

機関番号：12301

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2008～2010

課題番号：20560178

研究課題名（和文）レーザー誘起蛍光法を用いた揮発性有機化合物（VOC）計測技術の確立

研究課題名（英文）Establishment of VOC measurement technique using laser induced fluorescence method

研究代表者

天谷 賢児（AMAGAI KENJI）

群馬大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：20221731

研究成果の概要（和文）：

レーザー誘起蛍光法を用いた揮発性有機化合物（VOC）の可視化法を開発した。励起光源としてND：YAGレーザーの第4高調波を用い、VOC蛍光はイメージインテンシファイアー（I/I）で検出した。これを用いてキシレンやトルエンの懸垂液滴から拡散するVOCの揮発特性を解析し、さらに壁面上の有機物質や噴霧から形成されるVOCの可視化も行った。また、得られた結果を拡散方程式の理論解と比較し、本研究で開発した可視化手法がVOCの揮発状態の可視化に有効であることを確認した。

研究成果の概要（英文）：

Laser induced fluorescence method was applied for the visualization of Volatile Organic Compound (VOC) gas. Fourth-harmonic generation light of ND: YAG laser was used for the excitation of the VOC gas. An image intensifier (I/I) was used for capturing the VOC fluorescence images. Diffusion characteristics of VOC from suspended droplets of xylene and toluene were investigated. Moreover, VOC images from a droplet deposited on a wall and a spray flow were visualized by this method. Measurement results were compared with the solutions of the one-dimensional diffusion equation. As the result, it was confirmed that the diffusion phenomena could be analyzed by the LIF method.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	2,300,000	690,000	2,990,000
2009年度	800,000	240,000	1,040,000
2010年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
総計	3,700,000	1,110,000	4,810,000

研究分野：機械工学

科研費の分科・細目：機械工学・熱工学

キーワード：熱工学，流体工学，環境工学，有機化学物質，レーザー計測

## 1. 研究開始当初の背景

建材で用いる塗料や防腐剤、接着剤などから発生する揮発性の有機化合物（VOC）は、シックハウス症候群の原因物質と考えられており、このVOCの低減技術の確立は、安全で安心な住環境の維持という、身近な環境問題として極めて重要な課題である。VOC

としてはホルムアルデヒド、トルエン、キシレンなどの化学物質が代表的なものであるが、現在はこれらをサンプリングして濃度を測定し、その上限値を定めた規制が行われている。このようなVOCは、住環境以外でも、塗装や洗浄、組立といった製造工程からも排出されていることから、これらVOCの排出

抑制技術の確立が急務の課題となっている。このようなVOCの抑制技術の確立には、サンプリングによる総量的な計測だけでなく、局所的なVOC発生状況の精密な把握と評価法の確立が必要不可欠であると考えられる。

## 2. 研究の目的

塗装工程において塗料から発生する揮発性有機化合物（VOC）は大気汚染の原因物質と考えられ、その低減が求められている。VOCとして分類される物質には多くの種類があるが、溶剤としてはトルエンやキシレンなどが代表的である。現在、VOCの規制については揮発したVOCの総量をモニターすることが多いが、塗膜から発生するVOCの拡散状況や濃度分布を測定することができれば、VOCの発生を抑制するための技術開発に有用であると考えられる。そこで本研究では、塗料などの溶剤から直接揮発するVOCの様子をLIF法により観察することを目的とした。さらに定量的な濃度分布を求める方法も検討した。

## 3. 研究の方法

実験装置の概略を図1に示す。実験装置はND：YAGレーザーおよび光学系、観察装置から構成されている。VOCの試料としては実際の塗料のほか、塗料の溶剤として広く使用されているキシレンとトルエンを選定した。キシレンおよびトルエンの吸収波長は、それぞれ266nmと262nmである。光源にはこれらの吸収波長に近いND：YAGレーザーの第4高調波（266nm）のシート光を用いた。また、蛍光の観察にはイメージインテンシファイア（I/I）を取り付けたカメラを用いた。キシレンとトルエンの最大蛍光波長はそれぞれ289nmおよび287nmである。I/Iには中心波長が330nmのバンドパスフィルター（最大透過率90%）とレーザーラマン用ロングパスフィルター（カットオフ波長267nm、最大透過率90%）を取り付けた。

