

水表面におけるガス交換の流体力学的モデル化と ガス輸送機構について

中村 由行*・村井 大享**

1. 緒 言

気液界面における物質輸送に関する研究事例は多いが、これまでに提案されたガス交換の予測式による推定値と実測値には、大きなばらつきがある場合が多い。この主要な原因の一つは、現実の水表面近傍でガスの輸送が律速となる濃度境界層が、一般にわずか数百マイクロン程度の厚さにすぎないため、微細な流れの構造や濃度変動を計測する事が困難であった事があげられよう。そのため、モデル化のために必要な空間分解能と計測可能な分解能がかい離しており、モデル化の発展が妨げられてきたと考えられる。ところが、最近空間分解能が数十マイクロン程度の微小酸素電極が広く実用化され、これを用いて水表面近傍での詳細な溶存酸素濃度の計測が行われるようになり、濃度境界層での実験的知見が報告されはじめている (Chu・Jirka, 1992; 中村ら, 1996)。本研究は、時間応答性の良い電極を用いた実験を行い、濃度変動や濃度境界層の構造に関する新たな知見を得るとともに、これらの知見に基づいて、水表面近傍の水塊の三次元的な渦運動の効果を取り込み、かつ非定常な拡散輸送を考慮した数理モデルを作成する事を目的とする。

2. 数理モデル

表面渦構造の影響を取り入れたガス交換のモデル化は、すでに提案されているものの、それらは二次元的に単純化された運動を考えており、現実の流体の渦運動にはほど遠い (Fortescue・Pearson, 1967; Luk・Lee, 1986; Lamont・Scott, 1970)。そのため、ガス交換速度と流れの乱流量を如何に関係づけるか、という根本的な問題が依然未解決のままである。本研究は、三次元的な、より現実に近い渦構造を考慮したモデル化を行い、ガス交換の機構に関する考察を行う。

本モデルが対象とする気体は、酸素のような比較的溶解しにくい物質であり、その場合には濃度境界層が液体側にのみ形成されるため、解析が容易になる。このような物質には、酸素のほか炭酸ガスがあり、工学的、或い

は地球温暖化に関連した重要な物質の多くが含まれる。

(1) モデルの概要

現実の水表面近傍における流体の運動は、湧昇流と下降流が入り組んだ、複雑な流れであると考えられる。本モデルでは、まず水表面近傍の流れ場を、図-1のように、湧き出し点と沈み込み点が交互に並んだ正方形のセル構造であるとモデル化する。このような渦構造を持つ流体塊がある時間 t_{exp} 水面に存在し、その間に溶解物質が水深方向に非定常的に拡散していくと考えよう。ここで考えている水深のスケールは、一般に Kolmogorov の最小渦よりも小さく、拡散は分子拡散のみを考えれば良いであろう。さて、 t_{exp} 時間滞在した流体塊は、瞬間的に下方の流体塊と置換され、新たに水面に接した流体塊に、再び物質が拡散により非定常的に輸送される。水表面近傍では、流れは湧き出し点・沈み込み点において鉛直上向き或いは下向きで、ともに水平流速成分はゼロであり、セルの中間点で水平成分が最大であるとしよう。このような流れのうち、最も単純な流れは、次のような正弦関数で表される (図-2 参照)。

$$u = V \sin(\pi x/L), v = V \sin(\pi y/L) \dots \dots \dots (1)$$

ここで、 V は水表面近傍における代表速度スケールであ

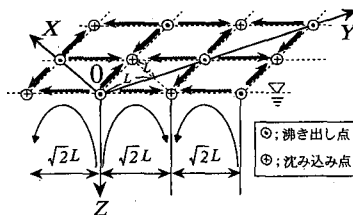


図-1 三次元モデルの渦構造の模式図

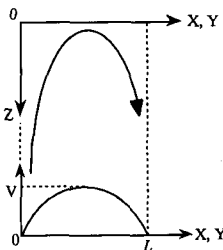


図-2 表面渦の流速分布

* 正会員 工博 運輸省港湾技術研究所海洋環境部
** 正会員 工修 (株)大林組

る。本モデルは、渦運動としては図-1に示すような三次元的な構造を考えているが、解析の対象領域となる濃度境界層厚さは渦のスケールに比べてかなり小さいので、流速 u, v の水深方向の変化は無視できるものと単純化する。

