

気液界面を通しての 二酸化炭素交換に及ぼす降雨の影響¹

高垣直尚 小森 悟²

(Naohisa Takagaki & Satoru Komori)

京大・工・機械理工

(Dept. Mech. Eng. Sci., Kyoto Univ.)

1 背景と目的

19 世紀の後半から続く経年的な大気中の CO_2 濃度の上昇は、地球温暖化の大きな要因の一つである。したがって、大気中の CO_2 濃度の将来の変化を正しく予測することは地球温暖化を議論するうえで極めて重要である。大気中の CO_2 濃度の上昇に伴う気候変動の予測には、GCM(General Circulation Model)と呼ばれる大気海洋大循環モデルが一般的に用いられている。この GCM は、地球全体の物質や熱の移動を解くために数多くの要素モデルにより構成されているが、それらの要素モデルが不確定要素を数多く有しているために、正確な気候変動予測が行われているとは言い難いのが現状である。特に、図 1 に示す地球の表面積の約 7 割を占める海洋と大気間での CO_2 をはじめとする温室効果ガスの交換量が正確に評価できていない点が挙げられる。

大気・海洋間の物質移動を引き起こす主要な要因は海上を吹く風である。海面上を風が吹く場合、気流と液流の速度差により気液界面にはせん断応力（ウィンドシアと呼ばれる

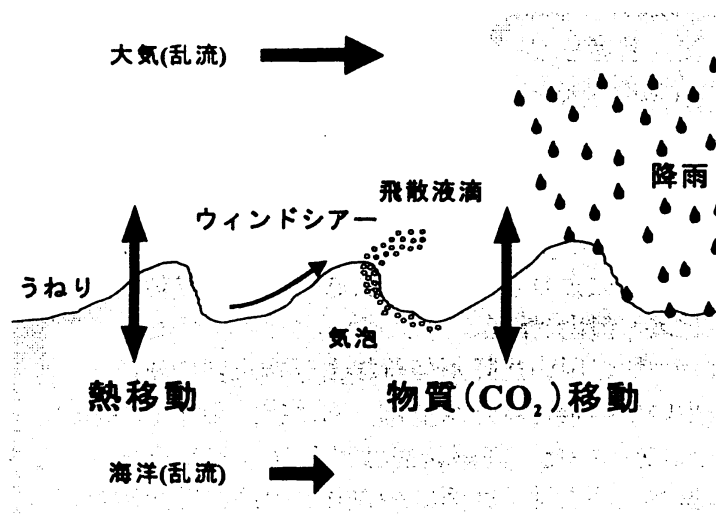


図 1 大気・海洋間の熱・物質移動

¹京都大学数理解析研究所 講究録「乱流の動力学的記述と統計力学的記述の相補性」(2009)

²komori@mech.kyoto-u.ac.jp

る)が働き、複雑に移動・変形を繰り返す風波気液界面が形成される。このとき、大気・海洋間に物質の濃度差が存在すれば、この風波気液界面を通しての物質移動がウィンドシアーにより促進される。その際の単位面積当りの気液界面を通しての物質フラックス F は、液側物質移動係数 k_L と大気・海洋間の物質の濃度差 $\Delta p\text{CO}_2$ の積で表される。

$$F = k_L \Delta p\text{CO}_2 \quad (1)$$

したがって、大気・海洋間の物質移動量を精度良く予測するためには、海表面の状況により大きく変化する k_L の精度のよいモデル化が必要不可欠である。大気・海洋間の物質移動に影響を及ぼす様々な要因のうちの一つとして、大気・海洋間の物質移動に及ぼす降雨の影響が挙げられるが、このような降雨に関する体系的な研究はこれまでわずか2, 3例しかみられない^{(1)~(3)}。

例えば、米国コロンビア大の研究グループ^{(2),(3)}は、3種類のトレーサガスを溶存させた水を水槽にため、水槽の上方10 mの地点に人工降雨装置を設置し、雨を降らせた状態で水槽内の水からのトレーサガスの放散量を測定した。また、気液間物質移動に及ぼす降雨の影響を評価するための降雨パラメータとして単位面積当りの気液界面に衝突する雨滴のもつ平均運動エネルギーフラックス KEF を提案し、物質移動係数と KEF との間の相関関係について検討した。しかし、この実験では、雨滴の大きさ・速度・雨量などの降雨パラメータが非常に限られた降雨条件のもとでしか測定が行われていない。現実の降雨は、雨滴径は0.5 ~ 6 mmという幅広い径分布をもち、さらに雨滴の水面への衝突速度は終末速度に達している。したがって、この実験研究のように特殊な降雨状態での測定結果から提案された雨滴の運動エネルギーフラックスが、現実の降雨でみられる様々な降雨状態に対しても支配的パラメータになるかどうかはわからない。以上の点より、降雨による気液間物質移動モデルは未だに確立されておらず、また大気・海洋間の物質移動に及ぼす降雨の影響がどの程度になるのかも明確にされていないのが現状である。

