メタノール自動車冷始動時の車庫内における
ホルムアルデヒドおよび亜硝酸メチル濃度*森川 多津子^{*1}, 伊藤 献一^{*1}Formaldehyde and Methyl Nitrite Levels in a Garage
During the Cold Start-Up of a Methanol Fueled Vehicle

Tazuko MORIKAWA and Kenichi ITO

A three-dimensional computer simulation was performed to determine the formaldehyde (HCHO) and methyl nitrite (CH_3ONO) levels inside a small garage during the cold start-up of a methanol fueled vehicle (MFV). The garage size was appropriate for one MFV. Two types of garage were considered in order to quantify the ventilation effect. The total amount of pollutants was independent of the ventilation until 70 s after engine start-up, because the pollutants remained concentrated directly behind the vehicle. After 180 s, the pollutant levels in the ventilated model were reduced to half that in the no-ventilated model. However, under such small garage condition, even with one ventilator, at a point 1 m behind the MFV and 1.5 m high, the HCHO concentration reached 9.2 ppm. To reduce the HCHO level to below 5 ppm, the HCHO peak concentration in the emission should be reduced to 0.5 times the present concentration. Although the harmful effects of CH_3ONO have not yet been investigated in detail, they should be considered, particularly during cold start-up of MFV in a closed garage.

Key Words: Pollutant, Combustion Product, Computational Fluid Dynamics, Environmental Engineering, Garage, Formaldehyde, Methyl Nitrite, Methanol Vehicle, Cold Start

1. 緒 言

メタノール自動車排ガス中のホルムアルデヒド (HCHO) は、大部分がエンジンの冷始動時に排出される⁽¹⁾。これは排ガス浄化触媒が活性をもつまでの3~5 min と短い間であるが、メタノール自動車の普及に向けて、早急に解決しなくてはならない問題の一つとなっている。また、これまであまり注目されていなかった未規制物質として、冷始動時に高濃度で排出される亜硝酸メチル (CH_3ONO) があげられる。 CH_3ONO は、他の亜硝酸エステルに比べ強い毒性をもち⁽²⁾、サルモネラ菌を使用した実験では、変異原性があることが確かめられている⁽³⁾。著者らはメタノール自動車排ガス中の CH_3ONO の測定を行い、 CH_3ONO の排出はほとんどエンジン冷始動後 4~5 min であること、および周囲環境が低温の場合、排ガス浄化触媒上で生成する CH_3ONO 量がかなり大きいことを指摘している⁽⁴⁾。

さて、エンジンの始動は車庫内など閉鎖された空間であることが多い。その際、高濃度の汚染物質が狭い空間に蓄積し、車庫内の空気質はかなり悪化する。現

在、車庫や屋内駐車場の設計は、一般には一酸化炭素 (CO) 濃度を 100 ppm 以下に保つようにされている⁽⁵⁾。しかし、従来の車両ではなくメタノール自動車を対象となった場合、その特有の汚染物質についての議論が必要不可欠となるのではないかと考えられる。

メタノール自動車を用いた場合の車庫内のメタノールおよび HCHO 濃度の試算として米国 EPA によるものがある。それによると、公共駐車場においてはメタノール、HCHO ともに警戒領域以下という結論がでている⁽⁶⁾。しかし、狭い車庫内における空気質は、排ガス濃度がそのまま反映されるため、あえて評価した例はほとんどない。また、未規制物質である CH_3ONO の検討例はない。

本研究では、メタノール自動車からの汚染物質排出規準、あるいはメタノール自動車を含めた今後の車庫設計の一つの足がかりとするため、車庫内の汚染物質濃度を検討した。濃度分布の詳細は、モデル車庫内の気流分布の三次元数値解析をもとに、メタノール自動車排ガス中の汚染物質濃度測定結果を用いて求めた。対象とした汚染物質は CO、HCHO および CH_3ONO である。

* 原稿受付 1996 年 6 月 10 日。

^{*1} 正員、北海道大学工学部 (〒060 札幌市北区北 13 条西 8 丁目)。

2. 数値モデル

2.1 数値モデルの概要 空気調和設備等の設計という観点からは、これまで室内空間の三次元乱流解析による気流分布の評価が行われてきた。中でも、乱流モデルに κ - ϵ 二方程式乱流モデルを用い、MAC 法 (Marker and Cell method) により三次元流れを解く方法は、多くの研究者により検討されている⁽⁷⁾⁽⁸⁾。本研究では、この解法を車庫内部の気流性状の解析に応用した。このとき、車両が車庫内部にあるような複雑な境界条件を解くため、将来的な発展性も考慮し、MAC 法を基本とした ABMAC 法 (Arbitrary Boundary MAC method) を用いた⁽⁹⁾。ABMAC 法は、境界面を自由表面として扱うため、傾斜境界、曲面境界等の任

