

41. 高活性炭素繊維を導入した通気性遮音壁の窒素酸化物除去効果について —数値モデルによる検討—

Performance of Activated Carbon Fiber (ACF) installed in flow-through fence as NO_x remover —Evaluation by numerical model—

東海林孝幸*、北田敏廣*、下原孝章***

Takayuki TOKAIRIN*, Toshihiro KITADA**, Takaaki SHIMOHARA***

ABSTRACT ; Numerical investigation of NO_x removal by activated carbon fiber (ACF) set within porous fences was performed. The fences were installed at both upper and ground levels of double-decked road, and how much amount of the emitted NO_x from the road can be removed by the ACF was evaluated. Obtained results showed: (1) NO_x concentration, for example, at a height of 10m and 10m downstream from the road can be reduced up to by 50-60% by increasing porosity and the activity of ACF; (2) similarly, at the ground level, the reduction of NO_x can be by 20-40%; (3) these highest performance was obtained at the porosity of 60% and the estimated highest activity of ACF with a rate constant of 6.28 s⁻¹ under the assumption of the first order chemical reaction.

KEYWORDS ; Roadside environment, Activated carbon fiber, Air pollution, Numerical simulation

1. はじめに

交通量の多い幹線道路周辺においては自動車の排気ガスによる大気汚染が顕著になり大きな社会問題となっている。また、道路構造も地上から高架へと拡張され、その結果さらに多くの交通が生じ大気汚染に拍車をかけていると考えられる。近年、自動車起源の大気汚染物質を沿道近傍において除去することで、周辺への汚染物質拡散を防ぐ方法が提案されてきている¹⁾。その中のひとつとして遮音壁に酸化チタンを塗布し、その光触媒反応により窒素酸化物を除去する方法が提案され、その効果が報告されている²⁻³⁾。

一方、汚染大気の浄化を目的として高活性炭素繊維(Activated Carbon Fibers: ACF)を使用した研究例もある(Mochida ら⁴⁾、Shirahama ら⁵⁾など)。ACFの吸着剤としての用途は広く、さまざまな成分が含まれている工場排ガス等の浄化に利用されているが、特に環境大気中における窒素酸化物除去についての詳細な研究は下原ら⁶⁾、力ら⁷⁾により行われている。沿道における窒素酸化物の除去を考えた場合、ACF使用の利点としては酸化チタンのように光照射を必要としないことが挙げられる。そのため、本研究で対象とするような多重構造道路の場合、高架道路下の日のあたらない場所においても、昼夜を問わず窒素酸化物の除去効果が期待できる。また、ACFは繊維状のため表面積も大きく自然通気による除去効果も大きいと考えられるため強制通気を行う必要がなく、そのための電気エネルギーも不要となる。筆者ら(Tokairin and Kitada, 2004^{8,9)})は道路端に置かれたフェンスが大気汚染に与える影響を研究してきたが、本研究ではそのうちフローズルーのフェンスに上述のACFを装着した場合の汚染物質除去効果を、高架・平面併設道路構造について数値モデルにより評価したものである。

2. ACFを用いた環境大気中の窒素酸化物除去実験の概要および結果

ACFによる環境大気中の窒素酸化物除去試験は下原ら¹⁰⁾により行われ、大気汚染測定車にて、日射量、相対湿度、気温、環境大気中のNO、NO₂、SO₂およびSPMの各濃度を測定している。採取された大気はACFが充填された内径8～10mmのガラス管内を300ml/分(線速度6m/分)で通過し、ACF通過前後においてNO_x濃度を計測している。本研究では内径8mmのガラス管にACFがそれぞれ0.100および0.300g充填された場合の実験結果を使用する。図1に実験の概念図を示す。

*豊橋技術科学大学 エコロジー工学系 Department of Ecological Engineering, Toyohashi University of Technology, Japan. 現(独)産業技術総合研究所 大気環境評価研究グループ Atmospheric Environment Study Group, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology(AIST), Japan