(2) 理論展開

基礎式として、濃度境界層内での溶存物質の拡散方程式、及び連続の式を考える。水平方向の長さスケール L は、水深方向のスケール（濃度境界層厚さ）と比べて十分大きいと考えられるので、水平方向の拡散項は鉛直方向拡散項に比較して無視できる。従って、基礎式は以下のように書く事ができる。

$$\frac{\partial C}{\partial t} + u \frac{\partial C}{\partial x} + v \frac{\partial C}{\partial y} + w \frac{\partial C}{\partial z} = D \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \dots\dots\dots (2)$$

$$\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} + \frac{\partial w}{\partial z} = 0 \dots\dots\dots (3)$$

ここで、 C は溶解物質濃度、 D は分子拡散係数である。初期条件及び境界条件は、以下の様に与えられる。

I.C. $C = C_b$: at $t = 0$

B.C. $C = C_b$: at $z \rightarrow \infty$ $\dots\dots\dots (4)$

$C = C_s$: at $z = 0, t > 0$

ここで、 C_s, C_b はそれぞれ溶解物質の飽和濃度及び bulk 濃度である。濃度境界層厚さは L に比べて十分小さいので、 u, v の水深方向の変化は無視できるものとする。水面の変動がない条件 ($w = 0$) から、次式が成り立つ。

$$w = -\left(\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y}\right)z \dots\dots\dots (5)$$

式 (1), (5) を式 (2) に代入する事により、次式が導かれる。

$$\frac{\partial C}{\partial t} + u \frac{\partial C}{\partial x} + v \frac{\partial C}{\partial y} - \frac{\pi V}{L} z \left(\cos \frac{\pi x}{L} + \cos \frac{\pi y}{L} \right) \frac{\partial C}{\partial z} = D \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \dots\dots\dots (6)$$

上式の解は解析的に得られ、以下の様に表わされる。

$$C_* \equiv (C - C_b) / (C_s - C_b) = \frac{1}{2} \left[\operatorname{erfc} \left\{ z_* \sqrt{\coth t_* + \cos x_*} \right\} / 2 \right] + \operatorname{erfc} \left\{ z_* \sqrt{\coth t_* + \cos y_*} \right\} / 2 \right] \dots\dots\dots (7)$$

ここで、 x_*, y_*, z_*, t_* は以下のような無次元数である。

$$x_* \equiv x/L, y_* \equiv y/L, z_* \equiv (\pi V / 2DL)^{1/2} z, t_* \equiv Vt/L \dots\dots\dots (8)$$

式 (7) は、空間内に決まったサイズの渦が定期的な存在するとき、水表面近傍の固定点における時々刻々の濃度変化を示している。これに対し、現実に測定される濃度は、様々な渦が測定点に影響を及ぼした結果として、面的に平均化された濃度であると考えられる。そこで、式 (7) から求めた溶解物質濃度のセル内での水平面に

おける空間平均値を “-” で表し、さらに流体塊が水面に露出する時間で平均された値を $\langle \rangle$ によって表せば、平均量は以下のように表される。

$$\bar{C}_* \equiv (\bar{C} - C_b) / (C_s - C_b) = \int_0^1 \operatorname{erfc} \left\{ z_* \sqrt{\coth t_* + \cos \pi x_*} \right\} / 2 dx_* \dots\dots (9)$$

$$\langle \bar{C}_* \rangle \equiv (\langle \bar{C} \rangle - C_b) / (C_s - C_b) = \frac{1}{t_{*exp}} \int_0^{t_{*exp}} \{ (\bar{C} - C_b) / (C_s - C_b) \} dt_* \dots\dots (10)$$

濃度の乱れ成分を、 xy 平面での空間的平均値からの偏差であると定義すれば、濃度変動成分も同様に、以下のように表すことができる。

$$\bar{C}^2 / (C_s - C_b) \equiv \int_0^1 \int_0^1 (C - \bar{C})^2 / (C_s - C_b) dx_* dy_* \dots\dots\dots (11)$$

$$\langle \bar{C}^2 \rangle / (C_s - C_b) \equiv \frac{1}{t_{*exp}} \int_0^{t_{*exp}} \sqrt{\bar{C}^2} / (C_s - C_b) dt_* \dots\dots\dots (12)$$

式 (9) から、初期時刻 $t_* = 0$ においてバルクにあった流体塊が水面に接し、以後、非定期的に溶解物質が拡散によって浸透していく様子を計算によって求める事ができる。図-3及び図-4は、水平面内で平均化された溶解物質濃度、及び濃度変動成分の時間的な変化過程を示す。平均濃度は深さとともに単調に減少するのに対し、濃度変動成分は $z_* \sim 1$ の近傍で極大値をとることがわかる。