以上の経緯を踏まえて、著者らがこれまで行ってきた雨滴衝突による気液間物質移動と乱流構造に関する研究成果を中心に紹介する。

2 CO₂ 吸収実験

はじめに、雨滴の界面衝突により引き起こされる気液間物質移動を検討するために行われたCO₂の吸収実験について紹介する。

図2に著者らの実験^{(4)~(6)}に用いた降雨装置および開水路の概略を示す。流体には、マイクロポアフィルタを用いてろ過された水道水、および、海洋での塩分の影響を検討するために、3.5wt%の食塩水を用いた。降雨装置はアクリル製のチャンバであり、開水路の上部に設置した。降雨装置上部には、底面に約500本の注射針が取り付けられたヘッドタンクが設置されており、これらの注射針から単一径の液滴を落下させた。この実験では、自然界に存在するさまざまなタイプの降雨に対して適応できる信頼性の高い物質移動係数のモデルを構築するために、雨滴密度、雨滴の衝突速度、雨滴径、開水路流れの水深、流量等をさまざまに変化させた約100通りの実験条件の下でCO₂の吸収実験を行った。

雨滴が衝突することにより促進される気液間物質移動を評価するために、降雨強度を表す降雨のパラメータとして、一般的に降雨強度を表すパラメータとして用いられてい

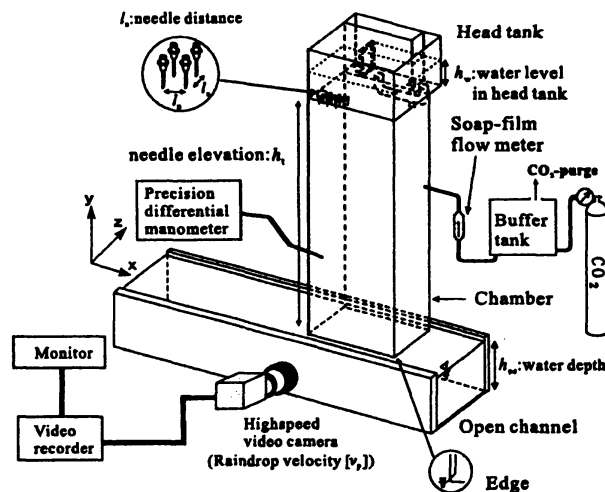
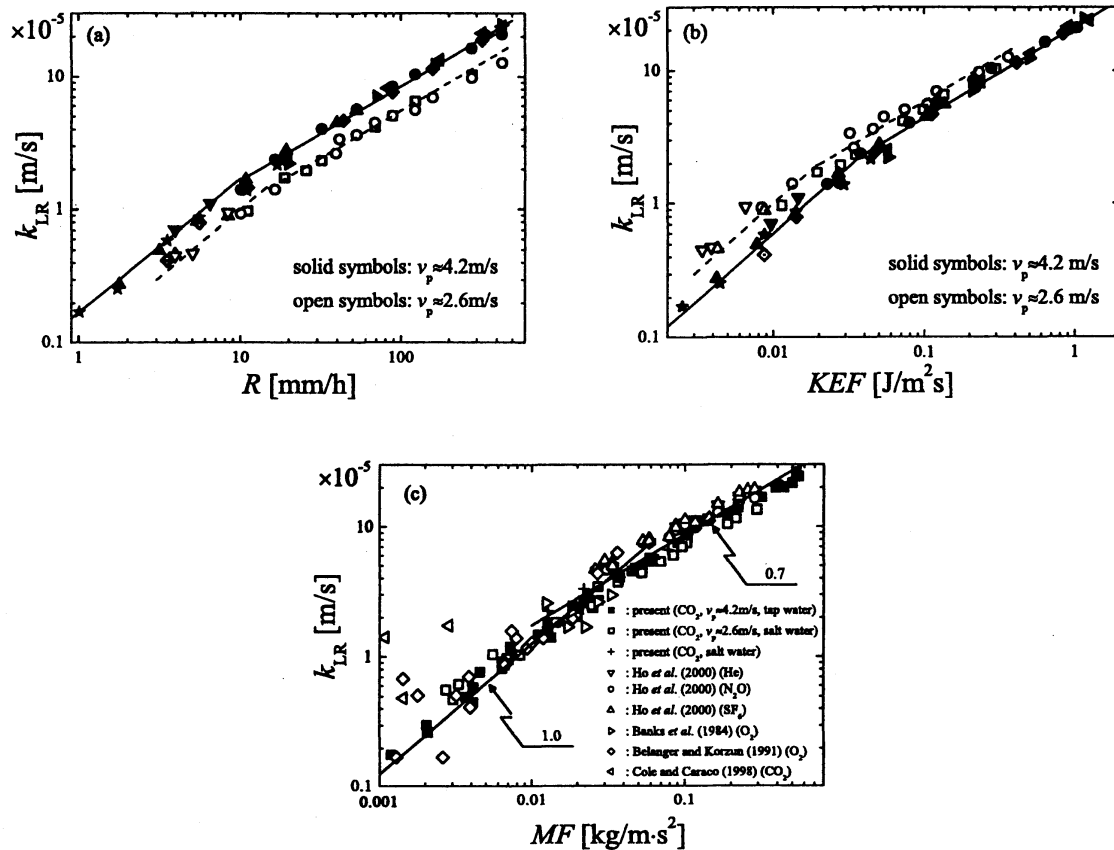


