

## 気液乱流界面における局所スカラー束の界面発散に対する依存性\*

長谷川洋介\*<sup>1</sup>, 笠木伸英\*<sup>2</sup>Dependency of Local Scalar Flux on Surface Divergence  
at a Turbulent Air-Water InterfaceYosuke HASEGAWA\*<sup>3</sup> and Nobuhide KASAGI<sup>\*3</sup>Department of Mechanical Engineering, The University of Tokyo,  
Hongo 7-3-1, Bunkyo-ku, Tokyo 113-8656, Japan

Numerical simulation of a coupled air-water flow and associated interfacial mass transfer is carried out. It is found that the concentration field near the interface responds to the surface divergence quickly even at high Schmidt numbers up to 100. High interfacial scalar flux regions are characterized by spotty structures, which are caused by impingement of the bulk liquid on the interface due to streamwise vortices. In order to clarify quantitative relationship between the local scalar flux and the surface divergence, a one-dimensional advection-diffusion equation is analysed. By introducing two time scales, *i.e.*, renewal and transient time scales, we show that the surface divergence contributes to the mass transfer only when the renewal time scale is larger than the transient time scale and the local scalar flux is analytically calculated from the surface divergence by applying the Chan and Scriven's stagnation flow model. We demonstrate that the above mass transfer model holds fairly well at a wind-driven turbulent interface. This would be a primary reason why a total gas transfer rate is well correlated with the intensity of the surface divergence under a wide variety of flow conditions.

**Key words:** Mass transfer, Turbulence, Air-water interface, Schmidt number, Surface divergence

## 1. 緒 論

気液界面におけるガス交換予測の問題とは、以下の式中のガス交換係数  $K^*$  を何らかの流れ場の情報と関係付けることである。

$$q^* = K^* \cdot \Delta\mu^* = K^* (\alpha \cdot C_{BG}^* - C_{BL}^*) \quad (1)$$

ここで、 $q^*$  は界面スカラー束、 $\Delta\mu^*$  は気液間の化学ポテンシャル差、 $C_{BG}^*$ 、 $C_{BL}^*$  は気液各相のバルク物質濃度である。また、 $\alpha$  は溶解度であり、溶解平衡状態における気液の溶質濃度比  $\alpha = c_L^*/c_G^*$  により定義される。最も大胆なモデルとしては、海洋界面のガス交換係数を海上風速で相関させるバルク法が挙げられる。この相関式は、気候モデル内部において大気-海洋間の熱・物質交換量を見積もる際、広く用いられている。

一般に、気液の総括ガス交換係数  $K^*$  は、気液各相のガス交換係数  $K_G^*$ 、 $K_L^*$  を用いて以下のように表される。

$$K^* = \frac{K_G^* K_L^*}{K_G^* + \alpha K_L^*} \quad (2)$$

炭酸ガスなどの低溶解度 ( $\alpha \sim O(1)$ ) の物質の交換では、 $K_G^* \gg K_L^*$  であり、物質輸送の抵抗は主に液側に生じる ( $K^* \sim K_L^*$ )。更に、液中での分子拡散係数  $D_L$  と動粘性係数  $\nu_L$  の比であるシュミット数  $Sc_L = \nu_L / D_L$  が大きく ( $Sc_L \sim O(10^3)$ )、極めて薄い濃度境界層内部 ( $\delta_c \sim 20-200 \mu\text{m}$ ) のマイクロな輸送機構が支配的となる<sup>(1)</sup>。このため、ガス交換係数を風速などのマクロな変数により整理することは、物理的根拠に乏しく、その信頼性も不十分である。

これに対して、化学工学の分野では、より界面近傍の乱流輸送現象に着目したガス交換予測が行われている。それらの基礎的概念として、界面更新モデル<sup>(2)</sup>があり、ガス交換係数  $K_L^*$  は界面更新時間  $T_S^*$  を用いて、以下のように見積もられる。

$$K_L^* = \sqrt{D_L / T_S^*} \quad (3)$$

\* 原稿受付 2005 年 6 月 日

<sup>\*1</sup> 正員, 東京大学大学院工学系研究科

(〒113-8656 東京都文京区本郷 7-3-1).

<sup>\*2</sup> 正員, フェロー, 東京大学大学院工学系研究科

E-mail: hasegawa@thtlab.t.u-tokyo.ac.jp

ここで、界面更新時間のスケージングが議論の対象となる。例えば、Komoriら<sup>(3)</sup>は開水路でのガス吸収実験を行い、下壁におけるバースティングの発生周期  $T_B^*$  を用いてガス交換係数を整理している。一方 Banerjee<sup>(4)</sup>は、界面せん断による乱流生成が支配的な場合、界面における  $T_B^*$  を用いることを提案している。しかし、一般に、界面更新時間の厳密な定義は困難であり、バースティングなど系に特有のイベントを用いる場合、モデルの一般性が損なわれる。

近年、乱流の生成機構に依存しない、ロバストなモデル構築を目標として、局所の界面情報を用いた界面物質輸送モデルが注目されている<sup>(5)</sup>。例えば、界面発散の強度を用いることで、界面せん断の有無<sup>(6)</sup>や界面の化学的状態<sup>(7)</sup>に依らず、ガス交換係数が整理されるとの報告例がある。しかし、速度場・濃度場の同時計測は、今なお困難であり、局所の界面発散とスカラー束の定量的な関係を示すには至っていない。これに対して、数値計算は有力なツールとなるが<sup>(8)</sup>、従来の計算例は、低シュミット数 ( $Sc_L \sim O(1)$ ) に限られている。

そこで本研究では、気液乱流界面における高シュミット数物質輸送の数値シミュレーションを行い、局所の界面発散とスカラー束を関連付ける物理的根拠を明らかにし、界面発散を用いたガス交換予測の一般性に関して考察を行う。

