

ガラス製 Flat-Plate Test Chamber を用いた建材表面での Ozone 濃度減衰 ならびに沈着速度定数の測定

Measurement of Mass Accommodation Coefficient by using Flat-Plate Test Chamber

三田 名津季*, 伊藤 一秀**
Natsuki MITA, Kazuhide ITO

Keywords : Ozone, Flat-Plate Test Chamber, Mass Accommodation Coefficient

はじめに

本研究は建材表面での化学物質吸着現象ならびに分解現象に関して、そのメカニズムを Chamber 実験により検証することを目的としている。建材表面での吸着現象・分解現象は、建材表面での流れ性状、すなわち境界層の性状に強く依存する。そのため、建材表面での気流性状を厳密に制御可能な Chamber を開発し、各種の建材を対象として、吸着・分解現象を支配するパラメータの測定を行い、データベース化を行う。また、本報を含む一連の研究では、建材表面での吸着・分解、気中での化学反応、移流・拡散等々の各種の要素を連成して解析することで、高精度の室内化学物質濃度予測モデルを開発することにも主眼がある。そのため、測定された各種の支配パラメータは、数値解析に組み込みが可能なフォーマットでデータベース化を行う。

特に本報では、外気由来の Ozone を中心とした室内空気における化学反応に着目する。なかでも各種の建材表面における単分子反応、すなわち沈着(deposition)現象に着目し、Ozone の沈着 flux を支配する主要なパラメータである沈着速度定数 (Mass Accommodation Coefficient; γ) の測定を行った結果を報告する。沈着速度定数 γ の測定には、ガラス製の境界層型 Chamber (Flat-Plate Test Chamber) を用いている。

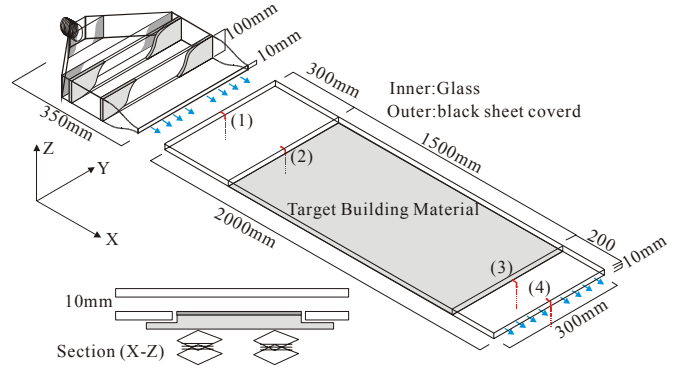
1. Ozone 沈着モデリングの概要

固体表面のごく近傍 (固体表面より $2\lambda/3$ [m] 離れた位置、 λ は平均自由行程) における Ozone 濃度を $C|_{y=2\lambda/3}$ [ppm]、固体表面に衝突した Ozone が固体表面で減少する割合を γ (Mass Accommodation Coefficient) とすると気中から固体表面に至る Ozone の沈着 flux (J) は(1)式で表現される。

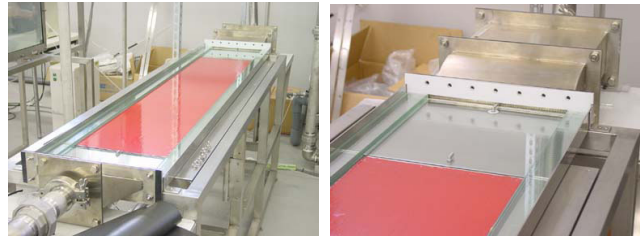
$$J = -\gamma \cdot \frac{\langle v \rangle}{4} \cdot C|_{y=2\lambda/3} \quad (1)$$

ここで、 $\langle v \rangle$ は Boltzman 速度 [m/s] である。

差分法による数値解析を前提とした場合、固体表面に面した数値解析上の離散定義点(距離 Δy_1) から固体表面に至る Ozone flux (J) は、(1)式に加えて、離散定義点



