物分解, 酸化材

1. はじめに

近年、大都市圏を中心として、窒素酸化物（NOx）や浮遊粒子状物質（SPM）等による大気汚染が深刻化している。筆者らは、年々高まる大気浄化技術へのニーズに応えるために、低コストで低環境負荷の浄化技術の確立を目指し、土壌通気と微生物分解技術を組み合わせた大気浄化システムの研究開発を行っている。

大気浄化の方法には土壌通気方式以外に、脱硝装置と電気集塵機を組み合わせた方式や、酸化チタン（TiO₂）等の光触媒による方式が知られている¹⁾。しかし、前者は汚染物質の除去能力は高いが、初期建設費や維持管理費が割高になる傾向があり、後者は維持管理費はかからないが、反応に紫外線が必要なため、日照時に

しか性能を発揮せず、除去能力も極めて低い。各浄化方式の概要を表-1に示す。

除去性能と耐久性から費用対効果（汚染物質1gあたりの除去費用）を考慮すると、土壌通気方式も他方式と同等の効果を得ることができると考えられる。

当社は、東京都建設局沿道整備課公募の「大規模交差点におけるNOx・SPM除去設備実験」を東京都目黒区大坂橋で実施しており、浄化システムの耐久性や性能向上の検討を行っている。本報では、実証実験およびカラム試験で得られた実験結果について報告する。

2. 土壌通気法による大気浄化方法

汚染大気中に存在する窒素酸化物（NOx）は、ほとんどが一酸化窒素（NO）と二酸化窒素（NO₂）から構成されている。その他、亜酸化窒素（N₂O）や四酸化二窒素（N₂O₄）等も含まれるが、それらは比較的微量のため本研究ではNO、NO₂のみを対象とした。表-2に、大坂橋自動車排気ガス測定局（以下、自排局と呼ぶ）によるNOx計測値の1時間平均値の1日平均値（2004年3月）と、環境基準値を示す。表-2に示すように、NO₂は環境基準値よりわずかに上回る程度で最大0.07ppmの1日平均値が測定されている。一般にNOはNO₂の

表-1 大気浄化方式の分類とそれぞれの特徴
Feature of purification method of air pollution caused by automobile exhaust emissions

浄化方式	除去原理	コスト	特徴
電気集塵+脱硝装置方式	電気集塵機で帯電させたSPMを電極へ付着させて除去する 脱硝装置のフィルター孔にNOxを吸着させて除去する	設置費用、維持費用とも最も割高	3つの方式の中では、除去量が最も大きい 集塵機の電極やフィルターのメンテナンスが必要
光触媒方式	TiO ₂ （酸化チタン）を塗布したパネル面に発生する活性酸素で、NOxおよびSPMを反応させ結晶化させる	設置費用は材料費のみ 維持費用はパネルの定期的洗浄のみ	活性酸素を発生させるには紫外線が必要 そのため、日照時のみの稼働 除去量は最も少ない パネル洗浄が必要
土壌通気方式	送風機を使用して土壌槽へ通気させ、土壌水分へNO ₂ を溶解、土壌間隙へSPMを吸着させる NO除去方法は、各社独自に開発中	設置費用、維持費用とも電気集塵機よりも安い	土壌を一旦設置すれば、給水等のメンテナンスは必要だが、数年にわたって浄化が可能

表-2 大坂橋自排局計測によるNOx濃度1時間値の1日平均値範囲（2004年3月）と環境基準値
Range of daily average NOx concentration of hourly NOx concentration measured at Osakabashi (March 2004) and environmental standards

種類	大坂橋自排局測定値 (2004年3月の1時間値の1日平均値の範囲)	環境基準値
NO	0.02～0.23ppm	(制定されていない)
NO ₂	0.02～0.07ppm	1時間値の1日平均値が0.04～0.06ppmの範囲内またはそれ以下

*1 技術センター土木技術研究所地盤・岩盤研究室
*2 技術センター技術企画部企画室

2～3 倍の濃度で存在しており、表-2 でも 1 日平均値が最大 0.23ppm と、NO₂ の最大濃度の約 3 倍となっている。NO の健康への影響は、評価が困難なため数値化されていないが、血液中に溶解し中毒作用を起こすことが確認されている。また、時間経過に伴い NO は空気中の O₂ によって NO₂ に酸化されることを考慮すると、浄化の必要性があると考えられる。

また NO と NO₂ は化学的性質が大きく違い、表-3 に示すように、NO は水に難溶性であるが、NO₂ は易溶性である。したがって、土壌通気法において NO₂ は土壌水分への接触により除去可能であるのに対し、NO を同方法で除去することは困難である。