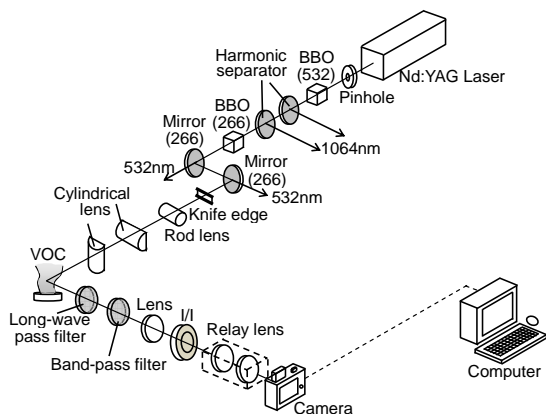


図1 実験装置

このとき、カメラのシャッタースピードは0.7sとし、この時間内に7回のレーザー光を照射して、その平均画像を得た。

本研究では、様々な状態でのVOCの拡散の様子を観察するために単一の懸垂液滴を測定対象とした。これ以外に壁面への付着液滴、落下液滴、一様気流中に懸垂された液滴、噴霧なども測定対象とした。懸垂液滴と付着液滴の測定方法を図2に示す。また、既知の濃度のキシレンやトルエンの蛍光強度を求めて、蛍光を濃度に変換することで蛍光強度からVOCの濃度分布を定量的に把握することも試みた。

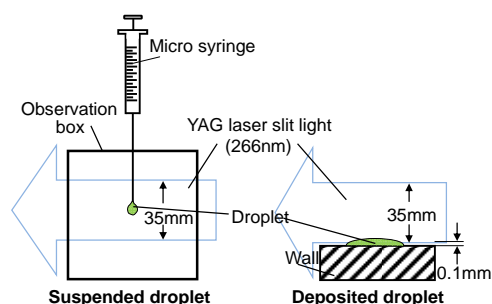


図2 計測対象

## 4. 研究成果

### (1) 試料濃度に対する蛍光特性

蛍光強度と試料濃度の関係を把握するために、密閉容器内にトルエンおよびキシレンを入れて揮発させ、蛍光強度を測定した。これらの濃度を変えながら蛍光強度の変化を調べた結果を図3に示す。トルエン濃度はこの範囲内ではほぼ直線的に蛍光強度が強くなるのがわかる。キシレンについては蛍光強度がばらついているが、今回は直線近似を行い濃度の見積もりを行った。なお、これ以上の濃度では蛍光強度が直線的に増加しない状態となり、容器内で均一な濃度分布が得られなかった。

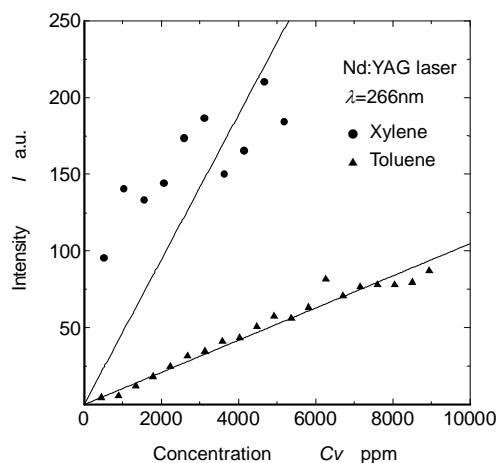


図3 濃度と蛍光強度の関係

(2) 懸垂液滴からの揮発状態の観察

様々な熱物質伝達に関する研究においては、しばしば懸垂液滴が用いられる。ここでは、噴霧塗装における基礎データの取得を考へて懸垂液滴の揮発特性を観察した。キシレンの懸垂液滴の写真とLIF法によって得られた蛍光像を図4に示す。写真から懸垂液滴は揮発が進み体積が減少していることがわかる。ある程度体積が減少すると、液滴が懸垂用の針の周囲に付着する様子が見られた。これに対して、蛍光像は時間によってあまり大きな変化が見られなかった。これは、液滴の表面の濃度が変化していないために拡散するキシレンガスの濃度も変化しないためと考えられる。ただし、懸垂液滴の揮発に伴いシリンジの上方へ液滴が引き寄せられるために、蛍光像も上方へとシフトしている。

