

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 6)

Langmuir 型吸着等温式を用いた吸着モデルによる室内濃度分布予測

正会員 ○山本 明\*1

同 村上 周三\*2 同 加藤 信介\*2  
同 近藤 靖史\*3 同 伊藤 一秀\*1  
同 朱 清宇\*1 同 藤村 淳一\*4

表面吸着 Langmuir 型吸着等温式 CFD

1. 序 前報<sup>2,7)</sup>で、室内の揮発性有機化合物(以降 VOCs 等と表記)の汚染濃度分布の予測において、建材による吸脱着の効果を考慮する簡易モデル(建材の表面において吸脱着が生じているとみなすモデル)を提案した。同モデルを用いて吸着等温式として、Henry 型のモデルを適用した場合の室内汚染質分布の数値解析による検討を示した。しかし、室内気相濃度が高くなるにつれて、Henry 型吸着等温式の吸着相濃度(以降、吸着量)が線型であるという仮定は現実的ではなくなる。そこで、本報(その 6)では飽和吸着量を考慮した Langmuir 型吸着等温式を用いて室内汚染物質の濃度分布数値解析を行った。

2. 吸着等温式 2.1 Langmuir 型吸着等温式(表 1)<sup>2,8)</sup> 吸着量は気相濃度が高くなるにつれて増加しなくなり、ある飽和吸着量  $C_{ad0}$  まで達すると吸着面近傍の気相濃度が上昇してもそれ以上吸着しなくなる。吸着物質が吸着面への単分子層を形成したときに飽和状態となり吸着しなくなるものとして導いたモデルが Langmuir 型吸着等温式 ((1)式)である。Langmuir 定数  $k_l$  は吸着と脱着の速度係数の比( $k_a/k_d$ )となる。このときの吸着速度  $ads$  は、(2)式によって表すことができる。 2.2 吸着等温式で使用される係数(図 1) 図 1 に Yu<sup>2,9)</sup> の行った実験を示す。これは比較的 low 濃度の下でトルエンの活性炭への吸着量と気相濃度との関係(実験時の温度は 25°C)を示す。これをもとに Henry 型、Langmuir 型吸着等温式で利用される定数を推定し、図 1 に示した。

3. 解析対象、初期条件の設定(前報(その 5)、図 2<sup>2,7)</sup>) 床面に内部拡散支配型による SBR(合成ゴム)製の汚染源、壁面に吸着材を配置した 2 次元居室を対象に解析する。このときの室温は 23°C で一定としている。 3.1 室内空間(2 次元) 吹出スロット幅を代表長さ( $L_0=0.06m$ )とし、(x)×(z)=75L<sub>0</sub>×50L<sub>0</sub>(=4.5m×3.0m)の大きさとする。この解析対象は精密模倣実験により詳細な風速データを得ている<sup>2,3,4)</sup>。 3.2 床面(汚染源) SBR(polypropylene Styrene Butadiene Rubber)製の合成ゴム床を汚染源とする。合成ゴムの厚さは 0.025L<sub>0</sub>(1.5mm)とし、合成ゴム中の VOCs に関しては均一に初期濃度  $C_0(=0.16[kg/kg])$  を与える<sup>2,3,4)</sup>。また、合成ゴムの側面と底面からの VOCs の移動は遮断されているものとする。

3.3 壁面(吸着材) 吸着材である壁面は面密度や材料の特性によって吸着量が非常に異なる。ここでは、石炭を原料とした活性炭を対象とした。活性炭は一般に 1[kg]あたり吸着に有効な表面積が 10<sup>6</sup>[m<sup>2</sup>]ほどある。ここでは壁面の面積が壁面に設置した活性炭の総表面積に等しくなるよう吸着面の面密度  $\rho'_{sol}$  を  $1 \times 10^{-6}[kg/m^2]$  とおいた。これはきわめてわずかな量である。内部拡散支配型建材、吸着材のモデル化及びその計算条件は前報と同様<sup>2,7)</sup>である。