**豊橋技術科学大学 エコロジー工学系 Department of Ecological Engineering, Toyohashi University of Technology, Japan

***福岡県保健環境研究所 環境科学部大気課 Atmospheric Air Division, Fukuoka Institute of Health and Environmental Sciences, Japan

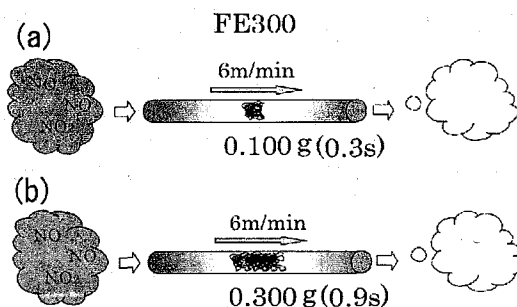


図1 計測概念図

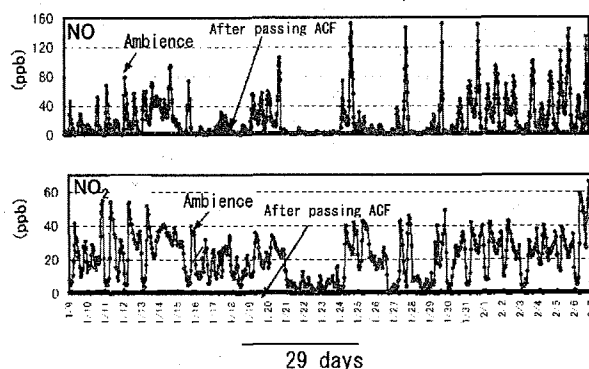
実験は2002年1月9日～2月7日までの29日間および2002年11月7日～11月14日までの8日間の2回にわたり行われ、一回目の実験においてACFは0.100gが管内に3cmにわたり充填、2回目の実験では0.300g、長さにして9cmのACFが充填され計測が行われている。測定期間中の気温はそれぞれ-2～19℃(一回目)、6～20℃(二回目)、相対湿度は39～100%(一回目)、37～95%(二回目)である。表1に測定期間中におけるACF通気前での一酸化窒素、二酸化窒素および NO_x の平均濃度(ppb)、図2a, bに測定結果を示す。

図2aより、ACFの NO_2 除去に対する効果は大きく、ACF通過後はほとんどが除去されている。しかしながら、NOについては通過前後の濃度に大きな変化は見られず除去効果は小さい結果となっている。一方、ACFの充填量を3倍に増やしたケース(図2b)を見ると通過後の除去効果はNO、 NO_2 ともに非常に高く、充填量の違い、すなわちコンタクトタイムの違いにより浄化作用が大きく異なる結果となっている。

表1 平均濃度 (ppb)

ACF (g)	NO	NO_2	NO_x
0.100	36.3	23.4	59.7
0.300	22.0	21.2	43.2

(a) 0.100g



(b) 0.300g

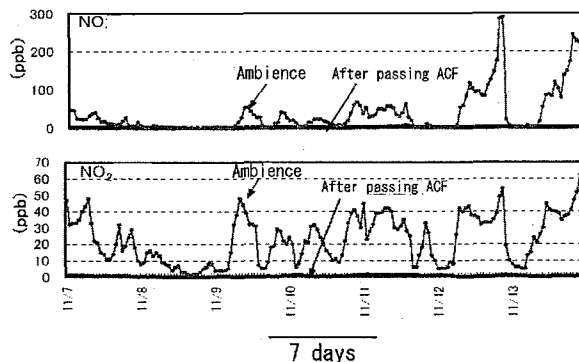


図2 ACF 充填量(a)0.100g、(b)0.300g による環境大気中窒素酸化物の除去実験結果(ここで「Ambience」は環境大気中濃度、「After passing ACF」はACF通過後の濃度を表す)