意形状の境界を扱うことが可能である。基礎方程式を表 1 に示す。差分スキーム、初期条件および主要境界条件については表 2 にまとめた。

2.2 モデル実験結果との対応 数値解析による気流分布の予測には、現実の室内気流との対応が必要である。そのため、本研究の数値解析結果と、村上らが行ったモデル室内気流の実験結果⁽⁸⁾との比較を行った。図 1 に村上らの設定したモデル室を示す。このモデル室は、クリーンルームの検討用に空調の吹出し口および吸込口を設定している。また、室内中心部床から 0.6 m の地点に汚染物質の発生源 (図 1 中点 P)

Fig. 1 Schematic figure of the model room

Table 1 Basic equations	
1. Continuity Equation	$\frac{\partial U_i}{\partial X_i} = 0$
2. Momentum Equation	$\frac{\partial U_i}{\partial t} + \frac{\partial U_i U_j}{\partial X_j} = -\frac{\partial}{\partial X_i} \left(\frac{P}{\rho} + \frac{2}{3} \kappa \right) + \frac{\partial}{\partial X_j} \left\{ \nu_t \frac{\partial U_i}{\partial X_j} + \left(\frac{\partial U_j}{\partial X_i} \right) \right\}$
3. Transport Equation of κ	$\frac{\partial \kappa}{\partial t} + \frac{\partial \kappa U_j}{\partial X_j} = \frac{\partial}{\partial X_j} \left\{ \frac{\nu_t}{\sigma_\kappa} \frac{\partial \kappa}{\partial X_j} \right\} + \nu_t S' - \epsilon$
4. Transport Equation of ϵ	$\frac{\partial \epsilon}{\partial t} + \frac{\partial \epsilon U_j}{\partial X_j} = \frac{\partial}{\partial X_j} \left\{ \frac{\nu_t}{\sigma_\epsilon} \frac{\partial \epsilon}{\partial X_j} \right\} + C_1 \frac{\epsilon}{\kappa} \nu_t S' - C_2 \frac{\epsilon^2}{\kappa}$
5. Definition of ν_t	$\nu_t = C_\mu \frac{\kappa^2}{\epsilon} = \kappa^{1/2} l$
6. Transport Equation of Pollutants	$\frac{\partial C_q}{\partial t} = -\frac{\partial C_q U_j}{\partial X_j} + C q_0$
$S' = 2 \left\{ \frac{1}{2} \left(\frac{\partial U_i}{\partial X_j} + \frac{\partial U_j}{\partial X_i} \right) \right\}^2$ $\sigma_\kappa = 1.0, \sigma_\epsilon = 1.3, C_\mu = 0.09, C_1 = 1.44, C_2 = 1.92$ U : Mean Velocity (m/s) P : Pressure (N/m ²) ν_t : Eddy Diffusivity (m ² /s) ϵ : Turbulence Energy Dissipation rate (m ² /s ³) l : Mixing Length (m) κ : Turbulence Kinetic Energy (m ² /s ²) Cq : Concentration of Pollutant q (kg/m ³) Cq_0 : Emission Rate of Pollutant q (kg/m ³) $i, j = 1, 2, 3$	

Table 2 Initial and Boundary Conditions

Boundary Conditions	
Near a Wall	$U_{nB} = -U_{ts}$ $U_{nB} = 0$ $\frac{\partial C_q}{\partial n} = 0$ $\kappa_B = \kappa_0$ $\nu_{tB} = \nu_{t0}$ $\epsilon_B = (C_\mu \kappa_0) / (C_\mu \cdot k \cdot \delta / 2)$
Exhaust Pipe Exit	$U_n = U_{out}$ $\epsilon = 1.59 \times 10^{-4}$ $U_t = 0$ $\kappa = 5 \times 10^{-5}$ $Cq = Cq_{out}$ $\nu_t = 1.41 \times 10^{-2}$
Ventilation Inlet	$U_n = U_{in}$ $U_t = 0$
Initial Condition	$\epsilon = 0.09$ $\nu_t = 0.01$ $\kappa = 0.1$
n : Normal Vector to a Wall t : Tangent Vector to a Wall δ : Cell Length B : at Boundary Cell S : at Boundary Surface Cell out : at Outflow Cell

