

気液界面における高シュミット数乱流物質輸送*

長谷川洋介^{*1}, 笠木伸英^{*2}Turbulent Mass Transfer Across an Air-Water Interface
at High Schmidt NumbersYosuke HASEGAWA^{*3} and Nobuhide KASAGI^{*3}Department of Mechanical Engineering, The University of Tokyo,
Hongo 7-3-1, Bunkyo-ku, Tokyo 113-8656, Japan

Direct numerical simulation of coupled air-water flow mass transfer was carried out by employing the Eulerian and Lagrangian approaches at moderate and high Schmidt numbers from 1 to 1000. Three different flow conditions were chosen, *i.e.*, the Reynolds numbers of gas and liquid phases, which were based on the interfacial friction velocities and depths, were set to be 150, increased to 300 only in the gas phase, and then 300 in both phases. In the liquid phase, the correlation coefficient between the scalar and the normal velocity fluctuation near the interface is found to be high (~ 0.5) even at high Schmidt numbers. Quasi-streamwise vortices, whose velocity and length scales are determined by shear units, penetrate a very thin concentration boundary layer and govern the interfacial mass transfer. The resultant mass transfer rates are almost independent of the Reynolds number and inversely proportional to the square root of the Schmidt number of the liquid.

Key words: Mass transfer, Turbulence, Air-water interface, Schmidt number, Lagrangian method

1. 緒 論

気液界面における物質輸送現象は、工学のみならず大気・海洋間における炭酸ガス吸収など、環境科学の分野でも多く見られ、その機構解明と正確な予測は重要な課題である。

二酸化炭素などの多くのガスの拡散においては、流体の動粘性係数 ν と物質拡散係数 D の比であるシュミット数 ($Sc = \nu/D$) が液中で大きく ($Sc_L \sim O(10^3)$)⁽¹⁾、液側界面近傍に非常に薄い濃度境界層を形成する (20~200 μ m)。このため、従来より液側流体の更新運動が、物質輸送を支配すると考えられてきた。その具体的な機構としては、乱流場、界面波動、砕波が挙げられる。現実の海洋では、海上風、海洋のうねりなどの複雑な相互作用の結果、界面更新運動が誘発され、物質輸送が促進されると考えられる。

これら界面更新機構のうち、界面近傍の乱流場は、砕波のない海洋表層で支配的因子であり、気液相互作用を伴う複雑な現象である。ここで、しばしば議論の対象となるのは物質輸送を支配している渦構造のスケールである。例えば、Fortescue-Pearson⁽²⁾は、積分スケール L_∞ の渦が物質輸送を支配していると仮定し、界面更新モデル⁽³⁾を適用し、ガス交換係数 K に関して以下の関係式を得た。

$$K^* = \frac{K}{u_*} \propto Sc^{-1/2} \cdot Re^{-1/2}. \quad (1)$$

一方、Lamont-Scott⁽⁴⁾は界面近傍の最小スケールの渦が支配的とし、以下のような関係式を得た。

$$K^* = \frac{K}{u_*} \propto Sc^{-1/2} \cdot Re^{-1/4}. \quad (2)$$

ここで、本報で扱うような界面剪断が支配的な乱流場においては、速度スケール u^* として界面摩擦速度 u_τ が用いられ、レイノルズ数は $Re = u_\tau \cdot L_\infty / \nu$ で定義される。

近年、Laser-Induced Fluorescence (LIF)による濃度測定が可能となったが⁽⁵⁾、薄い濃度境界層内部の速度場と濃度場の同時測定は今なお困難である。これに対して、直接数値シミュレーション

* 原稿受付 2002年5月13日

^{*1} 正員, 東京大学大学院学生 (〒113-8656 東京都文京区本郷7-3-1).^{*2} 正員, 東京大学大学院工学系研究科
E-mail: hasegawa@thtlab.t.u-tokyo.ac.jp

(DNS)は乱流現象の詳細解析に有力なツールである。しかし、界面剪断を考慮した計算例^{(6), (7), (8)}は未だ少なく、濃度場の解像に必要な格子数はシュミット数の増加と共に著しく増加するため、オイラー法に基づく計算では $Sc = 10$ 程度が限界となっている⁽⁹⁾。このため自由界面近傍の乱流構造や、それに伴う物質輸送機構に関して十分な理解が得られていない。

本報では、砕波のない海洋表層の乱流物質輸送を対象とし、界面剪断を考慮した気液界面乱流場のDNSを行う。また、高シュミット数濃度場に対して従来提案されている式(1), (2)との比較を行うと共に、乱流物質輸送機構の解明を目的とする。その際、近年高シュミット数パッシブスカラー場の計算手法として提案されたラグランジュ法⁽¹⁰⁾を適用する。

主な記号

- c : 物質濃度(単位体積当たりのモル数)
- C_B : 液側バルクの平均物質濃度
- C_I : 界面の平均物質濃度
- 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
- l_τ : 粘性長さ ($l_\tau = \nu / u_\tau$)
- p : 圧力
- Re_τ : レイノルズ数 ($Re_\tau = u_\tau \cdot \delta / \nu$)
- $R_{\alpha\beta}$: α と β の相関係数
- Sc : シュミット数 ($Sc = \nu / D$)
- u_τ : 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
- α : ガスの水に対する溶解度
- $\Delta x, \Delta y, \Delta z$: 各方向の格子間隔
- δ : 各相の深さ
- ν : 動粘性係数
- ρ : 各相における流体の密度
- τ_i : 流れ方向の平均界面剪断応力

