

揮発性有機化合物の放散・吸脱着等のモデリングとその数値予測に関する研究 (その 14)
建材表面気流精密制御 Small Test Chamber の開発と物質伝達率の測定

学生会員○伊藤一秀 (東京大学 大学院) 正会員 村上周三 (東大生産技術研究所)
 正会員 加藤信介 (東大生産技術研究所) 正会員 近藤靖史 (武蔵工業大学)
 学生会員 朱 清宇 (東京大学 大学院) 正会員 神 卓也 (静岡ガス株)

1. 序

本報を含む一連の研究は、建材等からの化学物質放散・拡散・吸脱着等の現象のモデリングとその数値的予測手法の開発を最終目的とする。数学モデルの開発、並びにその数値予測を行うためには、その精度を検証するための基礎実験データが必要不可欠となる。

本報では前報¹⁾に引き続き small test chamber²⁾を用いて建材等からの化学物質放散性状に関する基礎データの蓄積を目的として検討を行う。本報では特に small test chamber の流れ場に関する基本性能と蒸散支配型放散の建材をモデル化した純液 decane 及び undecane³⁾の物質伝達率の測定結果を報告する。

2. 建材からの化学物質放散性状の分類

建材種を単一建材と複合建材の2種に分類する。また建材種と建材表面の気流性状に係わる化学物質放散性状の関係を表1に示す。

2-1. 単一建材 単一建材をその化学物質放散に関する物理特性が特定(若しくは単一)の係数若しくは方程式で表現可能な建材と定義する。単一建材の化学物質放散特性は建材内拡散支配型放散、及び蒸散支配型放散に大別が可能である。建材内拡散支配型放散の建材とは、建材内の化学物質濃度勾配と拡散係数によりその放散性状が支配され、周辺の流れ性状や気中濃度にそれほど大きな影響を受けない建材であり、一般に固形の建材、内装材等が含まれる。蒸散支配型放散の建材とは、建材表面から気中に至る表面物質伝達が放散過程の決定要因となり、放散速度が支配される材料であり、塗料、接着剤、芳香剤等の wet な材料が含まれる。また塗料や接着剤等の Wet な材料(施工材)は、放散初期においては蒸散支配型放散であるが、設置後(例えば数時間から数日で)内部拡散支配型放散に放散性状が変化することが指摘されている³⁾。

2-2. 複合建材 複合建材を単一建材が複合的に組み合わせられた構成の建材と定義する。複合建材の化学物質放散特性は個々の単一建材の放散特性が複合的に組み合わせられたものである。建材内の各部分で化学物質の輸送の物理構造が異なるものや、それぞれの単一建材間での化学物質輸送抵抗が異なって複合建材全体としての放散性状が定まっているもの

表1 建材種、表面風速と化学物質放散特性

化学物質放散性状	建材表面風速	建材・施工材
蒸散支配型	風速影響	接着剤, 塗料, 等
(蒸散+拡散+ α) 複合的放散性状	大	複合建材 (単一建材、施工材等の 複合的組合せ)
	小	
内部拡散支配型	風速影響	単一(単純)建材

上表は Small Test Chamber の特徴である建材表面風速制御の観点より化学物質放散性状を分類している。しかしこの他に温度、湿度、化学変化、吸脱着等、各種要因も化学物質放散性状に大きく影響する。



図1 Small Test Chamber 外観 (図4 参照)