図2 降雨装置および開水路 (4)~(6)

る雨量 R 、既往研究で提案された雨滴の運動エネルギーフラックス $KEF^{(1) \sim (3)}$ 、そして本研究で提案した雨滴の運動量フラックス $MF^{(4) \sim (7)}$ を用いた。ここで、 KEF および MF とは、単位面積当りの水面に単位時間当たりに衝突する雨滴の持つエネルギーおよび運動量である。図3に、上記の三つの降雨パラメータに対する測定された物質移動係数 k_L の関係を示す。ここで、雨が降っていない状態であっても開水路流れの乱流の影響で物質移動係数はゼロとならないため、縦軸の物質移動係数の値として、降雨時に測定された物質移動係数 k_L から降雨を伴わない場合の物質移動係数 k_{L0} を差し引いた $k_{LR}(=k_L - k_{L0})$ を降雨による物質移動係数とした。図3(a), (b) より、衝突速度が異なる白抜きのプロットと塗りつぶしのプロットが一本の直線とならないことから、衝突速度が異なると k_{LR} の値が異なることがわかる。これは、雨量や雨滴の運動エネルギーは気液界面を通しての物質移動を支配する適切な降雨パラメータではないことを示している。一方、著者らの提案した運動量フラックス MF を用いた図3(c) では、雨滴の衝突速度が異なる場合にも物質移動係数の値は MF に対して一本の直線で表されることがわかる。雨滴の運動量は降雨による物質移動を支配する適切な降雨パラメータであるといえる。また、図3(c) に開水路を流れる液流として3.5 wt%塩水を用いた場合(+)や開水路流れの水深や流量が異なる実験条件で測定された k_{LR} の値もプロットされているものの、 k_{LR} は MF により良好に相関されることがわかる。さらに、図3(c) には本測定値と比較を行うために、室内実験および野外観測における既往研究による測定値をプロットした。本室内実験の測定値と既往の室内実験^{(1)~(3)}の測定値の比較すると、本研究と既往研究における k_{LR} の値は MF が $0.01 \text{ kg/m} \cdot \text{s}^2$ 以上の範囲においてよく一致していることがわかる。一方、室内実験の値と観測値^{(8),(9)}の比較を行うと、観測値 k_{LR} は本研究の値と一致しているか、やや高い値をとっており、この傾向は MF の小さな値の範囲において顕著である。これは、風が吹いている中でフィールド測定が行われているために、観測値 k_{LR} はウィンドシアーによる影響および雨滴が風に流され雨滴の水平方向の運動量が生じる影響を含んでいるためと考えられる。このような、風の影響により生じる降雨の MF の水平方向成分の影響に関しては

図3 物質移動係数⁽⁶⁾

現在検討中である。また、図中の直線は本研究および Cole and Caraco⁽⁹⁾を除いたすべての既往研究の値に対しての実験相関式であり、次の式で表わされる。

$$\begin{aligned} k_{LR} &= 1.35 \times 10^{-3} MF & \text{for } 0 < MF < 0.011 \text{ kg/m} \cdot \text{s}^2 \\ k_{LR} &= 3.5 \times 10^{-4} MF^{0.7} & \text{for } MF \geq 0.011 \text{ kg/m} \cdot \text{s}^2 \end{aligned} \quad (2)$$

