

気液界面における表面更新乱流の特性

CHARACTERISTICS OF SURFACE-RENEWAL TURBULENCE AT AN AIR-WATER INTERFACE

杉原裕司¹・津守博通²

Yuji SUGIHARA and Hiromichi TSUMORI

¹ 正会員 博(工) 九州大学大学院助手 総合理工学研究院 (〒816-8580 福岡県春日市春日公園6-1)

² 学生員 九州大学大学院 総合理工学府修士課程 (同上)

A mathematical model of gas transfer velocity was formulated by considering the divergence of horizontal velocities at an air-water interface. Characteristics of surface-renewal turbulence were investigated experimentally to examine the validity of the model. The experiments were performed in grid-generated turbulent flows with shallow water depth. The velocity fields at the water surface were measured using a particle image velocimetry (PIV). Statistical quantities such as the turbulent energy and the dissipation rate were obtained from the measurements. The experimental data support that the surface velocity divergence increases in proportion to $\sqrt{\varepsilon_S/\nu}$, where ε_S is the dissipation rate and ν the kinematic viscosity. This indicates that the gas transfer model is found to depend on a Reynolds number to the power of -1/4.

Key Words : gas transfer, surface renewal, turbulence, air-water interface, reaeration.

1. 緒論

大気-水域間における CO_2 , O_2 などのガス交換過程の解明は, 環境変動の予測手法を確立する上で重要である。ガス交換研究の主要な課題は, 液側のガス交換係数 k_L を定量的に評価する方法の開発である。気液界面でのガス交換係数を定式化する理論の一つに, Danckwerts¹⁾ の表面更新理論がある。これは, Higbie²⁾ の浸透式に基づいて, 界面のエレメントがランダムに更新される過程をモデル化したものである。この種の理論モデルは化学工学や環境工学の分野において頻繁に応用されているが, 流体力学的な見地からその妥当性が検証されることは希である。その理由として, 界面近傍の溶存ガスの濃度境界層はただか数百 μm のオーダーであり, 境界層内の乱れや溶存ガスの濃度分布の計測が困難であることが挙げられる。しかし, 近年の計測技術の発達に伴い, デジタル画像解析や微小センサー等によって, 表面更新過程を直接計測することが可能になってきた (Jähne & Monahan³⁾; 中村・村井⁴⁾)。

気液界面での流速場の発散は表面更新と密接に結びついており, しかも PIV (Particle Image Velocimetry)

によって直接計測できることから, ガス交換研究において重要な物理量となりうる。栗谷・安部⁵⁾ は, 鉛直方向の濃度の移流と拡散が釣り合うと仮定して, 界面発散に基づくガス交換係数式を提案した。彼らのグループは, 最小渦スケールとそのスケールでの乱れ強度を用いて界面発散を定量化し, 得られたガス交換係数式の妥当性を検討している。McCready et al.⁶⁾ は, 非定常な溶存ガスの移流拡散方程式に基づいて表面更新の変動性を理論的に扱い, ガス交換係数と界面発散の rms 値を関係づける算定式を提案している。Gulliver & Tamburrino⁷⁾ は, PIV 計測により開水路流における界面発散のスペクトルについて調べ, McCready et al. のモデルを吟味している。このように, 界面流速の発散に基づいてガス交換係数のモデリングを試みた研究は幾つかあるが, 界面発散に着目して表面更新乱流の特性を系統的に調べた研究はほとんどないように思われる。

本研究の目的は, 気液界面での流速場の発散を考慮したガス交換係数の数理モデルを導出し, PIV 計測に基づいて表面更新乱流の特性とモデルの妥当性について検討することである。この数理モデルは, Higbie 式の代わりに界面発散を考慮した浸透式を用いた表面更

新モデルであり、界面発散と表面更新率の比をパラメータとして含んでいる。実験では、平均せん断流が存在せず、乱れが水平面内において一様等方である振動格子乱流場を対象とする。得られた PIV データから種々の乱流特性量を算定し、表面更新乱流とガス交換係数の関係について調べる。