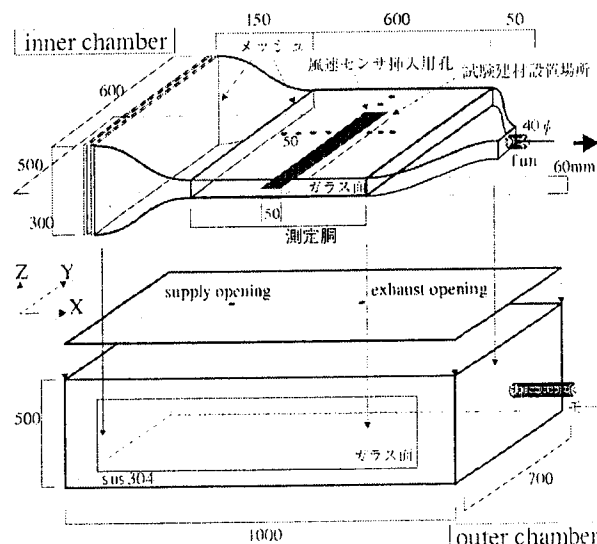


図2 Small Test Chamber 概要

がある。室内を構成する建材は一般に複合建材であり、室内での化学物質濃度予測を行うためには複合建材からの化学物質放散速度を正確に評価するも

デルの開発が重要となる。

2-3. 放散特性解明の実験的アプローチ 単一建材、複合建材の順に化学物質の放散特性を把握する。複合建材の場合では単一建材の化学物質放散特性に関する基礎データを蓄積した上で、数学モデルを開発する。その後、全体としての放散特性を実験的に把握し、単一建材放散特性に関する数学モデルを複合させて数学モデルを発展させ、実験との対応からモデルをチューニングする。

本報ではまず検討の第一段階として、境界層流が精密に制御可能な Small Test Chamber を用いて蒸散支配型放散の単一建材に着目しその放散特性に関する基礎データを流れ場の性状を含めて蓄積する。

3. Small Test Chamber の基本性能

本研究で新たに開発した Small Test Chamber の外観写真(outer chamber)を図 1 に、また詳細な構成図を図 2 に示す。Small Test Chamber は inner chamber(図 2 上部)と outer chamber(図 2 下部)より構成される。全て sus304 で製造されている。Inner chamber は outer chamber 内中心位置に設置される。両者の相互位置関係は図 4 のメッシュ図に示されている。Inner chamber には fan が設置されており、測定室内(図 2 参照)は第 3 種機械換気により換気される。Inner chamber 内の建材設置面上部における平均風速は fan の回転数により 0~0.2m/s で制御が可能である。本報では Inner chamber 内の平均風速を 0.10m/s に制御した結果を報告する。また chamber 内での汚染質発生を極力防ぐため、モータ部は outer chamber の外側に設置している。新鮮空気(本研究では N₂:80%、O₂:20%の人工空気)は outer chamber 上部に設置された supply opening より供給する。Small Test Chamber 内に供給される新鮮空気量と inner chamber 測定室内の換気回数(建材表面風速)は独立して制御が可能である。Small Test Chamber は恒温室内に設置され、温度制御される。

4. 化学物質 sampling 及び分析方法

Small Test Chamber を中心とした化学物質 sampling の一連のフローを図 3 に示す。Chamber 内へは N₂:80%、O₂:20%の人工空気を換気回数 0.1~5.0 回/h で供給する。全ての配管はテフロンチューブを使用している^{注2)}。Chamber 内の空気は Tenax TA により吸着 sampling (0.033L/min) し、加熱脱着の後、GC/MS により分析を行う。表 2 に GC/MS の分析条件を示す^{注3)}。

5. Small Test Chamber を対象とした CFD 解析

前述したように本報を含む一連の研究は、化学物質放散・拡散・吸脱着等の現象をモデリングし、その数値予測手法の開発を最終目的とする。即ち、Small Test Chamber による化学物質放散実験は、対応する数値解析の検証用の基礎実験となるものである。

