

水表面乱流の微細構造に着目したガス交換機構の研究

津 守 博 通*・杉 原 裕 司**

水表面に形成される乱流の微細構造に着目して、振動格子乱流場におけるガス交換機構を実験的に調べた。PIV および LIF の手法を用いて、水表面における乱流構造および CO_2 吸収過程の可視化を行った。また、 O_2 をトレーサースガスとしてガス交換係数 k_L を算定し、PIV から求めた乱流特性量との関係について検討した。LIF の結果から乱流状態の水表面における表面更新の実際の様子が明らかとなった。水表面における CO_2 濃度場は微細な空間構造を有しており、テイラーマイクロスケールで特徴づけられる水平流速発散場の構造と類似していることがわかった。また、 k_L は水平発散の rms 値を用いて定量化できることが示された。

1. 緒 論

大気海洋間における CO_2 , O_2 などのガス交換機構を明らかにすることは、海岸工学・水理学の立場から地球環境問題に寄与する基礎研究として重要である (例えば、角野他, 2000)。 CO_2 , O_2 などの低溶解性のガスは液側抵抗支配となるため、液側の輸送速度が水表面でのガスフラックスを規定する。しかし、液側濃度境界層は数百 μm と極めて薄く、ガス交換現象の直接的な観察は困難である。そのため、乱流水表面でのガス交換機構には未解明の点が多く、このことがガスフラックスの評価モデルを確立する上での妨げとなっている。液側濃度境界層は乱流渦によって絶えず、変形、崩壊を繰り返しており、物質移動の素過程を明らかにするためには水表面乱流の微細構造の理解が不可欠であると思われる。振動格子乱流場は、近似的に平均流がなく、一様等方場に比較的近い理想的な乱流場である。このような単純乱流場におけるガス交換の素過程を調べることは、乱流渦によるガス交換の実態を解明する上で重要である。本研究の目的は、粒子画像流速計 (Particle Image Velocimetry: PIV) およびレーザー誘起蛍光法 (Laser-Induced Fluorescence: LIF) を用いて、振動格子乱流場における水表面乱流の微細構造および CO_2 吸収過程を直接可視化し、乱流水表面でのガス交換機構を実験的に検討することである。また、 O_2 をトレーサースガスとして水表面でのガス交換係数 k_L を算定し、乱流特性量との関係についても検討する。

2. 実験方法およびデータ解析

図一1に本研究で用いた実験装置の概略図を示す。実験には、近似的に平均流がなく、機械的に乱れの強さを制御できる振動格子乱流水槽を用いた。縦、横の長さが 25 cm、深さが 60 cm の水槽内で、メッシュ間隔 $M=5$ cm の正方角柱格子を鉛直振動させることで乱れを発生

させた。表一1に実験条件を示す。ここで、 f_g, S_g は格子の振動数および振幅であり、 z_s は格子振動中心から水表面までの距離である。また、 Re は $f_g S_g^2 / \nu$ で定義される格子レイノルズ数、 ν は水の動粘性係数である。水表面での流速計測には PIV を用いた。可視化のトレーサースにはナイロンパウダー (密度: 1.02 g/cm^3 , 粒径: $50 \mu\text{m}$) を使用し、プロジェクターのスリット光を水槽側面から挿入して、水槽直上からデジタルビデオカメラを用いて撮影を行った。撮影された動画から、 $1/30 \text{ s}$ で静止画像をサンプリングして、PIV 解析を行った。解析領域は水槽の壁面から 2.5 cm 離れた $20 \times 20 \text{ cm}^2$ の範囲であり、画素数および空間分解能 Δl は表中に示されている。得られた流速データから、乱れエネルギー k_s 、エネルギー散逸率 ϵ_s 、水平流速発散の rms 値 β_{rms} 、積分長さスケール l 、縦のテイラーマイクロスケール λ_z 、水平流速発散の波数スペクトル $S_p(k)$ 等の乱流特性量を算定した。これらの算定においては、水表面上での水平流速の鉛直勾配および鉛直流速が 0 であり、水平面内で乱れは等方的であると仮定されている。5 枚の流速画像に対して同様の統計量を求め、それらの算術平均を取ることによって最終的な値を決定した。ここでは、1 枚の画像につきピクセル数に相当する数の統計平均を行っており、そのサンプル数は十分であると考えられる。