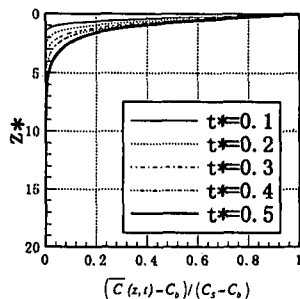


図-3 表面更新後の溶解物質濃度の時間変化

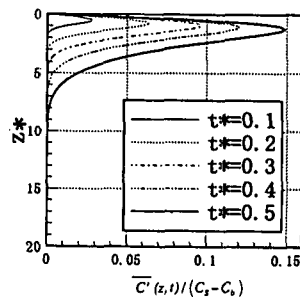


図-4 濃度変動成分の時間的な変化

(3) ガス交換係数 K_L の理論解

次に、ガス交換係数 K_L の理論解を求めてみよう。 K_L は、水表面でのフラックスに関連して、以下のように定義される。

$$J = K_L(C_s - C_b) = -D\partial C/\partial z|_{z=0} \dots\dots\dots (13)$$

上式の K_L は瞬間的かつ局所的な値であるが、工学的に問題となるのは、その平均値である。式 (10), (13) より、 K_L の空間・時間平均量を求めると、次式のようになる。

$$\langle \bar{K}_L \rangle = \frac{2\sqrt{2}}{\pi} F(t_{*exp}) (DV/L)^{1/2} \dots\dots\dots (14)$$

ただし、 F は以下のように与えられる。

$$F(t_{*exp}) = \frac{\pi}{2\sqrt{2}} \frac{1}{t_{*exp}} \times \int_0^{t_{*exp}} \int_0^1 \sqrt{(\coth \pi t_* + \cos \pi x_*)} dx_* dt_* \dots\dots (15)$$

(4) Large Eddy モデルと Small Eddy モデル

従来から、水表面の更新現象を支配しているのがエネルギー含有渦程度の Large Eddy か、或いは Kolmogorov スケールで代表されるような Small Eddy かについて、議論されてきた。現在までの知見では、乱流強度が相対的に弱い場合には Large Eddy が、強い場合には Small Eddy が現象を支配するとされており、それぞれ乱流レイノルズ数の $-1/2$ 乗及び $-1/4$ 乗に比例するとされている (例えば、Brumley・Jirka, 1988; Theofanous et al., 1976)。

式 (14) により、ガス交換係数は渦の速度及び長さスケール V , L に支配されていることが分かる。そこで、現象が Large Eddy によって支配されている場合と、Small Eddy によって支配されている場合の両方について、さらに式展開してみよう。まず、現象が Large Eddy によって支配されている場合には、渦の速度スケール V は水表面での水平方向乱れ速度 u'_s に依存し、長さスケールは L は積分長さスケール L_∞ に比例すると考えられるので、 a_1 , a_2 を比例定数として、

$$V = a_1(\pi/2)u'_s, \quad L = a_2(2L_\infty) \dots\dots\dots (16)$$

が成り立つ。従って、水深方向の濃度変化を規定する長さスケール L_D (式 (8) において $z_* = 1$ に相当する水深) 及び無次元の気体輸送係数は以下のように導かれる。

$$L_D = 2L_\infty Sc^{-1/2} Re_L^{-1/2} \dots\dots\dots (17)$$

$$\langle \bar{K}_L \rangle / u'_s = \frac{2A}{\sqrt{\pi}} F(t_{*exp}) Sc^{-1/2} Re_L^{-1/2} \dots\dots\dots (18)$$

ここで、 $A = \sqrt{a_1/a_2}$, Re_L は乱流レイノルズ数であり、次式で定義される。

$$Re_L = 2u'_s L_\infty / \nu \dots\dots\dots (19)$$

一方、Small Eddy が支配的であるとき、 V , L はそれぞれ Kolmogorov の最小渦の速度 u_k 及び長さスケール l_k に対応するであろう。それらはエネルギー散逸率 ϵ およ