Fig. 2 Comparison of experiments and prediction (a, b, d, e: Velocity field, c, f: Concentration profile)

がある。モデル車の吹き出し口を含む面(図1中a-a')および吸込口を含む面(図1中b-b')の気流測定結果をそれぞれ図2aおよび2bに示す。また、吹き出し口を含む面のトレーサガス濃度分布実験結果を図2cに示す。それらの実験結果に対応する本研究の計算結果をそれぞれ図2d, eおよび図2fに示す。計算結果は左右対称なので右部分は省略した。計算条件は、 $Re = 40\,000$ 、時間刻み 0.04 s 、空間刻み $dx = dy = dz = 0.15\text{ m}$ 、セル数は $20 \times 18 \times 20$ である。その結果、気流および濃度分布ともにほぼよい対応を示すことがわかった。

2.3 モデル車庫およびモデル車両 以上の数値計算条件に基づいて、トラック1台用のモデル車庫を設定した。

モデル車庫の大きさは、 $7 \times 4 \times 2\text{ m}$ 、空間刻み $dx = dy = dz = 0.2\text{ m}$ とした。このときセル数は境界セルも含めて $37 \times 22 \times 12$ である。この車庫は、前面を開放としている。また、換気の効果を検討するため車庫A：換気口を設けない場合、および車庫B：強制排気のある場合の2種類の車庫条件を設定した。車庫Aは換気がほとんどなく、最もか酷な条件である。車庫Bは強制排気を行うもので、換気条件は東京都の駐車場安全条例に基づき、10回/hとした⁽⁵⁾。換気口は $1.0 \times 0.4\text{ m}$ の大きさのものを車庫奥上部〔セル位置 $(x, y, z) = (9, 12, 4) \times (13, 12, 5)$ 〕に設定した(図4参照)。排出速度は 0.388 m/s である。

モデル車庫は、セル境界に一致させるような形状とした。排気管は車庫の奥側〔セル位置 $(x, y, z) = (8, 5, 9)$ 〕とした(図3, 4参照)。実車両の排気管断面積 $1.96 \times 10^{-3}\text{ m}^2$ は、セル断面積 $2.25 \times 10^{-2}\text{ m}^2$ に置き換

え、排気速度 15 m/s についても流量が等価になるように設定した。

排気温度の上昇による熱対流については本研究では考慮していない。これは、外気温 0°C の際のエンジン始動3 min後の排気温度が 80°C であり、排気管をパイプ開放端とした Ar (アルキメデス)数が 6.4×10^{-4} と浮力の影響が小さいものと考えられたためである⁽¹⁰⁾。ただし、排気ガス噴流の展開角を 30° としている。

モデル車庫の計算条件を、 Re 数 $50\,000$ 、時間刻み $dt = 0.075\text{ s}$ とし、排気管から排出されたマーカー粒子の軌跡および気流分布について、車庫Aの結果を図3に、車庫Bについて図4に示す。図3によると、内部の空気は排気管より後方で渦巻く様子がわかる。また、車庫Bの図4の場合、マーカー粒子が速やかに換気

Fig. 3 The Marker trajectories and velocity vector of Garage A

Fig. 4 The Marker trajectories and velocity vector of Garage B

Fig. 5 Emission profile of the test methanol vehicle

されていることがわかる。また、気流分布も異なり、前面から空気が流入している様子がわかる。

2・4 メタノール自動車の冷始動時の排出特性

メタノール自動車冷始動時の汚染物質排出量は測定値を用いた。使用したメタノール自動車に関する詳細は既報による⁽⁴⁾。エンジン始動 180 s 後までのメタノール、HCHO、CO および CH_3ONO の排出濃度の変化について図 5 に示す。 CH_3ONO の排出は外気温の影響を強く受ける。本研究では特に厳しい条件とするため、外気温は 0°C の場合とした。測定結果は排気口のセル濃度に反映した。

