

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 32）
 —室内空気中の化学物質の為の吸着建材の性能に関する実験と数値解析—

正会員 ○古市 龍^{*1} 同 村上周三^{*2}
 正会員 加藤信介^{*3} 同 朱 清宇^{*4} 同 安宅勇二^{*5} 同 伊藤一秀^{*6}

1. 序

近年、住宅・オフィス・学校等において化学物質による空気汚染(いわゆるシックハウス問題)が顕在化している。室内化学物質汚染問題の打開策として、化学物質を吸着する床・壁・天井材(以下、吸着建材)の使用が考えられるが、この吸着性能やメカニズムについて十分な研究は行われていない。本研究は実験及び計算流体力学CFD(Computational Fluid Dynamics)を基本とした解析手法により、吸着建材の室内化学物質濃度低減における実効性の検証と、建材近傍の気流性状、化学物質の吸着性状を詳細に予測する数値的な手法の開発を目的とする。対象とする化学物質はホルムアルデヒド(HCHO)とする。

2. パッシブ吸着建材について

活性炭のような吸着建材の中でも、気中濃度が低くても平衡吸着量が大きく、内部拡散が速やかで、吸着材表面の気中濃度がほとんどゼロとみなし得るような吸着建材の吸着速度は、試験建材表面における物質伝達性状により律速されるものと考えられ、吸着速度計測は、物質伝達性状をコントロールして行う事が必須となる^{※1}。物質伝達性状のコントロールは、建材の設置される実験装置(以下、Test Chamber)内の試験建材を実際に建材が室内で使用される状況と同様の物質伝達性状になるようコントロールする必要がある。揮発性有機化合物の気中への物質伝達特性は、対流熱伝達特性とほぼ相似であり、試験時の Test Chamber 内の気流性状を、一般に馴染みのある対流熱伝達特性で表現することには一定の合理性がある^{注1)文1)}。室内の対流熱伝達率は、一般に2~7W/m²K程度であり、本研究で、室内に設置される吸着建材の吸着速度測定は、この状態に対応させる。本研究で扱われる吸着建材は、(1) 吸着物質が建材内部で化学反応により相変化し室内に再放散しない、化学的なメカニズムを持つ化学的吸着建材と、(2) 建材内部と室内間で、物質を吸着すると同時に再放散する物理的な吸着メカニズムを持つ物理的吸着建材(多孔質建材など)の2種類である。前者が、吸着容量の限界まで吸着のみし続けるのに対し、後者は、吸着物質の建材内部濃度と室内濃度が平衡に達するまで吸着と脱着によりバランスをとる。本報