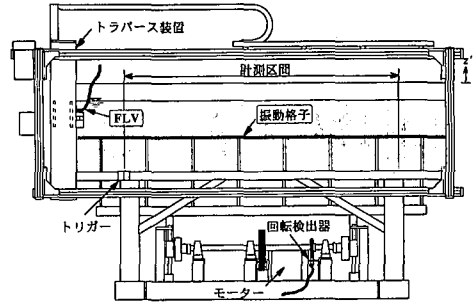


図-5 振動格子乱流装置の概略図

び動粘性係数 ν に依存し、

$$u_k = (\nu\epsilon)^{1/4}, \quad l_k = (\nu^3/\epsilon)^{1/4} \dots\dots\dots (20)$$

と表されるが、 ϵ が $u'_s{}^3/L_\infty$ に比例することが期待されるため、これらの関係式を式 (14) に代入すると、乱流 Re 数の $-1/4$ 乗に依存するという、次式が得られる。

$$\langle \bar{K}_L \rangle / u'_s = BF(t_{*exp}) Sc^{-1/2} Re_L^{-1/4} \dots\dots\dots (21)$$

但し、 B は比例定数である。以上より、本理論によって、現象が Large Eddy によって支配されている場合、及び、Small Eddy によって支配されている場合について、経験的に知られているレイノルズ数依存性の違いを説明することができた。

3. 振動格子乱流場での実験

水表面近傍の乱れや濃度場の知見を得るために、さらにガス交換速度やガス交換機構を調べるため、振動格子乱流場で実験を行った。振動格子乱流は乱れを制御しやすく、かつ乱流条件に関する知見が蓄積されており (例えば、Hopfinger・Toly, 1976; 油島, 1997)、このような基礎的な実験には最適であると考えられる。

(1) 振動格子水槽の概要

本実験で用いた振動格子水槽の概要を図-5 に示す。水槽は、長さ 200.0 cm、高さ 50.0 cm、奥行き 25.0 cm のアクリル製で、角柱正方格子 (メッシュサイズ $M = 4.42$ cm, 棧幅 $d = 0.88$ cm, $M/d = 5.0$) を水槽底部から 20.0 cm 上方に取り付け、これをストローク S で鉛直に振動させる事により乱れを発生させた。乱れの強さは格子の振動数 f (Hz) を変化させる事により数段階に制御した。従来用いられてきた振動格子水槽は、水槽上方から見て正方形の断面を持つものが一般的である。本実験で用いた水槽は、従来型とは異なり、細長くつくられている。このため、流速計や濃度プローブを水平的に一定速度でトラバースさせる事によって、乱れの長さスケールや、エネルギー散逸率の値を精度良く求める事ができる。特に乱れ速度に関しては、水槽外部からレーザー流速計を水平トラバースする事によって、非接触条件で実験を行う事ができるという特徴を有する。

振動格子装置により発生させた乱れの、水表面での代表速度 u'_s 、および積分長さスケール L_∞ は、様々な実験条件での結果を総合して、以下のように表される事が示されている (油島, 1997)。

$$u'_s = 0.27 f S^{1.5} M^{0.5} Z_s^{-1} \dots \dots \dots (22)$$

$$L_\infty = 0.132 Z_s - 0.359 \dots \dots \dots (23)$$

ここで、 Z_s は格子の振動中心位置から水表面までの距離である。表-1 に実験条件を示す。実験では、ストローク S を一定とし、振動数 f のみを変化させ、乱流強度を5段階に変化させた実験を行った。

(2) 溶存酸素濃度の測定

水槽に水道水を所定の位置まで満たし、窒素曝気する事によって水槽内の溶存酸素濃度を予め下げてから実験を開始させた。振動格子水槽とは独立に取り付けた鉛直トラバース装置(電導シリンダー, オリエンタルモーター製 CPHS 15 T 2.3 MD)に微小酸素電極を固定した。濃度測定は水表面から 30 mm 以内の領域を、最小測定間隔 $\Delta z = 100 \mu\text{m}$ の間隔で測定し、一測点あたり約 80 秒間ずつ溶存酸素濃度の時系列計測を行った。このような測定を 60~120 分毎に行い、バルクの溶存酸素濃度の時系列データから、ガス交換係数を次式を用いて計算した。

$$\ln[(C_s - C_b)/(C_s - C_{b0})] = -(A_s t / V_0) K_L \dots (24)$$

ここで、 C_{b0} は実験開始時 ($t=0$) のバルクの溶存酸素濃度、 A_s は水槽の水表面積、 V_0 は水槽の水の全体積である。

濃度時系列の一例として、図-6 に、振動条件が $Re_L = 756$ の場合において、水面直下(水面下 20 μm 以内、以後、 $z=0.0 \text{ mm}$ と示す)、水面から 0.4 mm 及び 1.0 mm の測定結果を示す。図中の z は水表面を原点として鉛直下

