

ペイント硬化による化学物質放散速度減衰効果を組み込んだ放散モデルの開発と CFD 解析

正会員 伊藤一秀\*1  
 正会員 村上周三\*2 同 加藤信介\*3  
 同 朱 清宇\*4 同 小林信行\*5

放散モデル 有効拡散係数 水性ペイント

1. 序 既報(その 18)<sup>x1)</sup>に引き続き、ペイント乾燥に伴う化学物質放散に関するモデルの検討を行う。このモデリングに関しては、Q. Chen らによる物理過程を詳細にトレースしたモデル<sup>x2)</sup>がある。本研究ではこれに対し、物理現象を単純にモデル化した放散モデルを開発するものである。本報では、前報で示したモデルに加え、表面ぬれ率が変化するモデルの概念を示すと共に、これらの各モデルを CFD に組み込み、境界層型 Test Chamber を用いて行った実験を対象として解析した結果に関して報告する。

2. 放散速度減衰効果を組み込んだ放散モデル 本研究で示すペイント乾燥に伴う放散速度減衰効果を組み込んだ放散モデルは、物理要素としてペイント内で物理的に生じる物質拡散現象を単純にモデル化することで、有効拡散係数、表面に形成される皮膜および表面のぬれ率(wet rate)をパラメータとしている。

2.1 有効拡散係数が変化するモデル(model 1、図 1(1)) ペイントが硬化する際にはペイント内が均一に乾燥していく、すなわち各時点においてペイント内の有効拡散係数は均一であり、時間の経過と共に有効拡散係数が順次小さくなっていくとの仮定に基づくモデルである。ペイント硬化の過程の模式図を図 1(1)に示す。時間経過に従う有効拡散係数の変化は 1 次の減衰関数に従うと仮定して(1)式のような有効拡散係数を定義する。

$$Dc = Dc_{\infty} + Dc_0 \times e^{-k_1 t} \quad (1)$$

ここで、 $Dc$  (m<sup>2</sup>/s)はペイント中の有効拡散係数、 $Dc_0$ は初期状態の有効拡散係数、 $Dc_{\infty}$ は無限大時間経過後の最終的な有効拡散係数、 $k_1$ は 1 次元係数(1/hour)を示す。ペイントの初期状態は wet であり、ペイント内の物質輸送抵抗はほとんど無視できるため、初期有効拡散係数  $Dc_0$  は大きな値になる。ペイントからの初期放散量はこの  $Dc_0$  と  $C_0$  が大きく影響するため、 $Dc_0$  は、これらの関係から最適化される。(1)式より放散フラックスは次式となる。

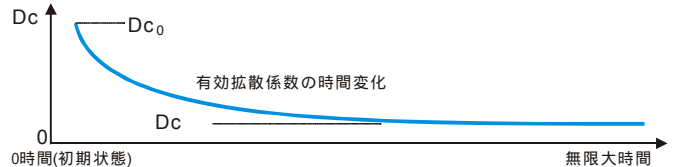
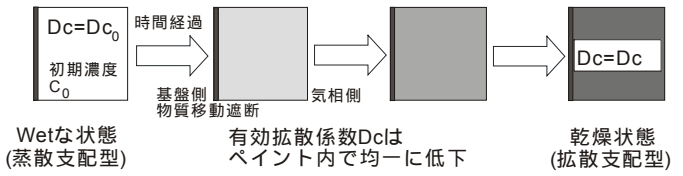
$$q = -Dc \cdot \frac{\partial C}{\partial x} \Big|_s = [Dc_{\infty} + Dc_0 \times e^{-k_1 t}] \frac{\partial C}{\partial x} \Big|_s \quad (2)$$

(2)式を解析的に解くことは困難なため、放散量予測は(2)式に初期濃度  $C_0$  を与え数値的に解くシミュレーション手法によることになる。この場合  $C_0$  は気相換算された吸着平衡濃度と一致する<sup>注1)</sup>。

