

복합자재에서의 VOCs 방출량 예측에 관한 연구

박 준 석[†], 윤 창 현, 권 경 우*

한양대학교 건축대학 건축공학부, 한양대학교 대학원 건축공학과*

Prediction of VOCs Emissions from Multi-layers Materials

Jun seok Park[†], Chang hyun Yoon, Kyung woo Kwon*

Department of Architectural Engineering, The College of Architecture,
Hanyang University, Seoul 133-791, Korea

*Graduate School of Architectural Engineering, Hanyang University, Seoul 133-791, Korea

ABSTRACT: The purpose of this study is to predict VOCs emission rates from multi-layers materials, which are composed of single-layer materials having various VOCs emission rates, by using effective diffusion coefficients of the single-layer materials. The study was consisted of two parts; the one is the prediction of VOCs emission rates from multi-layer materials through numerical methods. The other is the measurement of VOCs emissions rates of wall composite and floor composite in Mock-up rooms for comparing the prediction and the experiments' values. The results of the study show that the short-term VOCs emission rates of multi-layers materials can be predicted from the effective diffusion coefficients of single materials in oder accuracy.

Key words: Indoor Air Quality(실내공기질), VOCs(휘발성유기화합물질), Emission rates(방출량), Multi-layers Building Materials(복합자재), Diffusion Coefficient(확산계수)

기 호 설 명

- C : 자재내부의 VOCs농도, [mg/m³]
- C_{ref} : 자재 내부의 기준 농도, [mg/m³]
- q : VOCs확산 flux, [mg/m²,s]
- De : 자재 내의 유효확산계수, [m²/s]
- D_{ref} : 기준농도에서의 유효확산계수, [m²/s]
- E : 농도 의존성 경험상수, [m³/mg]
- h : 자재 표면의 VOCs 물질전달율, [m/s]
- l : 자재의 두께, [m]
- Sh : Sherwood 수, lh/De
- R_D : 자재의 VOCs 전달저항 [s/m]
- T : 자재의 온도 [°C]
- λ : 자재 공극에서의 물질전달율, [C]

1. 서 론

실내공기질의 개선을 위해서는 오염원에 대한 정성적 정량적 평가를 통하여 실내농도를 예측하고 이를 바탕으로 한 적정 환기량의 설정이 중요하다^{1),2),3)}. 환경부에서는 다중이용시설 등의 실내 공기질관리규칙을 시행하고 있으며 특히 신축공동 주택에서 대해서는 입주 전 실내 휘발성유기화합물질의 측정을 의무화하고 있다. 따라서 오염원의 제어 측면에서 저 방출량 자재의 사용이 늘어나고 있으며 환경마크와 HB마크 등의 건축 자재 라벨링 제도는 마감재 선별의 중요한 기준으로 사용되고 있다. 그러나 건축물 내에서는 라벨링 된 자재가 개별적으로 사용되기 보다는 바닥, 벽 등에서와 같이 복합적인 형태로 사용되고 있어 라벨링에 사용된 개별 자재의 방출량을 이용해 직접적으로 실내농도를 예측하기 어렵다.

본 연구에서는 선행연구를 통하여 얻어진 개별

[†] Corresponding author

Tel.: +82-2-2220-1743; fax: +82-2-2296-5331

E-mail address: junpark@hanyang.ac.kr

자재의 VOCs확산계수⁴⁾와 Fick의 확산법칙을 이용하여 복합자재에서의 VOCs방출량을 예측하였고 Mock-up실험결과와 비교하여 예측의 정도 및 타당성에 대하여 검토하였다.

2. 복합자재의 방출량 평가

개별 마감재의 VOCs방출량은 실내의 온도, 습도, 기류속도 등에 많은 영향을 받으며^{5,6)}, 특히 자재 내에서의 농도구배 및 확산계수는 방출량의 시간적 변화를 결정하게 된다. 개별 마감재에서의 VOCs전달을 등온상태의 1차원 흐름으로 가정하고 Fick의 확산법칙을 적용하면 자재내부에서의 질량보존방정식과 확산flux는 다음과 같다.