向きを正にとった座標である。水表面から遠ざかるにつれて濃度の平均値が減少するが、濃度変動は水面よりも中間的な領域(ここでは $z=0.4 \text{ mm}$)において最も大きい。水面下わずか 1.0 mm で、濃度はバルク濃度に極めて近くなり、時折、スパイク状に濃度が上昇する。これは、水面近傍の濃度の高い水塊が下降流によって運ばれた場合に相当するものと考えられる。反対に水表面での濃度時系列を見ると、数秒に一度程度の頻度で表れる大きな濃度変動と、飽和濃度近傍の微細な濃度変動が重なっている事がわかる。濃度の急な減少は、水面下に存在していた濃度の低い流体塊が水表面に運ばれ、それまで存在していた水塊に更新された結果であると考えられる。

(3) 結果と考察

実験により得られた平均濃度及び濃度変動成分の鉛直分布をそれぞれ図-7, 図-8 に示す。振動格子水槽を用いた著者らによる従来の実験結果(中村ら, 1997)から、乱流レイノルズ数が 1000 以下では Large Eddy がガス交換過程を支配している事が示唆されている。そこで、理論展開において Large Eddy が支配的であるとして得られた鉛直の濃度境界層スケール L_D を用いて、実験の全データを無次元表示して整理した。その結果、平均濃度に関しては、いずれの結果も、水面からほぼ指数関数的に、同一曲線上に乗りながら減少する事が示された(図-7)。また、濃度変動成分に関しては、乱流強度によって多少のばらつきはあるものの、 $Z \sim 5L_D$ において極大値をとり、水面やバルク領域に近づくほど濃度変動が減少する事が示された。このように、濃度境界層スケール L_D によって濃度分布が統一的に表される事から、Large Eddy が濃度場を支配している事が強く示唆される。

表-1 実験条件

	f (Hz)	S (mm)	Z_s (mm)	$2L_\infty$ (mm)	u'_s (mm/s)	Re_L	Sc	水温($^\circ\text{C}$)
Run 1	1.2	60	200	52.1	5.00	221	674	13.7~14.0
Run 2	2.0	60	200	52.1	8.34	359	710	12.6~13.3
Run 3	3.0	60	200	52.1	12.5	545	694	12.6~13.5
Run 4	4.0	60	200	52.1	16.7	756	641	13.7~15.9
Run 5	5.5	60	200	52.1	22.9	1056	621	14.1~16.6

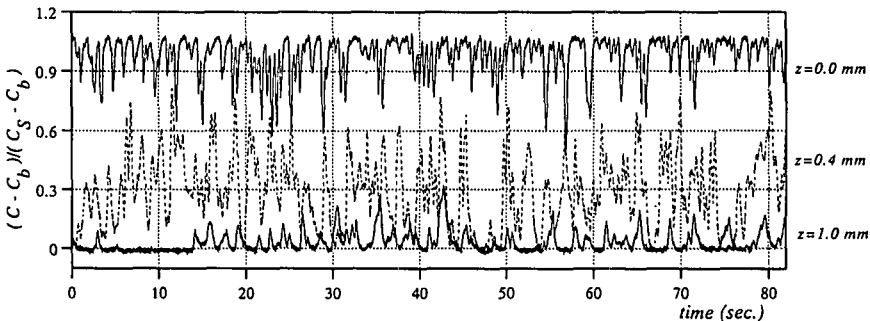


図-6 水表面近傍の濃度時系列の一例 (乱流レイノルズ数=756 の場合)

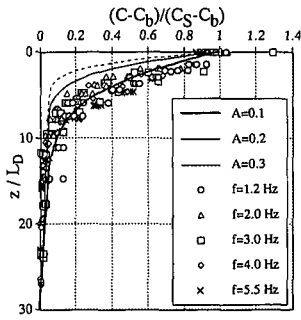


図-7 平均 DO 濃度分布の実験値と計算値

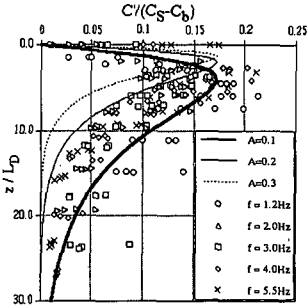


図-8 DO 濃度変動成分の鉛直分布

そこで、さらに理論解析の結果得られた濃度分布と比較を行う。Large Eddy が現象を支配しているときには、式 (10), (12) および (16) によって平均濃度、及び濃度変動成分の分布を計算できる。ここで未定定数は t_{*exp} 及び A であるので、両者の値を数段階変化させ、理論計算の結果と実験結果を比較した。平均濃度及び濃度変動成分のいずれの鉛直分布についても、 $t_{*exp}=0.5$, $A=0.1\sim 0.2$ の範囲で、理論計算の結果は実験値の分布を良く再現した。