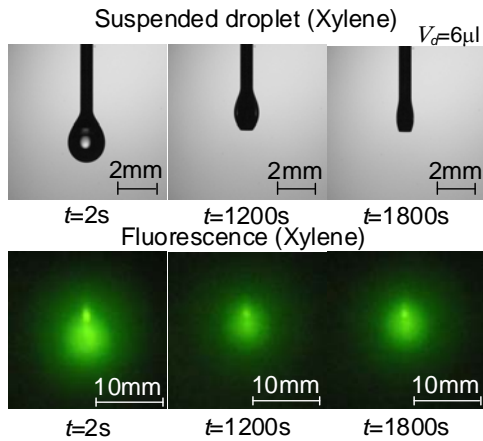


図4 懸垂液滴のVOC蛍光

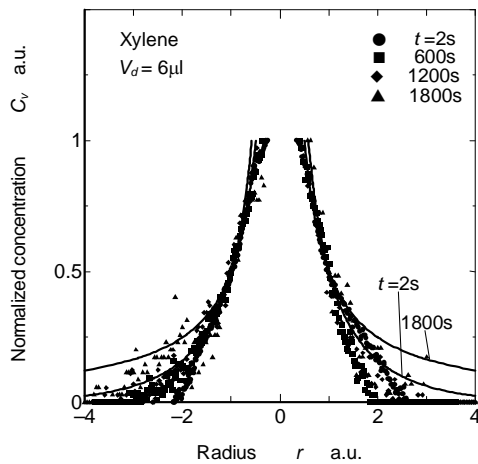


図5 懸垂液滴周りのVOC濃度

懸垂液滴の半径方向の濃度分布を調べた結果を図5に示す。なお、グラフでは可視化の結果をもとに液滴直径分を差し引いている。また、最高値と半値幅で規格化を行って

いる。グラフから規格化された分布は時間的にあまり変化しないことがわかる。また、比較的軸対称の良い分布が見られた。なお、図中の実線は点対称の拡散理論から求めた曲線である。t=2sの場合は比較的良く合うもののt=1800sではあまり良く一致しない結果となった。

(3) 付着液滴による揮発状態の観察

塗装壁面上からのVOCの拡散状態を観察するために、壁面上に液滴を置き、そこからの拡散の様子を観察した。ガラス壁面上に液滴を置いたために、液滴は広がって付着した。得られたキシレンの蛍光像を図6示す。ただし、液滴からの直接の蛍光は見えないようにした。蛍光像をみると、時間がたつほど蛍光している面積が減少していることがわかる。これは、時間経過に伴い液滴が揮発して壁面上の面積が減少したためと考えられる。

次に、壁面から垂直上方への濃度分布を調べた。その結果を図7に示す。図は図5と同様に規格化を行った。なお、図中の実線は一次元の拡散方程式の解を示したものである。両者は比較的良く一致しているが、これは液滴が壁面上で偏平に広がり上方に一次元的な拡散を生じているためと考えられる。

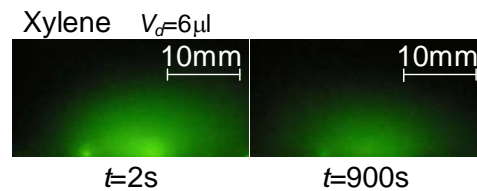


図6 壁面上から揮発するVOCの蛍光

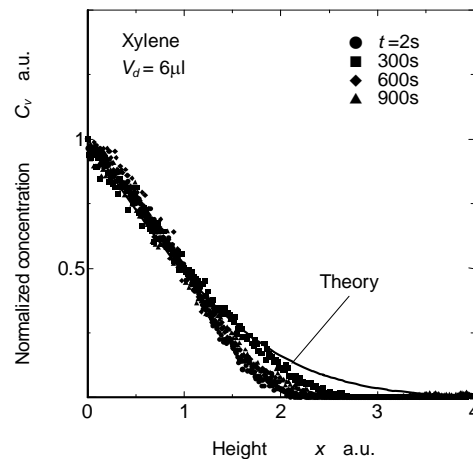


図7 壁面上から揮発するVOCの濃度

(4) 落下液滴からの揮発特性

静止気体中の懸垂液滴に引き続き、落下液

滴からのVOC揮発状態の観察を試みた。落下液滴はキシレンで体積が6mlである。得られたキシレンの蛍光像を図8示す。液滴から離れた蛍光の薄い領域では流れの影響がわずかに見られたが、中心の濃度の高い部分については懸垂液滴の分布と大きな差はみられなかった。この理由としてはキシレン液滴のシュミット数  $Sc$  が2.3となり、1よりも大きいために速度境界層よりも濃度境界層の方が薄くなっているためと解釈できる。