2. 界面発散に基づくガス交換係数モデル

単位接触面積の気液界面において、低濃度の流体が非定常的に界面を更新しガス吸収を行っている微小なエレメントを考える。表面に露出してから時間 τ だけ経過したエレメントの占める面積を $\phi(\tau, S)$ とする。ここで、 ϕ は τ だけでなく、単位面積当たりにフレッシュなエレメントが占める面積 S の関数である。この S は、一般に表面更新率と呼ばれる。年令 τ のエレメント内で水平方向に平均された界面ガスフラックスを F_e とすると、統計的に定常な乱流気液界面での平均ガスフラックスは次のように表される。

$$\langle F \rangle = \int_0^\infty F_e \phi(\tau, S) d\tau \quad (1)$$

これが Danckwerts の表面更新理論の基本的なアイデアであり、一般に $\phi(\tau, S) = S \exp(-S\tau)$ を用いる。標準理論では、 F_e として溶存ガスの拡散方程式の非定常項と鉛直拡散がつり合うと仮定して得られた Higbie の浸透式を適用する。平均ガスフラックス $\langle F \rangle$ をバルク表示すると次式のようにになる。

$$\langle F \rangle = k_L (C_S - C_\infty) \quad (2)$$

ここで、 k_L はガス交換係数、 C_S は界面での飽和濃度、 C_∞ は界面から離れたバルク領域の濃度を示す。本研究では界面での水平流速の発散を考慮した F_e を導出し、式 (1)、(2) より k_L を求める。

図-1 に示すように、界面を原点とし鉛直下向きに z 軸をとる。界面近傍の液膜内においては水平方向の流速勾配が一定と見なせるものと仮定すると、連続の式より、

$$\frac{\partial w}{\partial z} = - \left(\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} \right) = -\beta \quad (\text{const.}) \quad (3)$$

となる⁵⁾。 $z = 0$ で $w = 0$ を考慮すれば、鉛直流速 w は次式のように表される。

$$w = -\beta z \quad (4)$$

ここで、 β は界面での水平流速の発散であり、正の定数として定義する。これは、解析対象を $w < 0$ の領域（上昇流域）に限定することを意味するが、一般に再曝

気は流体の湧昇点において大きくなることから、妥当な仮定であると思われる。そのような点の近傍では水平流速は小さくなることから、溶存ガスの拡散方程式は次式のように近似できる。

$$\frac{\partial C}{\partial t} - \beta z \frac{\partial C}{\partial z} = D \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \quad (5)$$

ここで、 D は溶存ガスの分子拡散係数である。 β が一定であるとすれば、式 (5) の C は水平方向に平均化されたものと等しいことに注意する。Higbie は式 (5) の発散項を無視した方程式を扱っており、栗谷・安部は非定常項を無視した方程式を対象としている。式 (5) を解く上での初期条件および境界条件は次式で表される。

$$\left. \begin{array}{l} \text{I.C. } C = C_\infty \quad \text{at } t = 0 \\ \text{B.C. } C = C_S \quad \text{at } z = 0 \\ C \rightarrow C_\infty \quad \text{as } z \rightarrow \infty \end{array} \right\} \quad (6)$$

式 (5) を (6) の条件の下で解くと、次式が得られる。

$$\frac{C - C_\infty}{C_S - C_\infty} = 1 - \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^\eta \exp(-\eta^2) d\eta \quad (7)$$

$$\eta = \frac{z}{\sqrt{\frac{2D}{\beta} (1 - e^{-2\beta t})}} \quad (8)$$

したがって、 $z = 0$ におけるガスフラックス F_e は、

$$\begin{aligned} F_e &= -D \frac{\partial C}{\partial z} \Big|_{z=0} = -D \frac{dC}{d\eta} \frac{\partial \eta}{\partial z} \Big|_{z=0} \\ &= \sqrt{\frac{2}{\pi}} \sqrt{\frac{D\beta}{1 - e^{-2\beta t}}} (C_S - C_\infty) \end{aligned} \quad (9)$$