3. 実測値からの反応次数および速度定数の推定

化学反応を計算に含めるために反応次数および速度定数の設定が必要となる。それらは次に示す方法により求めた。ACF中を3cm充填したパイプ中を空気が通過する時間(接触時間)が0.3秒、また同じく9cmの充填パイプの通過に0.9秒かかる。それぞれACF通過前と通過後濃度の比を取り、その比の自然対数を時間に対してプロットしたものを図3a, bに示す(横軸は接触時間、縦軸はACF通過前と通過後の NO_x の濃度比 $[\text{NO}_x]_A/[\text{NO}_x]_B$ を表す)。図中の白丸は濃度比の平均値を示している。

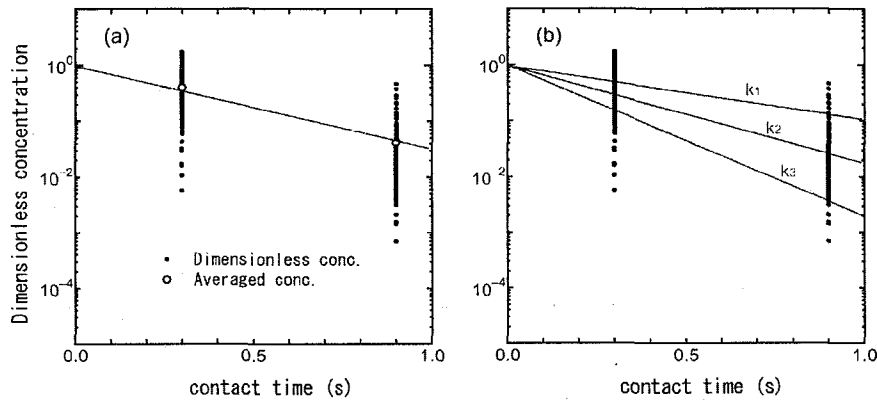


図3 実測値より得られた“接触時間”と“ACF通過前後のNO_x濃度比（通過後濃度/通過前濃度）”の関係

図3aで、 $t=0.0(s)$ での濃度比は定義により1である。いま、接触時間0.3および0.9秒での実測濃度比の平均値(○)は濃度比1を出発点とした直線上にほぼ載ると仮定できる。したがって、本研究では、簡単のためにACFによるNO_xの除去反応を一次反応と仮定した。一次反応の速度式は次式で与えられる。

$$-\frac{d}{dt}[\text{NO}_x] = k[\text{NO}_x] \quad (1)$$

初期濃度を $[\text{NO}_x]_0$ とすれば、上式の解は次式で与えられる。

$$[\text{NO}_x] = [\text{NO}_x]_0 \exp(-kt) \quad (2)$$

いま、式(2)においてACF通過後の濃度を $[\text{NO}_x]_A$ 、通過前の濃度（すなわち、初期値）を $[\text{NO}_x]_B$ で表し、 t を接触時間とすると速度定数 $k(s^{-1})$ は

$$k = -\frac{1}{t} \ln \left(\frac{[\text{NO}_x]_A}{[\text{NO}_x]_B} \right) \quad (3)$$

から求めることができる。測定結果に幅があるため時刻0での濃度比1の点と接触時間0.9秒での測定濃度比の主要部分をカバーする3点をそれぞれ結ぶ3種類の直線を引き（図3b）、それらの直線の勾配より $k_i(s^{-1})$ ($i=1, 2, 3$)を求めた。表2に $k_1 \sim k_3$ の値を示す。

表2 図3bの直線の勾配から求めた速度定数(s^{-1})

k_1	k_2	k_3
2.36	4.01	6.28

4. 空隙率と速度定数の関係について

表2に示す値は、むろん、流入してきた汚染大気のすべてがACF充填層を通過するときの推定値である。本研究の数値モデルではフロースルー遮音壁全体がACFで作られていると仮定しているが、図4に示すように汚染大気はフェンスに開けられた孔を通じて流入し流出するもので、壁体全体が有効な反応の場として寄与するとは考えられない。さらに、数値計算の解像度は、図4に示す開口部、非開口部の構造を陽に表現できるほど詳細ではない（壁の高さ4m、壁部の高さ方向の格子長0.5m；壁の厚み10cm、壁部の流れ方向の格子長10cm；したがって、ACF充填の壁部の特性は、流れ方向には格子点1点で表現されている）。そこで、フロースルー遮音壁にぶつかってくる空気のうち空隙率を乗じた部分だけがACF充填層を通過するものと仮定してモデル化した。次の仮定を設けている。