### 主な記号

$c$	: 物質濃度
$C$	: 平均物質濃度
$C_B$	: 液側バルクの平均物質濃度
$D$	: 物質の分子拡散係数
$k_x, k_y, k_z$	: 各方向波数
$K$	: ガス交換係数
$p$	: 圧力
$Re_\tau$	: レイノルズ数 ( $Re_\tau = u_\tau \cdot \delta / \nu$ )
$R_{\alpha\beta}$	: $\alpha$ と $\beta$ の相関係数
$q$	: 界面スカラー束 ( $q = q^* / u_{\tau L} \Delta C^*$ )
$q_B$	: 界面スカラー束 ( $q_B = q^* / u_{\tau L} \Delta C_B^*$ )
$Sc$	: シュミット数 ( $Sc = \nu / D$ )
$T_B$	: バースティング周期
$T_S$	: 界面更新時間
$u_\tau$	: 界面摩擦速度 ( $u_\tau = \sqrt{\tau_i / \rho}$ )
$u, v, w$	: $x, y, z$ 方向速度
$x, y, z$	: 流れ方向, 界面垂直方向, スパン方向座標

$\alpha$  : ガスの水に対する溶解度

$\beta$  : 界面発散 ( $\beta = \frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial w}{\partial z} \Big|_{y=0}$ )

$\delta$  : 各相の深さ

$\Delta C$  : 両相の外端での濃度差

$$(\Delta C^* = \alpha \cdot c_{G_{top}}^* - c_{L_{bottom}}^*)$$

$\Delta C_B$  : 界面と液中バルクの平均濃度差

$\Delta x, \Delta y, \Delta z$ : 各方向の格子間隔

$\Delta t$  : 時間刻み幅

$\nu$  : 動粘性係数

$\rho$  : 各相における流体の密度

$\tau_i$  : 流れ方向の平均界面剪断応力

$\xi_j$  : SGS スカラー束ベクトル

上付き添字

\* : 実次元表示

+ : 粘性スケール表示

下付き添字

$G$  : 気相における値

$i$  : 方向成分

$L$  : 液相における値

## 2. 計算手法

2.1 計算条件 図1に示すような一定の圧力勾配より駆動される気液対向流を考える。これは、界面の平均速度で移動する系から見た流れ場に対応する。計算領域は、気液共に相深さ  $\delta$ 、流れ方向に  $2.5\pi\delta$ 、スパン方向に  $\pi\delta$  とした。

気液両相の速度場の支配方程式は、非圧縮ナビエ・ストークス方程式、及び連続の式である。

$$\frac{\partial u_i}{\partial t} + u_j \frac{\partial u_i}{\partial x_j} = -\frac{\partial p}{\partial x_i} + \frac{1}{Re_\tau} \frac{\partial^2 u_i}{\partial x_j \partial x_j} \quad (4)$$

$$\frac{\partial u_i}{\partial x_i} = 0 \quad (5)$$

ここで、添字の  $i$  は、各方向成分を意味する。各変数は、各相の界面摩擦速度  $u_\tau$  と相の深さ  $\delta$  によって無次元化されている。界面摩擦速度  $u_\tau$  は、各相の密度  $\rho$  と界面せん断  $\tau_i$  により、

$$u_\tau = \sqrt{\tau_i / \rho} \quad (6)$$

で定義される。

気液各相の摩擦速度  $u_\tau$  と相深さ  $\delta$  で定義されるレイノルズ数は、 $Re_{\tau G} = Re_{\tau L} = 150$  とした。これは、標準状態の空気-水系において、気側の摩擦速度  $u_{\tau G} = 0.12$  m/s、相深さ  $\delta = 4$  cm に相当する。気液密度比は  $\rho_L / \rho_G = 841$  とした。

本研究では、高シュミット数における界面スカ

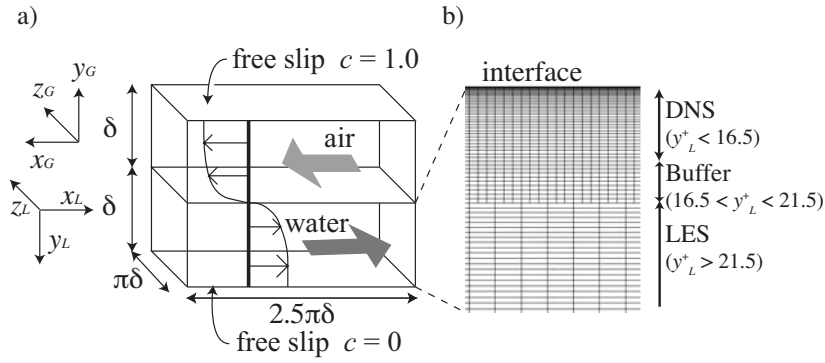


Fig. 1 a) Computational domain, coordinate system and b) grid system in hybrid DNS/LES

Table 1 Numbers of modes  $(k_x, k_y, k_z)$  and vertical grid points  $N_y$  in DNS and hybrid DNS/LES

		Region	$k_x, k_y$ or $N_y, k_z$	$\Delta x_L^+$	$\Delta y_L^+$	$\Delta z_L^+$
Velocity	DNS	$0 < y_L^+ < 150$	64, 288, 64	18.4	0.002 ~ 0.38	7.2
Case HF	DNS	$0 < y_L^+ < 16.5$	512, 94, 512	2.3	0.002 ~ 0.34	0.9
	Buffer	$16.5 < y_L^+ < 21.6$	512, 15, 512	2.3	0.35 ~ 0.38	0.9
	LES	$21.6 < y_L^+ < 150$	64, 324, 64	18.4	0.002 ~ 0.38	7.2
Case HC	DNS	$0 < y_L^+ < 11.3$	192, 34, 192	6.1	0.01 ~ 0.62	2.4
	Buffer	$11.3 < y_L^+ < 21.6$	192, 15, 192	6.1	0.66 ~ 0.85	2.4
	LES	$21.6 < y_L^+ < 150$	64, 144, 64	18.4	0.86 ~ 1.23	7.2
Case HW	DNS	$0 < y_L^+ < 24.3$	192, 56, 192	6.1	0.01 ~ 0.79	2.4
	Buffer	$24.3 < y_L^+ < 34.7$	192, 15, 192	6.1	0.81 ~ 0.85	2.4
	LES	$34.7 < y_L^+ < 150$	64, 122, 64	18.4	0.86 ~ 1.23	7.2