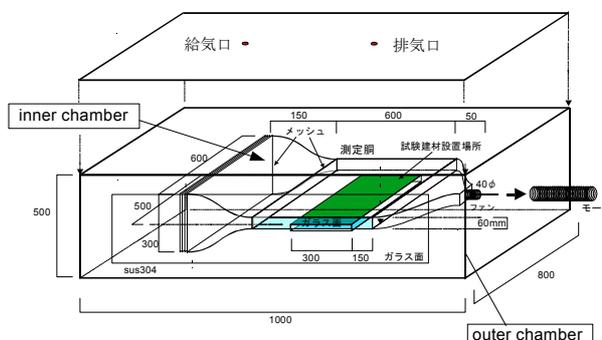


図1 境界層型小型 Test Chamber

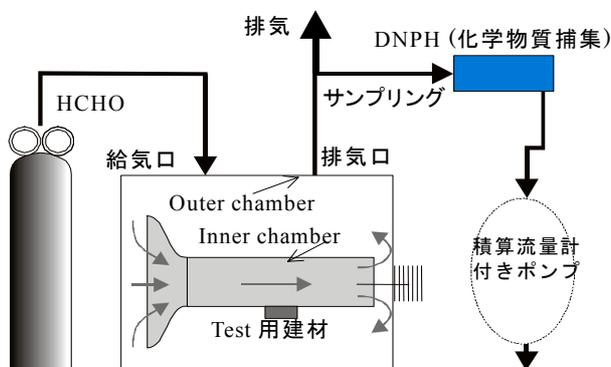


図2 境界層型小型 Test Chamber チャンバーを用いた分析システム

では、ホルムアルデヒド吸収分解石膏ボードを用いた実験結果を示す^{注2)}。

3. 実験概要

3-1 境界層型小型 Test Chamber(図1) 吸着建材の汚染物質吸着を解析するにあたり、その吸着性状は建材近傍の気流性状の影響を強く受ける。本研究では、建材近傍の気流速度を、精度良く再現可能な、境界層型小型 Test Chamber を用いる。境界層型小型 Test Chamber は試験建材(テストピース)表面上を、定められた風速で気流が流れる inner chamber (図1内部)と、換気のための給気口および排気口を持ち、この inner chamber を格納する outer chamber より構成される。境界層型小型 Test Chamber は全て sus304 で構成されている。inner chamber にはファンが設置されており、測定洞内は第3種機械換気により換気される。Chamber 内での汚染質発生を防ぐため、モータ部は outer chamber の外側に設置している。境界層型小型 Test Chamber 内に供給される新鮮空気量と inner chamber 測定洞内の換気回数(建材表面風速)は独立して

制御が可能である。inner chamber 内の試験建材設置面積は最大で 0.5m×0.3m である。建材上部における平均風速はファンの回転数により 0~0.2m/s の範囲で一定制御が可能である。本報では inner chamber 内の平均風速を 0.10 m/s に制御した実験結果を示す。これは試験建材設置面の対流熱伝達 $5.2\text{W/m}^2\cdot\text{K}$ に対応する^{文2)}。

3-2 吸着速度測定概要(図 2) 吸着建材の吸着速度測定には、定常法を用いる。定常法は、試験建材を設置した Test Chamber に所定濃度の HCHO 調整ガスを供給し続け、給排気の濃度差(給気濃度-排気濃度)から試験建材の吸着速度を算出する方法である。定常的に給気されるため、Test Chamber 内の空気は攪拌され、吸着速度が Test Chamber 内の分子拡散に律速される事はなく、吸着速度が一定であれば Test Chamber 内濃度も一定となる。また給気があるため排気口での濃度測定のサンプリングも容易となる。Test Chamber 内に空気流動があるため、物質伝達率が上がり過ぎないように注意が必要となる。濃度の測定は DNPH カートリッジで吸引し、HPLC で定量分析する。また、前もって Chamber 内に建材を設置しない状態で、Test Chamber 自体の吸着量評価を行っている。

3-3 実験 Case(表 1) 吸収分解石膏ボードの吸着実験に関しては、①雰囲気温度、②HCHO 濃度、③相対湿度の 3つをパラメータとして行う。実験 Case を表 1 に示す。普通石膏ボードに関しては、case2 についてのみ行う。実験は以下の手順で行う。

3-4 ブランク状態での境界層型小型 Test Chamber に対する HCHO 吸着量の測定 境界層型小型 Test Chamber 内に建材を設置しない状態で既知濃度 (0.08ppm) の HCHO 含有空気を供給し、吹出口と排気口での濃度を測定することで境界層型小型 Test Chamber に対する吸着量を把握する。

3-5 定常法による吸収分解石膏ボード及び普通石膏ボードの吸着量測定 境界層型小型 Test Chamber 内に吸収分解石膏ボード、或いは普通石膏ボードを設置し、実験を行う。HCHO 含有空気を供給し始めたと同時に測定を開始し、供給吹出口と排気口濃度を測定する。その後、定常状態を確認したうえで、HCHO の供給を停止し、吹出口と排気口濃度を測定することにより吸着建材からの HCHO 再放散を確認する実験を行う。

3-6 化学物質サンプリングと分析方法(図 2) 境界層型小型 Test Chamber を中心とした化学物質サンプリングと分析の一連のフローを(図 2)に示す。試験の前に漏気

表 1 吸収分解石膏ボードの実験及び数値解析

Case No.	温度 [°C]	換気回数 [回/h]	給気 HCHO 濃度 [ppm]	相対湿度	U_{center} [m/s]	CFD 解析
1	15°C	0.5	0.08	0%	0.10	○
2	23°C	0.5	0.08	0%	0.10	○
3	23°C	0.5	0.08	50%	0.10	×
4	23°C	0.5	0.08	75%	0.10	×
5	23°C	0.5	0.40	0%	0.10	○
6	40°C	0.5	0.08	0%	0.10	○