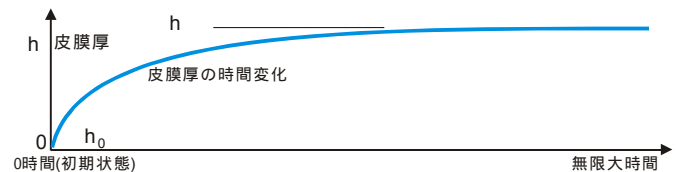
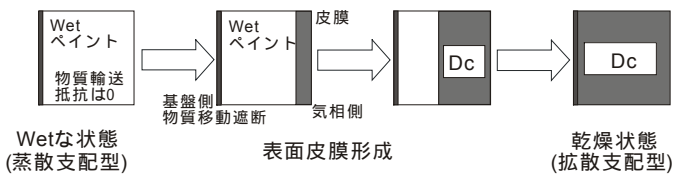
2.2 表面皮膜が成長するモデル(model 2、図 1(2)) ペイントが硬化する際に、空気境界面に皮膜が生じ、時間の経過と共にその皮膜の厚さが成長する、との仮定に基づくモデルである。形成された皮膜中の有効拡散係数の値は時間によらず一定とする。表面皮膜形成の過程の模式図を図 1(2)に示す。皮膜厚さの成長速度は 1 次の減衰関数に従うと仮定して皮膜厚さ  $h$  を(3)式のように定義する。

$$h = h_0 + h_{\infty} (1 - e^{-k_2 t}) \quad (3)$$

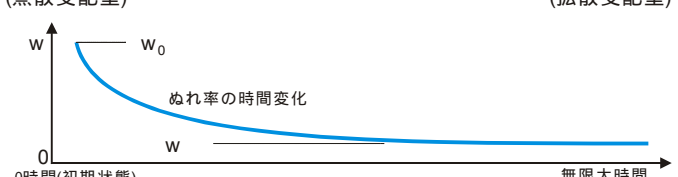
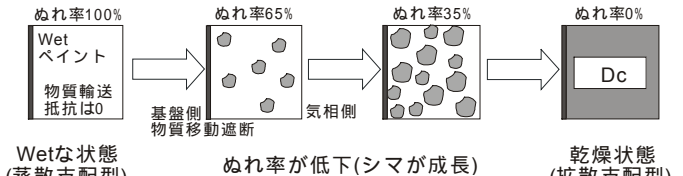
ここで、 $h$  は皮膜厚さ(m)、 $h_0$  は初期皮膜厚さ(m)(ただし  $h/h_0 \approx 0$ )、 $h_{\infty}$  は最終的な乾燥後の皮膜厚さ(m)、 $t$  は時間(hour)、 $k_2$  は 1 次元



(1) 有効拡散係数が変化するモデル



(2) 表面皮膜が成長するモデル



(3) ぬれ率が変化するモデル

図 1 ペイント硬化の模式図

係数(1/hour)を示す。 $t =$  の時、 $h = h_{\infty}$  (最終的な乾燥後の皮膜厚さ)となる。初期の皮膜厚さ  $h_0$  に関しては後述する。放散フラックスは wet なペイント部分では物質輸送抵抗は無視し、皮膜部分のみの濃度勾配に支配されるものとする。

$$q = -Dc_{\infty} \cdot \frac{\partial C}{\partial x} \Big|_s \quad (4)$$

(4)式は(2)式と同様に初期濃度  $C_0$  を与え離散化して数値的に解くシミュレーション手法による。初期皮膜厚さ  $h_0$  及び 1 次元係数  $k_2$  は皮膜厚さが最終皮膜厚さ  $h_{\infty}$  に達するまでの総蒸散量が実際の総蒸散量と等しくなる条件のもとで最適化される。