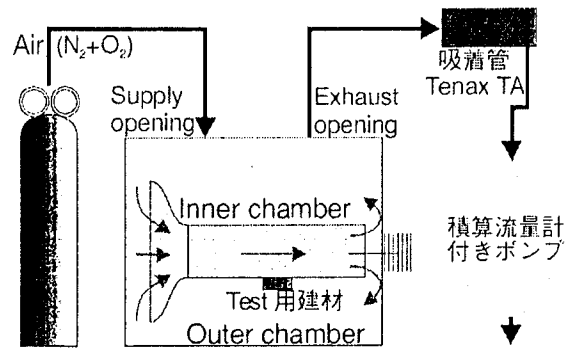


図 3 化学物質放散量測定システム

表 2 GC/MS^{注3)}の分析条件

GC	HP6890
加熱脱着装置	Gestel TDS (Thermal Desorption System)
加熱脱着温度	20°C (5min) → 60°C/min → 280°C (2min)
CIS 温度	-150°C (0.01min) → 12°C/sec → 300°C (3min)
カラム	HP5 (60m×0.25mm×1 μm)
オープン温度	40°C (3min) → 10°C/min → 220°C (10min)
Split 比	10 : 1 (blank test), 300 : 1 (decane)
検出器 (MS)	HP5973MSD

表 3 計算及び解析条件

3次元、対象性を考慮し y 方向は 1/2 の領域で解析	
乱流モデル	低 Re 型 k-ε model (Abe-Nagano model ^{注5)})
メッシュ分割	45,867 mesh
差分スキーム	移流項: QUICK
流入境界	Inner chamber: $U_{in}=(質量保存による)$ $K_{in}, \epsilon_{in}=free\ slip$ Outer chamber: $U_{in}=12.63, l_{in}=1/7 \cdot L_0$ $k_{out}=3/2 \cdot (U_{in} \times 0.05)^2, \epsilon_{in}=C_{\mu} \cdot k_{in}^{3/2} / l_{in}$
流出境界	Inner chamber: $U_{out}=2.689, l_{out}=1/7 \cdot L_0$ $k_{out}=3/2 \cdot (U_{out} \times 0.05)^2, \epsilon_{out}=C_{\mu} \cdot k_{out}^{3/2} / l_{out}$ Outer chamber: $U_{out}=(質量保存による)$ $k_{out}, \epsilon_{out}=free\ slip$
壁面境界	No-slip
流れ場の解析の後、inner chamber 測定室内の建材設置位置(図 2 参照)に表面濃度(飽和蒸気量、詳細は表 3)を与え、拡散場解析を行う。	

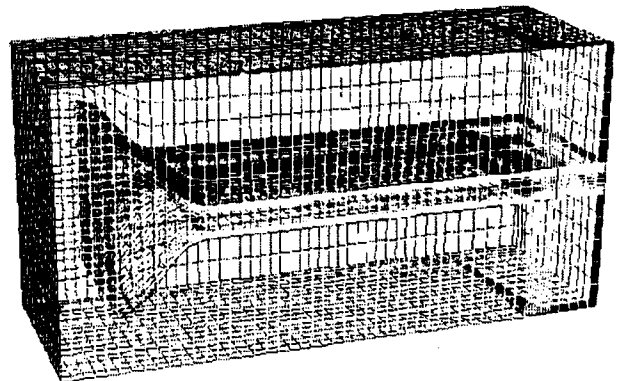


図 4 CFD メッシュ分割図

本報では拡散解析の基礎となる流れ場に関して、CFD 解析結果と実験結果を比較・検証する。CFD による解析条件を表 3、解析に用いたメッシュを図 4 に示す^{注3)}。

6. Inner Chamber 内平均風速分布及び可視化

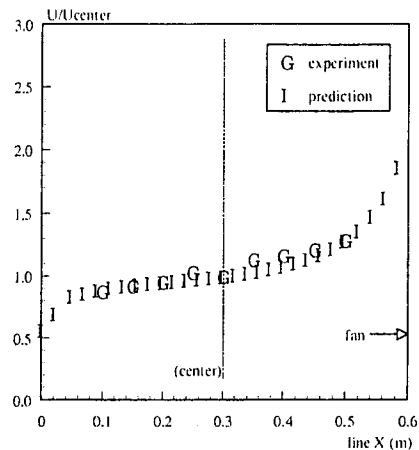
図5(1)~(3)にinner chamber内測定胴における主流Uの風速分布を示す。風速はサーミスタ風速計により測定している。CFDによる解析結果は実験結果と十分な精度で一致している。また測定胴内のy方向平均風速分布は非常に均一(2次元的)な分布が得られた(図5(2))。