表-3 NO と NO₂ の化学的性質の相違
Differences in chemical characteristics of NO and NO₂

種類	色	臭気	水溶性
NO	無色	無臭	難溶
NO ₂	赤褐色	刺激臭	易溶

このため、オゾン (O₃) やプラズマによる酸化装置を土壌通気槽の入口経路に設置し、NO を NO₂ に酸化させて土壌水分へ溶解させるシステムが用いられている^{2), 3)}。

一旦土壌水分へ溶解した NO₂ は、ほとんどが硝酸イオン (NO₃⁻) へ (極少量溶解した NO は NO₂⁻ へ) 変化

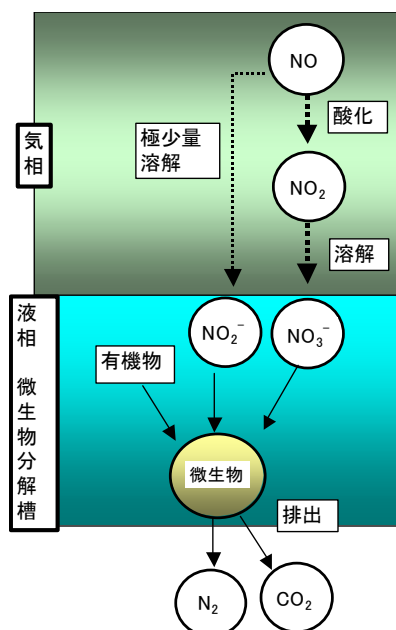


図-1 溶解した NOx 浄化法の概要
Outline of purification of dissolved NOx

する。システムの浄化性能を継続するためには、土壌水分中の NO₃⁻ (一部 NO₂⁻) 溶解量が飽和に至る前に、何らかの方法で除去する必要がある。土壌水分中の NO₂ を除去する方法として、筆者らは微生物の硝酸呼吸を利用する方法が有効であると考えた。微生物の中には、有機物を取り入れ、NO₃⁻ (NO₂⁻) を無害な N₂ と CO₂ に分解する硝酸呼吸を行うものが多く存在する⁴⁾。微生物の硝酸呼吸を利用した NOx 浄化法の概要を図-1 に示す。微生物の硝酸呼吸は好気的な環境下では行われなため、NO₃⁻ の分解を促進するには、嫌気的な環境が必要である。このため、酸素が供給される通気中の土槽中での NO₃⁻ 分解は困難である。そこで本システムでは、通気ガスから NOx を除去する浄化土壌とは別に微生物分解槽を設置し、浄化土壌内の NO₃⁻ を含んだ浸透水から NO₃⁻ を分解除去する方式とした (図-2)。