ラー束と界面発散の関係に注目し、風波の影響は無視する。この時、界面の境界条件は、水平方向の速度とせん断応力の連続条件となる。

スカラー濃度場の輸送方程式は、以下のように表される。

$$\frac{\partial c}{\partial t} + u_j \frac{\partial c}{\partial x_j} = \frac{1}{Re_\tau \cdot Sc} \frac{\partial^2 c}{\partial x_j \partial x_j} \quad (7)$$

ここで、液中濃度を単位体積当たりのモル数  $c_L^*$ 、また、気中濃度を溶解平衡時の液換算濃度  $\alpha \cdot c_G^*$  と定義し、両相外端における濃度差  $\Delta C^* = \alpha \cdot c_{Gtop}^* - c_{Lbottom}^*$  で無次元化した。

$$c_L = \frac{c_L^* - c_{Lbottom}^*}{\alpha \cdot c_{Gtop}^* - c_{Lbottom}^*} \quad (8)$$

$$c_G = \frac{\alpha \cdot c_G^* - c_{Lbottom}^*}{\alpha \cdot c_{Gtop}^* - c_{Lbottom}^*} \quad (9)$$

この時、界面での境界条件である、ヘンリ - 則とスカラー束の連続条件は、以下ようになる。

$$c_G|_{y=0} = c_L|_{y=0} \quad (10)$$

$$\frac{\partial c_G}{\partial x_2} \Big|_{y=0} = -\alpha \cdot \frac{Sc_G \cdot Re_{\alpha G}}{Sc_L \cdot Re_{\alpha L}} \cdot \sqrt{\frac{\rho_G}{\rho_L}} \cdot \frac{\partial c_L}{\partial x_2} \Big|_{y=0} \quad (11)$$

空気中に含まれる溶質ガスは、炭酸ガスを想定し、溶解度は  $\alpha = 1.0$  とした。

上述の流れ場において、気側のシュミット数を  $Sc_G = 1.0$  に保ち、液側のシュミット数を  $Sc_L = 1.0, 100$  と変化させた。ここで速度場と低シュミット数濃度場 ( $Sc_L = 1.0$ ) に対しては、擬スペクトル法による直接数値計算(DNS)を、また高シュミット数濃度場 ( $Sc_L = 100$ ) に対しては、次節で述べるハイブリッドDNS/LES法を適用した。また比較のため、 $Sc_L = 3.0, 5.0$  における濃度場のDNSデータ<sup>(9)</sup> も利用した。DNSの計算手法、及び条件の詳細は、長谷川 - 笠木<sup>(9)</sup> を参照されたい。

2.2 ハイブリッドDNS/LES法 一般に、濃度場の散逸を担う波数帯域は、シュミット数の平方根に比例するため<sup>(10)</sup>、全スケールの濃度変動の解像には  $N^3 \propto Sc^{3/2}$  の格子点を要する。一方、界面を介した物質交換では、濃度変化は界面ごく近傍に限られ、外層ではほぼ一定の濃度分布となる。そこで、濃度境界層のみにDNSを用い、外層では比較的粗い格子にサブグリッド・スカラー束モデルを組み込む、ラージ・エディ・シミュレーション(LES)の適用を考える。

図1 b)に、ハイブリッドDNS/LES法で用いた格子系を示す。液側の計算領域をDNS領域 ( $0 < y_L^+ < 16.5$ )、バッファ領域 ( $16.5 < y_L^+ < 21.5$ )、

LES領域( $y_L^+ > 21.5$ )と分割した。ここで、95%以上の濃度変化がDNS領域で捕らえられるよう、領域を設定した。またDNS領域とLES領域を滑らかに接合するため、両者の間にバッファ領域を設けた。DNS領域、及びバッファ領域においては、 $x, z$ 各方向に速度場の8倍のモード数を用い、LES領域では速度場と同じモード数とした(Table 1: Case HF 参照)。

本計算で用いた濃度場の支配方程式は、以下のようになる。

$$\frac{\partial c}{\partial t} + u_j \frac{\partial c}{\partial x_j} = \frac{1}{Re_\tau \cdot Sc} \frac{\partial^2 c}{\partial x_j \partial x_j} - \frac{\partial \xi_j}{\partial x_j} \quad (12)$$

ここで、 $\xi_i$ は以下に定義されるSGSスカラー束ベクトルである。

$$\xi_i = A_c(x_2) \cdot (\overline{c \cdot u_i} - \bar{c} \cdot \bar{u}_i) \quad (13)$$

式(13)において、 $A_c = 0$ の時はDNS、 $A_c = 1$ の時はLESに対応する。本計算では、DNS領域で $A_c = 0$ 、LES領域で $A_c = 1$ とし、バッファ領域では、界面から遠ざかるに従い、線形に0から1へと変化する $y$ の関数とした。

計算手法は、水平方向にフーリエ・ガラーキン法、鉛直方向に有限体積法を用いた。対流項、及びSGSスカラー束には二次精度アダムス・パッシュフォース法、拡散項には、クランク・ニコルソン法を適用した。DNS領域においては、対流項の計算の際、速度場情報を濃度場の細かい格子点上に補間する必要がある。本研究では、水平方向にフーリエ補間を用いた。