表 2 CFD 解析条件

乱流モデル	低 Re 型 k-ε model (Abe-Nagano model)		
メッシュ分割	216,600	差分スキーム	移流項: QUICK
流入境界	outer chamber 給気口: $U_{in}=1.44\text{m/s}$, $l_{in}=1/7\cdot L_f$, $k_{3/2}=3/2\cdot(U_{in}\times 0.05)^2$, $\epsilon_{in}=C_{\mu}\cdot k_{in}^{3/2}/l_{in}$ (L_f (inlet 直径)=7mm)		
流出境界	outer chamber 排気口: U_{out} (質量保存による) k_{out} , ϵ_{out} = free slip		
inner chamber 内ファン位置の境界条件	case 毎に速度固定値 U_{fan} を与える。 $U_{fan}=2.69(\text{m/s})$ $k_{out}=3/2\cdot(U_{fan}\times 0.05)^2$, $\epsilon_{in}=C_{\mu}\cdot k_{in}^{3/2}/l_{in}$ ($l_{in}=1/7\cdot L_f$, L_f (fan の半径)=20mm)		
壁面境界	No-slip		
3次元、対象性を考慮し Y 方向は 1/2 の領域で解析。流れ場の解析後、inner chamber 測定胴内の建材設置位置に表面気相濃度(0)を与え、拡散場解析を行う。			

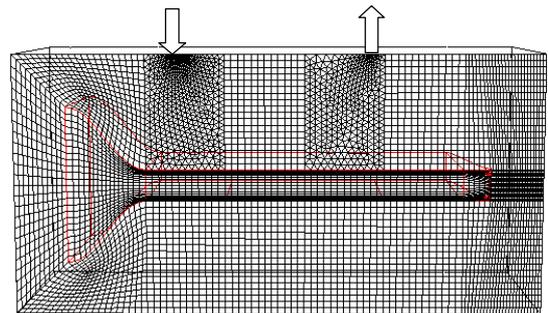


図 3 解析メッシュ

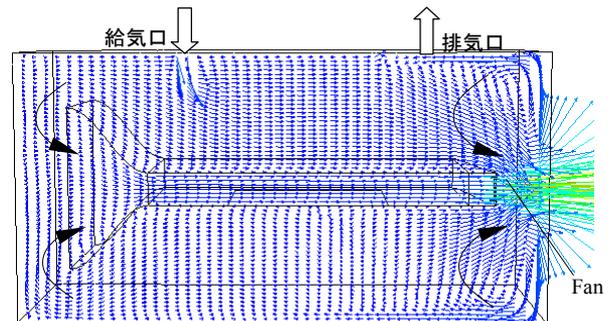


図 4 境界層型小型 Test Chamber 内平均風速分布

による誤差を確認するため気密性のチェックを行い、その気密性能を確認している^{注3)}。outer chamber 内へは一定濃度の HCHO を換気回数 0.5 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。測定は、Test Chamber 内の空気は DNPH カートリッジにより吸着サンプリング(0.3L/min、10L)し、HPLC により化学物質の定

量・定性を行う。

4 数値解析概要

4-1 流れ場解析 実験条件と同様に outer chamber に対する換気回数は 0.5 回/h と固定して CFD 解析を行う。流れ場の解析 Case は表 1 に示す。inner chamber の測定胴内の平均風速 U_{center} は 0.1 m/s に制御する。物質伝達率を正確に予測するためには、壁面近くの数値分布・乱れエネルギーを詳細に解析する必要がある。そのため流れ場は低 Re 数型 k- ϵ モデル (Abe-Nagano model) に基づく 3 次元解析を行う。試験建材表面の第 1 メッシュの壁座標 $z^+ (=U^*Z_1/\nu)$ 注⁴⁾は 0.03 とした。Y 方向(図 4(4))の空間の対称性により、半分の領域のみを解析対象とする。表 2 に解析条件、図 3 に解析メッシュを示す。