4. 解析ケース(表 2) 吹出風速や流れ場の計算結果は前報と同様である。壁面に吸着材をもたず床面に内部拡散支配型の

表 1 吸着面のモデリングに関する支配方程式

1. Langmuir 型吸着等温式

$$C_{ad} = \frac{C_{ad0} k_l C}{1 + k_l C} \quad (1)$$

$k_l$ : Langmuir 定数(=const)[1/(kg/kg)] (=  $k_a/k_d$ )

$k_a$ : 吸着速度係数[kg/(m<sup>2</sup>s kg/kg)]  $k_d$ : 脱着速度係数[kg/m<sup>2</sup>s]

$C_{ad0}$ : 飽和吸着量(=const)[kg/kg]

$$\text{吸着速度 } ads = \rho'_{sol} \frac{\partial C_{ad}}{\partial t} = \frac{\rho'_{sol} C_{ad0} k_l}{(1 + k_l C)^2} \frac{\partial C}{\partial t} \quad (2)$$

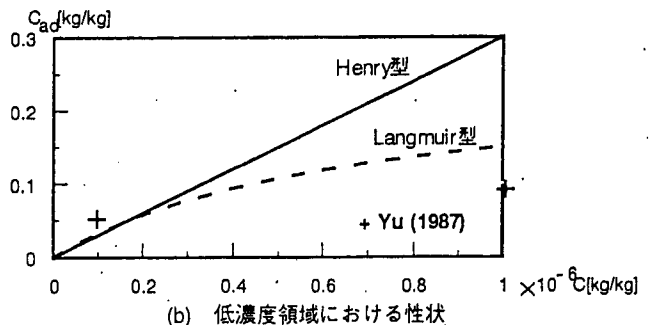
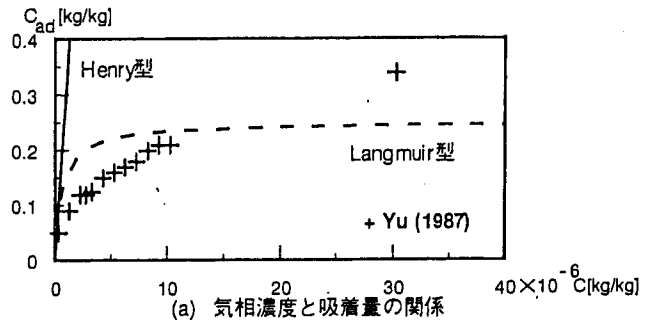


図 1 気相濃度と吸着量の関係 — 吸着等温式

表 2 解析ケース

吸着等温式/ケース名	
case 1	吸着面なし
Henry 型吸着等温式	Henry 定数: $k_n[-]$
case 2-2	$3.0 \times 10^5$
Langmuir 型吸着等温式	Langmuir 定数: $k_l[1/(kg/kg)]$ 飽和吸着量: $C_{ad0}[kg/kg]$
case 3-1	$1.5 \times 10^6$ 0.25
case 3-2	$1.5 \times 10^5$
case 3-3	$1.5 \times 10^7$
case 3-4	$1.5 \times 10^6$ 0.025
case 3-5	$1.5 \times 10^6$ 2.5

汚染源のみをもつ場合を基本ケース(case1)とする。case2-2, case3-1 は壁面に吸着材のあるケースで、それぞれ実験<sup>2,9)</sup>により推定した Henry 型吸着等温式(case2-2)、Langmuir 型吸