添え字

- G : 気相における値
- i : 方向座標(x, y, z)
- L : 液相における値

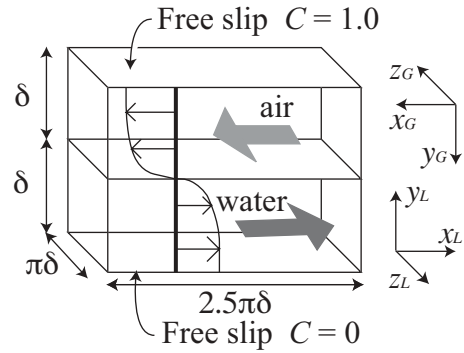


Fig. 1 Computational domain and coordinate system

2. 支配方程式と計算手法

気液界面における物質輸送モデルとして、薄膜モデルがしばしば用いられる。これは、濃度変化は気液両相における界面近傍の薄膜内のみで起こり、その外層は強い乱流混合により一様な濃度分布となると仮定するものである。本研究では、気液両相の薄膜内のみに着目し、数学的モデルとして、図1に示すように逆方向へ各々一定圧力勾配を課した気液対向流を考える。これは、界面平均速度で移動する系から見た流れ場に対応している。気液両相の支配方程式は、以下に示す非圧縮ナビエ・ストークス方程式、連続の式、及びスカラー濃度場の輸送方程式となる。

$$\frac{\partial u_i}{\partial t} + u_j \frac{\partial u_i}{\partial x_j} = -\frac{\partial p}{\partial x_i} + \frac{1}{Re_\tau} \frac{\partial^2 u_i}{\partial x_j \partial x_j} \quad (3)$$

$$\frac{\partial u_i}{\partial x_i} = 0 \quad (4)$$

$$\frac{\partial c}{\partial t} + u_j \frac{\partial c}{\partial x_j} = \frac{1}{Re_\tau \cdot Sc} \frac{\partial^2 c}{\partial x_j \partial x_j} \quad (5)$$

ここで、添字の i は、各方向座標を意味する。各変数は各々の相で定義される界面摩擦速度 u_τ と相の深さ δ によって無次元化されている。また、 c は単位体積当たりのモル数[mol/l]を表し、両相の濃度差 ΔC で無次元化されている。ここで各相の界面摩擦速度 $u_{\tau G}, u_{\tau L}$ は以下のように定義される。

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

$$u_{\tau L} = \sqrt{\tau_i / \rho_L} \quad (7)$$

ただし、 τ_i は界面での剪断応力、 ρ_G, ρ_L は気液の密度である。

現実の海洋界面を考慮するとレイノルズ数は非常に大きい。しかし、本研究で対象とする界面剪断が支配的な気液乱流界面においては、両相で壁

Table 1 Computational conditions

	$Re_{\tau G}$	$Re_{\tau L}$	$l_{\tau L} / l_{\tau G}$	k_x, k_y, k_z	Δx_L^+	Δy_L^+	Δz_L^+	Sc_L
Case 1	150	150	1.0	64, 65, 64	18.4	0.09 ~ 3.7	7.4	1.0
	150	150	1.0	96, 97, 96	12.3	0.04 ~ 2.5	4.9	3.0
	150	150	1.0	128, 129, 128	9.2	0.02 ~ 1.8	3.7	5.0
Case 2	300	300	1.0	128, 129, 128	18.4	0.09 ~ 3.7	7.4	-
Case 3	300	150	2.0	128, 129, 128	9.2	0.02 ~ 1.8	3.7	-

乱流と同様の縦渦, ストリークなどの準秩序構造が確認され⁽²⁾, これらの乱流構造は比較的レイノルズ数依存性が小さく, 一方薄膜内部の乱流物質輸送を支配している. そこで, 本報ではこれら界面近傍の乱流構造が再現され, かつ計算可能なレイノルズ数として以下の三種を設定した. レイノルズ数は, 気液各々の相の摩擦速度 u_τ と, 深さ δ で定義され, $Re_{\tau G} = Re_{\tau L} = 150$ (Case 1), $Re_{\tau G} = Re_{\tau L} = 300$ (Case 2), $Re_{\tau G} = 300$ $Re_{\tau L} = 150$ (Case 3) とした(表 1).

ここで Case 2 においては, ガス交換係数のレイノルズ数依存性に関して, 式(1), (2)との比較を目的とし, レイノルズ数を両相で Case 1 の二倍に設定した. また, 本計算では気液両相で深さ δ が等しいため, 両相のレイノルズ数が等しい場合, 各相での粘性長さ ($l_{\tau G} = v_G / u_{\tau G}$, $l_{\tau L} = v_L / u_{\tau L}$) が等しいと仮定したことと等価である. しかし, 標準状態の空気, 水を想定すると, 液側の粘性長さは気側のその 2 倍程度であるため, Case 3 では気側のレイノルズ数を液側の 2 倍とした. これは, 風速 2m/s, 深さ 4cm の場合に対応し, またの場合においても, 気液密度比を $\rho_L / \rho_G = 841$ とした.

境界条件として, 水平方向に周期境界条件を課し, 界面では速度場に関して速度と剪断応力の連続条件を, またスカラー場に関してヘンリー則とスカラー束の連続条件を課した. 本報で扱う低レイノルズ数流れでは, 界面変形は微少であり⁽¹¹⁾, 界面近傍での圧力変動などの一部の統計量を除いては, 流れ場の統計量に与える影響は非常に小さいことが知られている⁽¹²⁾. そのため, 本研究では界面での鉛直方向速度をゼロとした. 界面での速度場, 濃度場の境界条件は無次元化された変数によって, 以下のように記述される.

$$u_{iG} \Big|_{interface} = \sqrt{\frac{\rho_G}{\rho_L}} \cdot u_{iL} \Big|_{interface} \quad (8)$$

$$\frac{\partial u_{iG}}{\partial x_2} \Big|_{interface} = \frac{Re_{\tau G}}{Re_{\tau L}} \frac{\partial u_{iL}}{\partial x_2} \Big|_{interface} \quad (9)$$

$$c_G \Big|_{interface} = \frac{1}{\alpha} c_L \Big|_{interface} \quad (10)$$

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

ここで $i=1, 3$ である. また式(8)より両相の密度比は, 界面における気液の力学的連成を支配するパラメータである. 式(10)において α は溶解度であり, 本計算では, $\alpha = 1.0$ とした. これは, 標準状態の二酸化炭素 ($\alpha \sim 0.7$) に対応する.