となる。式 (9) を (1) へ代入して、平均ガスフラックス $\langle F \rangle$ を求める。ただし、本理論では $\beta > 0$ の場合のみを考えていることから、曝気面積を $1/2$ として、

$$\phi(\tau, S) = \frac{S}{2} \exp(-S\tau) \quad (10)$$

とする。したがって、平均ガスフラックスは次式のようになる。

$$\langle F \rangle = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \sqrt{D\beta} (C_S - C_\infty) \mu \beta \int_0^\infty \frac{e^{-2\mu\beta\tau}}{\sqrt{1 - e^{-2\beta\tau}}} d\tau \quad (11)$$

ここで、 μ は $S/2\beta$ で定義されている表面更新率と界面発散の比を表すパラメータである。式 (11) の積分は、 $p = e^{-2\beta\tau}$ で変数変換すると、

$$\begin{aligned} \int_0^\infty \frac{e^{-2\mu\beta\tau}}{\sqrt{1 - e^{-2\beta\tau}}} d\tau &= \frac{1}{2\beta} \int_0^1 p^{\mu-1} (1-p)^{-\frac{1}{2}} dp \\ &= \frac{1}{2\beta} B\left(\mu, \frac{1}{2}\right) \\ &= \frac{1}{2\beta} \frac{\Gamma(\mu)\Gamma(\frac{1}{2})}{\Gamma(\mu + \frac{1}{2})} \end{aligned} \quad (12)$$

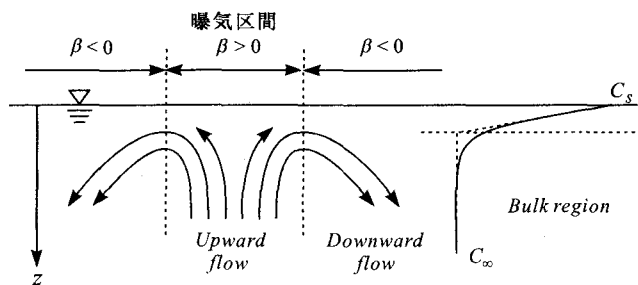


図-1 表面更新の概念図

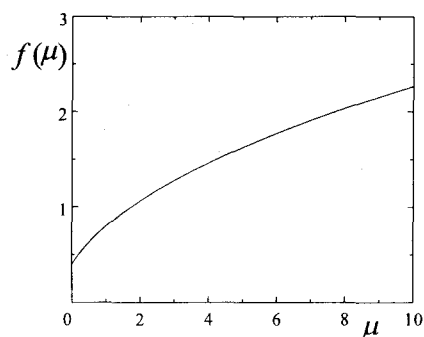


図-2 $f(\mu)$ と μ の関係

のように表される。ここで、 $B(\mu, \frac{1}{2})$ はベータ関数、 $\Gamma(\mu)$ はガンマ関数を示す。以上より、 $\langle F \rangle$ および k_L は次式のように求められる。

$$\left. \begin{aligned} \langle F \rangle &= f(\mu) \sqrt{D\beta} (C_S - C_\infty) \\ k_L &= f(\mu) \sqrt{D\beta} \\ f(\mu) &= \sqrt{\frac{\mu^2}{2\pi}} B\left(\mu, \frac{1}{2}\right) \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

図-2に $f(\mu)$ と μ の関係を示す。 μ が1のオーダーの領域では $f(\mu)$ は1に近い値をとることがわかる。界面動揺が小さい場合には、 S は β によって規定されるため、 $f(\mu)$ は1のオーダーになるものと考えられる。式(5)には乱れの効果は含まれていないが、各エレメントのフラックスを式(1)のように統計平均することによって得られた式(13)は、乱流状態の気液界面にもある程度適用可能であると考えられる。なお、本研究では、式(13)の β が流速発散のrms値でスケールできるものと仮定する。