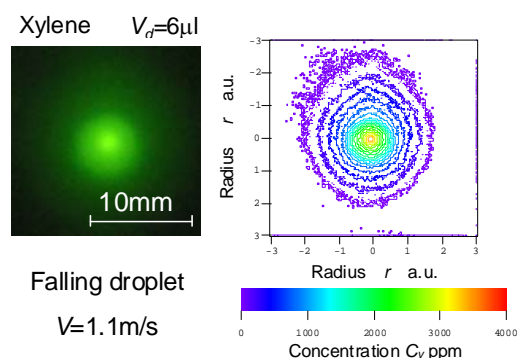


図8 落下液滴からのVOC蛍光

#### (5) キシレン噴霧からのVOC拡散状態の観察

実際の噴霧塗装を想定してキシレン噴霧から発生するVOCの観察を行った。用いたスプレーは、平均液滴径  $D_{10}$  が131.23μm、ザウター平均液滴径  $D_{32}$  が179.15μmの中空噴霧であり、壁面から高さ50mmの位置からキシレンを噴霧した。また、噴霧後に壁面に付着したキシレンから発生するVOCの様子も観察した。その結果を図9に示す。

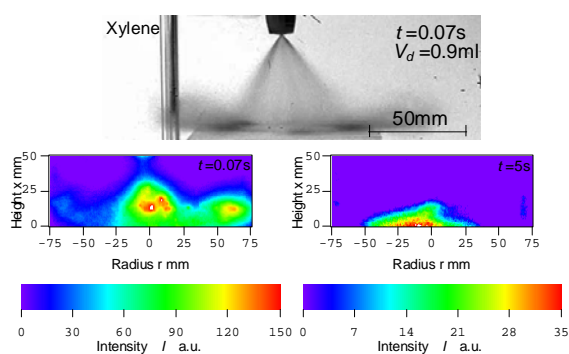


図9 噴霧からのVOC蛍光

噴霧写真からわかるように試料は比較的広い噴射角で噴射され、噴霧後は壁面に衝突し液滴が舞いあがっていることがわかる。VOCの蛍光からもその様子が確認できる。ただし、この蛍光像には液滴自身からの蛍光も

含まれており、今日の研究ではそれらを分離することができなかった。噴霧の5秒後では、壁面に噴き付けられたキシレンからの蛍光が観察された。この時刻では、壁面上の塗装面から主にVOCが発生していることがわかる。

#### (6) 成果のまとめ

レーザー誘起蛍光法を用いてVOCの可視化解析を行い、以下の結論を得た。

ND: YAGレーザーの第4高調波の光(266nm)を用いて、LIF法によりキシレンおよびトルエンから発生する揮発ガスの濃度分布を可視化することができた。

キシレンの懸垂液滴や壁面付着液滴から発生するVOCの蛍光強度と濃度の関係を求め、一次元拡散理論と比較した。壁面上の液滴からの拡散は理論と比較的良好一致したが、液滴については時間が経過すると理論とのずれが大きくなった。

#### 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計1件)

①天谷賢児、船津賢人、塗装面から発生するVOCのレーザー誘起蛍光法による可視化技術、光アライアンス、査読有、Vol. 20、2009、pp. 41-54

〔学会発表〕(計1件)

①天谷賢児、レーザー誘起蛍光法によるVOC拡散流の可視化法、日本機械学会関東支部ブロック合同講演会、2008. 9. 20、小山工業高等専門学校(栃木県)

〔その他〕

ホームページ等

[http://www.en1.me.gunma-u.ac.jp/main\\_index.htm](http://www.en1.me.gunma-u.ac.jp/main_index.htm)

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

天谷 賢児 (AMAGAI KENJI)

群馬大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：20221731