次に、ガス交換係数についても、同様にパラメータ依存性を調べた。式 (25) を用いて得られたガス交換係数と、Large Eddy が支配的である場合に期待されるレイノルズ数及びシュミット数の積の -0.5 乗との相関関係を示した結果が図-9 である。図には、Chu・Jirka (1992) が振動格子水槽で求めた結果も合わせてプロットした。実験値にややばらつきがあるものの、概ね直線関係があり、やはり Large Eddy が現象を支配しているものと考えられる。さらに、理論解析の結果と比較すると、 $A=0.2$, $t_{*exp}=0.5$ とおくと理論は実験値をうまく説明する事がわかり、濃度分布に対する結果 (図-7, 8) と矛盾のない結果が得られた。

4. 結 論

水表面におけるガス輸送フラックスを評価するため、振動格子乱流場での実験と理論解析を行った。Large

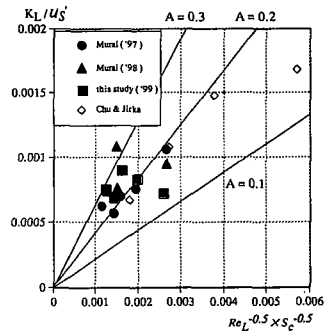


図-9 無次元気体輸送係数の実験値と計算値の比較

Eddy に対する理論解析の結果は、平均濃度及び変動濃度の鉛直分布、さらに気体輸送係数に関する実験結果を、ともに精度良く説明する事ができた。従って、振動格子乱流場において、乱流レイノルズ数が 1000 以下の範囲では、気体輸送は Large Eddy によって支配されていると結論できる。さらに、気体輸送係数の理論式は、様々な流れ場において経験的に認められてきた知見、すなわち Large Eddy 或いは Small Eddy がガス交換現象に対して支配的である場合のパラメータ依存性の違いを良く説明した。従って、本数値モデルは振動格子乱流場に限らず、広範囲な乱流場におけるガス交換速度を予測するモデルとして幅広く適用可能であると考えられる。

参 考 文 献

中村由行・村井大亨・小松利光・油島栄蔵・井上徹教・柴田敏彦 (1997): 微小酸素電極を用いたガス交換機構に関する実験的研究, 海岸工学論文集, 第 44 巻, pp. 1236-1240.
 村井大亨 (1999): 水表面の乱れとガス交換に関する研究, 九州大学工学研究科修士論文, 49 p.
 油島栄蔵 (1997): 振動格子乱流場の乱流構造に関する基礎的研究, 九州大学工学研究科修士論文, 49 p.
 Brumley, H. B. and G. H. Jirka (1988): Air-water transfer of slightly soluble gases:turbulence, interfacial processes and conceptual models, Physico-Chem. Hydrodyn., Vol.10, pp. 295-319.
 Chu, C. H. and G. H. Jirka (1992): Turbulent gas flux measurements below the air-water interface of a grid-stirred tank, Int. J. Heat Mass Transfer, Vol. 35, pp. 1957-1968.
 Fortescue, G. E. and J. R. Pearson (1967): On gas absorption into a turbulent liquid, Chem. Eng. Sci., Vol. 22, pp. 1163-1176.
 Hopfinger, E. J. and J. A. Toly (1976): Spatially decaying turbulence is a grid-stirred tank, J. Fluid Mech., Vol. 78, pp. 155-175.
 Lamont, J. C. and D. S. Scott (1970): An eddy cell model of mass transfer into the surface of a turbulent liquid, AIChE Journal, vol. 16, pp. 513-168.
 Luk, S. and Y. H. Lee (1986): Mass transfer in eddies close to air-water interface, AIChE Journal, Vol. 32, pp. 1546-1554.
 Theofanous, T. G., R. N. Houze and L. K. Brumfield (1976): Turbulent mass transfer at free, gas-liquid interfaces, with applications to open-channel, bubble and jet flows, Int. J. Heat Mass Transfer, Vol. 19, pp. 613-624.