ガス交換係数 k_L の測定には、トレーサースガスとして O_2 を用いた。あらかじめ窒素ガスを曝気することにより、水槽内の DO を $2 \sim 3 \text{ mg/l}$ 程度まで低下させて、DO の復元する時間変化を電極センサー (TOA DO-25A) により測定した。そして、得られた DO の時間変化から k_L を算定した。また、DO メーターの値を検定するために、実験開始、終了後に採水を行い、ウィンクラー法による DO 滴定を行った。 k_L の値は水温にも依存するため、実験から求めた k_L は、Elmore and West (1961) の式を用いて 20°C の値に補正した。

LIF による CO_2 の吸収過程の可視化には、水溶性蛍光染料のフルオレセインナトリウム ($\text{C}_{20}\text{H}_{10}\text{O}_5\text{Na}_2$) を用いた。 CO_2 を吸収することでフルオレセインナトリウム水

* 学生会員 修(工) 九州大学大学院総合理工学府大気海洋環境システム専攻
** 正会員 博(工) 九州大学助手 大学院総合理工学研究院流体環境理工学部門

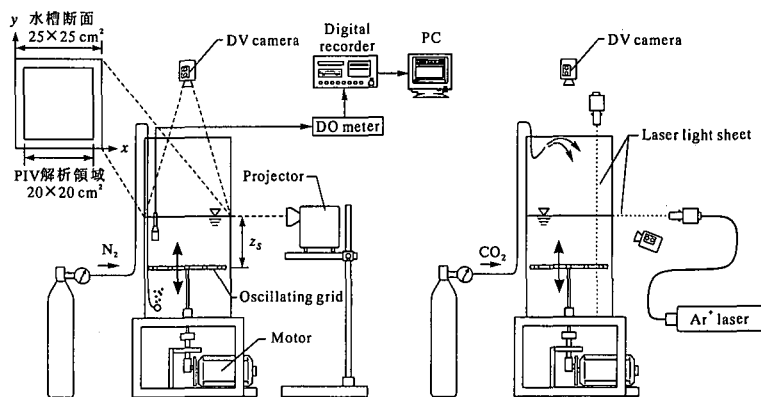


図-1 実験装置の概略図

表-1 実験条件

Run No.	f_0 (Hz)	S_0 (cm)	M (cm)	z_s (cm)	Re	pixels	dl (mm)	k_L (cm/s)
1	2.0	4.0	5.0	15	3.73×10^3	344×344	0.58	8.18×10^{-4}
2	2.0	4.0	5.0	10	3.73×10^3	316×316	0.63	9.74×10^{-4}
3	2.0	4.0	5.0	7.5	3.73×10^3	316×316	0.63	1.20×10^{-3}
4	4.0	4.0	5.0	15	7.47×10^3	344×344	0.58	9.69×10^{-4}
5	4.0	4.0	5.0	10	7.47×10^3	316×316	0.63	1.31×10^{-3}
6	4.0	4.0	5.0	7.5	7.47×10^3	316×316	0.63	1.76×10^{-3}
7	2.0	6.0	5.0	15	8.40×10^3	344×344	0.58	1.46×10^{-3}
8	4.0	6.0	5.0	15	1.68×10^4	344×344	0.58	2.61×10^{-3}

溶液の pH が低下し、その部分の蛍光強度が低下する性質を利用して、 CO_2 吸収過程を可視化した。竹原他 (1999) の研究例から、水溶液の濃度が $2.5 \times 10^{-6} \text{ mol/l}$ になるようにフルオレセインナトリウムを水道濾過水に溶かし、アルゴンイオンレーザースリット光を水槽に挿入した。フルオレセインナトリウムの溶解後、水槽の蓋に当てるようにして CO_2 を約 10 l/min の流量で注入し、格子を振動させて可視化を行った。なお、水槽の上面は一部開放されており、実験条件は Run 1 と同じ条件である。水面下約 0.5 mm 程度の位置に水槽側面から水平にスリット光を挿入し、水槽直上からデジタルビデオカメラおよびデジタルカメラで水平断面の撮影を行った。また、水槽直上からスリット光を挿入し、水表面付近の鉛直断面の可視化も行った。カメラレンズには透過限界波長が 520 nm のシャープカットフィルターを装着し、蛍光のみを撮影するようにした。

3. 実験結果および考察

図-2 に、PIV によって得られた Run 1 における水表面の瞬間流速場を示す。この図より、振動格子乱流場における水表面の乱流構造は一様等方的な性質を示していることがわかる。また、乱流中には比較的大規模な水平渦が形成されていることがわかる。