(1) ガラス製境界層型チャンバー詳細



(2) 建材設置の様子

図1 ガラス製境界層型チャンバー

から距離 $2\lambda/3$ [m] までの flux が分子拡散により定まる場合(その条件として離散定義点において壁座標 $y^+ < 1$ 、離散定義点における Ozone 濃度を $C|_{y=\Delta y}$ [ppm] とすれば、Ozone flux (J) は、(2)式で表現される。ただし D_o は気中での Ozone の分子拡散係数である。

$$J = -\frac{\gamma \cdot \frac{\langle v \rangle}{4}}{1 + \gamma \cdot \frac{\langle v \rangle}{4} \cdot \frac{\Delta y_1}{D_o}} \cdot C|_{y=\Delta y_1} \quad (2)$$

境界層粘性底層内までを解析対象とする低 Re 型モデルを用いて室内空間を対象とした CFD(計算流体力学)を行う際には、粘性底層内での建材表面に対する Ozone 沈着現象を正確に再現することが重要となる。本研究では CFD による解析を前提として(2)式で示す Ozone 沈着 flux モデルを採用し、その支配パラメータである γ の測定を行うことで、数値解析用の基礎データを蓄積する。

* 東京工芸大学大学院 工学研究科建築学専攻修士課程, ** 東京工芸大学工学部建築学科 助教授 工博

2. Ozone 濃度の輸送方程式

室内のある点における Ozone の濃度を C_o [ppm] とした場合、Ozone の室内流れ場中における輸送方程式は次式で表現される。

$$\frac{\partial \bar{C}_o}{\partial t} + \frac{\partial \bar{U}_j \bar{C}_o}{\partial x_j} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\left(D_o + \frac{\nu_t}{\sigma_t} \right) \cdot \frac{\partial \bar{C}_o}{\partial x_j} \right) \quad (3)$$

ここで、オーバーバー(-)はアンサンブル平均値を示す。 D_o [m²/sec] は気中での Ozone の分子拡散係数、 \bar{U}_j [m/sec] はアンサンブル平均風速、 ν_t [m²/sec] は渦粘性係数、 σ_t [-] は乱流 Schmidt 数を示す。

(2)式で示した Ozone の沈着フラックス (J)は、(3)式を解く際の壁面境界条件として用いられることとなる。

3. ガラス製 Flat-Plate Test Chamber 概要

建材表面での吸着現象ならびに分解性状を詳細に測定するために、本研究で開発したガラス製 Flat-Plate Test Chamber (FPT Chamber; 境界層型チャンバー)の概要を図1に示す。チャンパー本体は 1500(x) × 300(y) × 10(z) [mm]の容積を有し、y 方向には均一な流れ場が形成されるよう、吹出スロットならびに吸込スロットが設計されている。測定対象とする化学物質(本報では Ozone のみを対象とする)の吸着・分解が最小限となるようチャンパー内壁は全てガラス製である。またチャンパー内の建材設置面は床レベルで平滑面が確保されるよう、建材厚さに応じて建材設置面の高さ調節が可能な構造となっている。また、チャンパー内は建材設置位置上面で一様流となるよう、吹出スロットから建材設置位置までに十分な助走 (300 mm)を設けている。チャンパー吹出風速は 1.0 m/s、スロット幅を代表長さとした場合の吹出口位置での Reynolds 数は 700 であり、チャンパー内は層流である。

4. 実験概要

ガラス製 Flat-Plate Test Chamber は恒温室内に設置され、温度 20°C一定に制御する。吹出風速は 1.0 m/s (換気回数 2400 回/h)に制御している。チャンパーに対する配管系はすべて SUS304 の鏡面仕上げであり、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。供給空気には Ozone を導入し、 $C_{in}=1.000$ [ppm]に制御する。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)としている。また配管系統を含むチャンパーの Back Ground 濃度を測定した結果、TVOC レベルで 30 µg/m³以下、光散乱式デジタル粉塵計で浮