式(2)より、雨量が少ない場合には k_{LR} の値は MF の 1.0 乗にしたがって増加するものの、激しい降雨の場合には k_{LR} の値は MF の 0.7 乗にしたがって増加することがわかる。このような傾向は、降雨が少ない場合には衝突雨滴の個数に比例して物質移動係数が増加するものの、降雨が激しくなると、衝突する雨滴同士が相互干渉するために物質移動係数が個数に比例しなくなるためと解釈できる。以上より、約 100 通りもの降雨条件での吸収実験や既往研究との比較を通して、気液間物質移動を支配する降雨パラメータとして雨滴の運動量フラックスは既往研究で用いられてきた雨滴の運動エネルギーフラックスよりも適切であることを明らかにし、さらに、これまでの既往研究では扱っていなかった雨量が少ない場合の実験相関式を提案することができた。

次に、雨滴衝突による開水路流れの液側界面近傍における混合の影響を検討するために、開水路流れの流動場測定を行った。図4に、降雨を伴う場合および降雨を伴わない場合の典型的な2ケースに対して、完全に発達した開水路流れの主流方向平均流速 U 、主流

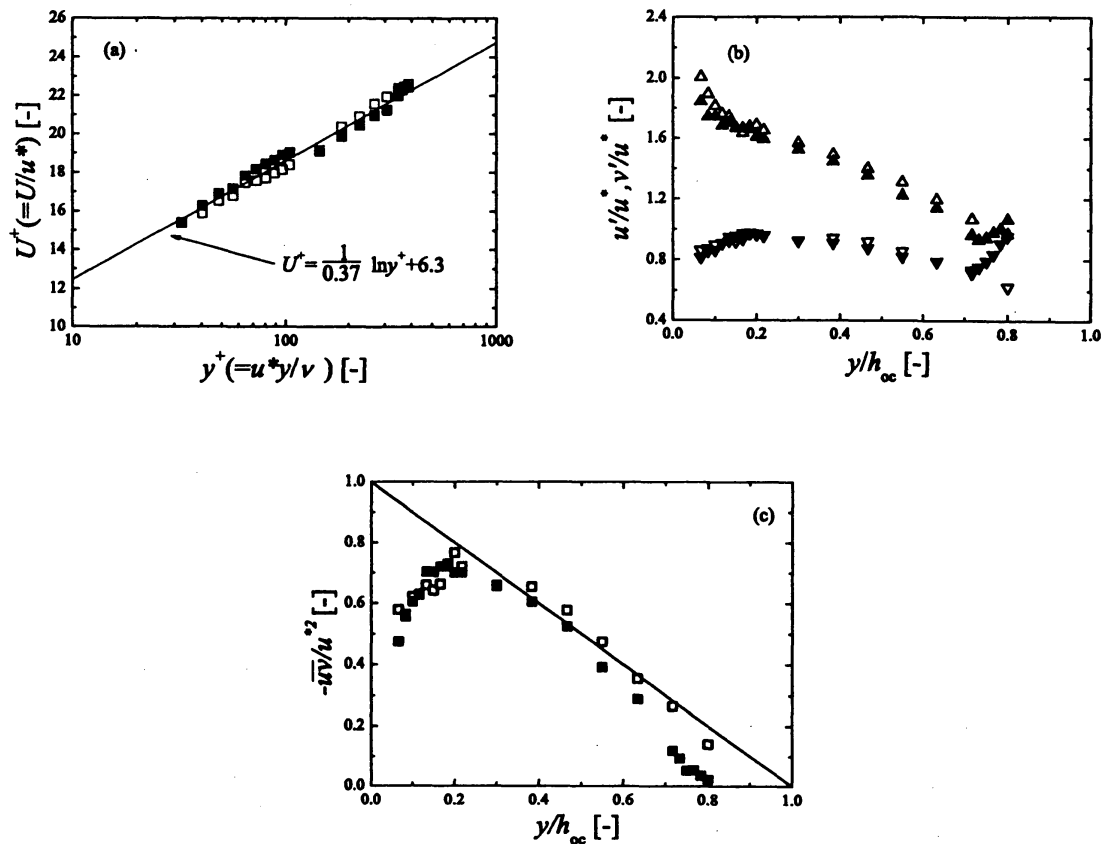


図4 (a) 主流方向平均流速 (U), (b) 主流方向乱流変動強度 ($\blacktriangle$) および鉛直方向乱流変動強度 ($\blacktriangledown$), および (c) レイノルズ応力.⁽⁶⁾

方向および鉛直方向速度変動 $u' (= \sqrt{u^2})$, $v' (= \sqrt{v^2})$ およびレイノルズ応力 $-\overline{uv}$ の鉛直方向分布を示す。ただし、各値は、降雨を伴わない場合のレイノルズ応力の鉛直方向分布から計算された壁面摩擦速度 u^* を用いて無次元化されている。また、図中の h_{oc} は開水路流れの水深である。白抜きのプロットは降雨を伴わない場合を、塗りつぶしのプロットは降雨を伴う場合 ($R = 91.5 \text{ mm/h}$) を表している。図より、 u' および v' は $y/h_{oc} > 0.7$ の自由界面近傍において降雨の影響により増加し、一方、レイノルズ応力は降雨の影響により抑制される。したがって、雨滴の自由界面への衝突により自由界面近傍において乱流混合が促進されることがわかる。