3. 実験装置およびデータ解析

図-3に実験装置の概略図を示す。実験には、縦、横の長さが25 cm、深さ60 cmの水槽が用いられた。静止流体中においてメッシュ間隔 $M = 5.0$ cm、棧の幅 $d = 1.0$ cmの正方角柱格子を鉛直振動させることによって乱れを発生させた。表-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動幅である。 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、 $Re \equiv f_g S_g^2 / \nu$ で定義される格子レイノルズ数であり、 ν は流体の動粘性係数を示す。水表面での流速計測にはPIVを用いた。可視化のトレーサとしてナイロンパウダー（密度：1.02 g/cm³、粒径：50 μm）を使用した。プロジェクターのスリット光を水槽の側面から水表面に挿入して、水槽の直上からデジタルビデオカメラで撮影を行った。デジタルビデオカメラで撮影された水表面の動画から、1/30 sec 間隔で静止画をサンプリングし、2枚の静止画からPIV解析を行った。また、

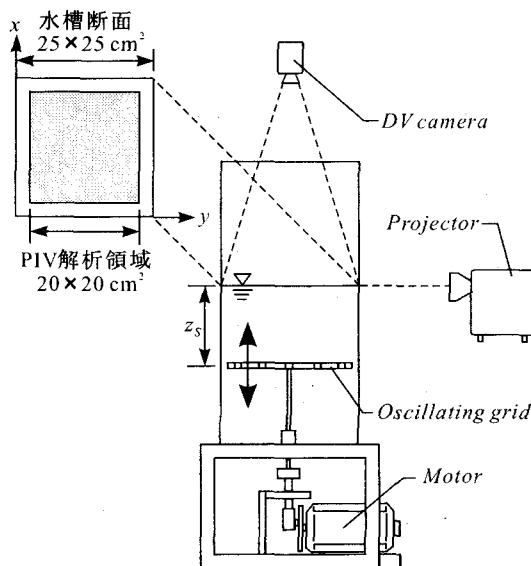


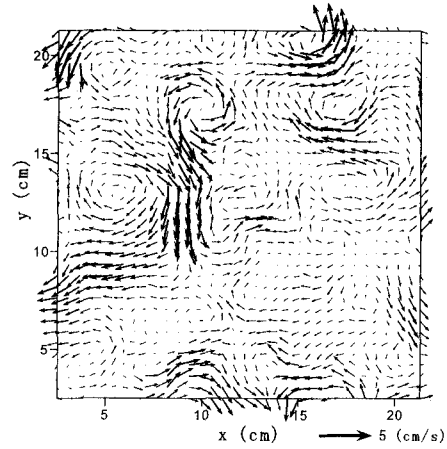
図-3 実験装置の概略図

解析領域は、水槽壁面から2.5 cm離れた 20×20 cm² の断面であり、画素数は表-1に示されている。本実験における空間分解能は、0.58 mmと0.63 mmである。また、輝度濃淡相関値のサブピクセル精度の移動内挿式としてガウス近似を用いており、本研究のPIVは十分な精度を有するものと思われる。

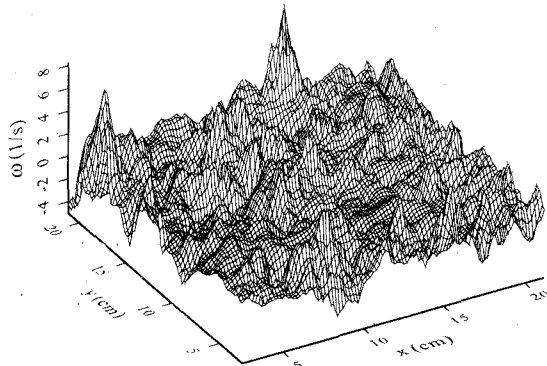
流速データから、乱れエネルギー k_S 、エネルギー散逸率 ϵ_S 、流速発散のrms値 β 、テイラーの縦微分長さスケール λ 、1次元縦波数スペクトル $F(k)$ を算定した。その際、界面上で水平流速の鉛直勾配および鉛直流速が0であり、水平面内で乱れは等方的であると仮定している。5枚の流速画像に対して同様の統計量を求め、それらの算術平均を取ることによって最終的な値を決定した。1枚の画像につきピクセル数に相当する数の統計平均を行っており、そのサンプル数は十分であると考えられる。1次元波数スペクトルについては、 x 、 y 方向の各ピクセル列において得られた縦波数スペクトルを流速画像5枚分に渡ってアンサンブル平均することにより算定されている。