界面近傍の自立的乱流機構を再現し, 一方両相の外端境界の影響をなくすため, 外端で速度場に対して滑り条件を課した. また濃度場に関しては上端境界で $c = 1$, 下端境界で $c = 0$ の等スカラー濃度条件を課した.

空間離散化に関して擬スペクトル法を, 時間離散化は対流項に対して 2 次精度 アダムス・バッシュフォース法を, 粘性項にはクランク・ニコルソン法を用いた. 計算手法の詳細は, Lombardi ら⁽⁷⁾を参考にされたい. 計算領域は気液共に, 深さ δ , 流れ方向に $2.5\pi\delta$, スパン方向に $\pi\delta$ とした. 表 1 に各ケースにおけるモード数を示す. スカラー場に関しては, オイラー法では Case 1 の流れ場に対して気側のシュミット数 $Sc_G = 1.0$ と固定し, 液側を $Sc_L = 1.0, 3.0, 5.0$ とした. また, これに伴い両相で各方向のモード数を, $64 \times 65 \times 64, 96 \times 97 \times 96, 128 \times 129 \times 128$ とした(表 1). また Case 1 の流れ場に対して, モード数を各方向に 2 倍設けた場合の計算, また計算領域に関して水平方向に 2 倍とした計算をそれぞれ行い, 統計量に影響がないことを確認した.

さらに高シュミット数 ($Sc_L = 100, 300, 500, 1000$) における濃度場の計算に関して, ラグランジュ法を適用した. その詳細は 4 章で述べる.

3. オイラー法による計算結果

3.1 速度場の統計量 両相の速度乱れ分布を

図2に示す．ただし，速度変動は各相の界面摩擦速度で無次元化し，横軸は界面からの距離を各相の粘性長さで無次元化したものを表す．界面遠方では両相の分布は壁乱流のそれに近い．しかし，界面近傍において気側では急速に速度変動が減少するのに対して，液側では界面で流れ方向，スパン方向の速度変動が最大として現れる．これは，式(8)より両相の密度比が大きいので，界面の境界条件は，気側に対して滑りなし条件，液側に対してはフリースリップ条件とほぼ等価であることが分かる．

3.2 流れ場の可視化 気液における粘性長さの違いの影響を調べるため，Case 3での気液両相における界面近傍の流れ場の可視化を図3に示す．背景の色は界面から $y^+_L = y^+_G = 5$ の位置での主流方向速度変動を表し，同様に界面近傍の渦構造の中心核部分を可視化するため，歪みテンソルの第二不変量の等値面 ($\Pi = -0.04$)もプロットした．気液両相で，ストリーク構造や縦渦構造が確認されるが，液側の粘性長さが気側のその2倍となっているため構造のスケールは異なっている．主流方向速度変動のスパン方向二点相関より，各相のストリーク間隔を見積もると，気側で $\Delta z^+_G \sim 100$ に対して，液側で $\Delta z^+_L \sim 130$ であった．これらの結

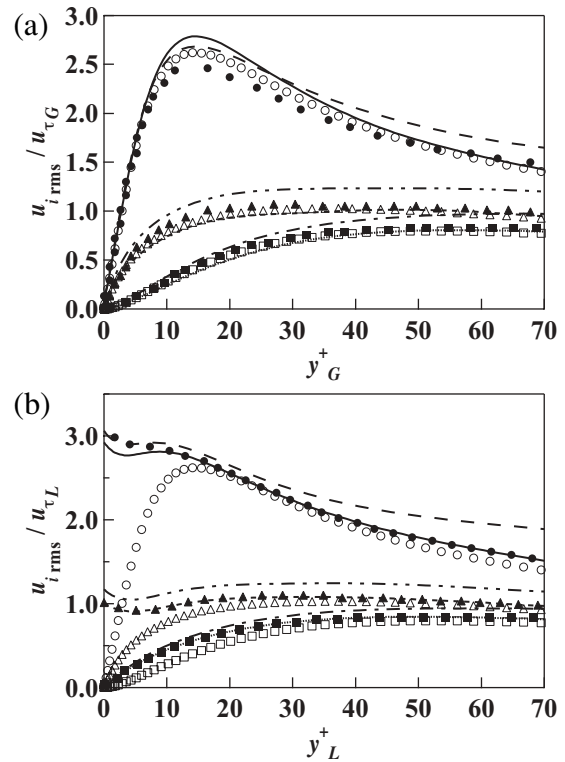


Fig. 2 Velocity fluctuations

(a) Gas phase, (b) Liquid phase

Case 1; —: u_{rms} ,: v_{rms} ,: w_{rms}
 Case 2; - - -: u_{rms} , - - -: v_{rms} , - - -: w_{rms}
 Lombardi *et al.*; ●: u_{rms} , ■: v_{rms} , ▲: w_{rms}
 Channel; ○: u_{rms} , □: v_{rms} , △: w_{rms}

