

揮発性有機化合物の化学反応等のモデリングとその数値予測に関する研究 (その4) 居室模型を用いた気中での Ozone 反応量の測定

化学反応 Ozone 模型実験

正会員○細谷 聡*¹ 同 伊藤一秀*²
同 加藤信介*³ 同 安福 勝*⁴

1. 序

近年、Ozone 等の反応性の高い化学物質による気中での化学反応現象に注目が集まっており、特に低換気量かつ高汚染源濃度の場合に化学反応が促進され、反応生成物質量が気中で測定されるターゲット物質濃度を大きく超える場合が存在することが指摘されている^{文1,2)}。このような背景のもと、本報では精密気流模型を用い、気中での化学反応による化学物質濃度低下、ならびに室内化学物質濃度分布の測定を行う。さらに続報(その5)では Ozone の気中での減衰を一次の Rate Constant を用いてモデリングし、実験に対応した数値解析を行った結果を報告する。

2. 測定対象物質

本研究では、室内空気中に存在する化学物質として Ozone[O₃]に着目する。Ozone は、不安定で強い刺激臭ならびに酸化力を有する化学物質で、有毒である。Ozone は大気中において光化学反応により、特に大気上層部で生産されており、また室内ではコピー機器等が発生源となるケースが指摘されている。近年、特に米国において外気中の Ozone 濃度上昇が報告されている^{文3)}。換気により外気を室内に導入することで、外気由来の Ozone が室内に滞留している可能性もあり、また OA 機器等からの Ozone の発生と相まって、室内の Ozone 濃度の上昇が懸念されている。また、Ozone は、強力な酸化力を有することから、室内での主たる化学反応物質として着目されている。このような背景のもと、本研究では外気由来の Ozone に着目し、換気により室内に導入された Ozone の室内滞在時間ならびに濃度減衰を化学反応速度論の立場より考察する。本報では、模型実験を行うことで居室模型吹出口から供給された Ozone の室内濃度分布の測定を行う。

3. 模型実験概要

本研究で用いた2次元居室模型を図1に示す。模型は一般的な居室をモデル化したもので 1500^X[mm]×300^Y[mm]×1000^Z[mm]の空間容積を有する。模型は、流れ場がY方向に均一になるよう設計されており、キャビティ幅(y方向)と同幅のスロット状吹出口と吸込口を備える。吹出・吸込口は共に幅(z方向) 20mmである。この模型形状は別報^{文4)}で報告している精密気流模型の working cavity を厳密に再現したものである。天井、床及び左右両壁面は sus 304 で構成し、その他はガラス製である。この模型は、恒温室内に設置され、温度 20°C 一定に制御される。吹出風速は 3 m/s (換気回数 144 回/h)に制御している。模型に対する供給空気は、化学物質除去を対象とした活性炭フィルタを通過後、HEPA フィルタを通過させることで粒子状物質の除去を行う。また Ozone の光化学反応による濃度低下を防ぐため、恒温室は暗室と同条件の設定(床面平均照度 1 lx 以下)とした。実験条件を表1に示す。

3.1 流れ場

既報^{文3)}で報告している精密気流模型実験では LDV を用いて測定した平均風速分布の他、各種乱流統計量のデータが蓄積されており、模型内の流れ性状が厳密に再現されることを確認している。

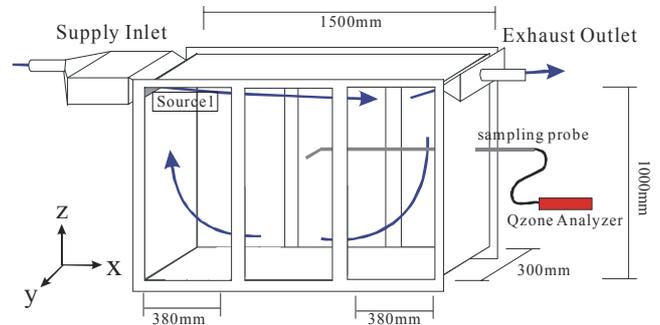


図1 模型概要

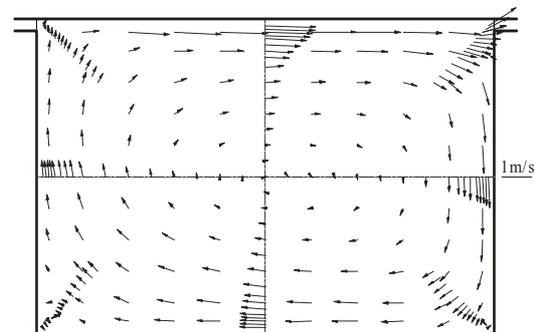


図2 LDVによる流れ場の測定結果

表1 実験条件

Room Model Vol.	1500(x) [mm]×300(y) [mm]×1000(z) [mm]
Air Inlet Velocity	$U_{in} = 3.0$ m/s
Air Change Rate	144 /h
Temperature	20 ± 1°C
Relative Humidity	30 ± 5% ^{注1)}