以上より、雨滴衝突により液側界面近傍において乱流混合が促進されることで、気液間物質輸送が促進されるものと考えられるものの、本測定は点計測であることから、雨滴衝突による気液間物質移動メカニズムの全容を明らかにできていない。一方、 CO_2 吸収実験を通して、(1) 開水路乱流による物質移動係数と雨滴衝突により促進される物質移動係数は単純な足し合わせで表わされること、および、(2) 降雨が少ない場合には衝突雨滴の個数に比例して物質移動係数が増加すること、が明らかである。これらの事実は、降雨が少ない場合には、数多くの雨滴の界面衝突による物質移動現象が、単一液滴の界面衝突に

よる物質移動現象の単純な足し合わせで表わされる可能性を示唆している。そこで次に、降雨による物質移動メカニズムを解明するために、単一液滴の界面衝突時の物質移動現象の解明を試みた。

3 単一雨滴の界面衝突による気液間物質移動機構

液滴衝突時の液側流動場の測定に粒子画像流速測定法 (PIV) を、溶解した CO_2 濃度の可視化にレーザ誘起蛍光法 (LIF) を用いることにより、単一液滴の衝突による気液間物質移動機構の解明を試みた。単一液滴衝突実験装置は、注射針を一本取り付け付けたヘッドタンクおよびその下方に設置されたレシーバタンクからなる (図5参照)。本 LIF 実験ではフルオレセインナトリウム (ウラニン) の蛍光強度の pH 依存性を利用して、液中の CO_2 濃度を可視化した。 CO_2 が吸収されると、溶液は酸性となりウラニンの蛍光強度が急激に低下する。したがって、この蛍光強度の変化から、液滴衝突時の CO_2 吸収の状態を可視化することができる。 LIF 実験では、レシーバタンクの気側を CO_2 で充満させた状態にして、液滴をウラニン水溶液中に落下させ、衝突後の様子をハイスピードカメラで撮影した。

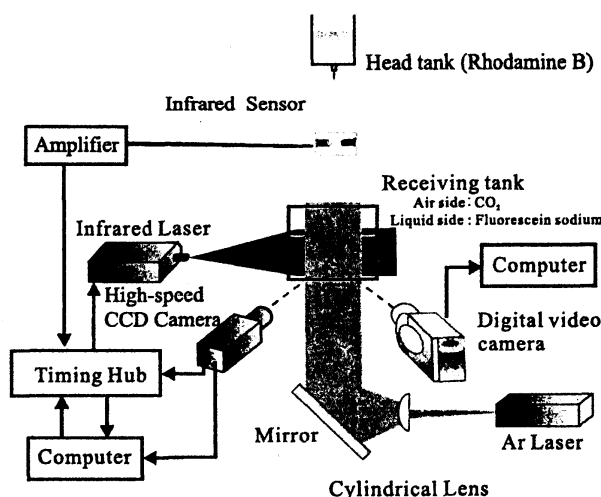


図5 単一液滴の落下衝突実験装置⁽⁷⁾

図6にPIVおよびLIFにより液滴衝突後に測定された速度ベクトルと CO_2 濃度場の画像を示す。ただし、衝突した液滴の径は $d_p = 5.6 \text{ mm}$ 、衝突速度は $d_p = 3.5 \text{ m/s}$ とした。図中の円で囲んだ部分は液滴衝突によって生成された渦輪を示しており、さらに LIF 画像において円で囲んだ黒い部分は液相に吸収された CO_2 を示している。PIV-LIF 両画像 ($t \sim 10 \text{ ms}$) より、液滴衝突直後にはクレータの周りに強い流れができ、界面が大きく変形しているものの、液側へ溶解した CO_2 は変形した界面付近に留まっており、液側バルクへと輸送されていないことがわかる。 $t = 155 \text{ ms}$ における PIV 画像では、やや分かりにくいもののクレータの反動で水柱が生じている様子がわかる。また、 $t = 235, 350 \text{ ms}$ における PIV 画像では、複数の渦輪が界面付近で生じ、その後鉛直下方へ下降する。ほぼ同時刻の LIF 画像を見ると、渦輪に相当する場所でウラニン蛍光強度が低下していること