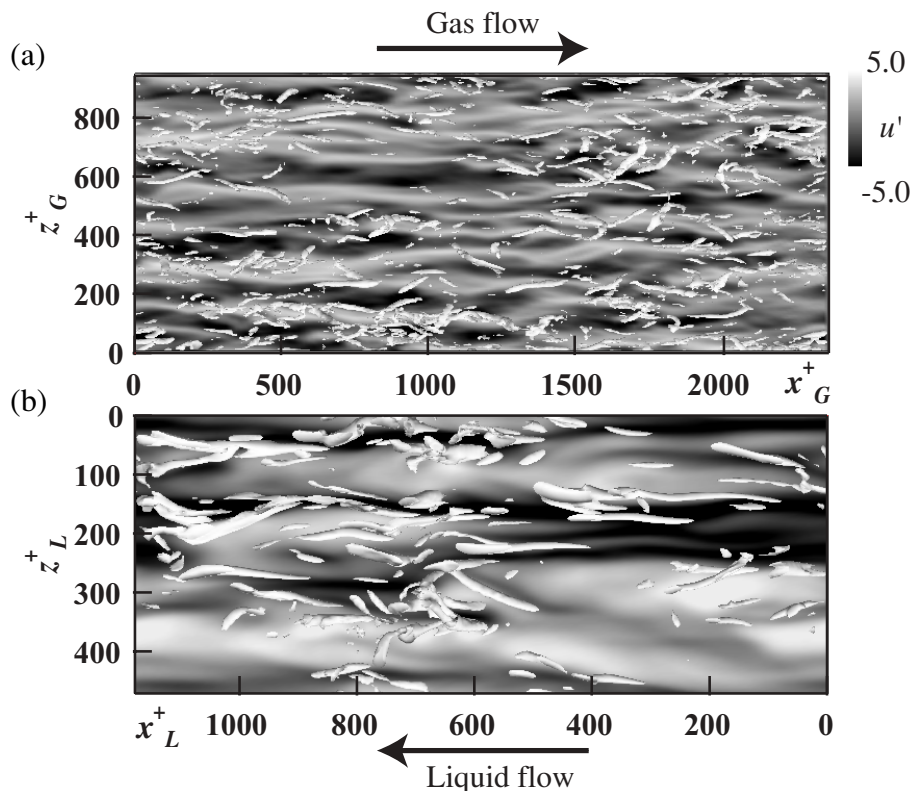


Fig. 3 Streaks and vortical structures in Case 3

(a) gas phase, (b) liquid phase

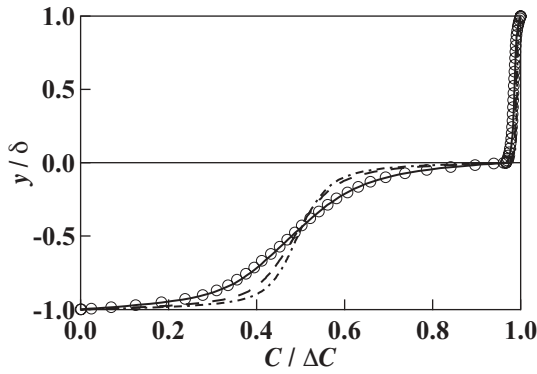


Fig. 4 Mean concentration profiles in Case 1

Eulerian; —: $Sc_L = 1.0$, - - : $Sc_L = 3.0$,: $Sc_L = 5.0$
Lagrangian; ○ $Sc_L = 1.0$

果は気液両相で粘性長さが等しいと仮定した, 本報の Case 1, Case 2, また Lombardi ら⁽⁷⁾の結果ともほぼ一致し, これより界面近傍の乱流構造は各々の相の粘性長さで整理されることが分かる.

3.3 スカラー場の統計量 Case 1 の流れ場に関して, 気側のシュミット数は $Sc_G = 1.0$ に固定し, 液側のシュミット数を $Sc_L = 1.0, 3.0, 5.0$ と変化させた際の, 平均スカラー濃度分布を図4に示す. 界面の境界条件式(11)より, 本計算のように両相のシュミット数とレイノルズ数が同程度であっても, 密度比が大きいために物質輸送に対する大部分の抵抗は液側で発生する.

また, ディレクレ型の外端境界条件を課したために, 液相外端境界 ($y/\delta = -1.0$) 近傍において大きな濃度勾配が確認される. しかし, シュミット数の増加に伴い, 濃度境界層は急速に薄くなり, 液相中心部では濃度分布が平坦化するため, 下側境界の影響は小さくなる. また, 界面近傍では縦渦構造が支配的であり, 下側境界から界面近傍への低濃度流体の沸き上がりの影響は, 低シュミット数においても小さい.

図5に各相でのスカラー濃度変動分布を示す. 気側の濃度変動は界面で最大となり, 液側の影響を強く受けていることが予測される. 一方, 液側に対する界面の境界条件は, 等スカラー濃度条件に近い. 図6にスカラー濃度変動と速度変動との相関を示す. 主流方向速度変動と濃度の相関 R_{cu} は, 界面近傍で僅かに減少するものの, 両相で高い値を持つ. 一方, 界面垂直方向の速度変動との相関 R_{cv} は, 気側 $y_G^+ < 10$ において減少し, 特に界面ごく近傍 ($y_G^+ < 1.0$) では相関は負となる (逆勾配拡散). これは, 次節で示す液側との相互作用のためである. 一方, 液側では高シュミット数に