図-3, 4 は、それぞれ図-2 の流速場から算定した鉛直渦度と水平流速発散の等値線図である。図中の実線は、正の値、破線は負の値を表している。図-3 の比較的大き

な渦度領域は図-2 の水平渦と対応しており、渦度の変動は比較的大きな空間スケールを有している。図中には、Run 1 における積分長さスケール l とテイラーマイクロスケール λ を示しており、この条件ではそれぞれ、 $l = 2.73 \text{ cm}$ 、 $\lambda = 0.61 \text{ cm}$ である。この図より、水平渦は積分長さスケール程度の大きさを有することがわかる。一方、図-4 の発散の空間分布は正と負の領域が複雑に入り混じっており、渦度よりも微細な空間構造をもっていることがわかる。水平発散の変動スケールは、積分長さスケールよりもむしろテイラーマイクロスケールに近いようである。

図-5 に、水槽の水平断面を可視化した LIF の結果を示す。図中の黒い部分が、水中に CO_2 が吸収されて蛍光強度が低下した部分である。図中には、積分長さスケール程度の渦が可視化されており、 CO_2 が溶け込んで黒くなった流体は積分スケールの水平渦によって移流、伸張されている様子がわかる。また、バルク領域から上昇してきたフレッシュな流体塊がパッチ状に出現しており、この領域で水表面近傍に形成されていた濃度境界層が崩壊し、 CO_2 が効果的に溶け込んでいく。そして、黒くなった高 CO_2 濃度の流体の一部は、上昇流に押しのけられ、下降流域に集積し、バルク領域へと取り込まれている。 CO_2 濃度変動場の空間構造は、図-4 で示された水平流速発散の構造に類似しているように思われる。Handler et al. (1999) は、界面で温度を一定に保った場合と、温度フラックスを一定にした場合の開水路のスカラー輸送に

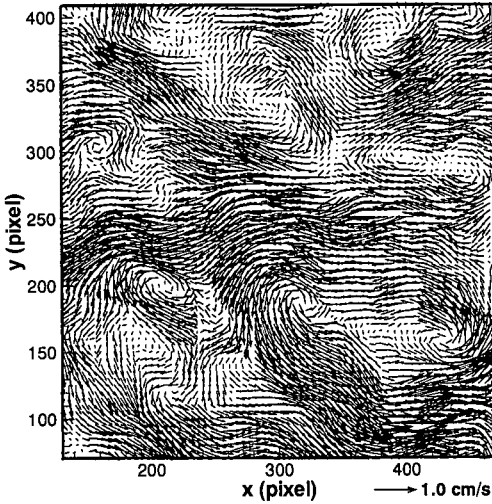


図-2 水表面の瞬間流速

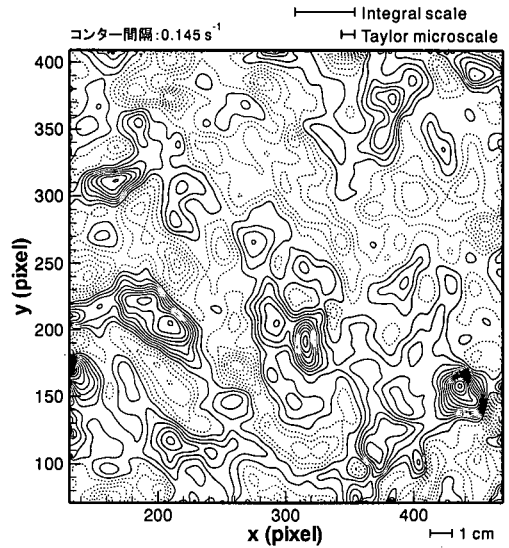


図-3 水表面の鉛直温度

ついて DNS を行い、どちらの場合においても、図-5 のパターンに類似した、水表面ごく近傍における瞬間の温度変動のパターン図を示している。さらに彼らは、温度変動分布と鉛直方向の流速変動（上昇流，下降流）の分布にはよい相関関係があること示しており，本実験の振動格子乱流場においても相関関係があるものと考えられる。