表－１ 実験条件

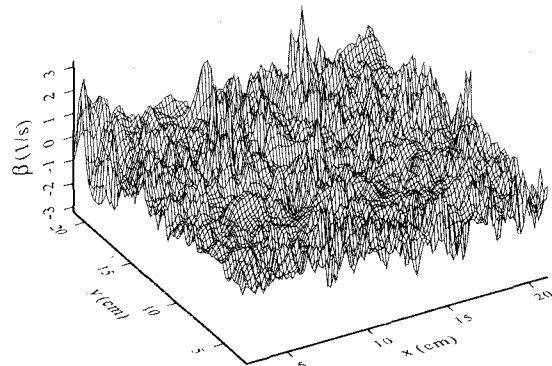
Run	f_g (Hz)	S_g (cm)	M (cm)	z_s (cm)	Re	pixels
1	2.0	4.0	5.0	15	3.73×10^3	344×344
2	2.0	4.0	5.0	10	3.73×10^3	316×316
3	2.0	4.0	5.0	7.5	3.73×10^3	316×316
4	4.0	4.0	5.0	15	7.47×10^3	344×344
5	4.0	4.0	5.0	10	7.47×10^3	316×316
6	4.0	4.0	5.0	7.5	7.47×10^3	316×316
7	2.0	6.0	5.0	15	8.40×10^3	344×344
8	4.0	6.0	5.0	15	1.68×10^4	344×344



図－４ 水表面の瞬間流速場 (Run 5)

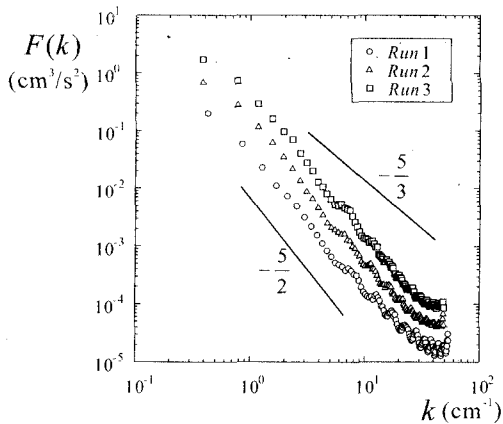


(a) 渦度

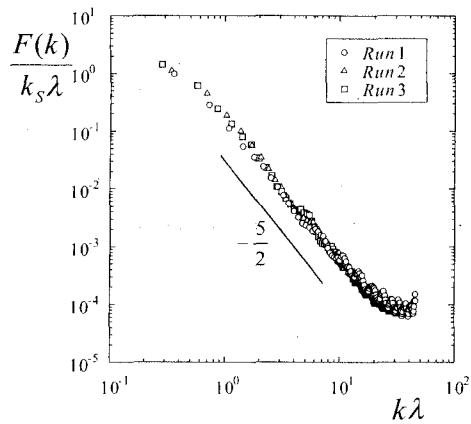


(b) 発散

図－５ 渦度と発散の空間分布 (Run 5)



図－６ 波数スペクトル



図－７ 無次元波数スペクトル

4. 実験結果および考察

図－４に、PIVによって得られたRun 5の条件における瞬間流速場を示す。ここでは、図化の都合上、解析されたものよりも少ない数の流速ベクトルが示されている。この図より、界面に垂直な軸をもつ比較的大きな渦の形成が認められる。また、局所的に速い水平流が発生しており、界面は激しい乱流状態にあることがわかる。

図－５(a), (b)は、それぞれ図－４の流速場から鉛

直方向の渦度と水平流速の発散を算定しそれを鳥瞰的に可視化したものである。渦度のピークは、図－４の水平渦に対応しており、渦度の変動は比較的大きな空間スケールをもつ。一方、発散の変動の空間スケールは渦度と比べてかなり小さく、発散がかなり微細な構造を有することを示している。