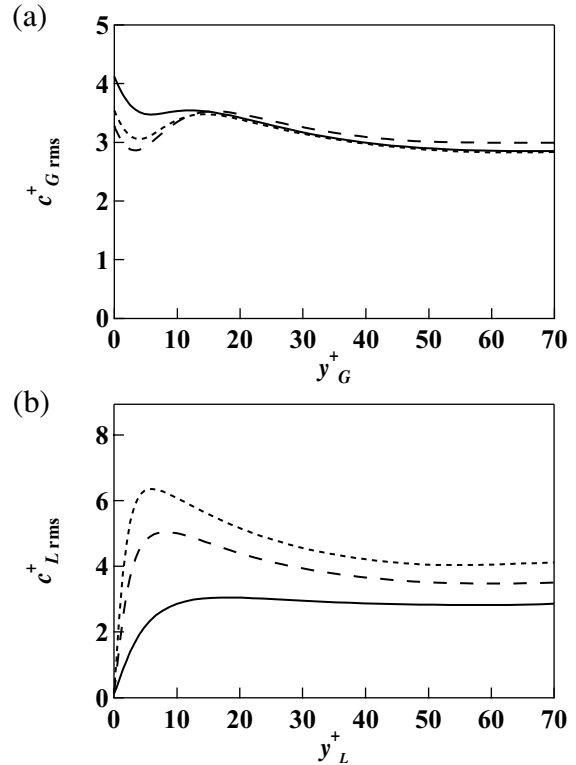


Fig. 5 Concentration fluctuations in Case 1
(a) gas phase, (b) liquid phase

—: $Sc_L = 1.0$, - - : $Sc_L = 3.0$,: $Sc_L = 5.0$

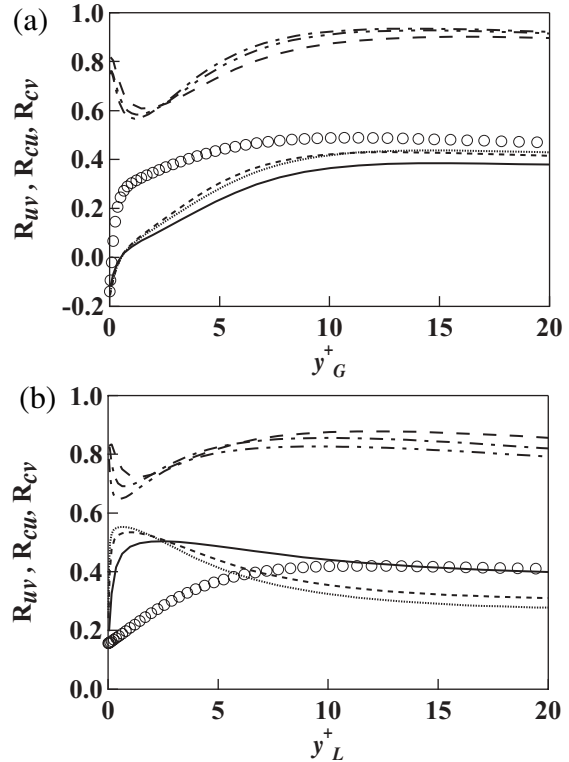


Fig. 6 Correlation coefficient in Case 1.
(a) gas phase, (b) liquid phase

R_{uv} ; ○
 R_{cu} ; - - : $Sc_L = 1.0$, - - - : $Sc_L = 3.0$,: $Sc_L = 5.0$
 R_{cv} ; —: $Sc_L = 1.0$,: $Sc_L = 3.0$,: $Sc_L = 5.0$

においても、界面近傍で0.5以上の相関を持ち、シュミット数の増加に伴い、ピークの位置は界面近傍に近づく傾向にある。

3.4 速度場と濃度場の時空間相関 前節で示した界面近傍における速度場と濃度場の相関分布より、物質輸送機構が両相で大きく異なることが予測される。そこで、Case 1 の $Sc_G = Sc_L = 1.0$ の場合に関して、界面におけるスカラー束変動 q' と、時間差 Δt^+ 、界面からの距離 Δy^+ における速度、濃度変動との時空間の相関を求めた。ここで、相関 $R_{q\alpha}(\Delta y, \Delta t)$ の定義式は、

$$R_{q\alpha} = \frac{q'(x, z, t)|_{interface} \cdot \alpha'(x, y, z, t + \Delta t)}{q_{rms}|_{interface} \cdot \alpha_{rms}(y)} \quad (12)$$

である。ここで、 α は速度変動成分 u' 、 v' もしくは濃度変動 c' である。速度成分の符号は、図 1 に示すように、各相での主流方向、界面方向を正とした。図 7 に結果を示す。横軸は時間差 Δt^+ を表し、上部は気側、下部は液側に対応する。

液側では、 $y^+_L = -15$ においても相関が高く、界面スカラー束 q' に対応して、界面下から高速 ($u'_L > 0$) で低スカラー濃度 ($c'_L < 0$) の流体が上昇 ($v'_L > 0$) している。これに対し、気側では全般的に相関が低く、これより液側の乱流構造が物質輸送を支配していることが分かる。

一方、気側においても界面ごく近傍 ($y^+_G = 1.0$) では、比較的大きな相関を示している。これは、液側の強いスプラッティングが、気側の速度場、濃度場に影響を与えるためである。すなわち、液側界面近傍に輸送された低スカラー濃度の流体が、分子拡散により、気側に負の濃度変動 ($c'_G < 0$) を生成している。また、速度場に関しても、密度の大きい液側の流れに駆動され、気側で界面に向かう流れ ($v'_G > 0$) が生成される。これにより、界面近傍で R_{cv} が負の値を示すものと考えられる (図 6)。

4. 高シュミット数での物質輸送

4.1 ラグランジュ法 格子点上の値を計算するオイラー法に対して、ラグランジュ法ではスカラー場を、多数のスカラー粒子の確率密度分布によって表現する。これにより、高 Pr 、高 Sc において比較的小さな負荷で計算が可能となる。スカラー粒子は、対流と分子拡散の効果によって運動し、各々の効果は、粒子位置での流速と三次元ラ

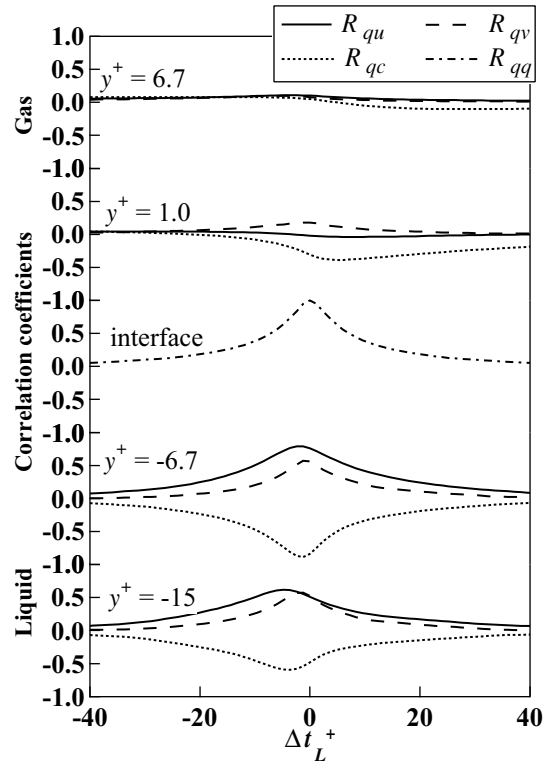


Fig. 7 Space and time correlation coefficient between surface scalar flux and velocity components in Case 1.