4-2 拡散場解析 流れ場解析後、試験建材設置面に吸着の境界条件を与え、拡散と物質吸着の解析を行う。吸収分解石膏ボードの特徴は、①HCHO に対する吸収量は極めて大きく、②建材からの再放散はしないことである。従って、建材表面の濃度 C は 0 と仮定する⁵⁾。HCHO の空気中の物質拡散係数(Da)は、15°C の場合 $1.46 \times 10^{-5} \text{m}^2/\text{s}$ 、23°C の場合 $1.53 \times 10^{-5} \text{m}^2/\text{s}$ 、40°C の場合 $1.69 \times 10^{-5} \text{m}^2/\text{s}$ とする³⁾。

5 流れ場の解析結果(図 4)

図 4 に境界層型小型 Test Chamber 内の平均風速ベクトル図を示す。ファンにより吹出す空気が outer chamber 内壁に衝突する性状、ならびに inner chamber 内から outer chamber へ循環する様子が観察される。

6 実験及び数値解析結果に対する考察 (表 3) (図 5,6,7)

表 3 に吸収分解石膏ボードの HCHO 吸着速度、物質伝達率の定常状態の実験結果と CFD 解析結果を全てまとめて示す。

6-1 吸着速度の評価手法

吸着速度 $ads(\text{mg}/\text{h}\cdot\text{m}^2)$ は、Test Chamber での出入口濃度差 $C_i - C_o(\text{mg}/\text{m}^3)$ と Test Chamber 換気量 $Q_v(\text{m}^3/\text{h})$ 及び試験建材面積 $a(\text{m}^2)$ から算出される⁶⁾。

既報⁷⁾では吸着建材の吸着速度 $ads(\text{mg}/\text{h}\cdot\text{m}^2)$ を清浄空気(汚染濃度ゼロ)を導入した場合の換気量 $Q_e(\text{m}^3/\text{h}\cdot\text{m}^2)$ に換算して表現し、室内の汚染低減に関し、換気の効果とパッシブ吸着の効果と同じ尺度で比較検討した。閉め切った部屋に吸収分解石膏ボードを床面積 $A(\text{m}^2)$ の 2 倍設置した時の汚染物質除去能力を、仮に、吸着建材が使われてない高さ $h(\text{m})$ の部屋の自然換気で得ようとする時、換算換気回数は、換算換気量 $Q_e(\text{m}^3/\text{h}\cdot\text{m}^2)$ を用いて、

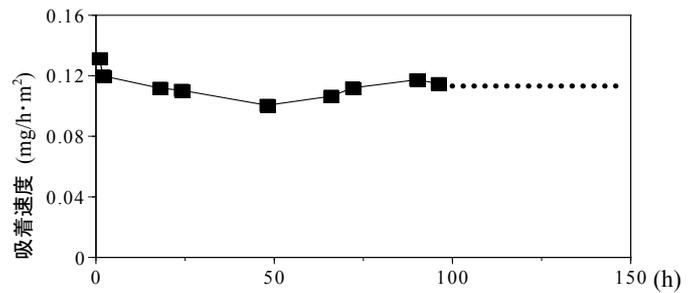


図 5 吸収分解石膏ボードの吸着速度(実験値)
(雰囲気温度 23°C, 相対湿度 0%, HCHO について)

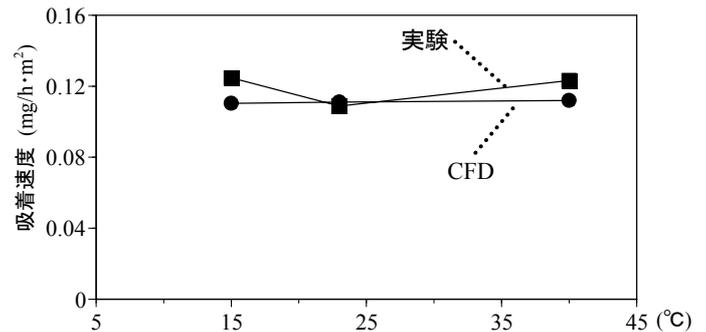


図 6 吸収分解石膏ボードの吸着速度の温度依存性の検討
(実験と数値解析)