- 開口部以外ではACFによる除去は行われない。すなわち、ACFは開口部以外では外壁によって覆われている。

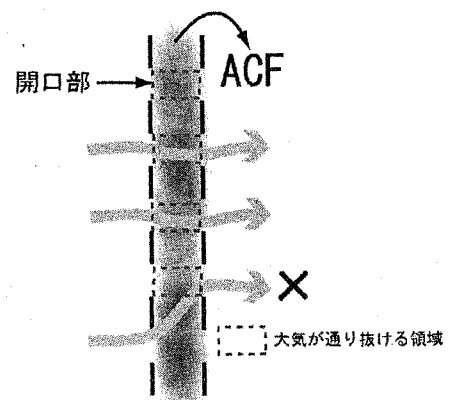


図4 ACFを内部に含む遮音壁断面の概念図：汚染大気は開口部から流入し、そのまま直進し流出する。×印のような通過は考慮しない。

- 開口部に対して垂直に流入した汚染大気は遮音壁内部で拡散せず、そのまま内部を通過し排出される。したがって、反応に預かるACFは開口部から流入して流出するまでに汚染大気が接した部分のみとする。
- ACFは均一に充填され、充填による遮音壁全体の空隙率は変化しないものとする。すなわち、遮音壁の空隙率は壁面のスリット幅のみに依存する。

上に述べたことを式で表すために、まず表2の速度係数 $k(s^{-1})$ を次のように二つの量の積として考える。

$$k \equiv ak' \quad (4)$$

ここで、 a はACF充填層単位体積あたりのACF表面積 (m^2m^{-3}) であり、 k' は $m^3m^{-2}s^{-1}$ の単位を持つACF単位表面積あたりのNOx除去率と考える。いま、空隙率を γ ($0 \leq \gamma \leq 1$) とすると、数値計算上、汚染大気がACFと接触する平均表面積は壁体単位体積あたり γa と表せる。したがって、表2の k 値を γ 倍することによって、空隙率 γ のACF充填フェンスを汚染空気が通過するときのNOx除去係数が求まる。これを表3に示す。先述のように野外実験から決められる式(4)の k 値に幅があるため、小さめの見積もり (γk_1) から、大きい目の推定値 (γk_3) まで3種類をリストしている。

表3 各空隙率に対応した速度定数

空隙率 γ	γk_1	γk_2	γk_3
0.1	0.236	0.401	0.628
0.2	0.472	0.802	1.26
0.4	0.944	1.60	2.51
0.6	1.42	2.41	3.77

5. シミュレーション

数値計算で仮定した道路構造物を図5に示す。流れ場および濃度場は、標準 $k-\epsilon$ モデルにより計算した。また、遮音壁内部での大気汚染物質除去を実現するため通気性を仮定し、数値モデル上では遮音壁を多孔質体 (Porous Media) として扱い、基礎方程式中に空隙率などのパラメータを与えることによって計算した。計算は空間2次元の定常状態を想定し、コードはCFX4(AEA Technology)を使用した。

排出源は両道路上に設置し、同一の排出量とした。計算領域入り口においては風速の実測値 (遮音壁高さ (4m) における風速 $u_b=1.3m/s$) を与えている。本研究では平面、高架道路幅は10m、遮音壁高さは4m、厚さは0.1mとし、その中にACFが充填されていると仮定した。