3. 実証実験

3.1 実証実験方法

東京都目黒区大坂橋に設置した浄化システムを写真-1 に示す。

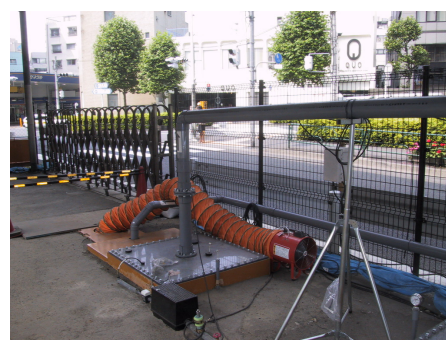


写真-1 大坂橋の浄化システム
View of purification system at
Osakabashi experiment site

また、浄化システムの模式断面図を図-2 に示す。浄

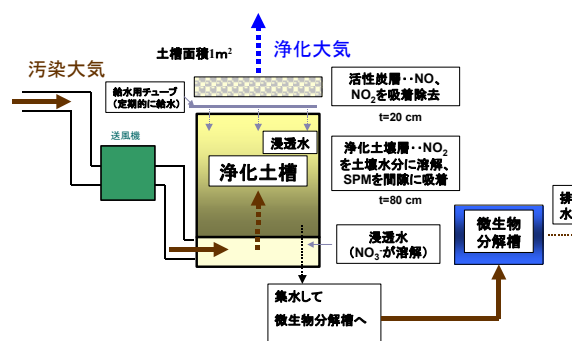


図-2 浄化システムの模式断面図
Cross section of purification system

化土槽は縦 1m×横 1m×深さ 1mの土槽内に、浄化用の土壌を厚さ 80cmに、活性炭を厚さ 20cmに層状に配置した構造である。

沿道の大気を送風機により土槽下部から土槽を通気させる際に、 NO_2 を土壌水分へ接触させて溶解、大気中より除去を行う。

また、上記方法では除去できないNOは、浄化土槽上部に活性炭層を設置することで吸着、除去を行った。使用した活性炭の性状を表-4に示す。

表-4 活性炭の性状
Characteristics of activated carbon
used for test

項目	性状
形状	粒状
比表面積	1400 m^2/g 以上
細孔容積	0.684 ml/g
細孔半径	15 Å
かさ比重	0.4

使用した活性炭は、図-3に示すように、含水率が35%を超えると急激にNOの除去率が低下する。これは、活性炭に水分が吸着しNOの吸着を阻害するためである。

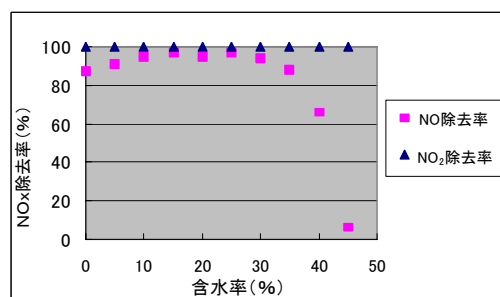


図-3 活性炭の含水率とNOx除去率の関係
Relationships between removal rate of NOx and
water content of activated carbon

浄化用土壌は、保水性に富む赤玉土に、透気性を確保するために中粒軽石を混合した。また、通気に伴い土壌の水分が蒸発するため、浄化土槽と活性炭層の間に給水管を設置し、水分の供給を行った。浄化土槽を通過した NO_3^- を含む水は微生物分解槽へ送られ、微生物の硝酸呼吸により NO_3^- を除去した後排水する。

3.2 実証実験結果

本浄化システムを用いて、連続通気実験を行った結果を図-4 (NOx除去率の経時変化) および図-5 (NOx濃

度の経時変化)に示す。NOxの測定は、一般大気測定用の高感度NOx計(化学発光方式)を使用した。

システムの運転条件を以下に示す。

- ・処理風量…100 $\text{m}^3/\text{h}/\text{m}^2$
- ・浄化土壌の体積含水率…20～40%
- ・モニタリング期間…2004年1月26日～2月24日

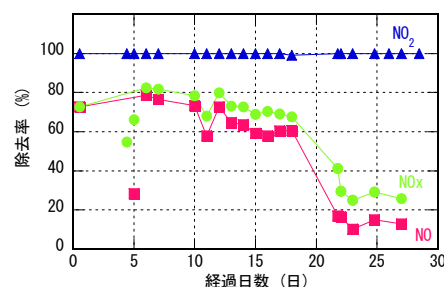


図-4 NOx除去率の経時変化
Change in removal rate of NOx at
Osakabashi experiment site

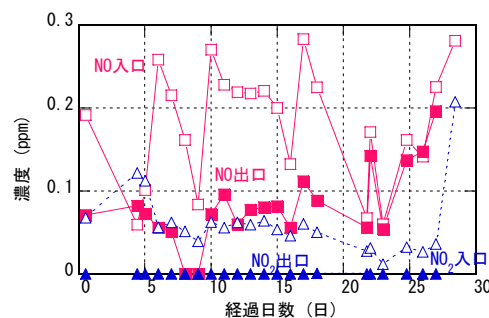


図-5 NOx濃度の経時変化
Change in concentration of NOx at
Osakabashi experiment site

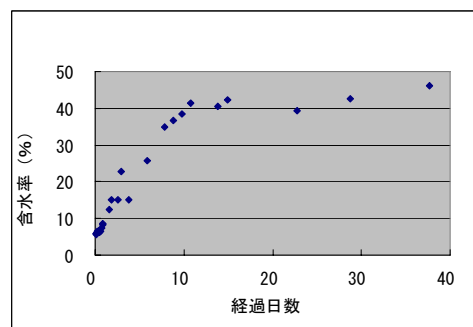


図-6 活性炭含水率の経時変化
Changes in water content of activated
carbon

実験期間中の入口濃度は、図-5に示すように、 NO_2 は0～0.2ppmまでの範囲で変動が激しいものであったが、濃度によらず NO_2 除去率はほぼ100%を維持してい

た。NO の入口濃度は 0.1～0.3ppm の範囲で NO₂ と同様に変動していたが、運転開始から 20 日間経過までは 60～80%の除去率を維持していた。ただし、20 日以降は図-6 に示すように活性炭の含水率が 40%程度まで上昇したため、NO 除去率は急激に低下している。活性炭の含水率が増加する原因は、浄化土槽及び通気空気に含まれる水分が、通気により活性炭層に送り込まれるためである。現在、すでに活性炭層を浄化土槽からかさ上げする改良を施し、性能を確認中である。