ハイブリッドDNS/LES法の適用にあたり、以下の点に留意する必要がある。

- 1) DNS領域の解像度
- 2) DNS領域の広さ
- 3) LES領域で用いるSGSモデルの妥当性

本計算では、1)に関しては格子解像度を変えた計算(Case HFとCase HC)の比較、2)に関してはDNS領域を拡張した補助計算(Case HW)より検証した。

3)のSGSモデルとしては、本計算では、未知変数を動的に決定するdynamic Smagorinsky model<sup>(11)</sup>(DSM)を用いた。その他の候補としては、dynamic mixed model<sup>(12)</sup>(DMM)などがあるが、次章で示すように、大部分の濃度変化はDNS領域で発生しており、LES領域で用いるモデルの影響は小さい。従って、本研究では、計算行程が比較的単純なDSMをSGSモデルとして採用した。

時間刻み幅を $\Delta t_L^+ = 0.006$ とし、速度場、濃度場

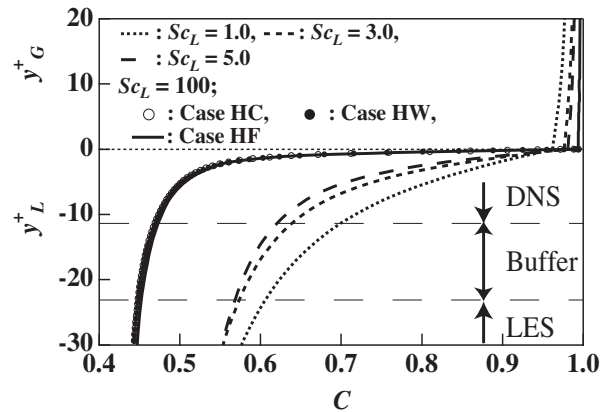


Fig. 2 Mean concentration profiles near the interface

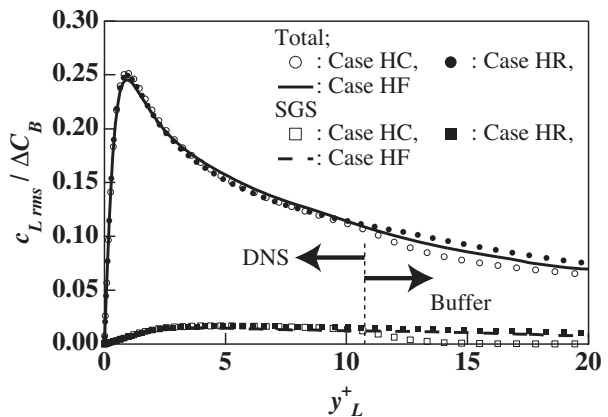


Fig. 3 Concentration fluctuations in liquid

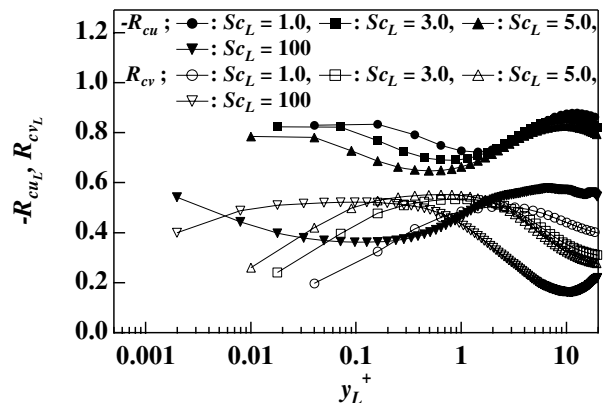


Fig. 4 Correlation coefficients  $R_{cu}$ ,  $R_{cv}$  between the concentration and velocity fluctuations.

が完全に発達した後、液側の粘性時間で $t_L^+ = 500$  ( $t_G^+ = 14500$ )の間、統計量を取得した。

### 3. 濃度場に対する高シュミット数効果

3.1 濃度場の基礎統計量 界面近傍の平均濃度分布を図2に示す。本計算では低溶解度( $\alpha = 1.0$ )のガスの交換を対象としており、シュミット数に依らず、大部分の濃度変化は液側で発生する。シュミット数の増加に伴い、濃度境界層は薄くな



り,  $Sc_L = 100$  のハイブリッド計算では, 95% の濃度変化が DNS 領域で捕らえられている.

図3に,  $Sc_L = 100$  における液側界面近傍の濃度乱れ分布を示す. ピーク位置は, 界面近傍  $y_L^+ = 1.1$  である. この格子点は, Case HF において界面から21点目に相当し, 鉛直方向に十分な解像度が得られている.

また Case HC, Case HW, Case HF において, 界面近傍で平均濃度分布, 及び濃度乱れ分布に大きな変化はなく, DNS 領域の広さや格子解像度の影響は小さいことが確認できる.

3.2 濃度 - 速度相関係数 液側界面近傍における, 濃度変動  $c'$  と流れ方向速度  $u'$ , 及び鉛直方向速度  $v'$  との相関係数  $-R_{cu}, R_{cv}$  を図4に示す. 界面遠方では, シュミット数の増加に伴い  $-R_{cu}, R_{cv}$  共

に著しく減少する. 一方, 界面近傍では,  $R_{cv}$  は高く保たれており ( $R_{cv} \sim 0.6$ ), 高シュミット数において濃度場は界面鉛直方向速度に敏感に反応することが分かる.

3.3 界面スカラー流束の瞬時分布 同一の流れ場における,  $Sc_L = 1.0$ , 及び100での界面スカラー束  $q$  の瞬時分布を図5a), b)に示す. ここで, 界面スカラー束は次式で定義される.

$$q = \frac{q^*}{u_{\tau L} \cdot \Delta C^*} = \frac{-1}{Sc_L \cdot Re_{\tau L}} \left. \frac{\partial c_L}{\partial y_L} \right|_{y=0} \quad (14)$$

低スカラー束領域は, シュミット数の増加と共に微細化し, 流れ方向に引き延ばされた構造を持つ. 一方, 高スカラー束領域は間欠的な斑点構造を持ち, シュミット数依存性は比較的小さい.