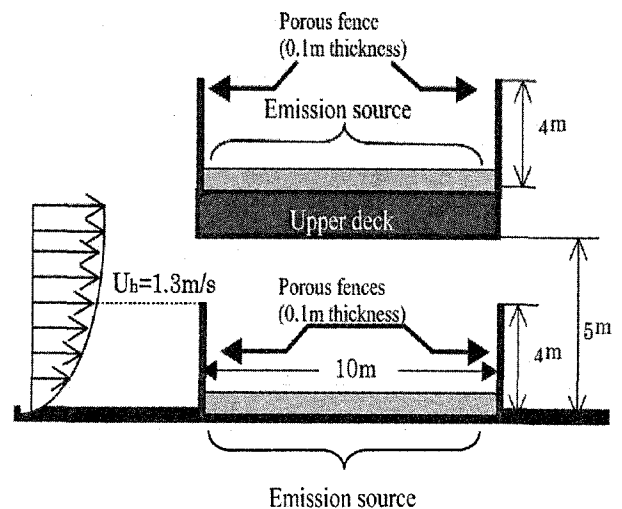


図5 数値モデルで仮定した道路構造

6. 計算結果

6.1 風速場および風速の鉛直分布

図6a-dに各空隙率における道路周辺の風速場 (流線表示) を示す。図より、空隙率0%で道路直近に形成された循環流 (図6a) が、空隙率の増加とともに下流へ移動し、40%を越えるとこの循環流が生成しないことが示唆されている。

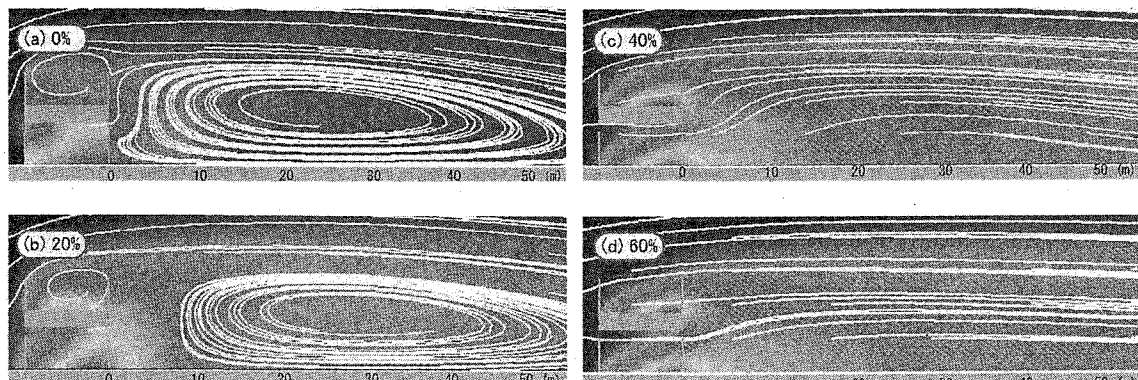


図6 道路構造物周辺の流れ場 (流線表示)

図7a, bは道路端風下10m地点における風速の水平・鉛直成分のプロファイルを示している。図より地表付近における水平方向の風速は空隙率が大きくなるに従い、正方向すなわち、流れ方向に増加している。高さ5m以下の風速は空隙率60%の場合、空隙率40%のそれの約2.0倍となっており、汚染物質の水平輸送も大きいと考えられる。それに対し空隙率20%では地表付近における風速は一番小さく（約 0.1ms^{-1} ）、したがって輸送能力も小さいために道路近傍で高濃度となる恐れがある。鉛直方向の風速分布（図7b）を見ると高架遮音壁が存在する高さ10～12m地点で流れが減速されているが、全ケースにおいて風速は正、すなわち鉛直上方への輸送成分があることがわかる。