表2 実験ケース

Experimental Case	Supply Inlet [Ozone]
Case (e1)	0.65 [ppm]
Case (e2)	1.77 [ppm]
Case (e3)	2.44 [ppm]

天井面に沿って吹出口、対向壁に吸込口を設置している本実験ケースの流れ場測定結果を図2に示す。模型内に時計回りの大循環流が生じ、床面隅角部に主流とは逆向きの2次渦が観察される(図2)。

3.2 対象化学物質および発生源

本実験では吹出口から供給される吹出空気中に Ozone を混入し、外気由来の汚染源を想定する。Ozone は Ozone Generator を用いて3段階の濃度レベルを設定し、定常発生させる。

3.3 実験ケース

実験ケース(Case (e1)~Case (e3))を表2に示す。全ての実験ケースにおいて、汚染源として供給空気に含まれる Ozone のみを対象とする。吹出空気中の Ozone 濃度(C_m)を 0.65 ppm 一定に制御した Case (e1)、1.62 ppm 一定に制御した Case (e2)、および 2.42 ppm 一定に

制御した Case (e3) の 3 段階の濃度レベルを対象とする。C_{in} はターゲット濃度に対し 2 % 程度の変動に収まっている。模型は恒温室内に設置し、吹出空気を含み 20°C 一定に制御した。

3.4 サンプルングおよび分析法

模型内には活性炭フィルタならびに HEPA フィルタを通過した清浄空気を温度・湿度を制御した状態で供給する^{注2)}。気中の Ozone 濃度は模型内に挿入した sus304 製のサンプルングチューブを介して Ozone Analyzer により分析する。Ozone 濃度は定常時の 10 分間の時間平均値として示している。Ozone の分析条件を表 3 に示す。また、模型内に挿入した sus304 製のサンプルングチューブを介して、Tenax-TA により吸着捕集(0.1L/min の速度で全 1.0 L サンプルング)することで、供給空気に含まれる Background の化学物質濃度を測定する。分析は加熱脱着の後、GC/MS で行う。GC/MS の分析条件を表 4 に示す。

4. 模型実験結果

Ozone 濃度の測定に先立ち、実験模型は中性洗剤および純水により洗浄している。供給空気ならびに模型内の化学物質濃度の測定を行った結果、TVOC 濃度^{注1)}で 30 μg/m³ 以下であることを確認している。各ケース(Case (e1)~Case (e3))の Ozone 濃度分布測定結果を図 3 に示す。濃度分布の測定は、吹出・吸入口濃度の他、図 3 に示すとおり模型内の 9 点で行っている。今回の実験ケースでは、Ozone 濃度一定の空気を供給している。従って、模型内で測定された Ozone 濃度の絶対値及び分布から、Ozone 濃度の減衰の程度が推測されることとなる。Case (e1)では、図 2 に示す流れ場の流線に従って、Ozone 濃度の低下が観察され、吹出口 Ozone 濃度と比較し、最大で 13 % の濃度低下が測定された。更に、Case (e2) および Case (e3)においても、Case (e1)と同様に流線に従って Ozone 濃度の低下が見られ、Case (e2)では、最大で 10%、Case (e3)では、最大で 18%の濃度低下が測定された。以上、Ozone の空間濃度分布が大きい(図 3) ことより、壁面や気中での Ozone の自己分解等の化学反応に起因する Ozone 濃度の減衰が Ozone 濃度の絶対値、及びオゾンの気中濃度分布に大きく影響すると言える^{注3)}。

5. 結論

- 2次元精密気流模型を用い、室内空気中に存在する化学物質 Ozone を対象として模型実験を行い、Ozone 濃度を測定した。
- 測定の結果、各ケース(Case (e1)~Case (e3))において、最大で 10%~18%の濃度低下が測定された。

注

- 空気中に存在する湿度が化学反応に与える影響は明確ではなく、本来ならば絶対湿度 0 の条件下で実験を行うのが望ましい。
- 湿度条件と同様に、気中に存在する SPM 等についても完全に除去した状態で実験を行うのが望ましい。特に気中に存在するサブミクロンオーダーの SPM は化学反応物質として着目されている^{注5)}。本実験では HEPA フィルタで除去できないサブミクロンオーダーの SPM が相当量気中に存在しており測定された Ozone 濃度の減少は、一次の反応である自己分解の他、Ozone とそれ以外の物質との 2 次の反応分を含むと考えられる。
- 床面照度を上昇させた場合、Ozone 濃度減衰が大きくなった。即ち床面照度 500lx 前後の事務室等では光化学反応による Ozone 濃度減衰が支配的要素となると予想される。