3.3 浄化性能改善の検討

NO の除去性能の高度化を図るため、特殊酸化材により NO を NO₂ へ酸化させて NO₂ として除去する方法について検討した。酸化方法の検討試験の概要を図-7 に、試験結果を図-8 に示す。

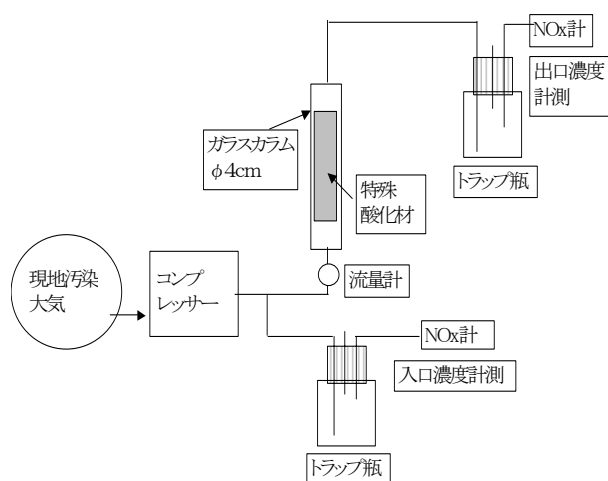


図-7 特殊酸化材の試験概要
Evaluation tests scheme for special oxidizing materials

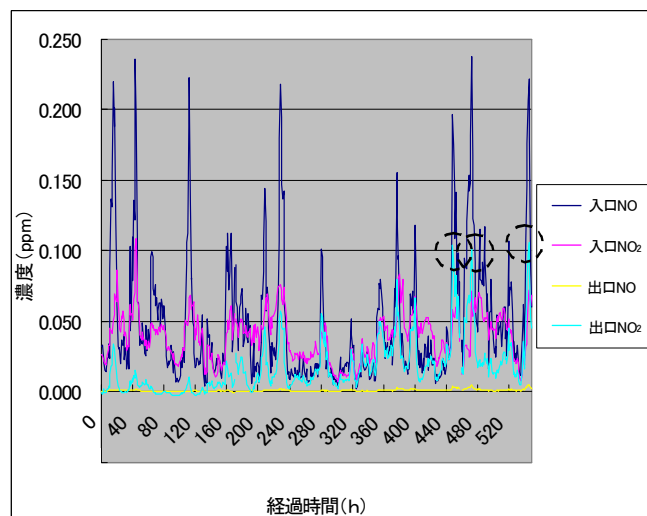


図-8 特殊酸化材の試験結果
Experiment results using special oxidizing materials

汚染大気の流速は、線速度 9.95cm/s（単位面積あたりの処理風量 358m³/h に相当する）に調整して試験を実施した。通気開始初期の段階では、材料への吸着により NO と NO₂ 両者が減少していたが、点線丸部分で示すように、通気開始 400 時間以降、出口 NO₂ 濃度が入口 NO₂ 濃度を上回る場合があり、酸化材の酸化効果を確認することができた。現在、特殊酸化材を浄化土槽の入口部に組み込み、酸化能力および耐久性について確認中である。

4. まとめ

東京都目黒区大坂橋において、土壌通気法と微生物分解機能を組み合わせた NO_x 浄化システムの運転を行った。その結果、NO₂ の 100%、NO の 70～80%を除去可能であることを確認した。ただし、活性炭層の含水率が上昇すると NO 除去性能が低下することが判明したため、現在は、活性炭層に水蒸気が接触しにくい構造に改造するとともに、活性炭に頼らない特殊酸化材を用いる方法の検討に着手し、性能を確認中である。

また、今後微生物による硝酸の分解を持続させる条件の把握、処理風量の増加を行い、費用対効果の向上を図りたい。

謝辞

「大規模交差点における NO_x・SPM 除去設備実験」は、東京都建設局沿道整備課の公募実験であり、関係各位より貴重な御意見を賜った。ここに記して謝意を表する。

参考文献

- 1) 環境庁大気保全局自動車環境対策第一課・第二課：道路沿道における大気汚染の実態と対策の状況，資源環境対策 Vol. 35 No. 6, pp533～538, 1999
- 2) 佐藤紳一郎ほか：土壌を用いた大気浄化システムの実用性に関する調査，pp47～70, 1998
- 3) 山口修一，春日一吉：土壌による大気浄化システムの高効率化に関する研究，土木学会第 58 回年次学術講演会，pp515～516, 2003
- 4) 副島敬道，伊藤雅子，今村聡，寺尾宏：透過性地下水浄化壁工法による硝酸性窒素汚染地下水の原位置浄化実証試験，大成建設技術センター報第 36 号，pp39-1～39-6, 2003