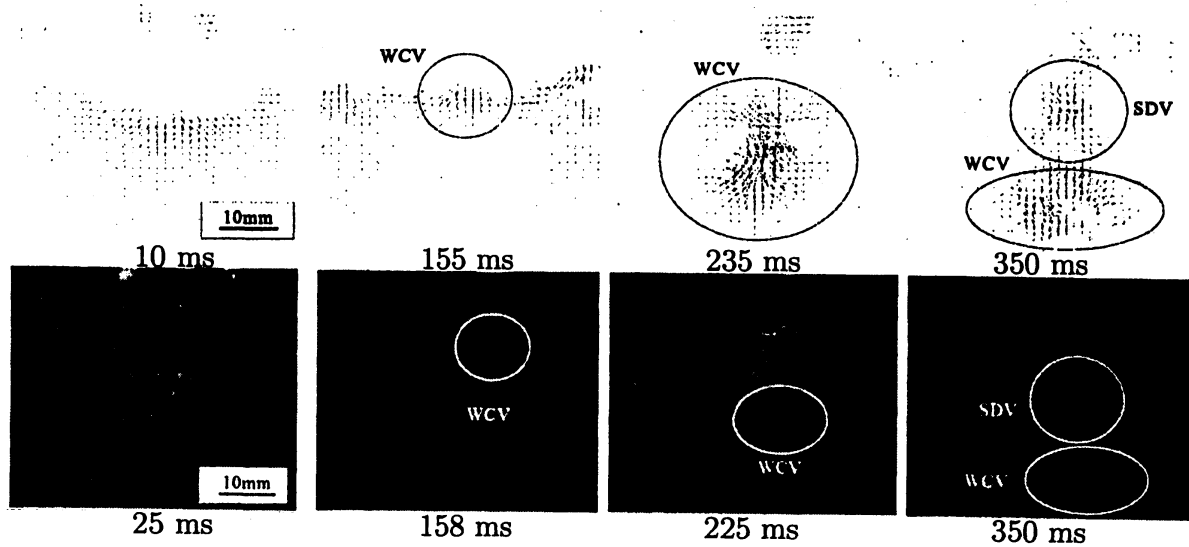


図6 液滴衝突後の液側流動場および液側 CO_2 濃度場の様子.

WCV,SDV は渦輪の分類を表す.⁽⁷⁾

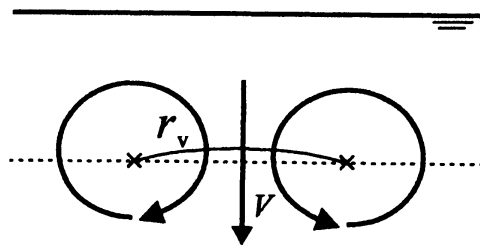


図7 渦輪の模式図.⁽⁷⁾

から、液相に吸収された CO_2 が渦輪によって界面近傍から液相バルクへ輸送され拡散するのがわかる。以上より、一度の液滴衝突により複数個の渦輪が生成され、生成された複数個の渦輪が気液界面での表面更新により物質輸送に寄与することがわかった。そこで、次に、衝突液滴の運動量を変化させた場合に、生成される渦輪の大きさ r_v や速さ V 、そして渦輪が界面近傍に滞在する時間 T_v がどのように変化するかを調べた⁽⁷⁾。ここで、渦輪の大きさや速度の定義は、図7に示した渦輪の模式図のとおりである。図8に、液滴の運動量 $d_p^3 v_p$ と r_v および V の関係を示す。ただし、 r_v および V は図6のPIV画像から測定された値である。また、横軸の運動量は定数 $(\rho\pi/6)$ で除した値である。図より、 r_v 、 V および T_v は $d_p^3 v_p$ に対して単調増加することがわかる。これは、液滴の運動量の増加に従って、より大きな、より速い渦輪が生成され、気液界面が生成される渦輪によりより長時間にわたり更新されることを示している。

次に、雨滴衝突時の気液間物質移動機構としてどのような物質移動モデルが適切か検討した。物質移動モデルとしては、雨滴衝突により界面近傍に渦が生成されること(図6参照)、および現在最も一般的に受け入れられていることから表面更新説^{(10),(11)}を用いた。表面更新説では、液側界面近傍の表面更新渦と呼ばれる乱流渦により、界面近傍に存在する十分に物質を含んだ流体とバルクに存在する物質を含んでいない流体が交換されることにより気液間物質移動は促進されると考えており、液側物質移動係数 k_L は表面更新渦