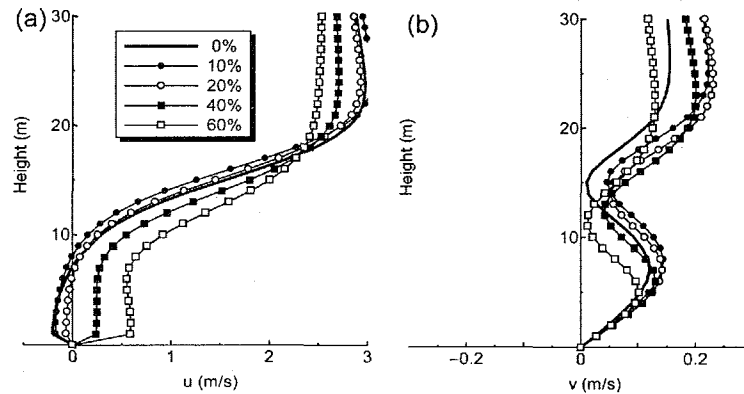


図7 道路端から風下10m地点における風速の鉛直分布(a)水平成分、(b)鉛直成分。図内の数字(%)はフェンスの空隙率(ポロシティ)を表す。

6.2 各空隙率における無次元濃度の比較

図8a, bはそれぞれ、風下方向に下流高さ10m付近および地表における濃度をSolid fence（空隙の無いフェンス）使用時の濃度値で無次元化したものをACF不使用時（No-ACF）および使用時（ $\gamma k_1 \sim \gamma k_3$ ）に分けて空隙率ごとに示したものである。凡例中、“Solid”は空隙率の無いフェンスの場合を表し、むしろこの無次元濃度は1である。また、各空隙率に対応した γk_i ($i=1, 2, 3$)は表3に示されている。

図8a, bに共通しているが、高架付近、地表付近ともに空隙率20%では高濃度となる。特に、地表付近濃度（図8b参照）はACFを装着したとしても通常のフェンスの場合に比べて高い値となる。これは前述のように空隙率20%における流れ場では、道路付近で汚染物質が滞留し、除去作用に有効なACF表面積も少ないことによる（図6b）。

高架遮音壁付近の濃度比較に着目すると（図8a）、Solid fenceの濃度を大幅に上回る結果はなく、空隙率が增大するにつれ急激に濃度は下がり、空隙率60%でACF効果が最大の場合、濃度比で60%以上低くなっている。これは高架付近の濃度はACFによる除去と遮音壁そのものの空隙の増大による汚染物質の拡散効果が相乗したためと考えられる。フェンスをフロースルーにしたことによるこの濃度減少の効果はSolidとNo-ACFの比較によって知ることができる。それに対し、地上付近に焦点を当てると（図8b）、空隙率10%で最大約10%、空隙率40%では速度定数の値が最小（ $\gamma k_1=0.944\text{s}^{-1}$ ）でSolid fenceと同程度、最大（ $\gamma k_3=2.51\text{s}^{-1}$ ）で約15%濃度が低減されている。さらにACF効果は空隙率60%においても大きく、反応の有無により最大40%程度濃度の低減効果が出ている。このように、特に高濃度となりやすい地表付近において、ACF装着のフロースルーのフェンスを積極的に利用することが、騒音問題が小さい場合には（すなわち遮音壁としての効果をそれほど要求されない場合には）沿道大気汚染の削減のために有効であると考えられる。

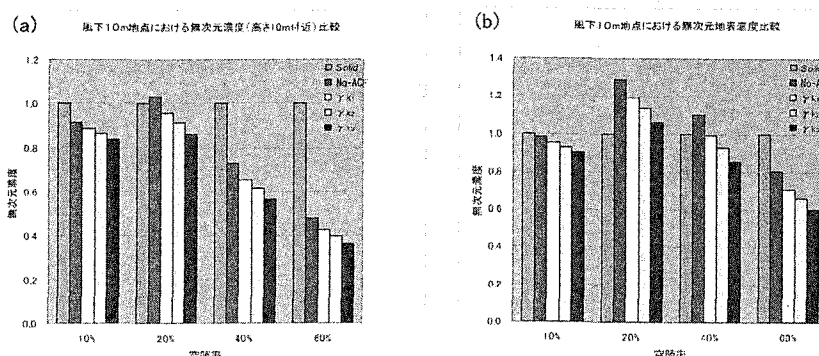


図8 道路端から風下10地点における無次元濃度の比較：(a)高さ10m、(b)地表。 $\gamma k_1 \sim \gamma k_3$ は表3に示された値を使用している。

