気流に伴われて流動する液膜への物質伝達に関する研究* (第1報, 流れ方向濃度変化の予測)

深野 徹^{*1}, 木上 洋一^{*2}, 松永 拓哉^{*3}

Mass Transfer into a Liquid Film Flowing Concurrently with Gas Flow (1st Report, Theoretical Prediction of Bulk Concentration Variation in Flow Direction)

Tohru FUKANO, Yoichi KINOUE and Takuya MATSUNAGA

An experimental investigation was made into the absorption of carbon dioxide, CO₂, from concurrently flowing CO₂-laden air into a thin water film in a horizontal duct. We proposed three physical models, CAL 1~CAL 3, to explain mass transfer across a sheared non wavy and wavy gas-liquid interface into the flowing thin liquid film. If gas flow was laminar and the flow pattern was smooth surface flow, experimental values agreed well with the estimation by a laminar flow model, CAL 1. If the gas flow was turbulent and flow pattern was two-dimensional wave flow, the experimental value agreed well with the estimation using CAL 2, in which the film thickness was evaluated using the correlation of the interfacial shear stress. If the flow pattern was pebble wave or ripple flow, CAL3 estimated the experimental values accurately, for gas flow which was turbulent and where the turbulence in the liquid film was also taken into consideration.

Key Words: Multiphase Flow, Mass Transfer, Turbulence, Interfacial Wave, Interfacial Shear Stress, Thin Liquid Film Flow, Horizontal Rectangular Duct, Film Thickness

1. 緒 言

気液界面, とりわけ気液両相がせん断流れである場合の界面(以下ではこれをせん断界面と呼ぶ)を介しての液相への熱・物質伝達の機構を解明することは, ガス吸収装置, 蒸発・凝縮装置等の工業装置の最適設計の問題と関連して極めて重要である。特に液膜流への熱・物質伝達は, 工業上重要である。本研究は, その基礎としてせん断界面を介しての液膜流への物質伝達とそれに与える界面近傍の乱れの影響を調べることをおもな目的としている。このような液膜流では, せん断界面に流動条件によって種々の波が発生し, 界面近傍に乱れが生じているため, 液膜レイノルズ数からいえば十分層流であると考えられる場合でも, 液膜流への物質伝達は層流の場合よりも促進される場合がある。

せん断界面を介しての物質伝達にはいくつかの研究成果がある。McCreadyとHanratty⁽¹⁾, BackとMcCready⁽²⁾⁽³⁾は, 水平液膜流への酸素吸収の実験を行うとともに, 界面せん断応力の波状界面に沿った空

間的な変動成分から, 界面近傍の液膜内の流体の渦運動により乱れが生じると考えた解析を行っているが, その算定過程が複雑で不明確であり, 実験結果との比較が容易でない。最終的に与えられている物質伝達係数から求められる液膜流の二酸化炭素濃度の流れ方向変化は著者らの実験値とは合わない。

またKomoriら⁽⁴⁾は, 風波界面を有するプール内の液体について気相への二酸化炭素放散実験を行い, 表面更新モデルを用いて物質伝達機構を説明している。しかし液膜流への物質伝達への適用の可否については述べられておらず, 彼らの提案式から算定される物質伝達係数から求めた流れ方向の濃度変化は, 著者らの実験値とはかなり違っている。

本報ではこのような背景にたつて, 二次元的な流れが得やすい水平な長方形ダクトを供試管として採用し, このダクト中で液膜が気流に伴われて流動し, 液膜流へ二酸化炭素が吸収される物質伝達現象を, せん断界面の役割に特に注目して実験的・解析的に検討した。