ンダム・ウォークによって表される。粒子位置の時間発展は次式で与えられる。

$$\Delta x_i = u_{fi} \cdot \Delta t + \sigma_m \cdot W \quad (13)$$

ここで、 u_{fi} は粒子位置での流速ベクトル、 Δt は時間間隔、 W は平均値 0、分散値 1 のガウス分布に基づく乱数で、 σ_m はシュミット数と時間間隔 Δt を用いて以下のように記述される。

$$\sigma_m = \sqrt{2\Delta t / Sc} \quad (14)$$

初期条件として、スカラー源にスカラー粒子を配置し、粒子の確率密度分布 $P_1(x-x_0, y-y_0, z-z_0, t-t_0)$ の時間発展を求める。ここで、 x, y, z は、時刻 t での、また x_0, y_0, z_0 は初期時刻 t_0 におけるスカラー粒子の位置である。物理的には P_1 は、あるスカラー点源から放出されたスカラー濃度のアンサンブル平均の時間発展を表す。ラグランジュ法では、確率密度分布 P_1 の重み付き積分より、様々な境界条件における濃度場の計算が可能となる⁽¹³⁾。

4.2 計算条件 初期条件として、計算領域の上下境界に一様に 128×128 個の粒子を配置した。ただし、濃度場計算の際には、各時間ステップ毎に得られる粒子確率密度分布を積分するため、総サンプル数は (粒子数 \times 時間ステップ数) 個とな

る．粒子の追跡には，境界近傍で精度が高い6次 Lagrange-Chebyshev 補間⁽¹⁴⁾を用い， y 方向の粒子確率密度分布を得るために Chebyshev コロケーションで193のグリッドを設けた．流れ場計算の時間間隔は $\Delta t_f^+ = 0.06$ とし，スカラー粒子の時間発展にはその1/10の， $\Delta t_p^+ = 0.006$ とした．またより小さな時間間隔を用いても，結果に影響がないことを確認した． $Sc_G = Sc_L = 1.0$ におけるラグランジュ法とオイラー法によって得られた平均濃度分布の比較を図4に示す．両者に良い一致が確認できる．

ラグランジュ法では，スカラー源近傍の濃度分布は，放出直後のスカラー粒子分布により決定されるため短時間で収束する．一方，スカラー源から遠い領域では，十分なサンプル数が得られるまで長時間積分する必要がある．そこで，以下では，速度場に関しては両相のカップリングを考慮する一方，濃度場に対しては界面で等スカラー濃度条件を課し，液側濃度場のみを解いた．これは図4, 5(b)より，低シュミット数において，大部分の濃度変化は液側で発生し，界面ではほぼ等スカラー濃度条件が成立していることが確認され，高シュミット数ではさらにその傾向が顕著となるためである．これにより，比較的早く界面近傍の濃度場の統計量が収束する．液側のシュミット数は，Case 1~3のそれぞれの流れ場において， $Sc_L = 100, 300, 500, 1000$ とした．

4.3 ガス交換係数 本計算条件において得られたガス交換係数は，試行実験を行う流れ場の初期条件に依存し，5%程度のばらつきが見られた．本報では，相関のない二つの初期場から得た粒子確率密度分布を用いガス交換係数を決定した．結果を図8に示す．ここで，ガス交換係数 K^+ は界面濃度 C_I と液側バルク濃度 C_B との差と，液側界面摩擦速度 $u_{\tau L}$ を用いて次のように定義されている．

$$K^+ = \frac{K}{u_{\tau L}} = \frac{1}{Sc_L(C_I - C_B)} \cdot \frac{dC}{dy} \Big|_{interface} \quad (15)$$

また，De Angelis-Banerjee⁽¹⁵⁾の $Sc_L = 100$ でのDNS $G = Re_{\tau L} = 150$ ，Calmet-Magnaudet⁽¹⁶⁾の $Sc_L = 200$ でのLES($Re_{\tau L} = 1280$)の結果をプロットした．本計算結果では，ガス交換係数 K^+ の気液両相のレイノルズ数に対する依存性は小さく，高レイノルズ数において，僅かに増加する傾向が見られた(Case 2)．これは式(1), (2)のどちらとも一致しない．一方，Hanratty⁽¹⁷⁾は過去の実験結果を纏め，ガス交

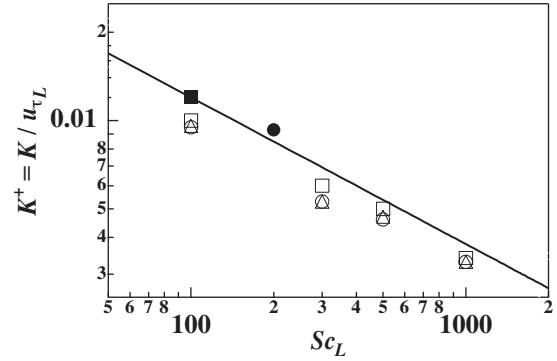


Fig. 8 Gas transfer rate at high Schmidt numbers
Preset study; ○:Case 1, □:Case 2, △:Case 3,
Calmet; ●, De Angelis; ■, Hanratty; — $K^+ = 0.12 Sc_L^{-0.5}$

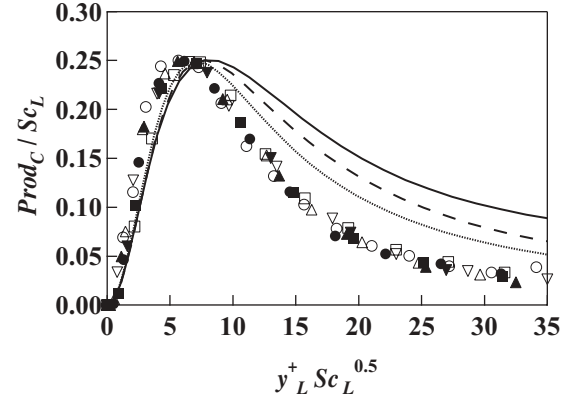


Fig. 9 Production of scalar fluctuation
Case 1; —: $Sc_L = 1.0$, - - -: $Sc_L = 3.0$,: $Sc_L = 5.0$,
○: $Sc_L = 100$, □: $Sc_L = 300$, △: $Sc_L = 500$, ▽: $Sc_L = 1000$,
Case 2; ●: $Sc_L = 100$, ■: $Sc_L = 300$, ▲: $Sc_L = 500$, ▼: $Sc_L = 1000$