また図6(1)にLaser Light Sheetによるinner chamber測定胴内のX-Y平面(高さ(Z)方向には中心位置)の可視化結果を示す。Seedingにはドライアイスを使用し、光源として4W半導体個体Laser(single line)を使用している(図6(2)補図参照)。サーミスタ風速計による平均風速分布測定結果とも対応するが、測定胴内全体で非常に均一(y方向に2次元的)な分布である。特にfanに近い領域(図6(1)右側)においては非常に均一な流れが観察でき、整流用メッシュの効果が良く現れている。fanから離れた領域(図6(1)左側)において流れが若干乱れて見えるのはseeding投入時による乱れが大きく影響している。

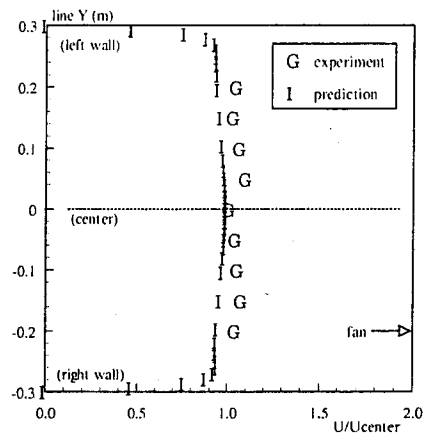
7. 物質伝達率測定

蒸散支配型放散の建材を模擬した純水、decane及びundecaneを $50 \times 500 \times 4 \text{ mm}$ ($= 100 \text{ cm}^3$)のsus304製の容器に満たし、液面が測定胴内床面と同一位置になるように設置する(図1)。測定胴内の中心位置における風速 U_{center} は 0.10 m/s 、雰囲気温度は平均 23.2°C ($\pm 0.2^\circ\text{C}$ の精度)で制御している。測定中の液面温度は純水: 21.8°C 、decane: 22.7°C 、undecane: 22.4°C であった。測定の前後における設置した液体の重量変化を測定することにより全放散量を測定し、表面面積及び測定時間で除すことにより放散速度($\text{g/m}^2\text{h}$)を算出した。outer chamber排出空気濃度又は絶対湿度を測定することでsmall test chamber内が完全混合していると仮定した場合の濃度(絶対湿度)を把握する^{注4)}。測定は名目換気時間の10倍以上行っている^{注5)}。結果を表4に示す^{注6)}。本実験条件下において物質伝達率は純水: 1.2×10^2 ($\text{g/m}^2\text{h} \cdot \text{kPa}$)、decane: 2.9×10^2 ($\text{g/m}^2\text{h} \cdot \text{kPa}$)、undecane: 3.9×10^2 ($\text{g/m}^2\text{h} \cdot \text{kPa}$)である。decaneの物質伝達率は純水の値の2.4倍、undecaneの物質伝達率は純水の値の3.3倍程度となった。

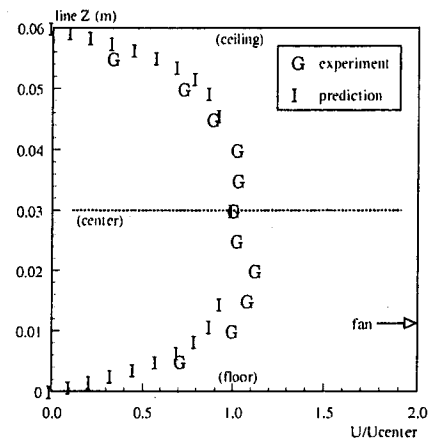
純水放散速度と換気量より排出口での気中蒸気圧を算出すると 2.5 (kPa、表3中のマスバランス値)であり、測定値は 2.4 (kPa)である。同様にdecaneの場合、放散速度と換気量より算出した排出口濃度(マスバランス値)は 1.1×10^{-2} (kPa)、測定値は 1.0×10^{-2} (kPa)である。両者共に3%程度の相違に収まっている。Undecaneの場合はマスバランス値 3.2×10^{-2} (kPa)、測定値 2.9×10^{-2} (kPa)であり、9%の相違がある。これらの相違がSmall Test Chamberにお



