有害ガスによる公害の衛生化学的研究 (IV)*1

排ガス中の二酸化窒素の除去法の研究 (その1) アンモニアによる除去法

菅野三郎, 福井昭三, 内藤昭治 (神奈川県衛生研究所*2)

Hygienic Chemical Studies on Public Nuisance by Injurious Gases. (IV)*1 Fundamental Studies on Removal of Nitrogen Dioxide from Gases. (No. 1)

Saburo Kanno, Syozo Fakui, Syoji Naito

(Kanagawa Prefectural Public Health Laboratory*2)

The removal method of NO_2 from waste gases by NH_3 was investigated. A high level of removal efficiency was gained by mixing of NH_3 and NO_2 in gaseous phase or by the washing with aqueous ammonia. As small particles of ammonium salt becomes a lot of white smoke, its removal must be taken for this method. (Received November 26, 1963)

まえがき

前報¹⁾において、二酸化窒素ガスの除去法として、塩素処理法が極めて有効であることを述べたが、この基礎実験成果を実用化しようとする、なお若干の問題点があることがわかった。

その問題点とは 1) 塩素と二酸化窒素とは酸性溶液中でのみ反応するが、この酸性溶液と塩素のために装置の腐食が著しい。2) 気液接触時間をかなり長くすることが良結果を得る要点であり、設備が大型となる、などの点である。

そこでさらにひきつづき種々の方法について基礎的検討を重ねてきたが、今回アンモニアを用いる除去法が、除去効果もよくまた設備の腐食が少ないなどの利点をもつことがわかったので報告する。

実験および考察

1. 実験室における実験

前報に述べた試料ガス調製法によって二酸化窒素ガスを調製し、これを Fig. 1 のミニチュアプラントに導き、プラントの入口および出口のガスをそれぞれ定量して、単なる水洗の場合の除去率、アンモニア処理の場合の除去率の比較を行なった。

実験条件は、試料ガス量 7L/分、洗浄水量 1L/1 分である。この条件はミニチュアプラントを直径 1.5 m、充填層長 1 m に拡大したとすると、ガス流量は 7 m³/分、

Fig. 1 Experimental apparatus.

洗浄水量は 1 m³/分となる。

アンモニアはガス状で試料ガスと混合させる方法をとった。すなわち、Fig. 1 のアンモニア混合びんに 28 % アンモニア水を入れておき、試料ガスをその上に吹きつけ、揮散したアンモニアと反応させる方法である。

この方法で揮散するアンモニアガス濃度を測定したところ約 2 % であり、また水洗塔上部では約 0.2 % であった。

二酸化窒素の定量はアンモニア混合びん入口と水洗塔出口のそれぞれについて、同時に 100 ml の注射筒で試料ガスを採取し、0.1 N 水酸化ナトリウム溶液をその注射筒内に注入してふりまぜて試験溶液とし、以下ジアゾ化法の常法に従って光電比色定量する方法を用いた。

実験結果を Table I に示す。

Table I に明らかなように、単なる水洗では 20 ~ 40 % の除去率しか得られなかったのに比べて、アンモニア

*1 前報 (III). 本誌, 9, 125 (1963).

*2 横浜市保土ヶ谷区中尾町 52; 52, Nakaocho, Hodogaya-ku, Yokohama.

Table I Removal efficiency of nitrogen dioxide by using the apparatus shown in Fig. 1.

treated with water only			treated with ammonia and water		
NO ₂ gas concn.		removal efficiency	NO ₂ gas concn.		removal efficiency
inlet	outlet		inlet	outlet	
ppm	ppm	%	ppm	ppm	%
430	260	39.5	2200	240	89.1
440	320	27.3	2600	280	89.3
440	320	27.3	3800	340	87.9
540	420	22.2	3400	500	85.2
800	620	22.5	3600	560	84.4
820	580	29.2	3800	200	94.7
1020	660	35.3	4000	520	87.0
1200	720	40.4	5600	540	92.1
1200	800	33.3	8400	420	95.1

を用いると 85～95 % という高い除去率を示した。

実験には 2000～8000 ppm という高濃度の試料ガスをを用いたが、実際問題としては 1000 ppm 前後の二酸化窒素を処理するケースが多いので、排出口における濃度を 100 ppm 前後にすることは可能であり、公害防止の有効な手段と考えられる。