上述の高スカラー束領域と乱流構造との関係を

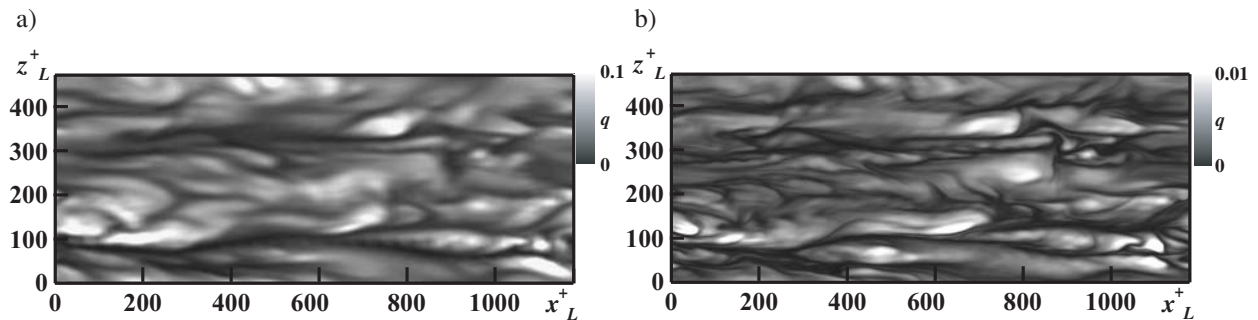


Fig. 5 Instantaneous interfacial scalar flux  $q$  at a)  $Sc_L = 1.0$ , b)  $Sc_L = 100$ .

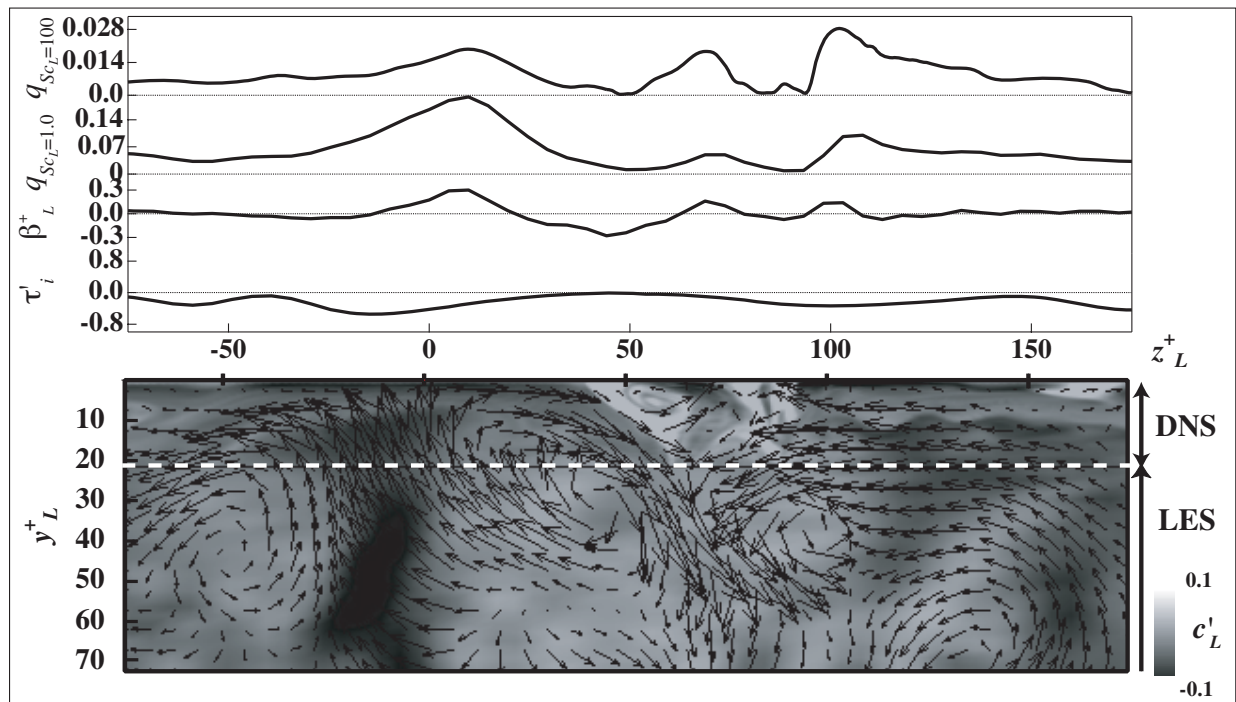


Fig. 6 Top: Instantaneous scalar flux  $q$  at  $Sc_L = 1.0, 100$ , surface divergence  $\beta$ , and interfacial shear fluctuation  $\tau_i'$ . Bottom: The scalar and velocity fluctuations in  $y$ - $z$  plane.