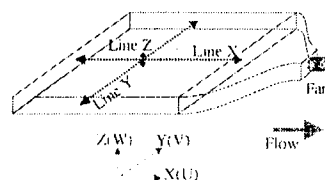
(1) Uの主流方向分布(x)



(2) Uの横方向分布(y)



(3) Uの鉛直方向分布(z)



測定胴中心位置(Line x, y, zの交点)における平均風速 $U_{\text{center}} = (0.1 \text{ m/s})$ で基準化して比較。

(4) 補図

図5 inner chamber 測定胴内平均風速分布

ける測定の精度を示している。熱伝達と湿気伝達についてLewisの関係を仮定し、

表4 物質伝達率測定結果 (実験)

	純水	Decane	Undecane
放散速度 (g/m ² h)	29.9	46.4	15.2
排出口濃度 測定値 (気中蒸気圧) (絶対湿度 g/m ³)	2.4 kPa (18.0)	1.0×10 ⁻² kPa (6.0×10 ⁻¹)	2.9×10 ⁻³ kPa (1.8×10 ⁻¹)
排出口濃度 マスバランス値 (気中蒸気圧) (絶対湿度 g/m ³)	2.5 kPa (18.5)	1.1×10 ⁻² kPa (6.2×10 ⁻¹)	3.2×10 ⁻³ kPa (2.0×10 ⁻¹)
飽和蒸気量 (蒸気圧) (液体温度、g/m ³)	2.6 kPa (21.8°C、19.9)	0.17 kPa (22.7°C、10.0)	4.2×10 ⁻² kPa (22.4°C、2.6)
物質伝達率 (g/m ² h·kPa) (g/m ² h·(g/m ³))	1.2×10 ² (15.7)	2.9×10 ² (4.9)	3.9×10 ² (6.3)

(雰囲気温度 23.2°C、U_{center}=0.1m/s)

Lewis Number を 1 と近似した場合、本実験条件における流れ場は対流熱伝達率が 4.48 (kcal/m²h°C) の流れ場に相当する^{注7)}。

9. 結論

(1) inner chamber 内測定胴の風速分布は充分均一で、良好な分布性状を示し、CFD の解析結果とも非常に良く一致した。

(2) 本実験条件において物質伝達率は純水：1.2×10²、decane：2.9×10²、undecane：3.9×10² (g/m²h·kPa) となった。また排出口での濃度測定値と放散速度と換気量より算出した完全混合濃度を比較した結果、両者の相違は 3~9% の誤差に収まり、本実験で開発した Small Test Chamber が高い測定精度を有することが示された。

(3) 今後蒸散支配型放散の各種建材を対象として化学物質放散試験を行う予定である。

注

(1) decane (CH₃(CH₂)₈CH₃), 分子量 142.3、undecane (CH₃(CH₂)₉CH₃), 分子量 156.3

(2) 加圧法により配管を含む Small Test Chamber 全系統の気密性を測定した結果、相当開口面積は 0.97mm² (1mmAq 時) であり、十分な気密性が確保されている。

(3) GC : Gas Chromatography, MS : Mass Spectrometry, CIS : Cooled Injection System, Split 比 : ベント流量とカラム流量の比、の略。

(4) small test chamber 内の洗浄は Dr. Knudsen らによる方法 (文6) による。Small Chamber を含む全 sampling 系統の Blank Test を行った結果、Toluene 濃度は 2.39×10⁻³ g/m³ 以下、また decane、undecane は検出限界以下であった。

(5) 排出口での濃度のオーダを制御するために純水での実験と decane での実験では outer chamber に対する換気量を変化させている。純水 : 0.11 回/h (0.04m³/h)、decane : 5.3 回/h (1.86m³/h)