表 1 実験条件

Glass Chamber Vol.	1500(x) × 300(y) × 10(z) [mm]
Air Inlet Velocity	$U_{in} = 1.0$ m/s (Re=700)
Air Change Rate	2400 /h
Temperature	20 ± 0.1°C
Relative Humidity	30 ± 5%

表 2 実験ケース

Exp. Case	Building Material	C_{in} [Ozone]	U_{in}
Case (eb)	Glass	1.000 ppm	1.0 m/s
Case (e1)	SUS 304		
Case (e2)	Water-based Paint		
Case (e3)	Oil-based Paint		
Case (e4)	Wall Paper		
Case (e5)	Plywood		
Case (e6)	SBR Rubber		
Case (e7)	Cedar		

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

遊粉塵濃度の測定を行った結果、0.01 mg/m³(直径 10µm 以下の粉塵濃度)以下を達成していることを確認している。実験条件を表1に示す。

4.1 実験ケース

実験ケースを表2に示す。チャンパーBack Groundの Ozone 沈着量(ガラス面)を評価する Case (eb)の他、7種の建築建材を対象として Ozone 濃度低下を測定する。油性ペイントならびに水性ペイントは SUS 板に塗布し、十分に乾燥させた状態で実験を行った。

実験は、ガラス製 Flat-Plate Test Chamber の床面(下面)位置に設置された建材設置面に建材を設置することで測定を行っている。すなわちチャンパー内の下面に1面のみ設置を原則とする(1 side deposition)が、測定精度検証の為、チャンパー内の上面にも建材を設置した場合 (2 side deposition)の測定も併せて行っている。

4.2 サンプルングおよび分析法

気中の Ozone 濃度は模型内に挿入した SUS 製のサンプルリングチューブを介して Ozone Analyzer により分析する。サンプルリング位置は図1中の(1)~(4)の4点で行う。Ozone 濃度は定常時の 10 分間の時間平均値である。チャンパー内の濃度は、y-z 断面における平均濃度の測定を対象とするため、高さ方向(z 方向)の濃度分布を測定し、空間平均化操作を行うことで y-z 断面の平均濃度を算出する。分析条件を表3に示す。

5. チャンバー内風速分布の検討

Ozone を対象とした測定に先立ち、チャンバー内流れ場、とくに吹出スロットの風速分布を詳細に測定している。風速はレーザー流速計により測定している。吹出スロット位置での吹出風速分布を図2に示す。図中の風速は代表風速 $U_m=U_0=1.0\text{m/s}$ で無次元化している。吹出スロット近傍では高さ方向(z方向)ならびに水平方向(y方向)共に均一な流れが形成されていることが確認できる。また、図3に吹出スロット位置から助走路を経て建材設置面($x=300\text{mm}$)位置に至る区間のz方向風速プロファイルを示す。図3に示す結果は吹出風速条件としてz方向に $U_m=1.0\text{m/s}$ を均一に与えた場合の層流解析結果である。建材設置面上面 ($x=300\text{mm}\sim 1800\text{mm}$ 区間; 建材設置面のx方向長さは 1500mm)ではz方向に定常的な風速プロファイルが形成されていることが確認できる。