2. おもな記号

c_L : 液相濃度 kg/m^3

Coh : コヒーレンスの最大値

* 原稿受付 平成5年9月27日。

^{*1} 正員, 九州大学工学部 (〒812 福岡市東区箱崎6-10-1)。

^{*2} 正員, 九州大学大学院。

^{*3} 准員, (株)東陶機器 (〒253 茅ヶ崎市本村2-8-1)。

- D_L : 液相拡散係数 m^2/s
 E : 出力電圧 V
 f : 周波数 Hz
 H : ダクト高さ mm
 h_c : ダクト幅中央部の波高 m
 j_G, j_L : 気相と液相のみかけの速度 m/s
 l_D : Plandtl の混合距離 m
 Re_G : 気相レイノルズ数 $= 2Hj_G/\nu_G$
 Re_L : 液膜レイノルズ数 $= \Gamma_c/\nu_L$
 Sc_L : 液相シュミット数 $= \nu_L/D_L$
 t : 時刻 s
 $(t_{fm})_c$: ダクト幅中央部の時間平均膜厚 mm
 u : 流れ方向速度 m/s
 v : 主流と垂直な方向の速度 m/s
 v_L^* : 液相摩擦速度 $= \sqrt{\tau_i/\rho_L}$ m/s
 x : 流れ方向座標 (CO_2 混入点で $x=0$) m
 X : マルチネリパラメータ
 y : 主流と垂直方向の座標 (界面で $y=0$) m
 Γ : 単位幅あたりの液相体積流量 m^2/s
 α_{DL} : 液相側の物質伝達係数 m/s
 ϵ_D : 渦拡散係数 m^2/s
 ν : 動粘度 m^2/s
 ρ : 密度 kg/m^3
 τ : 遅れ時間 s
 τ_i : 界面せん断応力 N/m^2
 添 字
 e : 平衡状態
 i : 気液界面
 l, t : 気流が層流および乱流
 $\langle \rangle$: 混合平均値

3. 実験装置および方法

実験装置の概要を図1に示す。水平に置かれた供試管は、断面が高さ10 mm、幅40 mmの長方形であり、全長2.9 mの亚克力樹脂製で、内部の流動様相が観

図1 実験装置概要

察できる。作動流体として気体には空気を、液体には蒸留水を用いた。圧縮機1からの空気はオリフイス2でその流量が測定され、気水混合部3で漸次加速されたあと、テストセクションを通過し、大気に解放される。また蒸留水は、貯水タンク4においていったん加熱・脱気され、貯水タンク5にためられた後、冷却器6と7で冷却され、気水混合部3へ至る。そこで漸次加速され、供試部を通過した後、再び貯水タンク4に戻る。ここで捕集法により水流量が測定される。空気流に負荷する CO_2 は、ポンプ8から流量計9で流量を測定された後、 CO_2 混入管10よりダクト内空気流中へ導かれる。 CO_2 混入管10の先端は、気水が加速を終えた気水混合部3の下流端にあり、この断面を $x=0$ とし、ここで対空気体積流量比で3%になるように CO_2 を混入させた。 CO_2 混入管先端形状は、 CO_2 がダクト断面内にできるだけすみやかに均一に拡散するように工夫した。

供試部の概要を図2に示す。 CO_2 混入断面から0.3 m(等価直径 De の19倍)および1.19 m($74De$)の断面の幅方向中央部(二次元性が確保されていると考えられる)に壁面静圧測定用の取圧孔 a 、高さ方向にトラバース可能な全圧管 b を設置した。この全圧管を用いて気流の高さ方向の速度分布と CO_2 の濃度分布を測定した。気相の CO_2 濃度はガスクロマトグラフィを用いて測定した。気液界面近傍の気相の CO_2 濃度の実測値を気相側界面の平衡濃度 C_{eg} とした。さらに CO_2 混入点から下流側0.3 m, 0.53 m, 0.77 m, および1.19 mの断面に液体サンプリング部 c を設け、ねじ式の栓をはずすことにより液体をサンプルした。気液界面近傍の液体も含めて、サンプル孔から液膜内の液体をすべて捕集できるように工夫した。また気水混合部、気水分離部(CO_2 混入点から2.22 m)においても液体をサンプルした。液体が外気とふれないように注意し、その CO_2 濃度はイオンpHメータを用いて測定した。

膜厚の時間変動の測定には定電流法⁽⁶⁾を用い、 CO_2 混入断面から0.92 m下流の断面における幅方向中央

図2 テストセクション

部の局所値を測定した。また定電流法から得られる軸方向に 20 mm 離れた 2 箇所の膜厚の出力信号を FFT アナライザで波形解析し、両信号の相互相関から遅れ時間 τ を求め、その値から波速度、波長を算定する一方、コヒーレンスの最大値 Coh を測定した。なお、これらの液膜に関する測定は CO_2 を混入しない状態で行った。3% の CO_2 負荷による気相の流量変化がこれらの統計量に与える影響は實際上、無視し得ることを確認した。