調べるため、液側流れ方向断面( $y$ - $z$ 断面)内の速度ベクトル、及び濃度変動の瞬時分布を図6に示す。瞬時の界面スカラー束 $q$ 、界面発散 $\beta$ 、気流から受ける界面せん断の変動 $\tau'_i$ もプロットした。ここで、界面発散は二次元界面内の発散であり、

$$\beta = \left( \frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial w}{\partial z} \right) \Big|_{y=0} = - \frac{\partial v}{\partial y} \Big|_{y=0} \quad (15)$$

で定義される。これより、高シュミット数においても界面スカラー束 $q$ は界面発散 $\beta$ との相関が高く、バルクの低濃度流体の沸き上がり $g$ 、局所スカラー束を支配することが分かる。これは、先述の界面近傍における、濃度変動と界面鉛直方向速度変動の高い相関に対応する(図4参照)。

#### 4. 界面乱流物質輸送モデル

4.1. 一次元移流拡散方程式 局所の界面発散と界面スカラー束の定量的な関係を導く際、一次元移流拡散方程式が有効となる。Chan-Scriven<sup>(13)</sup>は、界面よどみ点近傍における物質の輸送方程式が、厳密に以下の式に帰着することを示した。

$$\frac{\partial c}{\partial t^+} - \beta^+(t)y^+ \cdot \frac{\partial c}{\partial y^+} = \frac{1}{Sc} \cdot \frac{\partial^2 c}{\partial y^{+2}} \quad (16)$$

ここで、 $y^+=0$ は界面とし、液中の方向を $y>0$ とする。速度、及び長さは液中の粘性スケール、また、濃度は界面とバルクの濃度差 $\Delta C_B^*$ で無次元化されており、 $\beta^+$ は界面発散である。今、界面発散の変動を以下のようにモデル化する。

$$\beta^+(t^+) = \sqrt{2}\beta_0^+ \cdot \cos(\omega_0^+ \cdot t^+) \quad (17)$$

ここで、 $\beta_0^+ = \beta_{rms}^+ = \sqrt{\left( -\partial v^+ / \partial y^+ \Big|_{y=0} \right)^2}$ 、 $\omega_0^+$ は速度変動の角速度である。式(17)を式(16)に代入し、新たに長さスケール $Y = \sqrt{Sc \cdot \omega_0^+} \cdot y^+$ 、及び時間スケール $T = \omega_0^+ \cdot t^+$ を導入すると、シュミット数 $Sc$ が消去でき、式(16)は $\beta_0^+ / \omega_0^+$ のみに依存することが示される。

$$\frac{\partial c}{\partial T} + \sqrt{2} \frac{\beta_0^+}{\omega_0^+} \cdot \cos(T) \cdot Y \cdot \frac{\partial c}{\partial Y} = \frac{\partial^2 c}{\partial Y^2} \quad (18)$$

実際に式(16)を数値積分し、得られたガス交換係数 $K_L^+$ 、及び界面での速度と濃度の相関係数 $R_{cv}$ を図7に示す。 $\beta_0^+ / \omega_0^+ \sim 1$ を境として、解の挙動が大きく変化することが分かる。以下の節では、界面近傍の濃度場を特徴付ける二つの時間スケールに着目し、物質輸送機構を議論する。

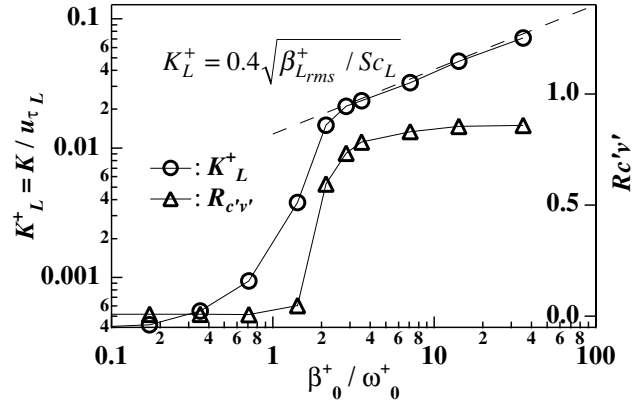


Fig. 7 Gas transfer rate  $K$  and correlation coefficient  $R_{cv}$  between the velocity and scalar fluctuations.

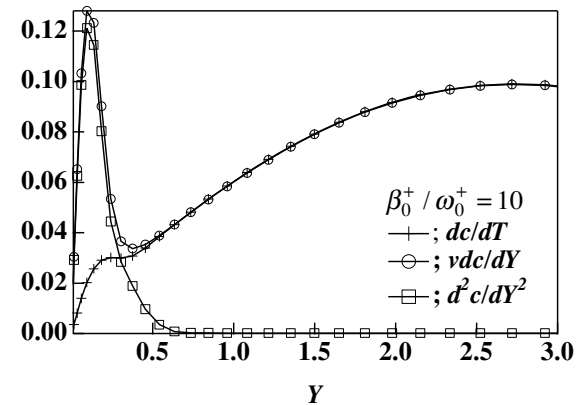


Fig. 8 Root mean square value of the fluctuations of each term in 1D advection-diffusion equation (13).

4.2. 濃度場の過渡応答時間と界面更新時間 Chan-Scriven<sup>(13)</sup>の定常よどみ点解析( $\beta = \text{一定} > 0$ )の結果より、濃度場の過渡応答時間(transient time scale)は $1/\beta$ でスケールされ、その後、式(16)の移流項と拡散項が釣り合い、濃度場は定常解へ収束する。この時、局所スカラー束 $q$ は、界面発散 $\beta$ を用いて以下の式で与えられる。

$$q_B = \frac{q^*}{u_{\tau} \cdot \Delta C_B^*} = \sqrt{\frac{2\beta^+}{\pi \cdot Sc}} \quad (19)$$

一方、 $\beta$ が負の場合、すなわち、流れが界面から遠ざかる場合、濃度境界層は指数関数的に引き延ばされ、界面スカラー束は急速に減衰する。

以上より、速度変動周期のスケール(界面更新時間) $1/\omega_0^+$ に対して、過渡応答の時間スケール $1/\beta_0^+$ が十分小さい場合、すなわち $\beta_0^+ / \omega_0^+ \gg 1$ の場合、界面スカラー束は以下の式で近似できると考えられる。

$$q_B = \begin{cases} \sqrt{\frac{2\beta^+}{\pi \cdot Sc}} \sim 0.8 \sqrt{\frac{\beta^+}{Sc}} & (\beta > 0) \\ 0 & (\beta < 0) \end{cases} \quad (20)$$