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \cdot \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \quad (1)$$

$$q = D \cdot \frac{\partial C}{\partial x} \quad (2)$$

식(1)과 (2)에 초기조건과 경계조건이 주어지면 개별 마감재의 경우 엄밀해 또는 수치해를 통하여 마감재 표면에서의 VOCs방출량을 구할 수 있다. 그러나 건축자재의 경우 다공의 재료(porous material)이므로 미소의 공극(porosity)에서의 확산과 고체표면에서의 흡탈착 과정을 통하여 물질이 전달되므로 식(1)과(2)의 확산계수는 식(3)으로 모델화 할 수 있으며, 이러한 유효확산계수는 Fig 1에서 나타내는 농도의존성을 가질 수 있다⁴⁾.

$$De = \frac{\lambda}{(k\rho_{air,porosity} + \rho_{solid} \cdot \frac{\partial f}{\partial C})} \quad (3)$$

즉 자재 내부의 농도가 높을 경우 유효확산계수가 증가하나 농도가 낮아짐에 따라 유효확산계수가 감소하는 경향을 나타낸다.

복합자재의 경우, 아래의 식과 같이 열전달의 열관류율 개념을 도입하여 정상상태에서 복합자재 내에서의 VOCs확산을 개별자재의 확산계수와 두께를 이용하여 정의할 수 있다.

$$q = U_D \cdot \Delta C \quad (4)$$

$$U_D = \frac{1}{\sum R_i} = \frac{1}{\frac{1}{h_e} + \frac{l_1}{D_1} + \dots + \frac{l_n}{D_n} + \frac{1}{h_v}} \quad (5)$$

Fig 2⁴⁾⁵⁾는 Cup법 실험에서 얻은 복합자재에서의 전달저항 값과 식(5)에서 개별자재의 실험결

과를 이용하여 계산한 결과의 비교를 나타낸다. 식(4)로부터 얻은 추정치와 실험결과가 물질별로 차이는 있으나 유사한 수준을 나타내고 있어 개별자재의 유효확산계수를 이용하여 복합자재 내에서의 물질전달을 연속적으로 해석할 수 있음을 알 수 있다.

따라서 본 연구에서는 Fig. 3과 같이 복합자재 내에서의 물질전달을 연속체로 취급하고 차분법을 이용하여 복합자재 내에서의 VOCs거동을 수치해석 하였다. 각 부위에서의 VOCs의 농도는 식(6)-(9)을 이용하여 이산화 하였고, 자재 내에는 초기농도 이외에 VOCs발생이 없으며 개별자재의 접합부에서는 농도가 연속인 것으로 가정하였다.

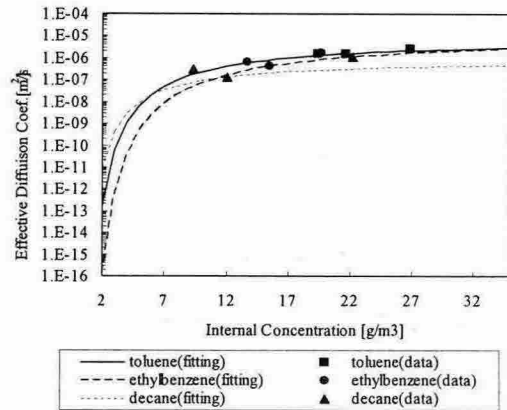


Fig. 1 Relation of mass concentrations and effective diffusion concentrations in Wooden floor⁴⁾