図-6 に，同一の条件において水槽の鉛直断面を可視化した LIF の結果を示す。この可視化写真は，カメラを水表面の下から角度をつけて撮影しているため，水表面に反射された部分も撮影されている。可視化写真のほぼ中央にわたっている黒い筋が，水表面近傍に形成される濃度境界層であり，水表面はその筋の中央にある。画像から算定した濃度境界層厚さは約 $270\ \mu\text{m}$ である。実験で求めた O_2 の k_L から，シュミット数 $Sc (= \nu/D, D: \text{ガスの分子拡散係数})$ で換算した CO_2 の k_L を用いて算定した Lewis-Whitman 膜厚 $\delta (= D/k_L)$ は $500\ \mu\text{m}$ ，また，コルモゴロフスケール $l_k (= (\nu^3/\varepsilon_s)^{1/4})$ は $860\ \mu\text{m}$ であり，両者と比べても，濃度境界層の方が小さなスケールとなっている。また，この図では，テイラーマイクロスケールと同程度の渦構造が可視化されている。この渦は，バルク領域から上昇してきた流れが，水表面にぶつかって水平方向に流れだし，それが渦巻いてできたものと考えられる。このような渦が表面更新渦に相当し，境界層内の高い濃度の流体をバルク領域へと輸送しているものと考えられる。ただし，可視化では小規模の乱流渦を確認することは困難であり，図中の渦のスケールが必ずしも代表的な表面更新渦のスケールではないことに注意する。

LIF の可視化結果より，流速の水平発散に対応するよ

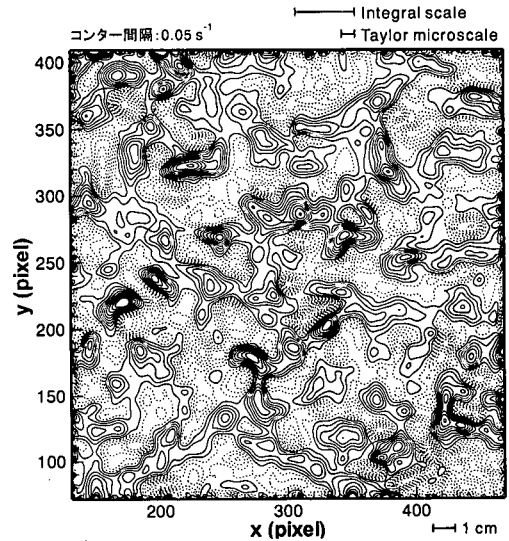


図-4 水表面の水平流速発散

うな微細な乱流スケールが，水表面でのガス交換を規定していることが示唆された。次に，水平発散を特徴づけている長さスケールについて考察する。図-7 に，水平発散の波数スペクトル $S_\theta(k)$ を示す。ここでは，同一の振動条件 ($f_0 = 4.0\ \text{Hz}$, $S_0 = 4.0\ \text{cm}$) で水深を変化させた実験結果を示している。水深が浅くなるにつれて，スペクトルが大きくなっているが，それらの中に卓越波数を見出すのは困難である。次に代表速度スケールとして $k^{1/2}$ ，長さスケールとしてテイラーマイクロスケール λ を用いて $S_\theta(k)$ の規格化を行う。図-8 に規格化された波数スペクトルを示す。この図からわかるように，無次元波数スペクトルは，水深に依存せず普遍表示されることがわか

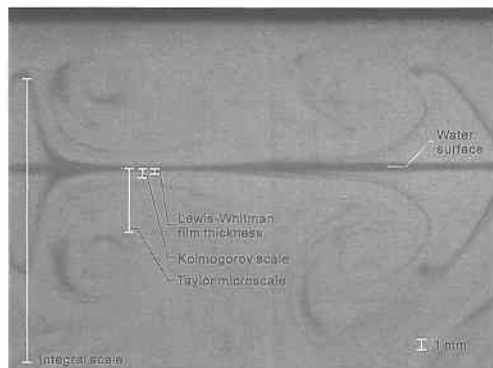
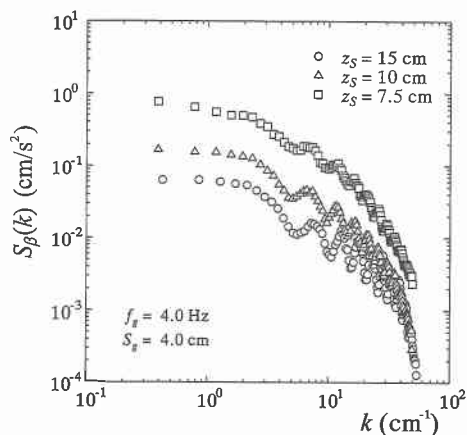
図-5 水平断面におけるCO₂吸収過程図-6 鉛直断面におけるCO₂吸収過程

