

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5)

室内濃度分布計算における吸脱着面のモデル化と数値解析

正会員 ○加藤 信介*1

同 村上 周三*1 同 近藤 靖史*2
同 伊藤 一秀*3 同 山本 明*3
同 朱 清宇*3 同 藤村 淳一*4

表面吸着 Henry型吸着等温式 CFD

1. 序 前報²⁾では、揮発性有機化合物(以降、簡便のため VOCs 等と表記)の建材内での拡散、吸脱着現象のモデル化を示した。本報ではこれを利用した室内の濃度分布予測法を検討する。なお、吸脱着に関しては建材表面のみとする簡易モデルを導入する。本報では吸着等温式として線型の Henry 型を用いた室内の汚染質分布計算例を示し、次報で Langmuir 型を用いた場合を示す。

2. 建材の特性に応じたモデル化(表1、図1) 室内における VOCs 等の汚染分布予測を簡易に行うため、建材が、①VOCs 等を相当量含有し専ら室内汚染源となるものと、②吸脱着効果により室内濃度に影響を及ぼすものとをそれぞれ個別にモデル化した。今回室内空気汚染源は内部拡散支配型の建材を仮定した。また、吸脱着効果のある建材に関しては内部拡散効果を無視し吸脱着性状が表面のみに存在するという簡易なモデル化を行った。

2.1 空気中の VOCs 輸送 空気中に放散される VOCs は単一物質にモデル化する。これは室内気流により移流・拡散され吸入口より排出される(1)式。境界層粘性底層の拡散現象を解明するため、低 Re 型 $k-\epsilon$ モデルに基づく気流解析を使用²⁾。

2.2 建材中の VOCs 輸送 建材内の VOCs 輸送は、空隙中は気相濃度 C に関し(2)式、実質部では吸着相濃度(ここでは以降吸着量と呼ぶ) C_{ad} に関し(3)式と表現される^{注1, 2)}。

2.3 吸着等温式 温度一定条件における気相濃度と吸着量との関係は吸着等温式(4)式で表される^{注1)}。

2.4 内部拡散支配型建材の簡易 VOCs 輸送モデル (2)(3)式に(5)式を適用し、簡略化した拡散輸送方程式(5)式により内部拡散支配型の VOCs 輸送性状を表現する。この D_c (7)式は建材からの VOCs 放散履歴より実験的に推定^{2, 4)}。

2.5 建材と室内空気の界面 建材表面から空気中への VOCs 輸送量と、建材内から建材表面への輸送量は保存される(8)式。内部拡散支配型の建材からの VOCs 等の放散過程は最終的に(1)(6)(8)式により記述される。

2.6 吸脱着面に対する界面濃度輸送のモデル化 建材内部吸脱着効果は無視し建材の見かけの表面でのみ吸脱着が生ずる簡易モデルを考察する。吸脱着効果の大きい建材表面において、図1に示すように吸着材の見かけの微小表面要素 dS を挟み、室内方向と吸着材内部方向に微小厚 dh で構成される空気中と吸着材中の二つの C.V. を考える。(2)(3)式をそれぞれの C.V. で体積積分を行う^{注2)}。ただし空気中の C.V. 内の気相濃

表1 支配方程式

1. 空気中の輸送方程式

$$\rho_{air} \frac{\partial C}{\partial t} + \rho_{air} \frac{\partial (u_j C)}{\partial x_j} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\left(\lambda_a + \frac{\rho_{air} \nu_l}{\sigma} \right) \frac{\partial C}{\partial x_j} \right) \quad (1)$$

C : 気相濃度(建材内なら気相換算濃度) [kgVOCs/kgair]
 ρ_{air} : 空気密度 [kg/m³]
 λ_a : 空気中 VOCs 分子拡散係数 [kgVOCs/(ms kgVOCs/kgair)]
 σ : 1.0, ν_l : 乱流拡散係数

2. 建材中の輸送方程式(前報その1(3a)、(3b)式)

空隙中 (気相) $k\rho_{air} \frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\lambda_c \frac{\partial C}{\partial x_j} \right) - adv \quad (2)$