7. 結論

本研究では通気性遮音壁にNO_x除去効果を与えた際、どの程度沿道の大気環境に影響を与えるかについて数値モデルにより評価した。NO_xの吸着材料としてACF (Activated Carbon Fiber) を取り上げ、実験データより反応の次数および速度定数を推定し、それらの値を使用し解析を行った。得られた結果を以下に示す。

- 高架におけるACF遮音壁の除去性能については空隙率が小さく、したがって通気量の少ない10%程度では除去の割合も小さいが空隙率が大きくなるに従いACFの効果と水平方向風速の強化による汚染物質の輸送が強まることによって高架付近の高度で濃度が大きく減少する。
- 地表濃度に対する効果についてみると、空隙なしの遮音壁使用の濃度と比較し空隙率20%では滞留域によって約1.05~1.3倍高濃度となるが、空隙率が増大し、ACF効果が最大の場合、約20% (空隙率40%) および40% (同60%) 濃度を削減できることが示された。
- 地表および高度10m地点での濃度とも基準濃度 (Solid fence使用時の濃度) より高くなる空隙率が存在する。これは前述したように、道路下流に形成された循環流が道路近傍に滞留域を形成することによる。
- 特に高濃度となりやすい地表付近において、ACF装着のフロースルーフェンスを積極的に設置することが、沿道大気汚染の削減のために有効な場合があると考えられる。特別のエネルギーを消費しないで道路からの大気汚染物質を除去する方法として有効と考える。

謝辞

この研究は、公害健康被害補償予防協会及び科学研究費14350286, 14048211の補助を受けて行った。

参考文献

- 1) 公害健康被害補償予防協会: 各種技術を用いた局地汚染対策設計手法に関する調査—土壌・光触媒を用いた大気浄化システム, 健康被害予防事業環境改善調査研究レポート, Vol. 12, (2001)
- 2) 山崎哲夫、竹内浩二、指宿堯嗣: 車輦走行気流を考慮したパッシブ大気浄化材料の道路への設置効果の数値シミュレーション, 第42回大気環境学会年会講演要旨集, 495, (2001)
- 3) 山崎哲夫、竹内浩二、指宿堯嗣、佐野泰三: 車輦走行気流を考慮したパッシブ大気浄化材料の道路への設置効果の数値シミュレーション (2), 第43回大気環境学会年会講演要旨集, 256, (2002)
- 4) I. Mochida, N. Shirahama, S. Kawano, Y. Korai, A. Yasutake, M. Tanoura, S. Fujii and M. Yoshikawa: NO oxidation over activated carbon fiber (ACF). Part 1. Extended kinetics over a pitch based ACF of very large surface area, *FUEL*, 79, 1713-1723, (2000)
- 5) N. Shirahama, S.H. Moon, K.H. Choi, T. Enjoji, S. Kawano, Y. Korai, M. Tanoura and I. Mochida: Mechanistic study on adsorption and reduction of NO₂ over activated carbon fibers, *CARBON*, 40, 2605-2611, (2002)
- 6) 下原孝章、力寿雄、中村又善、円城寺隆志、白濱升章、持田勲: 高活性炭素繊維を用いた環境大気浄化に関する研究—窒素酸化物の吸着、還元反応—, 第42回大気環境学会年会講演要旨集, 486, (2001)
- 7) 力寿雄、柳川正男、中村又善、下原孝章: 高活性炭素繊維を用いた環境大気浄化に関する研究—化学物質の吸着・除去—, 第42回大気環境学会年会講演要旨集, 487, (2001)
- 8) T. Tokairin, T. Kitada: Numerical investigation of the effect of road structures on ambient air quality - for their better design. *J. Wind Engineering and Industrial Aerodynamics*, 92, 85-116 (2004).
- 9) T. Tokairin, T. Kitada: Study on the effect of porous fence on air quality and traffic noise level around a double-decked road structure -evaluation by numerical model, *Environmental Monitoring and Assessment*, accepted (2004).
- 10) 福岡県保健環境研究所: 高活性炭素繊維を用いた沿道ガス削減技術に関する調査報告書, (2002)