図-7 水平流速発散の波数スペクトル

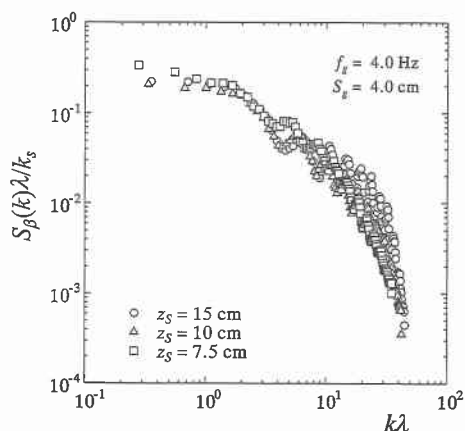


図-8 水平流速発散の無次元波数スペクトル

る。このことから、テイラーマイクロスケールが流速の水平発散を規定する長さスケールとして妥当であることがわかる。

次に、 k_L と水平発散との関係について述べる。図-9に、水平発散のrms値 β_{rms} に対してO₂をトレーサガスとして算定された k_L をプロットしたものを示す。この図から、 k_L は β_{rms} の1/2乗に比例していることがわかる。実験結果から拡散係数 D を用いて、次の関係式を得ることができる。

$$k_L = 0.30(D\beta_{rms})^{1/2} \dots\dots\dots (1)$$

McCready et al. (1986) は、可動性の気液界面におけるガス交換について調べ、水表面での摩擦速度と水の動粘性係数を用いて無次元化した k_L と β_{rms}^2 が比例関係にあることを示し、式(1)と同様の関係式を提示している。彼らの関係式を次元量に直した場合、その比例係数は0.71となり、本実験結果の係数と比較すると、両者は同じオーダーであることがわかる。

次に、 k_L の無次元化を行う。杉原・津守(2002)は、水表面でのPIV結果から水平流速発散のrms値がコロモゴロフ時間 $((\nu/\epsilon_s)^{1/2})$ の逆数に比例することを示した。

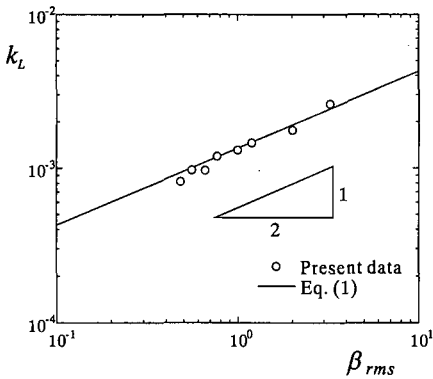
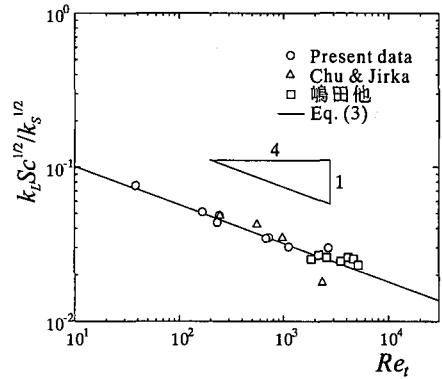
その実験結果から次の関係式が得られる。

$$\beta_{rms} = 0.35(\epsilon_s/\nu)^{1/2} \dots\dots\dots (2)$$

ここで、式(2)を式(1)に代入し、さらに速度の代表スケールとして k_s^2 を用いて規格化すると、式(1)は次のように表すことができる。

$$\frac{k_L Sc^{1/2}}{k_s^{1/2}} = 0.18 Re_i^{-1/4} \dots\dots\dots (3)$$

ここで、 Re_i は k_s, ϵ_s から定義される乱流レイノルズ数 $(\equiv k_s^3/(\epsilon_s \nu))$ であり、式(3)はいわゆる small-eddy modelに相当する。図-10に、 $k_L Sc^{1/2}/k_s^{1/2}$ と Re_i の関係を示す。ここでは比較のために、本実験結果とともに、Chu and Jirka (1992)と嶋田他(1998)の振動格子乱流場での実験結果を示す。その際、 k_s, ϵ_s の値が必要となるが、これらの算定についてはMatsunaga et al. (1999)の振動格子乱流場の乱れ特性に関する半理論式を用いた。この図から、無次元化された k_L は広範囲にわたって Re_i の-1/4乗に比例して減衰していることがわかる。図中の実線は式(3)を示しており、実験データとよく適合していることがわかる。無次元化された k_L の実験値がレイノルズ数の-1/4乗に比例するということは、こ