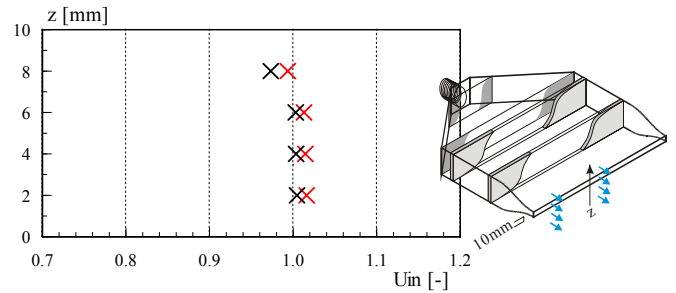
6. Ozone 濃度測定結果

各ケースの Ozone 濃度測定結果を表4に示す。表4に示す結果は全てチャンバー内の下面位置のみに試験建材を設置した場合(1 side deposition)の結果である。濃度の値は Chamber の z(高さ)方向の空間平均濃度であり、Con.(1)位置の濃度で無次元化している。Case (eb)において Ozone 濃度低下は1%未満であり、ガラス製チャンバーの Back Ground における Deposition が無視可能なことが確認された。また、Plywood (e5)、SBR Rubber(e6)、Oil-based Paint (e3)、Cedar(e7)、Water-based Paint (e2)、SUS304(e1)、Wall Paper (e4)の順で濃度低下が小さくなった。さらに SUS304 を上下2面に設置し測定を行った結果を表5に示す。当然の結果であるが、対象建材である SUS304 を2倍設置した 2 side deposition の場合には、1 side Deposition の場合と比較して、Ozone 濃度低下量が大きくなる。

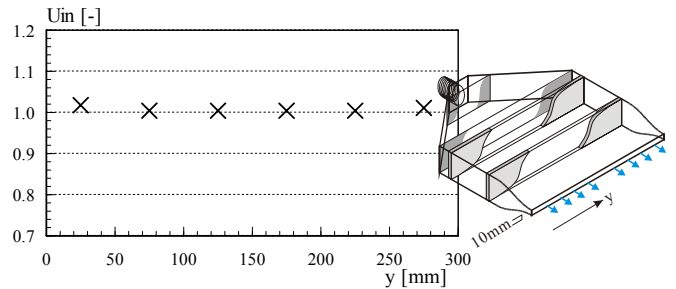
7. Mass Accommodation Coefficient の推定

Flat-Plate Test Chamberによる Ozone 濃度低下の測定結果を用いて Mass Accommodation Coefficient (γ)をダイレクトに推定するため、チャンバー内での Ozone 濃度低下量と γ の相関を求める。チャンバー内建材上部の流れ場を層流と仮定し、主流方向(x方向)の拡散に対し、移流が十分に大きいと仮定した場合、チャンバー内濃度場の輸送方程式は表6のように表現される。

ここで、チャンバー条件である $x_L=1.5\text{m}$ 、 $h=0.005\text{m}$ 、ならびに実験条件である $C_{in}=1.00\text{ppm}$ 、 $\bar{u}=1.0\text{ m/s}$ 、 $D_0=1.81 \times 10^{-5}\text{m}^2/\text{s}$ 、 $\langle v \rangle=360\text{ m/s}$ を用いて上式より算出した Mass Accommodation Coefficient (γ)と図1に示す濃度測定点(4) ($x=1.5\text{m}$)における平均濃度(C_{ave})の関係を図4に示す。解析は建材を1面(1 side deposition)のみに設置した場合と、



(1) 高さ方向(z方向)風速 U_{in} 分布



(2) 水平方向(y方向)風速 U_{in} 分布

図2 吹出スロット近傍の流れ場測定結果

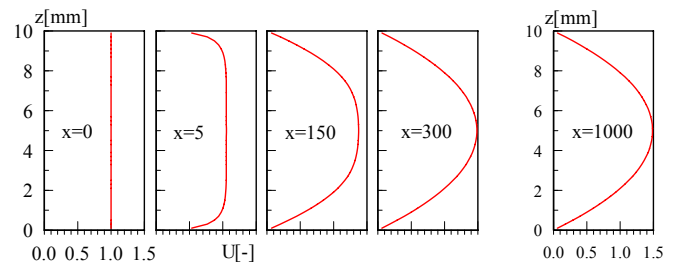


図3 チャンバー内高さ方向(z方向)風速分布

表4 Ozone 濃度測定結果ならびに γ 推定値 (1 side dep.)