気相のみかけの速度 j_c と液体の単位幅あたりの体積流量 Γ で表した図 3 の流動様式線図⁽⁵⁾上に実験時の流動条件を●と○印で示す。●と○はそれぞれ速度分布から判断した気流の状態で前者が層流、後者が乱流である。実験範囲は $j_c = 2 \sim 15$ m/s, $\Gamma = (4 \sim 15) \times 10^{-5}$ m²/s であり、液相流量を液膜レイノルズ数 Re_L で表せば約 40~150 で、この程度のレイノルズ数の範囲では液膜流は一般には層流であると判断されている。流動様式は平滑面流れ (S), 二次元波流れ (T), ペブル波流れ (P), リップル流れ (R)⁽⁵⁾ である。なお実験時の空気および水の温度は 11~18°C の範囲であった。

4. 実験結果

第 5 章で述べるように、 CO_2 濃度の流れ方向変化を

図 3 流動様式と実験範囲

図 4 液膜厚さの理論値と実測値の比較

理論的に予測するには、さまざまな液膜流に関する特性量が必要になる。しかしそれらすべてを理論的に予測するのは現状では難しい。本研究では理論的に得られない量については、それらを実験的に求めた整理式から算定するようにした。以下に液膜流の諸特性と CO_2 濃度の流れ方向変化の実験結果について述べる。

4.1 液膜流の諸特性 図 4 は、ダクト幅中央部の膜厚の実測値 $(t_{fm})_c$ を、理論的に得られる値 $(t_f)_i$, $(t_f)_t$ と比較した図である。 $(t_f)_i$ は後述する式 (8) を用いて算定した気液とも層流の場合の理論値である。 $(t_f)_t$ は式 (11) を用いて算定した気流が乱流の場合の予測値であり、深野らの整理式⁽⁷⁾ による界面せん断応力 τ_i から得られる。この図から次のことがわかる。気液両相がともに層流の場合 (●印) は、 $(t_{fm})_c$ と $(t_f)_i$ がほぼ一致している。気流が乱流になる (○印) と、界面せん断応力が層流の場合より大となることにより、 $(t_{fm})_c$ は $(t_f)_i$ よりかなり小さくなる。その場合は $(t_{fm})_c$ と $(t_f)_t$ がほぼ一致しており、深野らの τ_i ⁽⁷⁾ から膜厚を精度よく算定できることがわかる。

ダクト幅中央部の波高 $h_c [= (t_{f \max})_c - (t_{f \min})_c]$ と $(t_{fm})_c$ の比 $h_c / (t_{fm})_c$ は、二次元波流れの場合は 1 より若干小さいが、 j_c の増大とともに 1 に近づく。本報では膜厚と波高が同程度の値を取ると考え、近似的に次式が成り立つとした。

$$h_c \cong (t_{fm})_c \quad \dots \dots \dots (1)$$

この式は、CAL 3 で渦拡散係数 ϵ_D の算定に使用する。

図 5 (a)~(c) に膜厚の時間的変動波形の例として Γ は 8×10^{-5} m²/s の一定で、 j_c を 4, 8 および 15 m/s と変えた流動条件下で、流れ方向に 20 mm 離れた 2 断面で測定したものを示している。実線は基準断面の時間変動波形、破線は下流側のもので、両変動波形の

図 5 液膜厚さの時間変動波形

相互相関係数が最大値をとる遅れ時間 τ (図中参照) だけ基準断面側にずらして比較したものである (破線はやや下方にずらして図示している)。なお、図中の横線は、 $(t_{fm})_c$ に相当する出力電圧を示している。目視による観察結果も参考にして、界面波は主流と同一方向に進行していると仮定すると、実線と破線の差は、界面波とともに動く相対座標系から界面波を観察した場合の界面波形状の時間 τ 間における変化から生じると考えることができる。すなわち図 5 (a) のように界面波が規則的に進行している場合は、個々の界面波は相対的に静止した状態にあり、界面近傍の流体粒子の相対位置はほとんど変化しない。しかし図 5 (b) や (c) のように界面波形状が時間的に大きく変化することは、個々の界面波の相対的位置が大幅に変化し、界面近傍の流体粒子が相互に混合運動していると考えられる。すなわち図 6 (a) に示すように、二つの波が実線から破線へと相対的に近づく場合は、その間の流体粒子は界面から遠ざかる方向へ移動し、二つの波が相対的に遠ざかる場合は、その間の流体粒子は界面に近づく方向へ移動する。この運動によって、物質伝達が促進されると考えられる。

また McCready と Hanratty⁽¹⁾ はせん断界面近傍の液膜内に生じる渦運動は、波状界面に沿った界面せん断応力の変動成分に起因すると考えて、図 6 (b) に示す渦モデルを提案している。彼らのモデルでは界面波が発生すれば必ず物質伝達が促進されるが、図 6 (a)