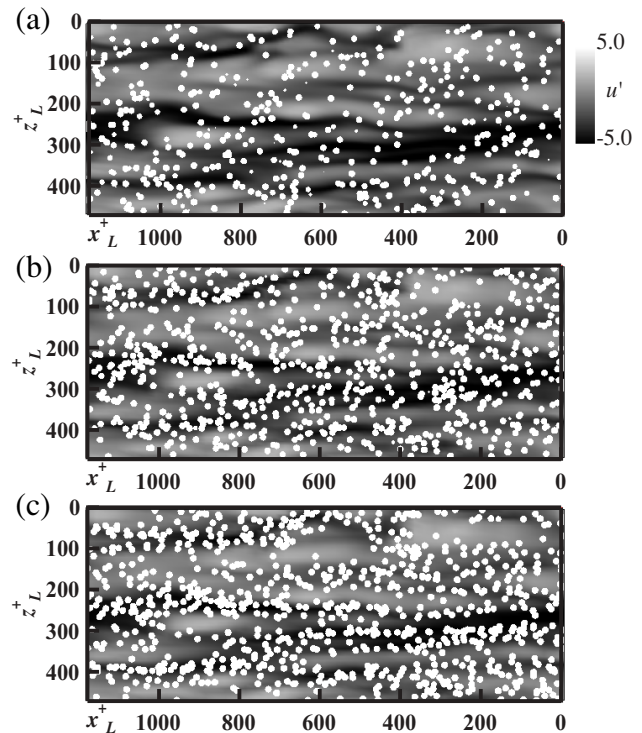


Fig. 10 Distribution of scalar markers near the interface at different Schmidt numbers in Case 1.
(a) $Sc_L = 0.1$, (b) $Sc_L = 1.0$, (c) $Sc_L = 100$

換係数はレイノルズ数に依存せず、以下のような式で整理されることを明らかにした。

$$K^+ = \frac{K}{u_{\tau L}} = 0.12 \cdot Sc_L^{-0.5} \quad (16)$$

実験式(16)と比較すると、本計算結果は定性的には良い一致を示すものの、全般的に小さい値を示している。この要因としては、実験⁽¹⁷⁾における下壁の影響や高速域での界面変形の影響が考えられる。図9に濃度変動の生成項 $Prod_C$ の分布を示す。ピーク位置はほぼ $y_L^+ \cdot Sc_L^{0.5} \sim 7.0$ へ漸近し、濃度境界層厚さが $Sc_L^{-0.5}$ に比例することを示している。

4.4 スカラー粒子の時間発展 同時刻に界面から放出されたスカラー粒子 ($Sc_L = 0.1, 1, 100$) の、 $t_L^+ = 100$ における x - z 面内分布を図10に示す。ここで、背景の濃淡は界面近傍 $y_L^+ = 3.0$ における主流方向速度乱れを表しており、どの場合も速度場は全く同一である。また、界面近傍 ($y_L^+ < 3.0$) のスカラー粒子のみをプロットした。これより、シュミット数の増加に伴い、スカラー粒子は低速領域に集中する傾向があることが分かる。これは、高シュミット数ではスカラー粒子の流れ場に対する追従性が高く、二次元界面内の発散

$$\left(\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial w}{\partial z} \right) \Big|_{interface} = - \frac{\partial v}{\partial y} \Big|_{interface} \quad (17)$$

が負となる領域に引き込まれるためである。

図11に $t_L^+ = 100$ における粒子確率密度 P_1 の x - y 面内分布を示す。ただし、計算の際には界面平均速度を差し引いている。 $Sc_L = 100$ の場合(図11(c))では、多くの粒子が依然として界面近傍に存在し、低速領域へのクラスタリングの影響(図10(c))で、界面近傍の $\Delta x_L^+ < 0$ の領域に確率密度分布が広がっている様子が分かる。

4.5 流れ場の線形統計推定 スカラー粒子の界面からバルクへの輸送に寄与する乱流構造の推定を行うために Linear Stochastic Estimation (LSE) を用いた。抽出条件としては、 $Sc_L = 100$ のスカラー粒子が、濃度境界層厚さに対応する $y_L^+ = 3.0$ の断面を、鉛直下方へと通過する際の変動を用いた。推定された周囲の流れ場の様子を図12に示す。これより、液側界面下 $y_L^+ \sim -15$ 付近を中心とする縦渦構造が界面ごく近傍においても強い速度変動を誘発し、物質輸送を促進していることが分かる。またこれに伴い、気側界面近傍では、液側に駆動された流れ場が確認され、これは3.4節で示した両相の時空間相関の結果とも一致する。