Exp. Case	Con. (1)	Con. (4)	γ [-]
Case (eb)	1.000	0.999	$<1.1 \text{ e-}7$
Case (e1)	1.000	0.954	$3.4 \text{ e-}6$
Case (e2)	1.000	0.934	$4.9 \text{ e-}6$
Case (e3)	1.000	0.921	$6.1 \text{ e-}6$
Case (e4)	1.000	0.968	$2.3 \text{ e-}6$
Case (e5)	1.000	0.894	$8.7 \text{ e-}6$
Case (e6)	1.000	0.920	$6.2 \text{ e-}6$
Case (e7)	1.000	0.932	$5.2 \text{ e-}6$

(濃度測定位置は図1の(1)および(4)位置)

表5 Ozone 濃度測定結果ならびに γ 推定値 (2 side dep.)

Exp. Case	Con. (1)	Con. (4)	γ [-]
Case (eb)	1.000	0.999	$<1.1 \text{ e-}7$
Case (e1)	1.000	0.903	$3.7 \text{ e-}6$

上下2面(2 side deposition)に設置した場合の結果を図中に示している。また図3と表4に示す濃度測定結果より推定した γ の結果を表4中に併せて示す。

本測定で対象とした7種の建材における γ の値は $1.0 \text{ e-}6$ のオーダーとなっている。当然の事ながら、 γ 値は Ozone

濃度の低下量に比例して大きくなり、Glass (e**b**)、Wall Paper (e**4**)、SUS304(e**1**)、Water-based Paint (e**2**)、Cedar(e**7**)、Oil-based Paint (e**3**)、SBR Rubber(e**6**)、Plywood (e**5**)の順で γ 値が大きくなる結果となった。

8. 考察

FPT Chamber の性能評価の一環として、対象建材のうち SUS304 について Chamber 内の 1 面のみに建材を設置した 1 side deposition と上下 2 面に設置した 2 side deposition の両方で測定を行い、Ozone 濃度低下量ならびに図 4 の相関図を用いて推定した γ 値の比較を行った。

C_{ave} & γ の関係式より推定した γ 値は、1 side deposition の場合に $\gamma=3.4 \times 10^{-6}$ [-]、2 side deposition の場合に $\gamma=3.7 \times 10^{-6}$ [-]となりほぼ同様の推定結果となった。このことからガラス製 Flat- Plate Test Chamber では 1 side deposition で十分な測定精度を得ることができると考えられる。

また、 γ 値に関する既往研究による測定結果を表 7 にまとめて示す。Glass(Case(e**b**))については Altshuller et al、Cohen et al の結果とは対応しており、Ryan et al の結果ともほぼ対応していると言える。また SUS304(Case(e**1**))の推定結果についても Altshuller et al の値とほぼ対応した結果となっており、既往研究と比較してもガラス製 Flat- Plate Test Chamber による測定は十分な精度が確保されていることが確認された。

9. 結論

- (1) Ozone の Mass Accommodation Coefficient (γ)の測定を行うことを目的としたガラス製 Flat- Plate Test Chamber を開発した。
- (2) Chamber に対象建材を設置した場合の Ozone 濃度低下量と γ の関係を算出し、Ozone 濃度低下量からダイレクトに γ の推定が可能なチャートを作成した。
- (3) 7 種の建材を対象として γ の測定を行った結果、そのオーダは 1.0×10^{-6} [-]程度と推定され、既往研究とも十分に整合する結果が得られた。

参考文献

[1] Nazaroff WW, and Cass GR (1986). Mathematical Modeling of Chemically Reactive Pollutants in Indoor Air, Environ. Sci. Technol. Vol. 20, No. 9, pp.924-934

[2] Kleno J G, Clausen P A., Weschler C J., Wolkoff P., (2001) Determination of Ozone Removal Rate by Selected Building Products Using the FLEC Emission Cell, Environmental Science & Technology, Vol 35, No. 12, 2548-2553

[3] Sørensen DN, and Weschler CJ (2002). Modeling Gas Phase Reactions in Indoor Environments Using Computational Fluid Dynamics. *Atmospheric Environment*, 36(1): 9- 18.