のモデルでは界面波が発生するだけでなく、個々の界面波が相互運動する場合にのみ、物質伝達が促進されるという差異がある。

図 7 (a) ~ (c) に図 5 に示す膜厚の時間変動をスペクトル解析した結果を示している。図 7 (a) では急しゅんなピークをもつスペクトル密度分布を示し、図 7 (b), (c) と気流速度が大きくなるほどそのピークがなだらかになる。ピーク周波数は T, P 領域では 10 Hz 前後であるが、R 領域になると、20 Hz 前後の値を取り界面が微細構造化し、図 6 で述べたように波相互の変動が激しくなる。なお、図 7 (c) において $f=2$ Hz 付近にあるピークはじょう乱波によるものである。

界面形状の時間的変化の激しさを表す一つの指標として、流れ方向に 20 mm 離れた二つの電極による膜厚の時間変動のコヒーレンスを求めた。コヒーレンスは一般に図 7 で例示したスペクトル密度分布のピーク値の周波数で最大値をとる。図 8 はその最大値を Coh と定義して示したものである。気流速度が小さい場合は Γ が大となって二次元波が生じて Coh はほぼ 1 に近く、気流速度が大きくなると界面波の形状変化が大きくなるのに対応して Coh が小さくなる。図 9 はコヒーレンスの時間的低下率すなわち界面形状の変化率を示す。気流速度が大きくなると、急激にその値が大きくなる。図中の直線は次式で表され、CAL 3 で渦拡散係数 ε_D を求める際に使用する。

$$(1 - Coh)/\tau = 3.18 \times 10^6 v_L^{*4.30} \dots\dots\dots (2)$$

図 6 液膜内の乱れの原因となる渦運動

図 7 液膜厚さの時間変動のスペクトル密度分布

図 8 コヒーレンスの最大値

図 9 コヒーレンスの時間的低下率

図 10 液膜流の流れ方向変化の実測値

4.2 CO₂濃度の流れ方向変化 McCready と Hanratty⁽¹⁾ に比べ液相流量が少ない本実験においては、液膜流の混合平均濃度は、流れ方向に大きく変化する。図 10 は液相の混合平均濃度(以下これを液相濃度と呼ぶ)の流れ方向変化の実測例を示したものである。流れ方向距離 x は CO₂ を混入した断面が原点であり、液相濃度 $\langle c_L \rangle$ は液相側界面の平衡濃度 c_{eL} で規格化している。 c_{eL} は気相側界面の平衡濃度 c_{eG} の実測値からヘンリーの法則を用いて、次式から得られる。

$$c_{eL} = (44/18)x_L \rho_L \dots\dots\dots (3)$$

$$x_L = (p_{\text{CO}_2} / 1.013 \times 10^5) / K \dots\dots\dots (4)$$

$$p_{\text{CO}_2} = 1.864 \times 10^{-3} c_{eG} T_G (p_t / p_a) \dots\dots\dots (5)$$

ここで、 x_L は液相の CO₂ モル分率、 K はヘンリー定数(atm/モル分率)、 p_{CO_2} は気相中の CO₂ の分圧(Pa)、 p_t はテストセクションにおける圧力(Pa)、 p_a は大気圧(Pa)、 T_G は気流の温度(K)である。

気相速度が小さい $j_G = 2 \text{ m/s}$ では、液相濃度は流れ方向にほぼ一定の割合で増加するが、その増加割合は小さく、気相速度が大きいほど CO₂ 混入断面近傍での増加割合が大きくなり、比較的 x の小さい領域で飽和濃度に漸近する。

5. 物質伝達の理論モデル

現象が準定常であると考え、主流方向の対流項と主流と直角方向の拡散項を考慮した定常の拡散方程式を数値的に解いて、流れ方向、液膜厚さ方向の液膜内の濃度分布を求め、それから流れ方向の各断面における混合平均濃度 $\langle c_L \rangle$ を求めた。その方法は以下の CAL 1~CAL 3 に示すように、気・液の流動状態によって異なっている。

5.1 液膜が層流の場合(CAL 1, CAL 2) 液膜が層流である場合、膜厚 $(t_{fm})_c$ と界面速度 u_i で無次元化した拡散方程式は次式となる。

$$u_i + \frac{\partial c_L}{\partial x^+} = D_L + \frac{\partial^2 c_L}{\partial y^{+2}} \dots\dots\dots (6)$$