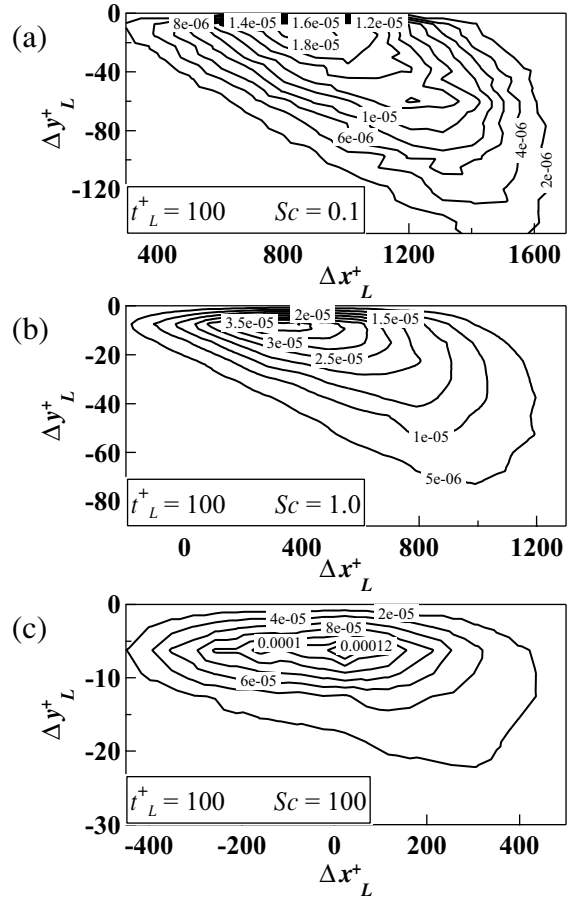


Fig. 11 PDF of scalar markers at $t_L^+ = 100$ after release from the interface in Case 1.

(a) $Sc_L = 0.1$, (b) $Sc_L = 1.0$, (c) $Sc_L = 100$

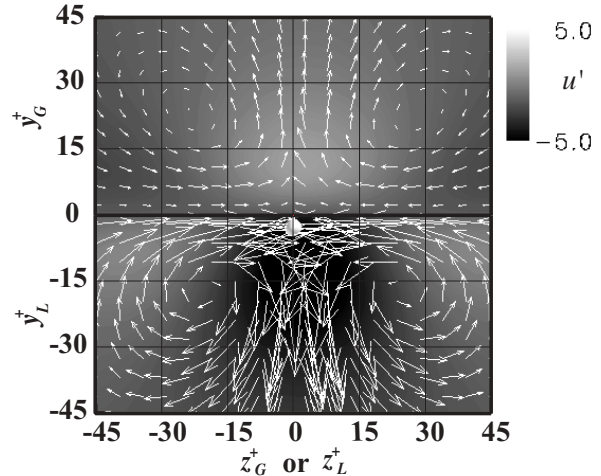


Fig. 12 LSE velocity field around a marker ($Sc_L = 100$) which passes downward the plane of $y_L^+ = 3$ in Case 1.

5. 結論

剪断のある気液界面乱流場の直接数値計算を行い、以下の結論を得た。

- 1) 気液両相のストリーク構造や縦渦構造のスケールは、各相の粘性長さで支配される。こ

れは,大きな密度比のために両相の相互作用は弱く,各々の相における剪断による不安定性に起因する乱流場が支配的であるためと考えられる.

- 2) 液側では,界面における濃度場の境界条件は等スカラー条件に近く,界面近傍では高シュミット数においても,濃度場と界面垂直方向速度の相関 R_{cv} は高く保たれる.一方,気側界面ごく近傍の領域($y^+_G < 3.0$)は,速度場,濃度場共に,液側から影響を強く受けるため, R_{cv} は負の値を示すという特異性を呈する.
- 3) ガス交換係数 K^+ の,レイノルズ数依存性は小さい.この事実は従来得られているHanratty⁽¹⁷⁾の実験式(16)と定性的に一致し, Fortescue-Pearson⁽²⁾の式(1), Lamont-Scott⁽⁴⁾の式(2)どちらとも一致しない.これは,剪断の強い気液界面では,液側の縦渦構造に伴う,低濃度流体の沸き上がり(スプラッティング)によって物質輸送は支配され,そのスケールは粘性長さで整理されるためと考えられる.

6. 謝辞

本研究を行うにあたり,東北大学流体科学研究所の花崎秀史助教授から多くの貴重な御教示を頂きました.また本論文の投稿にあたり,査読者より有益な御助言を頂きました.ここに記して深く感謝致します.

参考文献

- (1) Jähne, B. and Haußecker, H., *Annu. Rev. Fluid. Mech.*, **30** (1998), 443-468.
- (2) Fortescue, G. E. and Pearson, J. R. A., *Chem. Eng. Sci.*, **22** (1967), 1163-1176.
- (3) Dankwerts, P. V., *Ind. Eng. Chem.*, **43** (1951), 1460-1467.
- (4) Lamont, J. C. and Scott, D. S., *A. I. Ch. E. J.*, **16** (1970), 513-519.
- (5) Munsterer, T. and Jahne, B., *Exp. Fluids*, **25** (1998), 190-196.
- (6) Lam, K. and Banerjee, S., *Phys. Fluids A*, **4-2** (1992), 306-320.
- (7) Lombardi, P. *et al.*, *Phys. Fluids A*, **8-6** (1996), 1643-1665.
- (8) Kunugi, T. *et al.*, *Int. J. Heat Fluid Flow*, **22** (2001), 245-251.
- (9) Na, Y. and Hanratty T. J., *Int. J. Heat Mass Transfer*, **43** (2000), 1749-1758.
- (10) Papavassiliou, D. V. and Hanratty T. J., *Int. J. Heat Mass Transfer*, **40-6** (1997), 1303-1311.
- (11) Komori, S. *et al.*, *Int. J. Heat Mass Transfer*, **25-4** (1982), 513-521.
- (12) Shen, L. *et al.*, *J. Fluid. Mech.*, **386** (1999), 167-212.
- (13) Papavassiliou, D. V. and Hanratty T. J., *Ind. Eng. Chem. Res.*, **34** (1995), 3359-3367.
- (14) Kontomaris, K. and Hanratty T. J., *J. Comput. Phys.*, **103** (1992), 231-242.
- (15) De Angelis, V. and Banerjee, S., *Ist. Int. Symp. TSFP*, (1999), 1249-1254.
- (16) Calmet, I. and Magnaudet, J., *Int. J. Heat Fluid Flow*, **19** (1998), 522-532.
- (17) Hanratty, T. J., *Air-Water Gas Transfer*, Amer Society of Civil Engineers Publ., (1991), 10-33.
- (18) McCready, M. J. *et al.*, *A. I. Ch. E. J.*, **32-7** (1986), 1108-1115.