実質部 (吸着相) $\rho_{sol} \frac{\partial C_{ad}}{\partial t} = adv \quad (3)$

ただし $adv = -aS(C_{eq} - C) \quad (4)$

C_{ad} : 建材表面の吸着相濃度(あるいは吸着量) [kgVOCs/kgporous solid]

k : 建材内の空隙率 [m³/m³] ρ_{sol} : 建材の密度 [kg/m³]

λ_c : 内部拡散支配型建材内の気相中の VOCs 伝導率

C_{eq} : 吸着相と平衡する気相濃度 [kgVOCs/kgair]

a : 吸着相と空隙間の物質伝達率 S : 接触面積 [m²]

3. 等温過程のときの吸着等温式

$$C_{ad} = f(C_{eq}) \quad (5)$$

4. 内部拡散支配型建材に対する輸送方程式

(2),(3),(4)より $\rho_{air} \frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\rho_{air} D_c \frac{\partial C}{\partial x_j} \right) \quad (6)$

ただし $D_c = \lambda_c / (k\rho_{air} + \rho_{sol} df/dC) \quad (7)$

D_c : 内部拡散支配型建材中の有効拡散係数

5. 内部拡散支配型建材表面と室内空気との界面濃度輸送

放散面から空気中への VOCs 輸送量は flux 量保存による

$$-\rho_{air} D_c \frac{\partial C}{\partial x} \Big|_{n+} = -\lambda_a \frac{\partial C}{\partial x} \Big|_{n-} \quad (8)$$

B : 建材表面 B_+ は建材側、 B_- は室内空気側

6. 吸脱着効果の大きい建材に対する界面濃度輸送

図1の吸着材表面を挟んだ空気中と実質部の二つの C.V. に関し空気中の気相濃度の時間変化がないものとして(2)(3)式を体積積分する^{注3)}。

空気中 $0 = \lambda_a \frac{\partial C}{\partial x} \Big|_{n,s-} dS - advdV \quad (9)$

吸着材中 $\rho_{sol} \frac{\partial C_{ad}}{\partial t} dV = advdV \quad (10)$

dV : C.V.の体積 dS : 空気中と実質部の2つの C.V.の界面の面積 (8)(9)式より

$$-\lambda_a \frac{\partial C}{\partial x} \Big|_{B-} = - \left(\rho_{sol} \frac{\partial C_{ad}}{\partial t} \right) \frac{dV}{dS} = -\rho'_{sol} \frac{\partial C_{ad}}{\partial t} = -ads \quad (11)$$

ads : 吸着速度 [kg/m²s] (吸着材へ向かう方向を正)

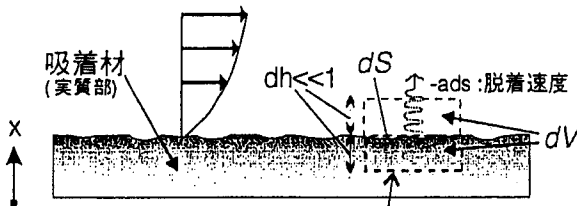
ρ'_{sol} : 吸着材の面密度 (= $\rho_{sol} dV/dS$) [kg/m²]

7. Henry 型吸着等温式

$$C_{ad} = k_h \cdot C_{eq} = k_h \cdot C \Big|_{B-} \quad (12)$$

k_h : Henry 定数 (=const) [-] $C \Big|_{B-}$: 吸着材表面の空気中濃度
このとき吸着速度 ads は次のようになる。

$$ads = \rho'_{sol} \frac{\partial C_{ad}}{\partial t} = \rho'_{sol} k_h \frac{\partial C}{\partial t} \quad (13)$$



空気側と建材側の2つの微小コントロールボリューム(C.V.)