着等温式(case3-1)を利用する。さらに飽和吸着量と Langmuir 定数を適当に変化させてその感度解析を行う(case3-2~5)。

5. 解析結果・考察

5.1 室内空気における VOCs 濃度履歴

(図 2,3,4) 図 2 に室平均濃度履歴を示す。吸着材が微量であることもあり、Langmuir 型吸着等温式を用いた場合も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数時間を過ぎた時の吸脱着の影響は小さい。解析から 24 時間も経過すると室平均濃度は、放散量が落ち着きほぼ定常状態となる。case1 に比べて吸着材を持つ case2-2,3-1 では、最大室平均濃度が低下しており、吸着面が室内の VOCs 濃度の上昇を抑制している。Langmuir 型吸着等温式を用いた case3-1 のほうが、Henry 型吸着等温式を用いた case2-2 よりも解析初期の室平均濃度の吸脱着による濃度低減の効果が小さい。これは、後者のモデルが図 1 に示すように線型を仮定しているため高濃度時の吸脱着を過大評価しているためである。解析開始から 24 時間後の case1 と case2-2 における VOCs 室内濃度分布を図 3 に示す。室内濃度分布性状は吸着材の有無にかかわらずある程度時間が経過すると差異はなくなる。ただし今回設置した吸着材の量は極めてわずかで、この量を増やせば当然もっと吸脱着効果の大きい予測結果が得られる。気流性状の影響により左壁面近傍の汚染質濃度が右壁面近傍に比べて 4 倍ほど(24 時間経過後)高い。したがって吸着材中の吸着量も左側壁面が圧倒的に多い。Langmuir 型吸着等温式で用いられる定数を変化させたときの室平均濃度履歴の変化を図 4 に示す。Langmuir 定数  $k_f$  が大きいほど、また飽和吸着量  $C_{ad0}$  が大きいほど最大室平均濃度は低下し、また濃度減衰も遅くなる。5.2 吸着材表面における吸着量の履歴(図 5) 室内濃度が高く吸着量が多い左側吸着面における Langmuir 型吸着等温式を用いた場合の面平均吸着量履歴を図 5 に示す。Langmuir 定数  $k_f$  が大きいほどまた、飽和吸着量  $C_{ad0}$  が大きいほど、吸着量が増大し、吸着量の減衰が小さくなる。

6. 結論 (1) 本報では吸着材密度を極めて小さく設定しているが室内汚染質濃度には吸脱着の影響が現れた。(2) Langmuir 型吸着等温式を用いた場合、高濃度域での吸着量を過大評価する Henry 型吸着等温式の予測結果が改良され初期の吸着量が低下した。(3) Langmuir 型吸着等温式における各種定数の値を変えて感度解析を行ったところ、飽和吸着量  $C_{ad0}$  が大きくなるほど、また吸着のしやすさを示している Langmuir 定数  $k_f$  が大きくなるほど吸着量が増加し、室平均濃度の低減効果が顕著になる。

参考文献 [1] 村上他：揮発性有機化合物の放散・吸脱着現象のモデリングとその数値予測に関する研究(その 1)、日本建築学会梗概集、1999.9 [2] Chikamoto, T., et al.: Numerical Simulation of Velocity and Temperature Fields within Atrium based on Modified  $k-\epsilon$  model Incorporating Damping Effect due to Thermal Stratification, Room Air Convection and Ventilation Effectiveness, ASHRAE, pp.501-509 [3] Bluysen, P. M., et al, P. 1995. European database of indoor air pollution sources: the effect of temperature on the chemical and sensory emissions of indoor materials. TNO-Report 95- BBI- R0826. [4] X. Yang et al., Prediction of short-term and long-term VOC emissions from SBR bitumen-backed carpet under different temperatures, ASHRAE 1998 [5] 鈴木, 伊藤, 加藤, 村上: 不完全混合室内の居住域換気効率の評価に関する研究(その 3) 空気調和衛生工学会講演論文集, 1996.9 [6] 加藤, 村上, 伊藤, 近藤: 室内化学物質による呼吸空気汚染の数値解析とその制御に関する研究(その 1), 日本建築学会梗概集, 1998.9 [7] 加藤他: 揮発性有機化合物の放散・吸脱着現象のモデリングとその数値予測に関する研究(その 5), 日本建築学会梗概集, 1999.9 [8] 荒井他: 工学のための物理化学 pp121-123 [9] Yu, J.-W. 1987. Adsorption of trace organic contaminations in air. Stockholm: Royal Institute of Technology.