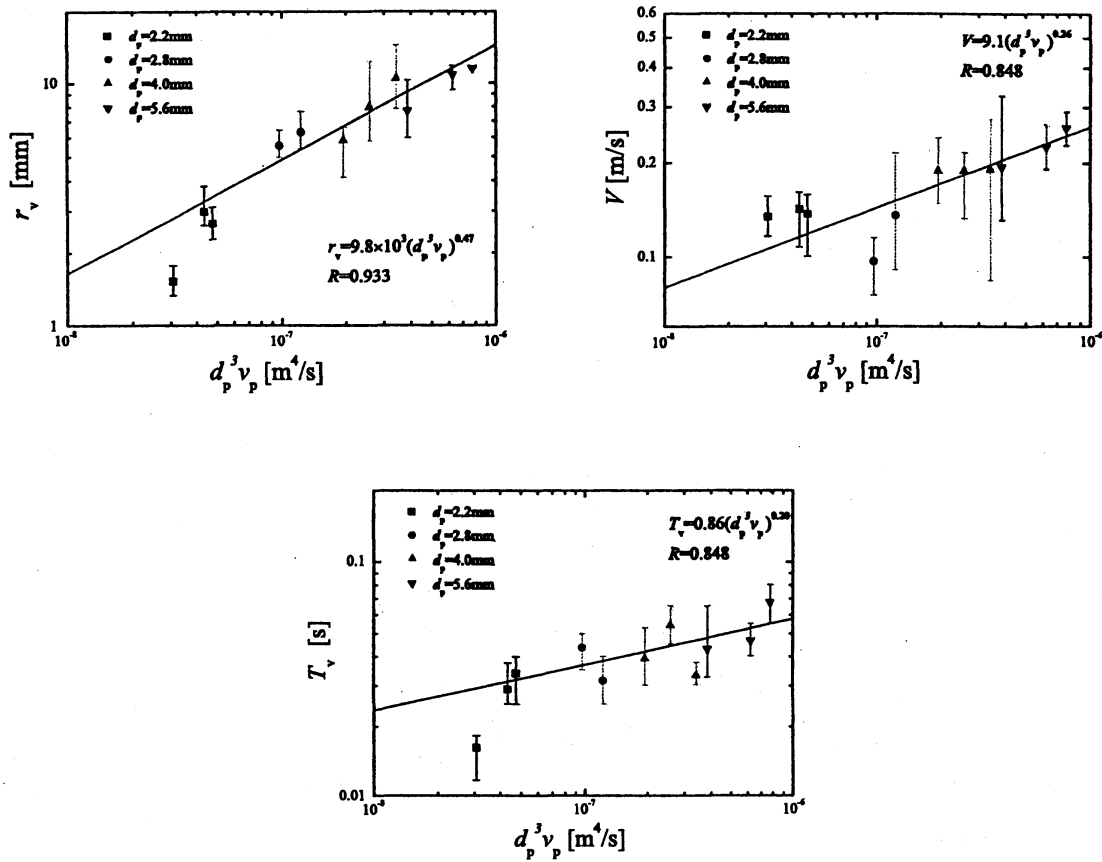


図8 渦輪の半径(左上図), 渦輪の中心速度(右上図), および渦輪が界面近傍に滞在する時間(下図)⁽⁷⁾

の表面更新周波数 f_s を用いて次式で表される。

$$k_L \propto \sqrt{D_L f_s} \quad (3)$$

ここで, D_L は分子拡散係数である。さらに, 降雨のように複数の液滴が気液界面にまばらに衝突する場合には, 液滴衝突地点でのみ局所的に表面更新渦が生成されるため, 気液界面を通しての物質移動は局所的に促進される。このように, 全界面が均一に更新されず, 界面の一部が更新される場合には, 表面更新される面積の割合を考慮する必要がある。一方, 図6からわかるとおり, 一つの液滴が界面に衝突すると複数の表面更新渦が生成され, これらの渦は表面を更新し, その後, 液側バルクへと沈み込む。したがって, 降雨による液側物質移動係数は見かけ上ではあるが, 単位面積・単位時間あたりどれだけの面積がどれだけの時間表面更新されているかを考慮することで, 次式の通りモデル化できると考えられる。

$$k_{LR} \propto n_R n_v A_s T_s \sqrt{D_L f_s} \quad (4)$$

ここで, n_R は単位時間に単位面積の界面に衝突する雨滴の個数, n_v は単一液滴の衝突に

より生成される渦輪の個数, A_s は表面更新面積, T_s は表面更新時間である. 液側物質移動係数 k_{LR} の値を表面更新モデルを用いて算出するために, 表面更新面積 A_s を渦輪の投影面積として, また, 表面更新渦の周波数 f_s を渦輪の中心部での回転速度と定義し, 次式に示す.

$$A_s = \pi r_v^2 \quad (5)$$

$$f_s = 2 \frac{V}{r_v} \quad (6)$$

式(4)~(6)より, 次式を得る.