この結果は、式(16)の変動成分の式における各項

のオーダー評価からも導かれる．

$$\frac{\partial c'}{\partial t^+} - \underbrace{\beta_0^+ \cos(\omega_0^+ t) y^+ \cdot \frac{\partial C}{\partial y^+} + \beta(t) y^+ \cdot \frac{\partial c'}{\partial y^+}}_{\beta_0^+ \delta_c \cdot \Delta C_B / \delta_c = \beta_0^+ \cdot \Delta C_B} = \frac{1}{Sc} \cdot \frac{\partial^2 c'}{\partial y^{+2}} \quad (21)$$

ここで、 $\delta_c$ は濃度境界層厚さであり、 $y^+ \sim \delta_c$ での速度スケールを $v \sim O(\beta_0 \cdot \delta_c)$ とした．濃度変動のスケール $c'$ は高々 $\Delta C_B$ であるから、 $\beta_0^+ / \omega_0^+ \gg 1$ の場合、左辺第一項は第二項に対して十分小さく、界面近傍では、対流項と拡散項が釣り合う．

図8に $\beta_0^+ / \omega_0^+ = 10$ における式(18)の各項の変動量を示す．確かに、界面近傍で対流項と拡散項が支配的であることが確認される．この結果、 $\beta_0^+ / \omega_0^+ \gg 1$ の場合では、速度と濃度は、ほぼ同位相となり( $R_{cv} \sim 1$ )、ガス交換係数は、界面発散を用いて以下の式で表される(図7)．

$$K_L^+ = K_L / u_\tau \sim 0.4 \sqrt{\frac{\beta_{L,rms}^+}{Sc_L}} \quad (22)$$

一方、 $\beta_0^+ / \omega_0^+ < 1$ の場合、濃度境界層全域で、式(21)の左辺の時間微分項、及び対流項が支配的となり、右辺の拡散項は無視できる．この場合、濃度場は単純に流れに追従し、速度場との位相差が90度となるため( $R_{cv} \sim 0$ )、物質輸送に寄与せず、 $K$ は著しく減衰する．

図7より上述の二つの状態は $\beta_0^+ / \omega_0^+ \sim 1$ 近辺の境に、即座に切り替わることが分かる．すなわち、 $\beta_0^+ / \omega_0^+ > 1$ を満たす速度変動のみが物質輸送に寄与し、この時、界面スカラー束は、界面発散を用いて式(20)で与えられる．

4.3. 計算結果による検証 前節の一次元モデルを検証するため、数値計算で得られた $Sc_L = 1.0$ 、及び100における界面スカラー束 $q_B$ (上段、中段)と界面発散 $\beta^+$ (下段)の時系列データを図9に示す．式(20)による界面スカラー束の予測値もプロットした．ただし、濃度差として $Sc_L = 100$ では界面とバルクの濃度差 $\Delta C_B^*$ を、 $Sc_L = 1.0$ では界面と $y_L^+ = 20$ での濃度差 $\Delta C_{y_L^+=20}^*$ を用いた．これは $Sc_L = 1.0$ では濃度境界層が厚く、粘性底層の外での濃度変化が無視できないためである．

図9より、高シュミット数においても界面スカラー束は界面発散に敏感に応答し、そのピーク値は式(20)により定量的に予測されることが分かる．図10に $Sc_L = 100$ における界面発散と界面スカラー束の重み付き結合確率密度分布を示す．実線は式(20)を表し、両者に良い一致が確認できる．

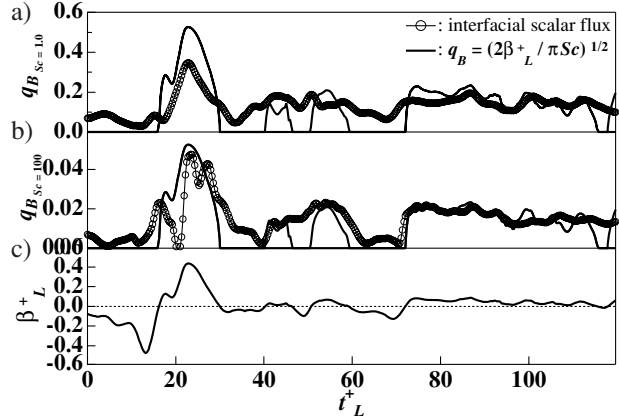


Fig. 9 Time traces of the interfacial scalar flux  $q_B$  at  $Sc_L =$  a) 1.0, b) 100 and c) the surface divergence  $\beta^+$ .

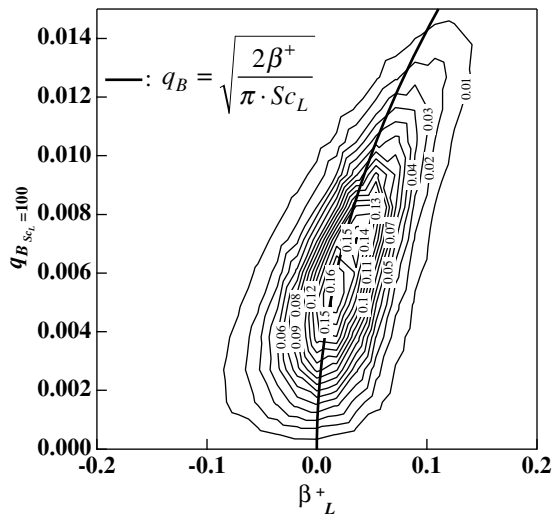


Fig. 10 Scalar-flux weighted joint PDF of the interfacial scalar flux  $q_B$  and the surface divergence  $\beta^+$ .