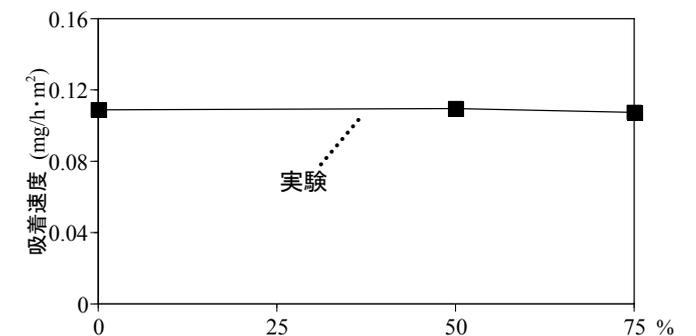


図 7 吸収分解石膏ボードの吸着速度の湿度依存性の検討
(実験の雰囲気温度 23°C)

以下の式から導かれる。

$$\text{換算換気回数} = Q_e \cdot A / (A \cdot h) \quad (1)$$

6-2 吸収分解石膏ボードの吸着速度 吸収分解石膏ボードの吸着速度はかなり大きく、平均吸着速度は $0.11(\text{mg}/\text{h}\cdot\text{m}^2)$ である(図 5)。天井高 2.4m の室内に、吸収分解石膏ボードを床面積の 2 倍設置すると、換算換気回数にして約 5.59(回/h)の効果があり、濃度低減に対する効果は極めて大きい。また、吸着効果は約 1 年以上継続することが別の実験結果より推算されている。

6-3 吸収分解石膏ボードの温度依存性(図 6)

吸収分解石膏ボードの吸着速度に対する温度依存性を調べた結果、温度依存性はないことが確認された(図 6)。ここでは温度による吸着速度の変化を、実験と数値解析

の両者について示す。給気口の HCHO 濃度を 0.01mg/m³ (0.08ppm) に制御する場合、温度に依らず、CFD

表3 吸収分解石膏ボードの実験と CFD 解析結果

雰囲気温度	15°C		23°C				40°C			
	(CFD)	実験	(CFD)	実験		(CFD)	実験	(CFD)	実験	
相対湿度[%]	0	0	0	0	50	75	0	0	0	0
給気口濃度 [mg/m ³](ppm)	0.10 (0.08)	0.10 (0.08)	0.10 (0.08)	0.10 (0.08)	0.10 (0.08)	0.10 (0.08)	0.48 (0.40)	0.48 (0.40)	0.10 (0.08)	0.10 (0.08)
排気口濃度 [mg/m ³](ppm)	0.016 (0.013)	0.01 (0.008)	0.015 (0.012)	0.018 (0.015)	0.020 (0.016)	0.019 (0.016)	0.07 (0.06)	0.10 (0.09)	0.015 (0.012)	0.01 (0.008)
平均吸着速度 [mg/(m ² h)]	0.11	0.12	0.11	0.11	0.11	0.11	0.55	0.51	0.11	0.12
物質伝達率 [mg/(m ² h(mg/m ³))]	6.88	12.0	7.33	6.11	5.50	5.56	7.86	5.10	7.33	12.0
換算換気量 [m ³ /(h m ²)]	6.88	12.0	7.33	6.11	5.50	5.56	7.86	5.10	7.33	12.0

解析により吸着建材の平均吸着速度は、実験結果とよく対応し、約 0.1mg/m²h となる。これは、レイノルズ数 Re 及び 15°C、23°C 及び 40°C のシュミット数 Sc がほぼ等しいため、各温度の拡散場が完全な相似となったためである注6)。

6-4 吸収分解石膏ボードの湿度依存性(図 7)

雰囲気温度を 23°C とし、給気口の HCHO 濃度を 0.1mg/m³(0.08ppm) に制御する場合、試験建材の HCHO の平均吸着速度は相対湿度によらず、0.11mg/m²h と一定である。吸収分解石膏ボードの吸着速度に対する湿度依存性はないことが確認された(図 7)。