これを基礎式とした。ここで $x^+ = x / (t_{fm})_c$, $y^+ = y / (t_{fm})_c$, $u_i^+ = u_i / u_i$, $c_L^+ = (c_L - c_{eL}) / (c_{L0} - c_{eL})$, $D_L^+ = D_L / \{u_i (t_{fm})_c\}$ である。また c_{L0} は、 $x^+ = 0$ における液相濃度であり、 $x^+ = 0$ は CO₂ を混入した断面、 $y^+ = 0$ は気液界面であり下方を正とした。境界条件は以下のとおりである。ここで最初の条件は、 $x = 0$ から濃度境界層が発達していくことを意味している。

$$x^+ = 0: c_L^+ = 1, \quad y^+ = 0: c_L^+ = 0,$$

$$y^+ = 1: (\partial c_L^+ / \partial y^+) = 0 \dots\dots\dots (7)$$

式(6)を差分化して数値的に解いた。その際 x 方向には 2.5 m を 50 分割、 y 方向には界面に近づくほど格子が細くなるように指数的に 11 分割した。

5.1.1 気流が層流の場合(CAL 1) 気液両相が層流である二次元の流動モデル⁽⁶⁾ では、気液両相の流量 (j_{Gc}, Γ_c) が与えられると、以下の式(8)~(10)から液膜厚さ $(t_f)_i$ 、界面速度 u_i および液膜内の速度分布 u_L^+ が求められる。

$$h^4 + 4m_c h^3 + 3m_c(1 - 1/f)h^2 - 4m_c h / f - m_c^2 / f = 0 \dots\dots\dots (8)$$

$$u_i = 6m_c(1 + h)^2 j_{Gc} / (h^3 + 4m_c h^2 + 3m_c h) \dots\dots\dots (9)$$

$$u_L^+ = (1 - y^+)(1 + (t_f)_i y^+ / H) \dots\dots\dots (10)$$

ここで、 f は $\Gamma_c / (j_{Gc} H)$ で気液両相の流量比を、 h は $H / (t_f)_i - 1$ で気体層の厚さを、 m_c は μ_G / μ_L で両相の粘性係数の比を意味している。これらを式(6)に代入して数値的に解いた解を CAL 1 とする。

5.1.2 気流が乱流の場合(CAL 2) 気流が乱流の場合、膜厚は深野らによる整理式⁽⁷⁾ から算定される界面せん断応力 τ_i から、液膜内の速度分布が直線的であると仮定して次式から算定する。

$$(t_f)_i = \sqrt{2\Gamma_c \mu_L / \tau_i} \dots\dots\dots (11)$$

$$\tau_i = \lambda_i \rho_G j_{Gc}^2 / 8 \dots\dots\dots (12)$$

$$\lambda_i / \lambda_G = \begin{cases} 1 + 4X^{1.2} & \text{(T, P 領域)} \\ 1 + 6.1 \times 10^{-5} (X^{0.8} Re_L)^{0.65} Re_G^{0.7} & \text{(R 領域)} \end{cases} \dots\dots\dots (13)$$

マルチネリパラメータ X は次式で定義している。

$$X^2 = \left(\frac{\lambda_L}{De} \frac{\rho_L j_{Lc}^2}{2} \right) / \left(\frac{\lambda_G}{De} \frac{\rho_G j_{Gc}^2}{2} \right) \dots\dots\dots (14)$$

ここで λ は管摩擦係数、 De は等価直径、 ρ は密度、 j はみかけの速度であり、気相は乱流、液相は層流として、 λ には二次元流れの場合の式、 $\lambda_L = 96 / Re_L$ および $\lambda_G = 0.485 Re_G^{-0.28}$ を用いた。