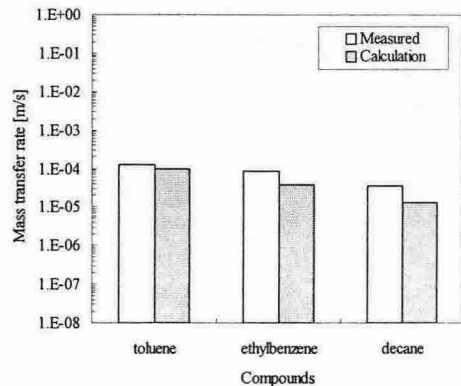


Fig. 2 VOCs mass transfer rates in floor composite (Adhesive +Wooden floor)⁴⁾

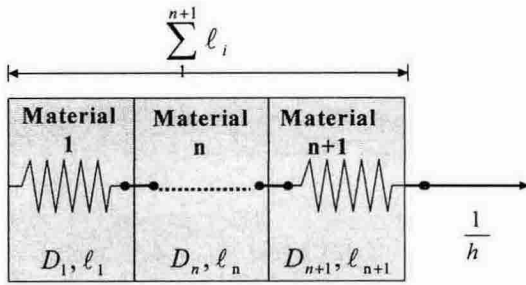


Fig. 3 Concept of VOCs mass transfer in multi-layers materials

Mass balance equation at n material

$$\frac{\partial C(x,t)}{\partial t} = D_n \cdot \frac{\partial^2 C(x,t)}{\partial x^2} \quad (6)$$

Continuity condition between n and n+1 material

$$-D_n \left. \frac{\partial C(x,t)}{\partial x} \right|_{x=\sum_1^n \ell_i} = -D_{n+1} \left. \frac{\partial C(x,t)}{\partial x} \right|_{x=\sum_1^{n+1} \ell_i} \quad (7)$$

Boundary Condition

$$\left. \frac{\partial C(x,t)}{\partial x} \right|_{x=\sum_1^{n+1} \ell_i} = h(C_0 - C(x=\sum_1^{n+1} \ell_i, t)) \quad (8)$$

Initial Condition of n material

$$C(\ell_{n-1} < x \leq \ell_n, t=0) = C_n \quad (9)$$

3. 복합자재의 방출량 실험 개요

주거공간의 내부에서 마감되는 복합자재에서의 VOCs 방출량을 측정하기 위하여 Table 1과 같은 조건에서 Mock-up 실험을 실시하였다. Mock-up 내부에는 바닥, 벽 그리고 천장만을 마감하였고 사용된 마감재는 Table 2와 같다. 바닥은 온돌마루용 접착제와 온돌마루를, 벽과 천장에는 부직포, 초배지, 실리콘지를 도배용 풀을 이용하여 마감하였다. 내부 마감에 사용된 자재는 모두 한국 공기청정협회에서 최우수 HB마크를 인증 받은 것만을 사용하였다. 또한 실험의 재현성과 현장 마감에 따른 영향을 평가하기 위하여 마감재와 마감공법이 동일한 2개의 실에서 측정을 실시하였다. 벽과 바닥에서의 VOCs 방출량은 FLEC를 이용하여 측정하였고, VOCs의 분석조건은 Table 3과 같다. 측정간격은 각 부위의 마감이 완료된 직후와 전체 마감이 완료된 후의 1일째, 3일째, 7일째와 14일째로 하였다.

Table 1 Mock-up Condition

Structure	RC
Floors	3 floors
Mock-up	3rd floor
Volume	4.7[W]×5.3[D]×2.4[H] [m]
Temp./RH	16-24 °C/30-70% (None Air conditioning)

Plan

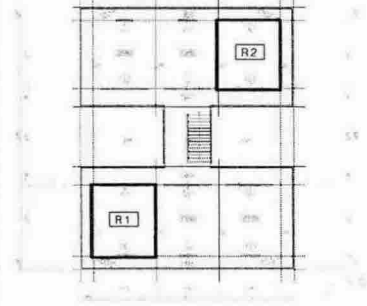


Table 2 Composition of floor, wall and Ceiling

Floor	<p>Wooden Floor (D: 7.7 × 10⁻³m)</p> <p>Floor Adh. (D: 1.2 × 10⁻⁴m)</p>
Wall and Ceiling	<p>Wall Paper (D: 5.0 × 10⁻⁴m)</p> <p>Glue (D: 1.0 × 10⁻⁴m)</p> <p>Lining Paper (D: 1.0 × 10⁻⁴m)</p> <p>Glue (D: 1.0 × 10⁻⁴m)</p> <p>Basic Sheet (D: 1.0 × 10⁻⁴m)</p>