図－６は、水深の異なる同一振動条件下で得られた流速変動の1次元縦波数スペクトルを示す。水深が深いほどエネルギーのレベルが低下するが、スペクトル減衰の勾配自体は水深に依存しないことがわかる。ス

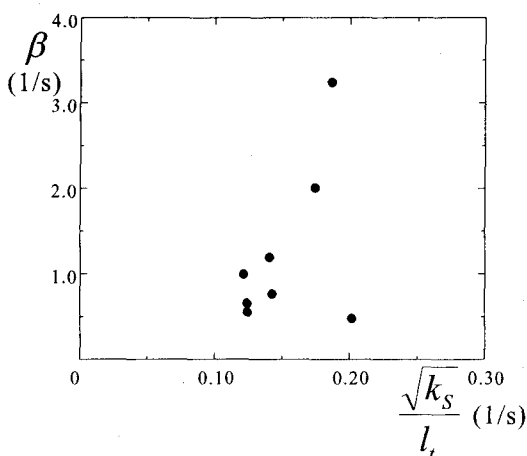


図-8 β と $\sqrt{k_s}/l_t$ の関係

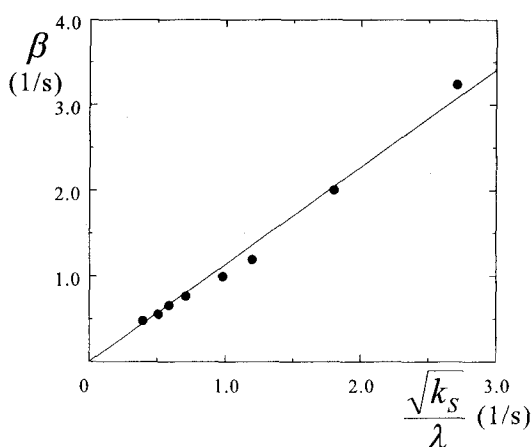


図-9 β と $\sqrt{k_s}/\lambda$ の関係

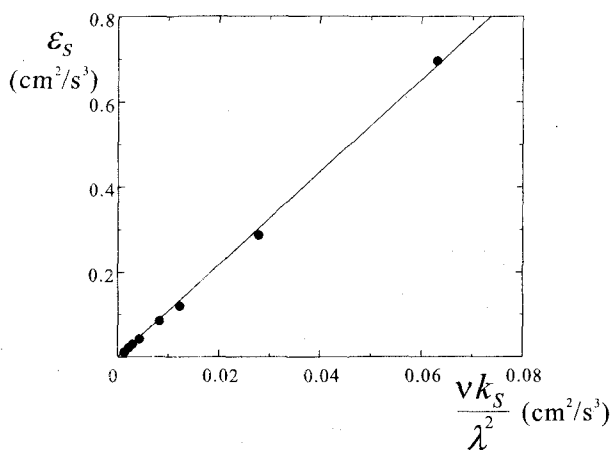


図-10 ϵ_s と $\nu k_s/\lambda^2$ の関係

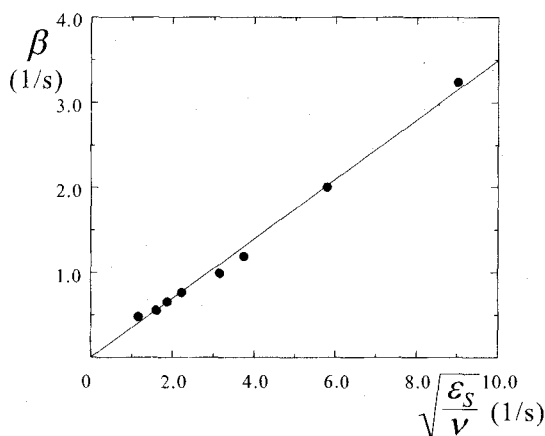


図-11 β と $\sqrt{\epsilon_s/\nu}$ の関係

ペクトルの減衰は、 $-5/3$ 乗よりも急であり、ほぼ波数 k の $-5/2$ 乗で減衰する。この値は、Brumley & Jirka⁸⁾ によって得られた、振動格子乱流場における水表面近傍での波数スペクトルの勾配に比較的近いものである。