膜厚には式(11)を用い、界面速度と速度分布にはそれぞれ以下に与える式(15)と式(16)を用いた。

$$u_{it} = 2\Gamma_c / (t_f)_t \quad (15)$$

$$u_L^+ = 1 - y^+ \quad (16)$$

これらを用いた式(6)の数値解をCAL2とする。

5・2 液膜内の乱れを考慮した場合(CAL3) 図6で述べたように McCready と Hanratty⁽¹⁾, Back と McCready⁽²⁾⁽³⁾ は, 界面近傍の液膜内の流体の渦運動は, 波状界面に沿った空間的な界面せん断応力の変動成分に起因すると考えた解析を行っている。彼らの解析においては, 流れと直角方向の(界面に対して)相対的な速度変動(これを相対速度変動と呼び, この変動成分が乱れとなる)は Orr-Sommerfeld の式を用いて算定しているが, その算定過程が複雑で不明確であり, 計算結果を用いた実験結果との比較も容易でない。最終的な結論で彼らは液膜内に乱れがある場合, 液膜流への物質伝達は, 無次元液膜厚さ $(t_{fm})_{cL}^* / \nu_L$ が 10~20 (本実験の概略値) においては

$$(\alpha_{DL} / \nu_L^*) Sc_L^{1/2} \cong 0.1 \quad (17)$$

で整理している。この式から物質伝達係数 α_{DL} を求め, α_{DL} から液膜流の流れ方向濃度変化を算定した。これを本論文では McCready の方法と呼ぶ。

Komori ら⁽⁴⁾ は表面更新モデルを用いて結局次式

$$\alpha_{DL} = 0.34 \sqrt{D_L f_L} \quad (18)$$

を得ている。ここで f_L は液相速度変動のスペクトルのピーク周波数で, 界面せん断応力 τ_i と関係づけている。著者らは τ_i から α_{DL} を求め, 流れ方向濃度変化を算定した。これを Komori の方法と呼ぶ。

これら二つの方法では, 後に示すように著者らの実験値とはよく合わない。さらに濃度境界層が, $x=0$ で十分発達しているという仮定も妥当でない。そこで著者らは, 以下に示すように界面近傍の液膜内の流体の乱れは, 個々の界面波の相対運動に起因すると仮定したモデルを提案し, これを CAL3 と呼ぶ。このモデルを計算するために必要な量は, 気流速度, 液相流量だけであり, 計算が容易である。以下に CAL3 について説明する。

液膜内の流れに乱れがある場合の時間平均した拡散方程式は, 次式で与えられる⁽⁸⁾。

$$\begin{aligned} \overline{u_L} \frac{\partial \overline{c_L}}{\partial x} - \frac{\partial}{\partial y} \left(D_L \frac{\partial \overline{c_L}}{\partial y} - \overline{v_L' c_L'} \right) \\ = (\partial/\partial y) [(D_L + \varepsilon_D) \partial \overline{c_L} / \partial y] \quad (19) \end{aligned}$$

ここで $\overline{\quad}$ は時間平均値を, $'$ は変動成分を示している。ただし渦拡散係数 ε_D は次の関係で定義される。

$$-\overline{v_L' c_L'} = \varepsilon_D (\partial \overline{c_L} / \partial y) \quad (20)$$

以下に渦拡散係数 ε_D の値の決定に必要な相対速度変動 v_L' , 濃度変動 c_L' の算定法について述べる。

(a) 混合距離 l_D の評価 Plandtl の混合距離

図 11 $x=1$ m における膜厚方向濃度分布の計算例

l_D にならって, 流体粒子は距離 l_D だけ移動して元の濃度を失い, 新しい場所の濃度になると考える。 l_D の液膜内の分布は, 気液界面, すなわち時間平均膜厚の界面にとった y 方向の座標軸の原点において最大値をとり, 界面からの距離の増加に比例して小さくなり, 波高 h_c に比例すると仮定して, 次式で与えた。

$$l_D = h_c (1 - y^+) \quad (21)$$

(b) v_L' の評価 主流に直角方向の相対速度変動 v_L' が, 気液界面近傍の液膜内に誘起される渦運動, すなわち式(21)で与えられる l_D を半径として, 角速度 ω で回転する運動によって誘起されるとして, v_L' を次式で算定した。

$$|v_L'| = l_D \omega \quad (22)$$

その際この渦運動は, 4・1節で述べたように, 個々の界面波の相対運動によって生じると考え, 渦運動の角速度が図9で示したコヒーレンスの時間的低下率に比例するとした。すなわち

$$\omega = (1 - Coh) / \tau \quad (23)$$

(c) c_L' の評価 濃度変動 c_L' は, 液膜の深さ方向に l_D だけ離れた場所では, 時間平均した濃度に差があるために生じると仮定し, 次式を導入した。

$$|c_L'| = l_D |\partial \overline{c_L} / \partial y| \quad (24)$$

以上(a)~(c)をまとめると, 式(20)の左辺は,

$$|-\overline{v_L' c_L'}| \cong |v_L'| |c_L'| \cong l_D^2 \omega |\partial \overline{c_L} / \partial y| \quad (25)$$