3. 解析結果

車庫内の汚染物質濃度の計算結果を濃度分布として HCHO と CH_3ONO について示す。濃度分布図は、高

さ 1.5 m の断面および排気管を含む側面断面について示す。

換気のない車庫 A におけるエンジン始動 60 s 後の HCHO の結果を図 6 に示す。それによると、排ガス中の HCHO がほぼピーク濃度であるため、排気管直後の濃度は 140 ppm にもなっている。しかし、HCHO の高濃度範囲は小さく汚染物質はこの部分に集中していることがわかる。高さ 1.5 m の断面における最大濃度は後方の壁面近傍に現れ 63 ppm となった。それに対し、同 180 s 後の結果を示した図 7 によると、最大濃度は低下したが、高濃度範囲は広がった。高さ 1.5 m の最大濃度は 44 ppm となった。

CH_3ONO について、図 8 にエンジン始動 180 s 後の濃度分布を示す。 CH_3ONO の排出傾向も約 60 s でピークを示しその後減少するため、濃度分布も HCHO

Fig. 6 HCHO distribution at Garage A ($t=60$ s)

Fig. 8 CH_3ONO distribution at Garage A ($t=180$ s)

Fig. 7 HCHO distribution at Garage A ($t=180$ s)

Fig. 9 HCHO distribution at Garage B ($t=180$ s)

Fig. 10 Pollutants accumulation in each garage types

とよく似ている。高さ 1.5 m における CH_3ONO 最大濃度は 73 ppm となった。

次に、強制排気がある車庫 B の結果を述べる。

図 9 にエンジン始動 180 s 後の HCHO 濃度分布を示す。気流性状が車庫 A と異なるため、濃度分布も異なる。高さ 1.5 m における HCHO 最大濃度は 45 ppm と車庫 A と変わらないが、高濃度範囲は狭い。また、 CH_3ONO についても同様の結果が得られた。エンジン始動 180 s 後の高さ 1.5 m における最大濃度は 68 ppm となり、濃度の広がりも小さくなった。

CO の濃度分布は HCHO および CH_3ONO と類似である。ただしエンジン始動 180 s の CO 排気濃度は 15 ppm と低いため、車庫 B における換気効果はより顕著であった。

これらの汚染物質の蓄積量および車庫 B の換気効果を見るため、車庫内の CO、HCHO および CH_3ONO 総量を図 10 に示す。エンジン始動直後は高濃度部分が排気管直後に集中するため、車庫 A、B の汚染物質総量はほぼ等しい。汚染物質総量の違いが明確に現れるのは、エンジン始動後約 70 s 以降であった。エンジン始動後 180 s の車庫 B における各汚染物質総量は車庫 A に対し、CO、HCHO、 CH_3ONO についてはそれぞれ 46、53、52% となった。

4. 車庫内汚染物質レベルの評価

メタノール自動車排ガスの人体影響を評価するため、急性影響が明らかな CO と HCHO に観点をしばらく考察する。

例えば、最大濃度を示した壁面近傍ではなく、自動車のすぐ後方に人がいた場合を想定し、ある一点における汚染物質濃度変化をとらえてみる。

図 11 にメタノール自動車中央後方 1 m、高さ 1.5 m の地点 [セル位置 = (x, y, z) = (10, 9, 5)] における CO、HCHO 濃度を示す。それによると車庫 B

Fig. 11 Pollutants concentrations of 1.5 m height at the rear of the methanol vehicle

Fig. 12 HCHO Emission changes and concentration profile of 1.5 m height at the rear of the methanol vehicle

においては気流速度が速いため、汚染物質濃度のピークが早くみられる。また CO ピーク濃度の出現は HCHO よりも早く、排出特性が反映されている。

人体影響を考えると、CO 濃度については、作用時間、CO-Hb 量 (CO と血液中ヘモグロビンの結合物量) と中毒になる関係を考慮して 100 ppm 以下に保つ必要があると考えられる⁽¹¹⁾。HCHO については労働衛生上の許容濃度は 0.5 ppm である。刺激性のガスであるため、2~3 ppm で鼻・のどに軽い刺激を感じ、5~6 ppm で不快感および目への刺激があるという。ここで換気のある車庫 B の場合、この地点の CO ピーク濃度は 90 ppm であった。これに対し HCHO ピーク濃度は 9.2 ppm となった。HCHO 濃度を下げるには、換気回数を増やすか、あるいは排出量を抑えなくてはならない。しかし、車庫内の空気質向上のために換気回数を増しても、大気中に排出されることになり、これは本質的な解決策とはいえない。また、図 10 に