図1 吸脱着面のモデル化

度の時間変化がないものと仮定する^{注3)}。これより(9)(10)式、更に整理して(11)式の簡易モデルを得る。ここで ρ'_{sol} は $\rho_{sol} dS/dV$ であり吸着材の面密度を表す。吸脱着効果の大きい建材表面での吸脱着現象の簡易モデルは(1)(11)(5)式^{注5)}により記述される。2.7 Henry型吸着等温式 気中の吸着物質が希薄であるとき、(5)式において吸着量と気中の気相濃度に線型関係が成り立つ。これを特にHenry型吸着等温式と呼ぶ((12)式)。このとき(11)式の吸着速度 ads は、(13)式のように表現される。

3. 室内濃度分布の解析(図2) 床面に内部拡散支配型 VOCs 放散建材(SBR:合成ゴム的一种)を設置し、壁面に微量の吸着材(活性炭)を配置した2次元居室を対象に解析する。諸量は吹出・吸込口幅は L_0 、及び吹出風速 U_0 を用いて無次元化。計算の詳細は次報(その6)に記す。

4. 解析ケース 4.1 気流性状の計算 吹出風速を $1/10U_0(=0.1[m/s])$ 、換気回数 $1.6[回/h]$ とした場合の流れ場を低Re型 $k-\epsilon$ モデル(MKC model)を用いて解析^{注2)}。4.2 解析概要(表2,3) 壁面に吸着材がなく、拡散支配型 VOCs 放散建材を床面にのみもつ場合を基本ケースとする(case1)。建材中の初期濃度 $C_0=0.16[kg/kg]$ で一様、有効拡散係数 $D_c=1.1 \times 10^{-14}[m^2/s]$ は実験値に基づき推定された値^{注3,4)注4)}。表2に示すようにHenryの係数を3種類変化させたケースを検討する(case2-1,2-2,2-3)。Henry定数は比較的低濃度の場合の活性炭に関する実効値を参考とした。側壁面の吸着材密度はごく微量として $\rho'_{sol}=1.0 \times 10^{-6}[kg/m^2]$ とした。 $7.2 \times 10^6 T_0$ 時間($T_0=L_0/U_0$ 、5日間)の履歴を解析する。計算条件は表3に示す。

5. 解析結果・考察 5.1 室内空気における VOCs の濃度履歴(図3)室内に汚染質が全くない状態で汚染源、吸着材を設置した直後から解析を初めて24時間までの室平均濃度 C の履歴を示す。吸着面の有無による気相濃度変化はそれほど小さくなく、24時間後からは室内の平均濃度に吸脱着の影響はほとんど見られない。ただし今回の解析では、壁面に設置された吸着材の量が極めて少ないことに留意されたい。120時間経過後の室平均濃度は $1.57 \times 10^{-8}[kg/kg]$ に減少し、ほぼ定常状態となる(図は省略)。このときの室内 VOCs 濃度の最大値はコーナー部床付近のあたりで $3.89 \times 10^{-8}[kg/kg]$ と平均濃度の2.4倍となる。なお、解析開始から約24時間は、壁面建材の吸着能力が大きいほど室平均濃度の最大値が小さくなり、また濃度減衰は他のケースに比べて多少遅くなる。5.2 吸脱着面における吸着量の履歴(図4)今回の解析対象の場合、汚染質は室内気流により主に左壁面の方向に輸送されることから(次報(その6)図3)、吸脱着量は左側面側が大きくなる。左壁面への平均吸着量 C_{ad} の解析開始から24時間の履歴を図4に示す。Henry定数が大きくなるのに伴って吸着量は増大する。また、最大吸着量に達するまでの時間は吸着能力が大きくなるに従って長くなる。

6. 結論 (1) 建材の吸脱着効果を簡易にモデル化して、室内空気の汚染質濃度計算への組み込みを行った。(2)室内濃度解析では、建材表面でのフラックス量の保存、および吸着等温式(Henry型)を用いて、気相濃度の輸送方程式を連成させる物理モデルを開発、適用した。(3)放散量の時間変化の小さい内部拡散支配型の汚染質発生源がある場合、吸着材の有無は解析時間が経過するにつれてその影響が小さくなる。しかし、最大室平均濃度は低下するので、間欠的な換気などを行う非定常状態では有効になると思われる。またHenry定数が大きく