$$k_{LR} \propto \pi n_v n_R \sqrt{2D_L T_v} r_v^{3/2} V^{1/2} \quad (7)$$

また, 雨滴の運動量フラックスの定義 ($MF = \rho R v_p$) および雨量の定義 ($R = n_R \pi / 6 d_p^3$) を実験相関式(2)に代入すると, 降雨が少ない場合の降雨による物質移動係数は, 次式で表わされる.

$$k_{LR} = 1.35 \times 10^{-3} \rho n_R \pi / 6 d_p^3 v_p \quad (2)'$$

図9に, 降雨による物質移動係数と雨滴の運動量フラックスの関係を示す. ただし, 縦軸の物質移動係数は定数 ($\pi n_v n_R \sqrt{2D_L}$) で除した値であり, 横軸の運動量フラックスは定数 ($\rho n_R \pi / 6$) で除した値である. 図より, 降雨による物質移動係数と雨滴の運動量フラックスは良好な比例関係を持つことから, 雨滴の持つ運動量と雨滴衝突により促進される気液間物質移動の関係を説明している. さらに, この結果は, 式(2)に示す降雨による気液間物質移動係数 k_{LR} が降雨が少ない場合には降雨の運動量フラックス MF に比例する関係を裏付けている.

4 おわりに

本解説では, 降雨による気液間の物質移動および液側界面近傍の乱流構造に関して, 著者らがこれまでに行ってきた研究成果を中心に紹介した. 開水路を用いた CO_2 吸収実験を通して, 降雨による物質移動係数および降雨による物質移動を表すのに適切な降雨パラメータ (雨滴の運動量フラックス) を明らかにした. また, 同時に, 降雨による物質移動係数が衝突液滴の個数に比例することが明らかになったため, この特徴を利用し, 降雨による物質移動現象を解明するために, 単一液滴落下衝突実験を行った. その結果, 単一雨滴の衝突により液側界面近傍には複数の渦輪が生成されること, および, これらの渦輪により表面更新が促進されるとして降雨による物質移動現象をモデル化することで, 降雨による物質移動係数と雨滴の運動量フラックスが良好に相関する理由を説明できた. これらの知見は, 将来の地球温暖化を予測するうえで重要な役割を担うものと考えられる.

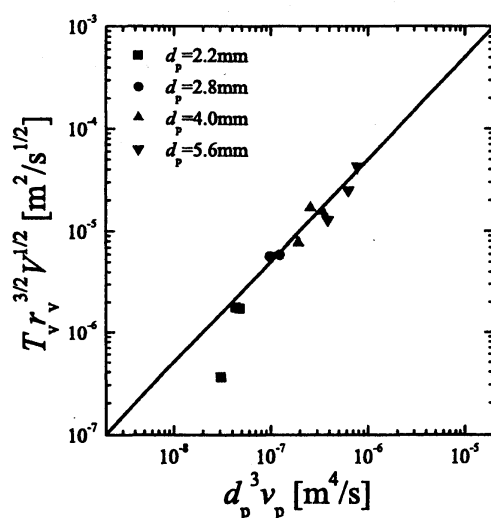


図9 物質移動係数のモデル値と単一液滴の運動量の関係

参考文献

- [1] Banks, R. B., G. B. Wickramanayake, and B. N. Lohani (1984), *J. Environ. Eng.*, 110(1), 1-14.
- [2] Ho, D. T., L. F. Bliven, R. Wanninkhof, and P. Schlosser (1997), *Tellus*, 49(B), 149-158.
- [3] Ho, D. T. *et al.* (2000), *J. Geophys. Res.*, 105, 24045-24057.
- [4] Takagaki, N. and Komori, S., (2005), *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, 71(712), 2900-2906.
- [5] Komori S, Takagaki N, Saiki R, Suzuki N, Tanno K (2007), *Transport at the Air Sea Interface*, 169-180, Springer Verlag.
- [6] Takagaki, N, Komori S (2007), *J. Geophys. Res.*, 112(C6), C06006.
- [7] Takagaki, N. and Komori, S., (2008), *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, 74(748), 2459-2465.
- [8] Belanger, T. V., and E. A. Korzun (1991), *Proc. 2nd Int. Symp. Gas Transfer at Water Surfaces*, ASCE, 388-399.
- [9] Cole, J. J., and N. F. Caraco (1998), *Limnol. Oceanogr.*, 43(4), 647-656.
- [10] Danckwerts, P. V., (1951), *Ind. Eng. Chem.*, 43, 1460-1467.
- [11] Fortescue, G. E. and J. R. A. Pearson, (1967), *Chem. Eng. Sci.*, 22, 1163-1176.