2.3 ぬれ率が変化するモデル(model 3、図 1(3)) 一般に液相から固相の薄膜が形成される際には、液相中にコア(薄膜形成の核とな

る固相の塊)が形成され、そのコアの数および大きさが時間経過と共に大きくなる。この現象を2次元的にモデル化するために、ペイント表面の液相部分と固相部分の割合を示すぬれ率の概念を用いる。即ち乾燥による放散速度減衰を支配する各種パラメータを全てぬれ率の変化で代表させるモデルである。

$$w = w_{\infty} + w_0 \times e^{-k_3 t} \quad (5)$$

ここで、 $w [-]$ はペイント表面のぬれ率、 $w_0$ は初期状態のぬれ率、 $w_{\infty}$ は無有限大時間経過後の最終的なぬれ率、 $k_3$ は1次元係数(1/hour)を示す。このモデルはペイント表面でのぬれ率と初期濃度  $C_0$  によりペイントと空気境界面の濃度が直接与えられる。そのため、放散フラックスは気中での拡散係数  $D_a$  を用いて(6)式で与えられる。

$$q = w \cdot \left( -D_a \cdot \frac{\partial C}{\partial x} \Big|_{x_s} \right) \quad (6)$$

なお、 $w_0$  及び  $k_3$  はぬれ率が最終ぬれ率  $w_{\infty}$  に達するまでの総蒸散量が実際の総蒸散量と等しくなる条件のもとで最適化される。

**3. CFD への組み込みと解析条件** 境界層型 Test Chamber を用いた放散履歴測定<sup>文3)</sup>およびカップ法<sup>文4)</sup>による有効拡散係数測定結果を基に上記放散モデルのモデル定数を推定し、CFD 解析の初期条件とする。水性エマルジョンペイントを対象とする。

**3.1 有効拡散係数が変化するモデル (model 1)** 本報では  $D_c$  を既報(その17)で測定した336時間(14日)経過後の  $D_c$  の値を用いることでモデル係数のチューニングを行う。Toluene を用いたカップ法の測定結果より、336時間(14日)経過後の  $D_c$  が  $D_{c0}$  となる。 $D_{c0}$  は  $D_c$  と比較して充分大きい値( $10^6$ 倍と仮定)とする。

**3.2 表面被膜が成長するモデル (model 2)** 境界層型 Test Chamber 実験で得られた336時間(14日)経過後の皮膜厚さ  $h$  を  $h_0$  とすることでモデル係数のチューニングを行う。初期皮膜厚さ  $h_0$  は極めて薄く  $h$  の  $10^{-6}$  倍のオーダーと仮定する。

**3.3 ぬれ率が変化するモデル (model 3)** 336時間(14日)経過後のぬれ率を最終ぬれ率  $w_{\infty}$  とし、充分小さい値( $10^{-6}$ と仮定)とする。また初期状態のぬれ率  $w_0$  は、初期濃度  $C_0$  が乾燥していないペイント中の放散物質の飽和気相濃度(吸着平衡濃度)として与えられるため、1と仮定する。

**3.4 CFD 解析・計算条件** 境界層型 Test Chamber 内の Inner Chamber を解析対象とする。簡便の為、図2に示すように2次元にモデル化する。Inner Chamber 内は Fan により第3種機械換気されているため、Chamber 出口に固定風速  $U_{out} = 0.1 \text{ m/s}$  を与える。計算および解析条件を表2に示す。Inner Chamber と Outer Chamber は独立に換気回数が制御されているため、ペイントから放散した化学物質は一定の割合で Inner Chamber 内に再循環する。本解析では Outer Chamber と Inner Chamber の換気量の比を再循環率と仮定する。

**4. 解析結果** 本報ではぬれ率が変化する model 3 の解析結果のみ示す(図3)。図中の exp. は既報<sup>文3)</sup>で示した水性ペイントを対象とした放散量(排気濃度)測定結果である。実験結果は336時間(14日)での総蒸散量から予測した初期濃度  $C_0$  により無次元化している。Model 3 では実験結果と比較し、初期放散量を過小評価している。これはぬれ率変化を単純な1次元減衰でモデル化したことが原因と考えられる。48時間経過後からは比較的良い予測精度となった。