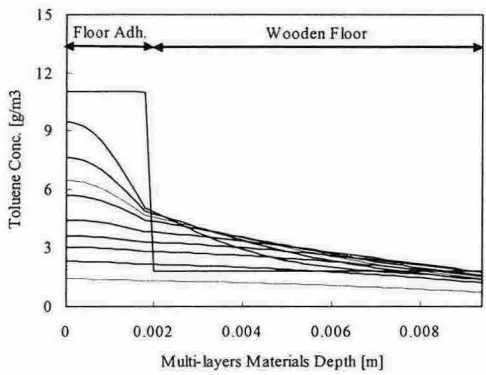
Table 3 Analysis Condition of VOCs

Sampler	Charcoal tube (SIBATA)
Sampling	10 L (167ml/min)
Desorption	Solvent desorption
Method	(carbon disulfide)
Analysis Method	GC/FID (GL Science)

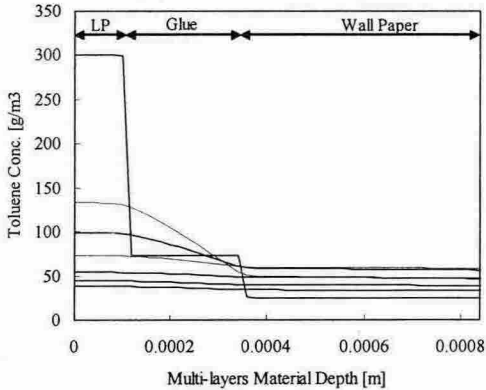
표면방출량의 측정은 환경부의 공정시험법에 준하여 대상실을 30분 동안 충분히 환기를 시킨 후 5시간 밀폐하였고, 벽과 바닥의 중앙에서 167ml/min의 유속으로 1시간 동안 총 10 L 공기를 채집하였다.

4. 복합자재의 VOCs방출량 수치해석결과

차분법으로 VOCs방출량을 수치해석 한 결과를 Fig 4와 Fig 5에 나타낸다. 각 개별자재의 확산계수는 Fig 1과 선행연구의 유효확산계수값⁴⁾을 사용하였고, 온도 조건은 20℃, 초기 자재 내부에서의 VOCs농도는 한국공기청정협회의 방출량 데이터와 단일자재에서의 VOCs거동에 관한 식 (6), (8)과 (9)를 이용하여 추정하였다. 각 개별자재의 toluene 초기농도는 자재별로 차이를 나타내고 있으나 복합자재 내에서 확산이 이루어짐에 따라 개별자재 내에서의 농도차가 감소한다. 벽 복합재의 경우 약 100시간 이후, 바닥의 경우는 이보다 긴 약 300시간 이후에는 개별자재의 농도차가 없어지고 복합자재 단일자재와 같은 내부 농도분포를 보이고 있는 것으로 나타났다.