であり, これを式(20)の右辺と比較することにより, 渦拡散係数は次式となる。

$$\varepsilon_D = a l_D^2 \omega = a \{ (1 - Coh) / \tau \} h_c^2 (1 - y^+)^2 \quad (26)$$

ここで a は上述の CAL3 におけるただ一つの任意比例定数であり, 試行錯誤的に実験値と比較することによりすべての実験条件に共通に $a=0.1$ を採用した。 ε_D の算定に必要な量として, 波高は実験式(1)から, コヒーレンスの時間的低下率は実験式(2)から定まるので, ε_D も流動条件だけで定まる。液膜厚さに式(11), 界面速度に式(15), 液膜内の速度分布に式(16), 液膜

内の渦拡散係数分布に式(26)を用いて、基礎式(19)を数値的に解いた解をCAL3とする。

5.3 液膜内濃度の膜厚方向分布の計算結果

CAL1~CAL3では、液膜内の断面の膜厚方向濃度分布が算定できる。図11には $\Gamma=8 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ 、 $j_G=4$ および15 m/sの場合の $x=1 \text{ m}$ における値をその計算例として示している。

CAL1では $j_G=4 \rightarrow 15 \text{ m/s}$ と気流速度が増大しても、膜厚方向の濃度分布はあまり変化しない。CAL2では気流速度が増大すると、膜厚が層流解より薄くなる結果、 $x^+=1/(t_f)_t$ がより大きくなるので、濃度が大きくなる。CAL3では気流速度が増大すると、乱れが大となるため濃度の拡散が活発となり、下壁近くまで飽和濃度に近づいている。

6. 考 察

図12は液相濃度の流れ方向変化を示したものである。図12(a)~(d)は $\Gamma=8 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ と一定にして、 $j_G=2, 4, 8$ および15 m/sと変化した場合の、また図12(b), (e), (f)は $j_G=4 \text{ m/s}$ と一定として、 $\Gamma=4, 8$ および $10 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ と変化した場合の結果を示している。図12の○印は実験値であり、水平な直線は液相側の界面の平衡濃度 c_{eL} である。 c_{eL} は温度により若干変化する。また、5章で述べた各モデルによる理論値、すなわちCAL1を実線で、CAL2を破線で、CAL3を一点鎖線で、McCreadyらの値を点線で、およびKomoriらの値を二点鎖線で示している。実験値に及ぼす $x=0$ 直後の流れの未発達の影響は無視し得ると仮定すると、液相濃度の流れ方向変化の実験値と計算値を比較して、次のように考察することができ

る。

McCreadyらの値、Komoriらの値は気相速度が小さい図12(b)の $j_G=4$ 、図12(c)の8 m/sにみられるように、流れ方向の $x=0$ 近傍での液相濃度の増加割合が実験値より大きく、気相速度が大きい図12(d)の $j_G=15 \text{ m/s}$ では実験値より小さくなっており、本実験結果と一致していない。したがって、McCreadyら⁽³⁾のモデルでは液膜内の乱れがいろいろな流動条件に対して適切に評価されているとはいえない。また風波界面を有するプール内の液体の物質伝達を対象としたKomoriら⁽⁴⁾のモデルは、せん断界面を介しての液膜流への物質伝達にはそのまま適用することはできないといえる。

図12(a)~(d)から、著者らの三つのモデルについては次のようにいえる。図12(a)の気相速度が小さい $j_G=2 \text{ m/s}$ では、気流・液膜流とも層流であり、流動様式が平滑面流れ(S)であるので、CAL1と実験値がよく一致しており、主流と直角方向の物質伝達は拡散のみにより行われていると考えられる。図12(b)の気相速度がやや大きくなる $j_G=4 \text{ m/s}$ では、流動様式は二次元波流れ(T)であり、実験値は $x=0$ の近傍での増加が大きくなり、CAL1とは合なくなるが、CAL2とはよく一致している。これは気相が乱流に遷移して界面せん断応力が層流の値より大となる結果、液膜厚さが層流の値より薄くなるためである。CAL2では液膜流は層流であるから、界面波が存在しても主流と直角方向の物質伝達は依然として拡散のみにより行われると考えてよく、図6で述べた著者らのモデルの妥当性を示している。気流の乱れが液膜流に与える効果は液膜厚さが薄くなることで十分説明されており、膜厚が