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

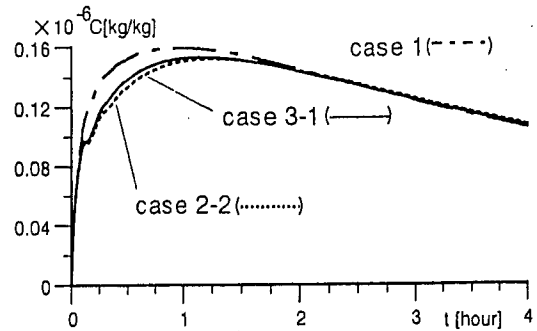


図 2 室平均濃度履歴(解析開始より 4 時間)

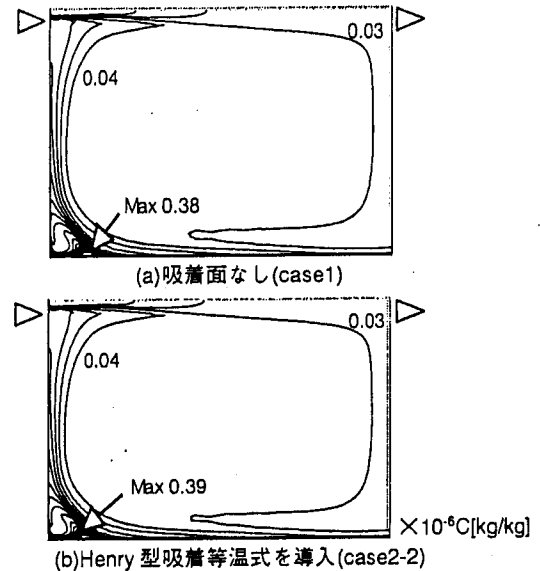


図 3 VOCs の室濃度分布 C (解析開始 24 時間後)

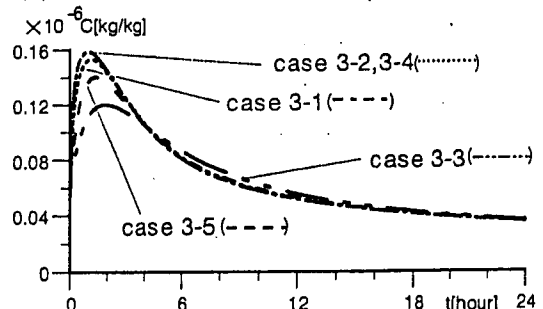


図 4 Langmuir 吸着等温式を用いた室平均濃度履歴

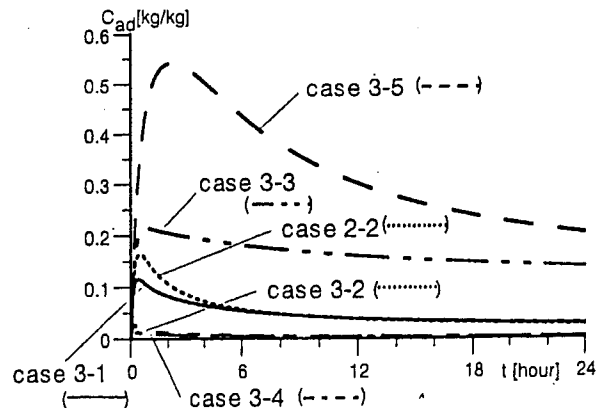


図 5 壁面吸着材(左側)の面平均吸着量の履歴

気汚染調査研究委員会(委員長:村上周三 東京大学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次第である。

\*1 東京大学大学院

\*2 東京大学生産技術研究所 教授・工学

\*1 University of Tokyo

\*2 Prof. Institute of Industrial Science, University of Tokyo, Dr. Eng.