(6) decane を chamber 内に設置した後、測定を開始するまでのタイムロスは 5 分以内であった。

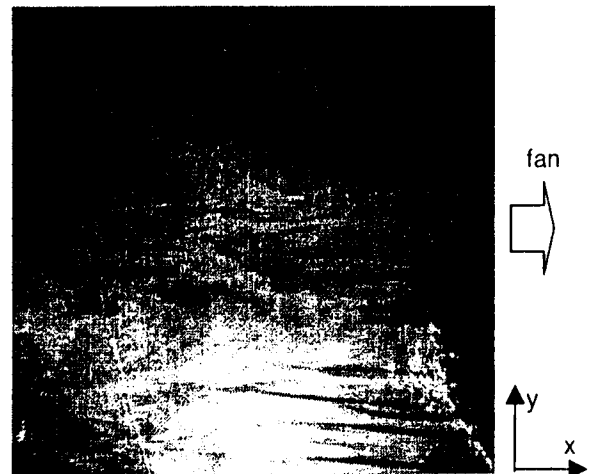
(7) Lewis の関係は $\alpha_d (\alpha' \cdot Cp) = Le$ で示される。ここで、 α_d : 対流熱伝達率 (kcal/m²h°C)、 Cp : 空気 の比熱 (0.24kcal/kg°C)、 Le : Lewis Number (kg/kg)、 α' : 物質 (湿気) 伝達率 (kg/m²h·(kg/kg))

参考文献

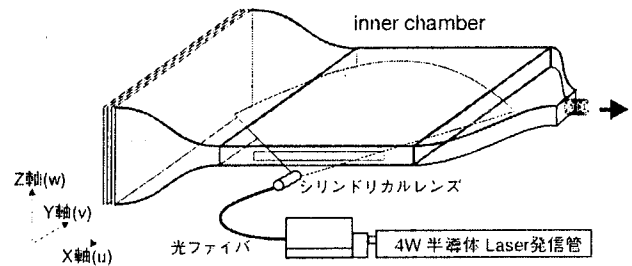
(1) 伊藤, 村上, 加藤ら (1999) 揮発性有機化合物の放散・吸脱着等のモデリングとその数値予測に関する研究(その 7), 日本建築学会年次大会 学術講演梗概集, 投稿中

(2) Zhang, J.S. et al., (1996) Study of air velocity and turbulence effects on organic compound emissions from building materials/furnishings using new small test chamber, ASTM STP1287, Philadelphia, PA, 189-199

(3) Bluysen, P. M., et al, (1995) European database of indoor air pollution sources: the effect of temperature on the chemical and sensory emissions of indoor materials. TNO-



(1) inner chamber (X-Y)平面
(高さ方向には中心位置)



(2) 補図

図6 Laser Light Sheet による気流の可視化

Report 95- BBI- R0826.

(4) Yang, X., et al., (1998) Impact of early stage incomplete mixing on estimating VOC emissions in small test chambers, INDOOR AIR, 180-189

(5) 安部, 長野, 近藤, (1992), はく離・再付着を伴う乱流場への適用を考慮した k-ε モデル, 日本機化学会論文集(B 編), 58 巻, 554 号, pp. 57-64

(6) Knudsen, H.N., Valbjn, O. and Nielsen, P.A. (1998) "Determination of exposure-response relationships for emissions from building products". Indoor Air, 8(4), 264-275

(7) CRC handbook of chemistry and physics 1998-1999, David R. Lide Editor-in-chief 79th edition

謝辞

本研究の一部は、科学技術庁科学技術振興調整費(生活・社会基盤研究 生活者ニーズ対応研究「室内化学物質空気汚染の解明と健康・衛生居住環境の開発」)に基づいて設けられた建築学会学術委員会・室内化学物質空気汚染調査研究委員会(委員長:村上周三 東大生産技術研究所教授)の活動の一環として実施したものである。関係各位に深甚なる謝意を表する次第である。