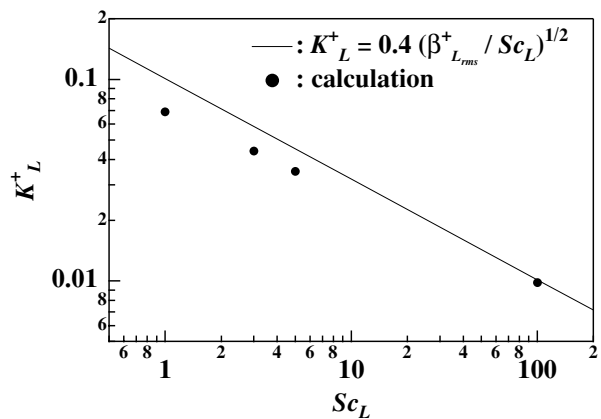


Fig. 11 Gas transfer rate versus the Schmidt number.

以上より、本研究で対象としたせん断のある気液乱流界面では、界面発散が $\beta_0^+ / \omega_0^+ > 1$ の条件を満たしており、式(20)により局所の界面スカラー束の予測が可能であることが分かった．



4. 4. ガス交換係数 一次元解析の結果より,  $\beta_0^+ / \omega_0^+ > 1$  の場合, ガス交換係数は界面発散の強度  $\beta_{L_{rms}}^+$  を用いて, 式(22)で予測される. 本計算では  $\beta_{L_{rms}}^+ = 0.065$  であり, 式(22)による予測値と計算結果の比較を図11に示す. 高シュミット数 ( $Sc_L = 100$ ) では, 両者に良い一致が確認できる. 一方, 低シュミット数では過大評価されるが, これは濃度境界層が粘性底層より厚いためである.

ここで, 式(22)の実次元表記は, 界面更新モデル式(3)において, 界面更新時間  $T_S^*$  を過渡応答の時間スケール  $1 / \beta_{rms}^*$  とすれば等価となる. しかし, 界面更新モデルでは移流と拡散の過程を分離し, それらが  $T_S^*$  の時間間隔で交互に起ると仮定する. 一方, 式(22)は移流項と拡散項の釣り合いから導かれており, 両者の物理的背景は異なる.

## 5. 結論

本研究では, 気液乱流界面におけるミクロな物質輸送機構の解明とそのモデル化を目的として, 高シュミット数物質輸送の数値シミュレーションを行った. その結果, 界面近傍の濃度変動と界面垂直方向速度変動の相関が高く ( $R_{cv} \sim 0.6$ ), バルク流体の上昇によって誘発される界面発散が, 物質輸送を支配することを明らかにした.

これを基に, 界面よどみ点近傍をモデル化した一次元移流拡散方程式の解析を行った. その結果, 界面近傍の濃度場は, 過渡応答の時間スケールと界面更新の時間スケールの比  $\beta_0 / \omega_0$  によって特徴付けられ,  $\beta_0 / \omega_0 > 1$  を満たす速度変動のみが物質輸送に寄与し, この時, 界面スカラー束は, 式(20)により解析的に与えられることを示した. 更に, 本モデルを用いて, 局所スカラー束の時間変動を定量的に予測できることを示した.

近年の風波水槽<sup>(5)</sup>, 及び格子乱流水槽<sup>(7)</sup>での実験結果においても, ガス交換係数は界面発散を用いて整理され, その比例定数も約 0.4 と一次元モデルの解析結果と良い一致を示している. これらの結果は, マクロな乱流の形態は異なるものの, 界面近傍では界面鉛直方向の対流項と拡散項の釣り合いにより, スカラー束が決定されることを示唆している.

近年, 実験室レベルでは, PIV による界面発散の計測が可能となっており, これらと式(20)を組み合わせて, 界面スカラー束の空間分布を精度良く予測できると考えられる. 一方, 海洋界面への

適用を考えた場合, 広範囲に渡る界面発散の分布計測は依然として困難であり, より計測が容易なマクロな情報と界面発散を繋ぐ理論の構築が必要となる. これまで一様等方性乱流場において検証例<sup>(4)</sup>があるものの, せん断や波動を含む界面に関しては, 更なる研究が必要である. また, 本研究の界面発散モデルは,  $\beta_0 / \omega_0 > 1$  を満たす場合のみ有効であるが, 界面汚れの影響で速度変動が著しく減衰する場合, 上記の条件が成立しない. このような流れ場での界面物質輸送モデルの構築も今後の課題である.

## 6. 謝辞

本研究を行うにあたり, 21世紀COEプログラム「機械システム・イノベーション」による支援を受けた. ここに記して謝意を表する.

## 参考文献

- (1) Jähne, B. and Haußecker, H., *Annual Review of Fluid Mechanics*, **30** (1998), 443-468.
- (2) Dankwerts, P. V., *Industrial and Engineering Chemistry*, **43** (1951), 1460-1467.
- (3) Komori, S. et al., *Journal of Fluid Mechanics*, **203** (1989), 103-123.
- (4) Banerjee, S., *Proceedings of the 9th International Heat Transfer Conference*, Jerusalem (1990), 395-418.
- (5) Banerjee, S. et al., *International Journal of Multiphase Flow*, **30-7** (2004), 963-977.
- (6) Law, C. N. S. and Khoo, B. C., *American Institute of Chemical Engineers Journal*, **48-9** (2002), 1856-1868.
- (7) McKenna, S. P. and McGillis W. R., *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **47** (2004), 539-553.
- (8) Nagaosa, R. and Handler, R. A., *Physics of Fluids*, **15-2** (2003), 375-394.
- (9) Hasegawa, Y. and Kasagi, N., *Nihon Kikai Gakkaishi Ronbunshu, B* (Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B), **69-680** (2003), 824-832.
- (10) Bachelor, G. K., *Journal of Fluid Mechanics*, **5** (1959), 113-133.
- (11) Germano, G. et al., *Physics of Fluids A*, **3-7** (1991), 1760-1765.
- (12) Zang, Y. et al., *Physics of Fluids A*, **5-12** (1993), 3186-3196.
- (13) Chan, W. C. and Scriven, L. E., *Industrial and Engineering Chemistry Fundamentals*, **9-1** (1970), 114-120.