ただこの処理法で問題となると考えられるのは、アンモニアと二酸化窒素が反応して著量の白煙を生じることである。この白煙は水に吸収され難い性質のものであり、Fig. 1 の水洗装置ではほとんど除去することができなかった。

この白煙は亜硝酸アンモoniumあるいは硝酸アンモoniumの形であろうと考えられ、ガスの実害を除去することはできるが、視覚的には煙が増加したような印象を与えるという点がアンモニアによる除去法の最大の問題点であり、微粒子除去の手段たとえばベンチュリスクラバとの組み合わせなどの検討が今後に残された課題である。

2. 実際の工場における実験

Fig. 2 Industrial plant.

銅板とか銅線を硫酸混液で酸洗している工場の水洗塔について、水洗浄のみの場合とアンモニアを用いた場合の除去効果の比較を行なった。

水洗装置の概要を Fig. 2 に示す。処理空気量 70m³/分、水洗水は一部循環で一部新鮮水を補給している。

ガスの採取には Fig. 3 の装置を用いた。

ミストを可及的に防ぐ目的で採取管の先端にデミスターをとりつけ、吸気管の前にアンモニウム塩の微粒子を除く目的でろ紙を置いた。実験結果を Table II に示す。

Fig. 3 NO₂ absorption apparatus.Table II Removal efficiency of nitrogen dioxide by using the plant shown in Fig. 2.
gas velocity : 70 m³/min

treated with water only			treated with ammonia and water		
NO ₂ gas concn.		removal efficiency	NO ₂ gas concn.		removal efficiency
inlet	outlet		inlet	outlet	
ppm	ppm	%	ppm	ppm	%
368	167	54.7	1052	420	60
401	256	36.1	512	188	63
1433	893	37.7	530	85	84
439	376	23.8	610	140	77
404	354	12.3	340	25	93

実験結果に示したように、水洗浄のみの場合の除去率は 40 % 以下であり、水洗塔の上部からかなり濃い褐色のガスを放出している状態であったが、アンモニアを用いると 80～90 % といった高い除去率が得られ、肉眼的にも褐色からほとんど白色にか変わった。

なおこの水洗塔は充填物としてプラスチックせんいをを使用して、接触面積の拡大を図っており、水洗効率が良好とみえてアンモニウム塩の白煙もわずかに出ているにすぎない状態になり、視覚的にも著しく改善された。

以上の実験はアンモニアと二酸化窒素をガス状で混合する方法をとったが、0.1～1 % のアンモニア水を洗浄水の代りに用いる方法でも同様の結果をうることができた。

また、ステンレスの連続酸洗いを行なっている工場について同様の実験を行なった結果を Table III に示す。

水洗装置の概要は Fig. 2 と似ているが、アンモニアの供給はアンモニアポンプから行ない、水洗塔は二基直列の形である。

処理空気量 300 m³/分、水洗水量 80 m³/分というかなり大型の処理装置で、充填物はラシツヒリングである。

Table III Removal efficiency of nitrogen dioxide from A. P. line of stainless steel plant by treatment with ammonia gas.
gas velocity : 300 m³/min

NO ₂ gas concn.		removal efficiency
inlet	outlet	
ppm	ppm	%
960	209	78.2
925	196	79.0
983	286	69.8
996	302	69.6
966	210	78.4
966	210	78.4

Table III の結果に示したように、大規模の工場プラントにおいても 70～80% という高い除去率を得られることがわかった。

結 言

二酸化窒素除去法の一連の研究として、今回はアンモニアによる除去法を検討した。

- 1) アンモニアを用いる二酸化窒素の除去法は、かなり効率がよく、除去率は 70～90% であった。
- 2) アンモニアと二酸化窒素とを気相で混合しても、アンモニア水との気液接触でも除去率に変わりはない。
- 3) 塩素による除去法に比べて装置の腐食が起る危険性は少なく、また二次公害の可能性も少ない。
- 4) アンモニアと二酸化窒素は瞬間的に反応してアンモニウム塩の微粒子となるが、この微粒子は著量の白煙となり、かつ水に吸収され難いので、その除去法に特別の工夫を必要とする。

文 献

- 1) 菅野三郎, 福井昭三, 内藤昭治; 本誌, 9, [2], 125 (1963).