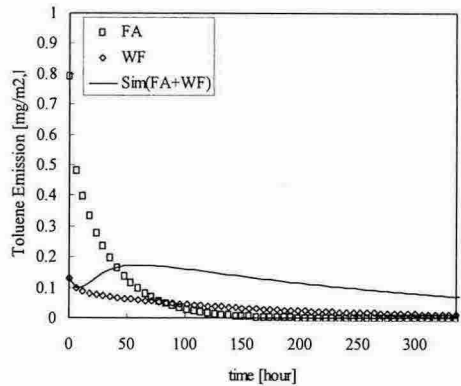
(a) Floor



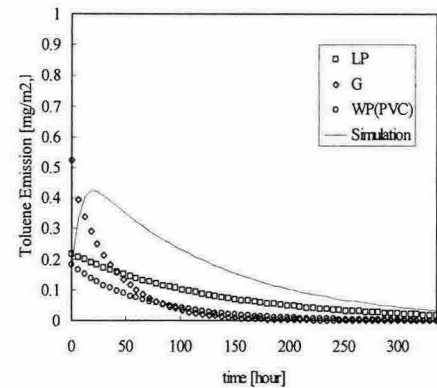
(b) Wall

Fig 4 Time variance of toluene concentrations in Multi-layers materials

복합자재에서의 toluene 방출량은 초기에는 개별 자재에서의 방출량의 합보다 높은 값을 나타내고 있으나 시간의 경과와 함께 그 차이는 줄어드는 것으로 조사되었다. 또한, 복합자재의 경우 구성자재의 유효확산계수뿐 아니라 자재의 조합에 따른 초기농도의 분포에 따라서 시간대별 toluene의 방출량에 큰 변화가 있는 것으로 나타났다. 한국공기청정협회의 HB마크의 라벨링 기준이 되는 7일째의 방출량을 살펴보면 바닥의 경우, 방출량이 약 $0.12\text{mg}/\text{m}^2\text{h}$, 벽의 경우는 약 $0.13\text{mg}/\text{m}^2\text{h}$ 의 toluene 방출량을 나타내는 것으로 조사되었다. HB마크의 경우 TVOCs농도를 기준으로 평가하기 때문에 복합자재의 결과를 직접 대입하기 어려우나 벽과 바닥의 복합자재의 경우, 최우수 등급보다는 한 단계 낮은 등급에 해당하는 것으로 추측된다.



(a) Floor

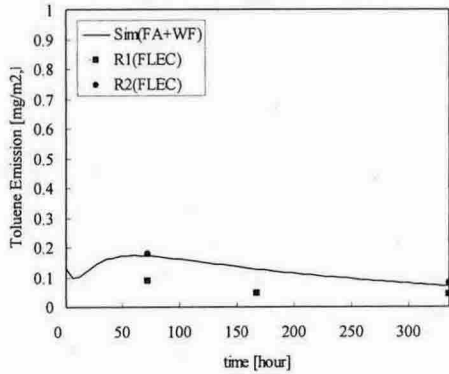


(b) Wall

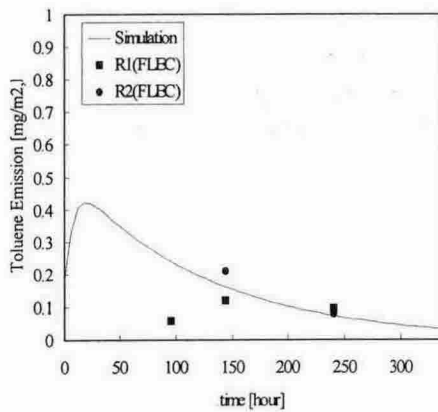
Fig 5 Time variance of toluene emission rates in multi-layers materials

5. 수치해석결과와 실험결과의 비교

Fig 6에 복합자재에서의 toluene방출량의 측정 결과 및 수치해석의 결과를 비교하여 나타낸다. 먼저, Mock-up실험에서 FLEC을 이용하여 측정 한 결과를 살펴보면 동일한 자재를 시공한 R1과 R2의 두 실에 있어 바닥과 벽 모두 약 80%정도의 차이를 나타내고 있으나 toluene의 방출량이 정상상태에 도달하면서 그 차이가 줄어들고 있음을 알 수 있다. 실험값을 수치해석의 결과와 비교하여 보면 초기에는 수치해석의 결과와 큰 차이를 보이나, 벽의 경우 약 100시간 이후, 바닥의 경우는 약 300시간 이후에는 수치해석의 결과와 유사한 값을 나타내고 있는 것을 알 수 있다. 이는 Fig 4에서 나타낸 것과 같이 복합자재 구성재



(a) Floor



(b) Wall

Fig 6 Comparing of the results of FLEC and simulation

의 초기 농도분포가 균일한 분포를 나타내는 시점과 일치하고 있다.

6. 고찰

마감재의 경우 다공의 재료(porous material)로 볼 수 있으며 내부의 미소의 공극(porosity)에서의 확산과 고체표면에서의 흡탈착 과정을 통하여 물질이 전달된다^(7,8). 따라서 자재 내에서의 확산은 미소 공극에서의 흡착등온식에 영향을 받으며 평가모델에 따라서 Langmuir형, Henry형 그리고 B.E.T.형을 적용 할 수 있다⁽⁹⁾. 본 연구에서는 이러한 흡착등온식을 유효확산계수로 단순화하여 식(6)-(9)과 을 이용하여 방출량을 계산하였고, 또한 개별자재의 접합부에서 toluene농도가 연속인 것으로 가정하였다. 이러한 가정에 따라 공극율이 상이한 다수의 개별자재로 구성된 벽 복합재의 경우 초기의 물질 전달을 과대하게 평가할 수 있음을 알 수 있다.