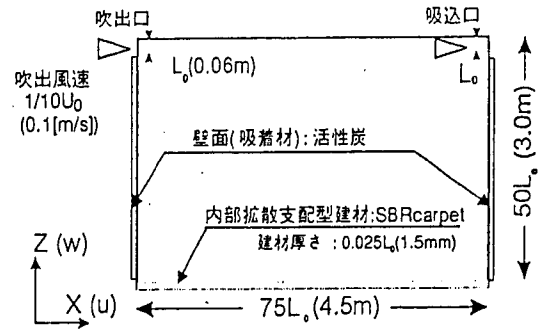


図2 解析対象条件 (2次元)

表2 解析ケース

	case1	case2-1	case2-2	case2-3
吸着面	なし	あり(Henry型吸着等温式)		
Henry定数: $k_H[-]$	-	3.0×10^4	3.0×10^5	3.0×10^6

表3 計算・解析条件(2次元)

メッシュ分割	室内領域: $68(x) \times 64(z)(=4.5m(W) \times 3.0m(H))$ 汚染源: $68(x) \times 41(z)(=4.5m(W) \times 1.5 \times 10^{-3}m(H))$ 汚染源面の最上部 mesh 間隔: $0.6 \times 10^{-9}[m]$ 吸脱着面(両側壁面): $55(z)(=2.94m(H)) \times 2$
Reynolds数	$U_0 L_0 / \nu = 4.2 \times 10^3$
空気中 VOCs 分子拡散定数 ^{注3,4)}	$\lambda_a / \rho_{air} = 5.9 \times 10^{-6}[m^2/s]$
建材内 VOCs 有効拡散係数 ^{注3,4)}	$D_c = 1.1 \times 10^{-14}[m^2/s]$
流入風速	$0.1U_0 (=0.1 [m/s])$

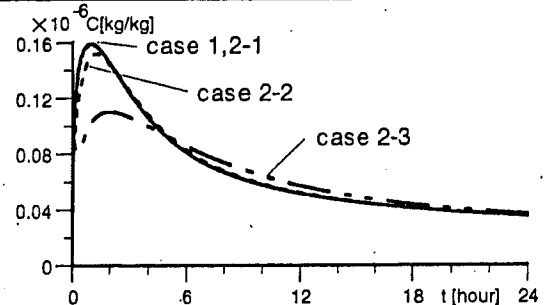


図3 室平均濃度履歴

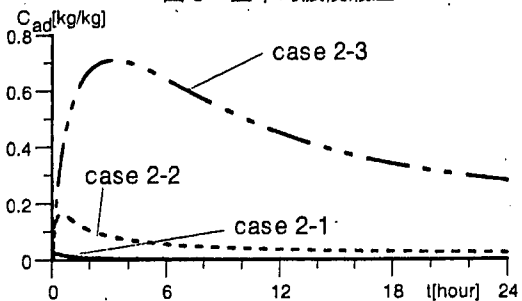


図4 左壁面吸着材の面平均吸着量の履歴

なるにつれて最大室平均濃度が低下し、室平均濃度が減少するまでに時間遅れが生じる。(4)吸着量はHenry定数が大きくなるにつれて増加し、最大吸着量までに達する時間は遅くなる

注1) 温度依存性を考慮する場合のモデル化については前報(その1)を参照。
注2) 表1の(2)式右辺第2項、及び(3)式右辺第1項の吸脱着項は吸着相と気相の界面のみで生ずる現象である。注3) ここでは、吸着材と表面の空気層中のC.V.を建材内の微小な空隙に近いものと考えた。空気中の微小な $(dh \ll 1)C.V.$ 内では拡散輸送に吸脱着が常に平衡し、気相濃度の時間変化は無視し得るものと仮定する。この際 λ_a は λ_a に収束すると考えられる。注4) これは(6)式の定義にあるように吸脱着効果をimplicitに含んでいると考えてよい。注5) 数値シミュレーションにおいて吸着材に接する最初のC.V.中の濃度は局所平衡濃度 C_0 と一致するものと仮定。
参考文献、謝辞は本報(その6)にまとめて示す。