表1 モデル定数のチューニング

モデル	各定数
有効拡散係数変化	$D_{c0} = 1.0 \times 10^{-2}$ , $D_c = 3.7 \times 10^{-8}$ $k_1 = -0.057$ , $C_0 = 1.0$
皮膜変化	$h_0 = 1.0 \times 10^{-11}$ , $h = 7.8 \times 10^{-5}$ $k_2 = -0.068$ , $C_0 = 1.0$
ぬれ率変化	$w_0 = 1.0$ , $w_{\infty} = 1.0 \times 10^{-6}$ $k_3 = -0.041$ , $C_0 = 1.0$

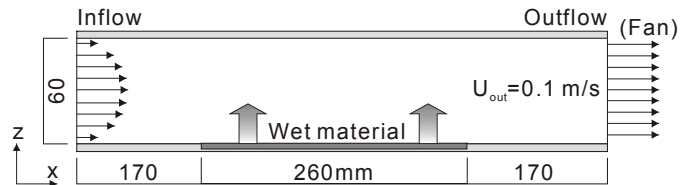


図2 解析対象 (Inner Chamber, 2D)

表2 計算および解析条件

乱流モデル	低 Re 型 k- (Abe-Nagano model)
Mesh (Chamber 内)	120 (x) × 22 (z)
Mesh (Paint 内)	12 (z) (model 3 では 0 (z))
差分スキーム	QUICK
流入境界	$U_{in} = (\text{質量保存}), k_{in}, in = \text{free slip}$ $C_{in} = 0.969 \cdot C_{out}$
流出境界	$U_{out} = 0.1 \text{ m/s}, k_{out} = 3/2 \cdot (U_{out} \times 0.05)^2$ $C_{out} = C_u \cdot k_{out}^{3/2} / l_{out}, C_u = 0.09,$ $l_{out} = \text{吹出しスリット幅の } 1/7$
壁面境界 (Chamber)	速度: no slip
Paint - 空気境界	Flux 保存

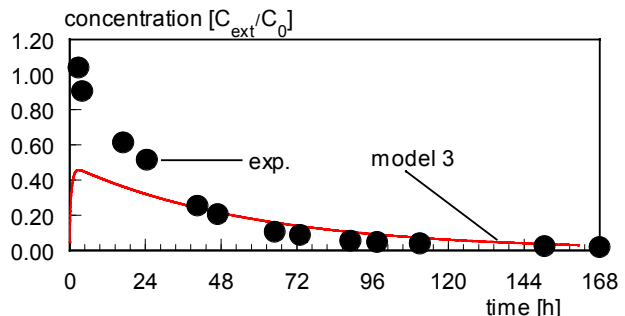


図3 放散量(排気濃度)履歴

**5. 結論** (1) ペイント乾燥に伴う放散速度減衰効果を組み込んだ放散モデルを、有効拡散係数が変化、表面皮膜が成長、ぬれ率が変化、の3点より開発した。(2) 本報で示したぬれ率変化モデルは初期放散量を過小評価するが、48時間経過後からは実験結果と良く一致する。(3) 適切な初期濃度  $C_0$  を境界条件として与えるためには、ペイント表面における気相換算された吸着平衡濃度の測定を行う必要がある。今後の課題である。

**注 (1)** 全モデルにおいて、初期濃度  $C_0$  は気相換算された吸着平衡濃度を用いることとなる。また  $C_0$  は総蒸散量における質量保存を満たすように調整を行うことが必要となる。

**参考文献 (1)** 伊藤ら：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18)：日本建築学会年次大会、2000.9, pp883-884 (2) Q. Chen et al., Effect of Airflow on VOC Emission from 'wet' Coating Materials, ASHRAE Winter Meeting, 2000, AT-01-13-2 (3) 神ら：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16)：日本建築学会年次大会、2000.9, pp 879-880 (4) 加藤ら：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17)：日本建築学会年次大会、2000.9, pp881-882 謝辞：前報にまとめて示す。

\*1 東京工芸大学 講師 工博

\*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 東京大学大学院

\*5 東京工芸大学 教授 工博