복합자재를 구성하는 개별 자재의 확산계수에 따라서 복합자재 내의 초기 농도분포가 정상상태에 도달하는 시간에는 큰 차이가 발생한다. 그러나 Fig 6의 결과에서 알 수 있듯이 복합자재 내에서 toluene의 농도 분포가 단일 자재와 같이 정상상태에 도달하게 되면 개별자재의 유효확산계수와 식(4)와 (5)를 통하여 정밀한 예측은 아니더라도 오더 수준에서 복합자재에서의 toluene 방출량을 구할 수 있음을 알 수 있다. 향후, 마감재 선정 단계에서 복합자재에서의 VOCs방출량과 그에 따른 실내농도를 예측하기 위해서는 개별자재의 유효확산계수와 초기농도를 이용한 복합자재에서의 VOCs방출량 간이평가법에 대한 연구가 필요할 것이다.

6. 결론

본 연구에서는 개별자재의 VOCs확산계수를 이용하여 복합자재에서의 VOCs방출량을 수치해석 하였고, Mock-up실험결과와 비교를 통하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1)복합자재의 경우 구성자재의 유효확산계수뿐 아니라 자재의 조합에 따른 초기농도의 분포에 따라서 시간대별 toluene의 방출량에 큰 변화가 있는 것으로 조사되었다.

2) 개별 자재의 확산계수에 따라서 복합자재 내의 초기 농도분포가 정상상태에 도달하는 시간에는 큰 차이가 발생하나 벽 복합자재의 경우 약 100시간 이후, 바닥의 경우는 약 300시간 이후에는 단일자재와 같은 정상상태에 도달하게 된다.

3) 개별자재의 유효확산계수와 초기농도를 이용하여 복합자재에서의 toluene 방출농도를 예측한 결과 자재 내의 농도가 정상상태에 도달한 이후에는 실험값과 양호한 상관관계를 나타내고 있는 것으로 조사되었다.

참고 문헌

1. ECA (1991), Guideline for the characterization of VOCs emitted from indoor materials and products using small test chamber, Indoor Air Quality and Its impact on Man, Report No.8,
2. J.S. Park and K. Ikeda, 2004, Exposure to the Mixtures of Organic Compounds in Homes in Japan, Indoor Air, International Journal of Indoor Air Quality and Climate, Vol.14, pp.413-42
3. J.S.Park and K.Ikeda, 2003, Database system, AFoDAS/AVODAS, on indoor air organic Compounds in Japan, Indoor Air, International Journal of Indoor Air Quality and Climate, Vol.13, pp.35-4
4. Park Junseok, Yoon Chang-hyun and Kwon Kyung-woo, 2005, Study on Prediction of VOCs Emission rates from Multi-layers Materials by using Effective Diffusion Coefficients, Proceeding of AIK 2005 fall annual conference
5. Park Jun-seok, et al, 1998, Survey on Volatile Organic Compounds and The Effect of Emissions from Building Materials in Residence, Transactions of Architecture Institute of Japan), 509, pp.27-32
6. Wolkoff, P. and Nielsen, P.A, 1996, Approach for Indoor Climate Labelling of Building Materials, Atmospheric Environments, Vol. 30, pp. 2679-268
7. F. Haghighat, et al,, 2000, Measurement of diffusion coefficients of VOCs for building materials, Indoor Ai, Vol.12, pp 81-91
8. S. Murakami, S. kato, K. Ito and Q. Zhu, 2003, Modeling and CFD prediction for diffusion and adsorption within room with various adsorption isotherms, Indoor Air (Suppl.6), Vol.13, pp.20-27
9. Murakami, et al, 2000, Modeling of mass diffusion in porous solids and prediction of indoor VOC concentration based on macroscopic model, Transactions of Architecture Institute of Japan), Vol. 535, pp.15-22

-본 연구는 과학기술부 우수연구센터육성사업의 지원(R11-2005-056 -02002-0)과 한양대학교 교내특성화연구팀(HY-2003-T)으로 지원으로 수행되었음