図-7は、図-6の波数スペクトルを、乱れエネルギーと微分長さスケールを用いて無次元化したものである。無次元波数スペクトルは、水深に依存せず普遍的に表されることがわかる。なお、無次元化の長さスケールとして、水深や乱れのマクロスケール l_t ($\equiv k_s^{3/2}/\epsilon_s$) を用いた場合には、スペクトルは普遍表示されない。このことは、界面では乱れの長さスケールとして微分長さスケールが重要であることを示している。

発散の次元を考慮して、乱れの速度スケールと長さスケールの比と β との関係調べる。速度スケールとしては $\sqrt{k_s}$ を、長さスケールとして l_t と λ を用いる。

図-8に、 β と $\sqrt{k_s}/l_t$ の関係を示す。この図より β と $\sqrt{k_s}/l_t$ の間には正比例の関係が存在しないことがわかる。このことは l_t が β を特徴づける長さスケールではないことを示している。

図-9に、 β と $\sqrt{k_s}/\lambda$ の関係が示されている。この図より、 β は $\sqrt{k_s}/\lambda$ に正比例し、その比例定数は水深によらないことがわかる。したがって、図-7の波数ス

ペクトルの場合と同様に、微分長さスケールは界面発散を特徴づける重要な特性量であると結論づけられる。

ここで、 ϵ_s と $\nu k_s/\lambda^2$ の関係を確認しておこう。これらの関係が図-10に示されている。両者は正比例の関係にあるが、その比例定数は等方性乱流の場合の値よりも小さくなる。 $\epsilon_s \propto \nu k_s/\lambda^2$ の場合、図-9の関係より次式が成り立つ。

$$\beta \propto \sqrt{\frac{\epsilon_s}{\nu}} \quad (14)$$

表面更新率 S が β に比例するとすれば、 $S \propto \sqrt{\epsilon_s/\nu}$ が成り立つ。この関係は、ガス交換係数の理論モデルの一つである Small-eddy model で用いられる関係に相当する。このことは、今回行った実験の範囲が、Small-eddy model が適用される比較的高いレイノルズ数の領域であることを示唆する。

図-11に β と $\sqrt{\epsilon_s/\nu}$ の関係を示す。この関係と式(13)から、規格化されたガス交換係数の算定式は次式のようにになる。

$$\frac{k_L}{k_s^{1/2} Sc^{-1/2}} \propto f(\mu) R_{ts}^{-1/4} \quad (15)$$

ここで、 Sc はシュミット数 ($\equiv \nu/D$)、 R_{ts} は k_s 、 ϵ_s

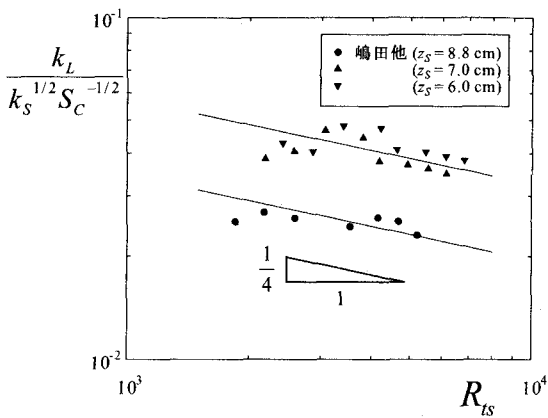


図-12 k_L と R_{ts} の関係

で定義される乱流レイノルズ数 ($\equiv k_S^2 / \varepsilon_S \nu$) である。上式では、Small-eddy model と同じく、無次元 k_L が R_{ts} の $-1/4$ 乗に比例して減衰する。

得られたガス交換係数の数理モデルの妥当性を検証するために、嶋田他⁹⁾による振動格子乱流場における CO_2 の再曝気実験の結果と式 (15) を比較する。その際、 k_S 、 ε_S の値が必要となるが、それらの代わりとして、水表面の影響がない場合の z_S における乱れエネルギー k_S^∞ とエネルギー散逸率 ε_S^∞ を用いる。これらの算定には Matsunaga et al.¹⁰⁾ の振動格子乱流場の乱れ特性に関する評価式を用いた。これは $k-\varepsilon$ 乱流モデルに基づいて任意の振動条件における乱れエネルギーと散逸率を算定するための半理論式である。