7 結論

- (1) 吸着建材は、化学物質濃度低減に極めて有効である。天井高 2.4m の室内に、吸収分解石膏ボードを床面積の 2 倍設置すると、換算換気回数にして約 5.59(回/h)の効果がある。
- (2) 吸収分解石膏ボードの HCHO 吸着速度に対する温度依存性と湿度依存性はない。
- (3) CFD 解析による吸収分解石膏ボードの平均吸着速度は実験と良く対応する。

注

- [1] 実際、ルイスの関係を用いて水蒸気物質伝達率と対流熱伝達率が関係付けられており、水蒸気と揮発性有機化合物の物質伝達率は、一般に両者のシュミット数比が 1 のオーダーのため、ほぼ一致する。
- [2] 試験体ボードはメーカーで製造直後にアルミホイルで包み、更にビニル袋で密閉した状態で輸送、保存している。本報では、化学的吸着建材として吉野石膏(株)のタイガーハイクリンボード(文中、吸収分解石膏ボードと表記)を取り扱っている。
- [3] 加圧法により配管を含む境界層型小型 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 (10Pa 時)であり、十分な気密性が確保されていることを確認している。
- [4] 建材表面の第 1 メッシュの壁座標 $Z^+ = U^* Z_1 / \nu$ 。ここでは、

$$U^* = \sqrt{\frac{\tau_w}{\rho}} \quad (2) \quad \tau_w = \rho \nu \left. \frac{\partial u}{\partial z_n} \right|_{wall} \quad (3)$$

τ_w : 壁面せん断応力 (N/m²), ρ : 流体密度(kg/m³), Z_n : 壁面鉛直方向座標(m), ν : 分子動粘性係数(m²/s), u : 壁面接線方向速度(m/s)。

[5] 無次元化されたスカラー量(ϕ)の輸送方程式を以下に示す:

$$\frac{\partial \phi^*}{\partial t^*} + \frac{\partial (u_j^* \phi^*)}{\partial x_j^*} = \frac{1}{\partial x_j^*} \left\{ \frac{1}{Re} \frac{\partial \phi^*}{\partial x_j^*} \right\} = \frac{1}{\partial x_j^*} \left\{ \frac{D_a}{U_0 \cdot L} \frac{\partial \phi^*}{\partial x_j^*} \right\} \quad (4)$$

ここで、添え字*は量を表し、 ϕ : VOC 濃度, $u_i^* = u_i / U_0$, $x_i^* = x_i / L_0$, $t^* = t / (L_0 / U_0)$, L_0 : 代表長さ(m), U_0 : 代表速度(m/s), レイノルズ数 $Re = (U_0 L_0) / \nu$, シュミット数 $Sc = \nu / D_a$, ν : 空気動粘性係数(m²/s), D_a : 空気中における物質拡散係数(m²/s), $i=(1,2,3)$, $j=(1,2,3)$ 。(6) 式よりレイノルズ数 Re およびシュミット数 Sc が等しい場合、 ϕ の拡散場は完全な相似となる。

$$[6] \quad ads = (C_i - C_o) \cdot Qv/a = (C_o - l) \cdot Qe \quad (5)$$

$$Qe = (C_i / C_o - 1) \cdot Qv/a \quad (6)$$

但し、 C_i : 給気濃度(g/m³), C_o : 排気濃度(g/m³), Qv : 換気量(m³/h), a : 建材面積(m²), ads : 吸着速度(mg/hm²)

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 慶應義塾大学理工学部 教授)の活動の一環として実施したものである。

<参考文献>

- 1 加藤信介、村上周三、朱清宇、伊藤一秀: 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 26) パッシブ吸着材の濃度低減効果試験法に関する実験と CFD 解析による検討: 日本建築学会年次大会 学術講演梗概集、2001.9
- 2 朱清宇、加藤信介、村上周三、伊藤一秀: 境界層型小型 Test Chamber の開発と試験建材表面の化学物質伝達率に関する実験と CFD 解析: 日本建築学会計画系論文集、2001.11
- 3 化学工学協会編: 化学工学便覧 改訂 3 版、1968

*1 慶應義塾大学理工学部, *2 慶應義塾大学理工学部 教授 工博, *3 東京大学生産技術研究所 教授 工博
*4 東京大学生産技術研究所 JSPS 工博 *5 吉野石膏(株) *6 東京工芸大学 講師 工博