 図-9 k_L と β_{rms} の関係

 図-10 無次元 k_L と Re_t の関係

の領域のガス交換が small-eddy model によって記述できることを示している。過去の研究において small-eddy model を用いて k_L を記述している関係式の比例係数 C_{SE} と比較してみると、Brown (1970) は開水路乱流場において $C_{SE}=0.22$ を得ており、Prasher (1972) も開水路乱流場において $C_{SE}=0.196$ を得ている。開水路乱流場は、振動格子乱流場に比べてかなり複雑な乱流構造を有するにも関わらず、そのような場の係数値が本実験で得られた 0.18 に近い値となっていることは注目に値する。

4. 結 論

本研究では、LIF と PIV を用いて、水表面乱流の微細構造および CO_2 の吸収過程を直接可視化した。また、 O_2 をトレーサガスとする k_L の測定を行い、PIV 解析の結果から算定された水表面の乱流特性量を算定し、これらと k_L の関係を調べた。PIV の結果より、水表面での水平流速発散は、過度に比べてかなり微細な構造を有していることが示された。水表面ごく近傍の水平断面を可視化した LIF の結果から、バルク領域からの上昇流によって界面では活発に表面更新が行われている様子が明らかにされた。また、水表面における CO_2 濃度変動場の空間構造はテイラーマイクロスケールで特徴づけられる水平流速発散場に類似した構造を有することがわかった。鉛直断面の可視化結果からも表面更新の様子が明らかにされ、乱流渦による表面更新、バルク領域への流体の取り込みなどが観察された。また、水平流速発散の波数スペクトルを算出し、テイラーマイクロスケールが水平流速発散を特徴づける長さスケールであることを確認した。ガス交換係数 k_L は水平流速発散の rms 値を用いて定量化できることが示された。そして、振動格子乱流場におけるガス交換は small-eddy model によって記述できることが明らかとなった。

本研究を行うにあたり、九州大学松永信博助教授にご助言を頂きました。なお、本研究の一部は、平成 13, 14 年度の科学研究費補助金 (奨励研究 (A) 代表者: 杉原裕司, 基盤研究 (A) 代表者: 角野昇八, 基盤研究 (A) 代表者: 増田章) の援助の下で行われました。記して謝意を表します。

参 考 文 献

- 角野昇八・細井由彦・竹原幸生・朝位孝二・杉原裕司・中村由行・吉岡 洋・平口博丸・江藤剛治・中山忠暢 (2000): 水表面での気体輸送に関する研究の最新の動向, 土木学会論文集, No. 656/II-52, pp. 269-287.
- 嶋田隆司・三角隆太・小森 悟 (1998): 気液界面を通しての炭酸ガスの物質移動係数に及ぼす海水の効果, 日本機械学会論文集 (B 編) 64 巻, 621 号, pp. 1470-1477.
- 杉原裕司・津守博通 (2002): 気液界面における表面更新乱流の特性, 水工学論文集, 第 46 巻, pp. 529-534.
- 竹原幸生・加藤明秀・江藤剛治 (1999): 風波による炭酸ガスの取り込み過程の可視化, 海岸工学論文集, 第 46 巻, pp. 101-105.
- Brown, L. C. (1970): Oxygen transfer in open channel flow, Ph.D thesis, University of Wisconsin.
- Chu, C. R. 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.
- Elmore, H. L. and W. F. West (1961): Effect of water temperature on stream reaeration, J. Sanitary Eng., Vol. 87, SA6, pp. 59-71.
- Handler, R. A., J. R. Saylor, R. I. Leighton and A. L. Rovelstad (1999): Transport of a passive scalar at a shear-free boundary in fully developed turbulent open channel flow, Phys. Fluids, Vol. 11, pp. 2607-2625.
- Matsunaga, N., Y. Sugihara, T. Komatsu and A. Masuda (1999): Quantitative properties of oscillating-grid turbulence in a homogeneous fluid, Fluid Dyn. Res., Vol. 25, pp. 147-165.
- McCready, M. J., E. Vassiliadou and T. J. Hanratty (1986): Computer simulation of turbulent mass transfer at a mobile interface, AIChE J., Vol. 32, pp. 1108-1115.
- Prasher B. D. (1972): Gas absorption into a turbulent liquid, Chem. Eng. Sci., Vol. 28, pp. 1230-1232.