[4] Weschler CJ (2000). Ozone in Indoor Environments: Concentration and Chemistry. *Indoor Air* 10 (4), pp. 269-288.

表 6 チャンバー内濃度場の輸送方程式

$$\frac{3}{2}u \left[\left(\frac{y}{h} \right)^2 - 1 \right] \frac{\partial C}{\partial x} = D_o \frac{\partial^2 C}{\partial y^2}, \quad -h \leq y \leq h, \quad 0 \leq x \leq x_L \quad (1)$$

$$J = D_o \frac{\partial C}{\partial y} = \gamma \frac{\langle v \rangle}{4} C \quad \text{at } y = -h \quad (2)$$

$$\frac{\partial C}{\partial y} = 0 \quad \text{at } y = h \quad (3) \quad C = C_{in} \quad \text{at } x = 0 \quad (4)$$

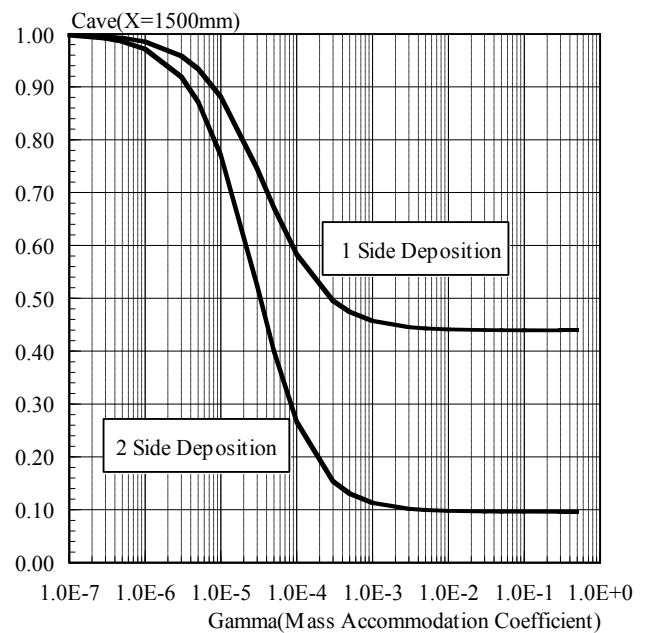


図 4 C_{ave} & γ の関係 (X=1.5m), (数値解析より推定)

表 7 γ に関する既往の測定結果

Reference	Material	γ
Altshuller et al., 1961	Teflon	2×10^{-8}
	Glass	$2 \times 10^{-7} \sim < 1 \times 10^{-8}$
	Stainless Steel (sus304)	$3 \times 10^{-6} \sim < 2 \times 10^{-8}$
	Stainless Steel (sus316)	$8 \times 10^{-6} \sim 1 \times 10^{-7}$
	Aluminum	$1.3 \times 10^{-6} \sim 1.3 \times 10^{-7}$
	Polyethylene	$1.7 \times 10^{-6} \sim 8 \times 10^{-7}$
	PVC (Nalgon)	$5 \times 10^{-6} \sim 8 \times 10^{-7}$
	PVC (Tygon)	$(2 - 5) \times 10^{-6}$
Cohen et al., 1968	Glass	$< 1.6 \times 10^{-7}$
	Silicon Rubber	1×10^{-5}
	Polyethylene	3×10^{-6}
	Nylon	1.7×10^{-7}
Ryan et al., 1992	PVC	$3 \times 10^{-6} \sim 1.2 \times 10^{-6}$
	Glass	$< 1 \times 10^{-6}$
	Latex Paint (9% rh)	3×10^{-6}
	Latex Paint (50% rh)	$1.2 \times 10^{-5} \sim 5 \times 10^{-6}$
	Latex Paint (91% rh)	8×10^{-5}

[5] Weschler CJ, and Shields HC (2003). Experiments Probing the Influence of Air Exchange Rates on Secondary Organic Aerosols Derived from Indoor Chemistry. *Atmospheric Environment*, Vol. 37: 5621-5631.