図12 液膜流の流れ方向濃度変化の実験値と計算値

物質伝達を支配する極めて重要な因子であることがわかる。

気相速度がさらに大きくなる図 12(c) の $j_G=8$ m/s (ペブル波流れ, P), (d) の 15 m/s (リップル流れ, R) では, 液相濃度の実験値の流れ方向増加割合がさらに大きくなる。この傾向は上述の膜厚の減少(CAL 2)だけでは説明ができず, 液膜内の乱れを考慮した CAL 3 が実験値と一致する。このことから, 乱れの原因となる液膜内に生じる渦運動には, 図 6 に示した二通りの原因, すなわち図 6(a) 個々の界面波の相対運動, 図 6(b) 波状界面に沿った界面せん断応力の空間的な変動成分, のうち前者のほうが妥当なモデルになっている。このことは, 流動様式が二次元波流れの場合, 界面波が存在するにもかかわらず, 層流解である CAL 2 と実験値が一致していることにも表れている。

さらに図 12(b), (e), (f) と j_G を一定として Γ を増加させた実験結果との比較も上述の議論の妥当性を示している。

以上の検討から本論文で提案した三つのモデルを流動条件(流動様式)によって使い分ければ, 十分な精度で流れ方向の濃度変化が算定できるといえる。

7. 結 論

気流に伴われて流動する液膜へのせん断界面を介しての二酸化炭素の吸収実験を行うとともに, 液膜流の諸特性を調査した。また液膜内の濃度分布を定常の拡散方程式を数値的に解くことにより求め, 液膜流の流れ方向濃度変化の実験値と計算値を比較した。おもな成果は以下のとおりである。

(1) 液膜流の諸特性について実験により整理式 {式(1)と(2)} を得た。

(2) 気相速度が小さく気流が層流で, 流動様式が平滑面流れ(S)である場合($j_G=2$ m/s), 液膜流も層流であるので, 流れ方向濃度変化の測定結果は, 二次

元の層流モデル⁽⁶⁾ による解(CAL 1)とよく一致する。この場合, 主流と直角方向の物質伝達は拡散のみで行われていると考えてよい。

(3) 気相速度が $j_G=3\sim 4$ m/s とやや大きくなって気流が乱流に遷移して界面に二次元波(一部ペブル波も含む)が発生しても, そのパターンが流れ方向にほとんど変化しないならば, 界面波による液膜内の乱れの増加は無視できる。この場合 CAL 1 は実験値と合っていないが, 膜厚に界面せん断応力⁽⁷⁾ から得られる値を用いれば層流解(CAL 2)が実験値と一致する。

(4) 気相速度がさらに大きく, 流動様式がペブル波流れ(P)やリップル流れ(R)の場合は, 液相濃度の流れ方向増加の割合が増大し, 液膜内に生じた乱れが, 主流と直角方向への物質輸送に重要な役割を果たす。この場合, 液膜内の乱れを考慮した CAL 3 により, 流れ方向の濃度変化が予測できる。

文 献

- (1) McCready, M.J. and Hanratty, T.J., Effect of Air Shear on Gas Absorption by a Liquid Film, *AIChE J.*, **31**(1985), 2066.
- (2) Back, D.D. and McCready, M.J., Effect of Small-Wavelength Waves on Gas Transfer across the Ocean Surface, *J. Geophys. Res.*, **93**(1988), 5143.
- (3) Back, D.D. and McCready, M.J., Theoretical Study of Interfacial Transport in Gas-Liquid Flows, *AIChE J.*, **34**(1988), 1789.
- (4) Komori, S., Nagaosa, R. and Murakami, Y., Turbulence Structure and Mass Transfer across a Sheared Air-Water Interface in Wind-Driven Turbulence, *J. Fluid Mech.*, **249**(1993), 161.
- (5) 深野・ほか5名, 気流を伴う水平長方形管内薄膜流の研究(第1報, 流動様式), *機論*, **45**-390, B(1979), 172.
- (6) 深野・ほか5名, 気流を伴う水平長方形管内薄膜流の研究(第4報, 液膜流に与えるダクト断面形状の影響), *機論*, **49**-498, B(1983), 2704.
- (7) 深野・ほか4名, 水平長方形管内薄膜流の研究(第5報, 気液界面せん断応力について), *機論*, **51**-462, B(1985), 494.
- (8) Bird, R.B., Stewart, W.E. and Lightfoot, E.N., *Transport Phenomena*, (1960), 627, John Wiley & Sons.