参考文献

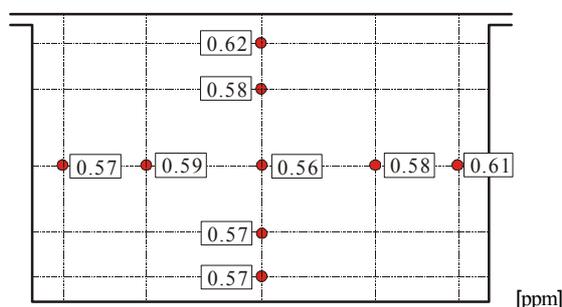
- P Wolkoff, et al.: Formation of Strong Airway Irritants in Terpene / Ozone Mixture, *Indoor Air*, 10, pp. 82-91, 2000
- K Ito, S Kato, S Murakami, Q Zhu : CFD Analysis of Chemically Reactive Pollutants in 2D Test Room : *Indoor Air* 2002, 2002, pp530-535
- Atkinson R, et. Al., Rate constants for the gas-phase reactions of O₃ with a series of monoterpenes and related compounds at 296 K, *J. of Chemical Kinetics*, 22, 871, 1990
- 伊藤、加藤、村上 : 換気効率指標の数値解析検証用の 2 次元室内気流実験 : 日本建築学会計画系論文集, No. 534, 2000.8, pp 49-56

表 3 Ozone の分析条件

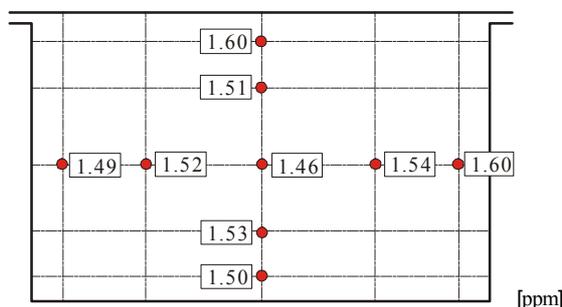
Ozone Analyzer	UV Photometric Analyzer (SOZ-3300, Seki Electrons)
Meas. Range	0 - 9.999 ppm
Min. Range	0.001 ppm
Sample Flow	1.5 L/min
Average time	10 min

表 4 GC/MS 分析条件

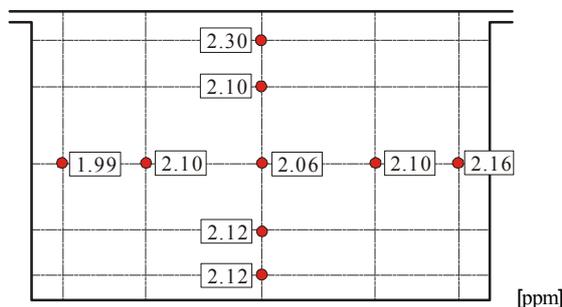
GC	HP6890
加熱脱着装置	Gestel TDS (Thermal Desorption System)
加熱脱着温度	20°C(5min)→60°C/min→280°C(2min)
CIS 温度	-100°C(0.01min)→12°C/sec→300°C(3min)
カラム	HP5 (60m×0.25mm×1 μm)
オープン温度	40°C(3min)→10°C/min→220°C(10min)
Split 比	100 : 1
検出器 (MS)	HP5973MSD



(1) Case (e1) (C_{in}=0.65)



(2) Case (e2) (C_{in}=1.77)



(3) Case (e3) (C_{in}=2.44)

図 3 Ozone 濃度分布 (実験結果)

- C J. Weschler, et al, The Influence of Ventilation on Reactions Among Indoor Pollutants : Modeling and Experimental Observation, *Indoor Air*, Vol. 10, No. 2, pp.92-100, 2000
- DN Sørensen et al, Modeling gas phase reactions in indoor environments using computational fluid dynamics, *Atmospheric Env.*, 36(1): 9-18, 2002
- S Kato and S Murakami, : New Ventilation Efficiency scales based on Spatial distribution of Contaminant concentration aided by numerical Simulation, *ASHRAE Transactions* 94 (2), pp.309-330, 1988

*1 東京工芸大学 Tokyo Polytechnic Univ.

*3 東京大学生産技術研究所 教授 工博 IIS, University of Tokyo

*2 東京工芸大学 講師 工博 Tokyo Polytechnic Univ.

*4 京都大学大学院 Graduate Student, Kyoto University.(研究当時東大大学院)