図-12は、式 (15) の定義にしたがって無次元化した k_L と R_{ts} の関係を示したものである。図中の実線は fitting curve を表している。ただし、厳密には k_S^∞ と ε_S^∞ は、 k_S 、 ε_S と値が異なるため、図の関係は若干の誤差を含むことに注意する。無次元 k_L は、この実験条件の下では R_{ts} の $-1/4$ 乗に比例して減衰しており、このことは数理モデルの妥当性を示唆する。また、 z_S が小さいケースでは、大きいケースに比べてその値が増加しており、界面動揺の効果によってガス交換が促進されたことがわかる。

5. 結論

本研究では、気液界面での流速の発散を考慮したガス交換係数の数理モデルを求め、表面更新乱流の特性に基づいてモデルの妥当性を考察した。得られた結果を要約すると以下ようになる。

1. 気液界面の流速発散に基づく拡張された表面更新モデルを導出した。この数理モデルは表面更新率と界面発散の比をパラメータとして含んでいる。
2. PIV を用いて界面での流速変動の空間データを取得した。得られた流速データを解析することにより、乱

れエネルギー、エネルギー散逸率、界面発散の rms 値、テイラーの微分長さスケール、1次元波数スペクトルを算定した。

3. 気液界面の発散と他の乱流特性量との関係を検討した。その結果、界面発散は、マクロな長さスケールではなく微分長さスケールに規定され、 $\sqrt{\varepsilon_S / \nu}$ で定量化できることがわかった。

4. 得られたガス交換係数の数理モデルと既往の実験値を比較した。その結果、本研究の数理モデルは比較的高いレイノルズ数領域のガス交換現象をよく説明できることがわかった。

謝辞：本研究を行うにあたり、九州大学助教授松永信博先生にご助言を頂きました。本研究の一部は、平成13年度科学研究費補助金（奨励研究（A）代表者：杉原裕司、基盤研究（A）代表者：角野昇八および基盤研究（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

- 1) Danckwerts, P. V.: Significance of liquid-film coefficients in gas adsorption, *Ind. Eng. Chem.*, Vol.43, pp.1460-1467, 1951.
- 2) Higbie, R.: The rate of absorption of a pure gas into still liquid during short period of exposure, *AIChE J.*, Vol.31, pp.365-390, 1935.
- 3) Jähne, B. and Monahan, E. C., eds.: Air-Water Gas Transfer, Selected papers from 3rd Int. Symp. Air-Water Gas Transfer, Aeon., 1995.
- 4) 中村由行, 村井大享: 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, 海岸工学論文集, 第46巻, pp.111-115, 1999.
- 5) 栗谷陽一, 安部喬: 表面付近における乱れの特性と表面曝気速度について (II), 土木学会第26回年次学術講演会概要集II, pp.491-492, 1971.
- 6) McCready, M. J., Vassiliadou, E., Hanratty, T. J.: Computer simulation of turbulent mass transfer at a mobile interface, *AIChE J.*, Vol.32, No.7, pp.1108-1115, 1986.
- 7) Gulliver, J. S. and Tamburrino, A.: Turbulent surface deformation and their relationship to mass transfer in an open-channel flow, *Air-Water Gas Transfer*, pp.589-600, 1995.
- 8) Brumley, B. H. and Jirka, G. H.: Near-surface turbulence in a grid-stirred tank, *J. Fluid Mech.*, Vol.183, pp.235-263, 1987.
- 9) 嶋田隆司, 三角隆太, 小森悟: 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, 1998.
- 10) Matsunaga, N., Sugihara, Y., Komatsu, T. and Masuda, A.: Quantitative properties of oscillating-grid turbulence in a homogeneous fluid, *Fluid Dyn. Res.*, Vol.25, pp.147-165, 1999.

(2001. 10. 1受付)