示したようにエンジン始動後 70 s 程度までの総汚染物質蓄積量は、換気の有無にかかわらずほぼ等しく、排出量の削減が効果的と考えられる。

ここで換気回数を変えずに HCHO 排出量を 1~0.1 倍にした同位置の HCHO 濃度を図 12 に示す。HCHO 濃度は排出量に比例した結果となった。仮にこの地点における HCHO 濃度ピークを 5 ppm 以下に抑えるためには、HCHO 排出量を 0.5 倍にしなくてはならない。このとき、排気管出口における HCHO ピーク濃度は 70 ppm に相当する。また、刺激を感じない 2 ppm 以下にするためには 0.1 倍まで抑える必要があると考えられる。

5. 結 論

本研究では、メタノール自動車の冷始動時という特殊な状況を考慮して、車両 1 台用のモデル車庫内の CO、HCHO および CH₃ONO 濃度レベルを三次元乱流数値解析によって検討した。また、排気管位置の天井に換気口を設け、CO を念頭において設定した換気条件における換気効果についても検討した。得られた結果は以下のとおりである。

(1) 換気口がない場合、エンジン始動後 60 s の汚染物質分布は排気管直後に集中し、高さ 1.5 m における最大濃度はメタノール自動車後方の壁面近傍に現れた。エンジン始動 180 s 後には汚染物質が広範囲に蓄積し、最大濃度は低下した。汚染物質による濃度分布の違いは小さかった。

(2) 換気口を設けた場合、車庫内の汚染物質総量は、エンジン始動後 70 s 程度まではほとんど変わらなかった。これは排気管直後の局所的な高濃度のためである。70 s 以降は換気がある場合の汚染物質総量および濃度分布に大幅な改善がみられた。

(3) 人体影響を評価するため、メタノール自動車後方 1 m、高さ 1.5 m における地点を想定した場合、換気のある車庫では CO 濃度は許容濃度の 100 ppm

以下となった。しかし、HCHO については例としてピーク濃度を 5 ppm 以下にする場合でも、排出ガスピーク濃度を従来の 1/2 の 70 ppm 以下に抑える必要があると考えられた。

本研究で対象とした車庫のような非常に厳しい条件下では、メタノール自動車のみならず、従来の車両であっても厳しい評価がなされるであろう。しかしながら、HCHO の臭気の閾値は 0.5~1 ppm とされており⁽¹²⁾、その意味では低公害車という面からの評価はいっそう厳しいものと考えられる。また、CH₃ONO に関しては低濃度における人体への影響が明らかとなっておらず、許容値も決まっていない。メタノールおよび NO₂ が高濃度に蓄積するような条件では CH₃ONO の二次生成も考えられる⁽¹³⁾。CH₃ONO に関してはメタノール排ガスは CH₃ONO の主要発生源と予想されるため、より詳細な調査が今後も不可欠であると考えられる。

文 献

- (1) 森川多津子・ほか 3 名, 第 7 回寒地技術シンポジウム講演論文集, (1991-10), 202-207.
- (2) 後藤 潤・ほか 2 名編, 産業中毒便覧(増補版), (1986), 1266-1267, 医歯薬出版.
- (3) Tornqvist, M., ほか 3 名, *Mutat. Res.*, **117**(1983), 47-54.
- (4) 森川多津子・伊藤 一, 機論, **62-593**, B(1996), 380-385.
- (5) (社)空気調和・衛生工学会編, 第 12 版空気調和・衛生工学便覧 6 応用編, (1995), 252-254.
- (6) 小林剛, 公害と対策, **21**(1985), 1305-1307.
- (7) 野村豪・ほか 4 名, 日本建築学会論文報告集, **231**(1975), 73-79.
- (8) 村上周三・ほか 2 名, 空気調和・衛生工学会論文集, **37**(1988-6), 37-48.
- (9) 海野健一・ほか 4 名, 竹中技術研究報告, **29**(1983), 19-36.
- (10) 石原正雄, 建築換気設計, (1969), 195-225, 朝倉書店.
- (11) 労働省安全衛生部, 新版 危険有害物便覧, (1988), 100-101.
- (12) リチャード A. ワッデン・ピーター A. シェフ(日本建築学会訳), 室内空気汚染, (1990), 30-32, 井上書院.
- (13) Takagi, H., ほか 3 名, *Environ. Sci. Technol.*, **20**-4(1986), 387-397.