

〔特集〕 界面水理学

界面水理学における乱流とガス交換 — 実験とモデルの進展 —

*九州大学大学院 総合理工学研究院

杉 原 裕 司†

**京都大学大学院 工学研究科

山 上 路 生‡

Turbulence and Gas Transfer in Interfacial Hydraulics — Progresses of Experiments and Models —

Yuji SUGIHARA, Faculty of Engineering Sciences, Kyushu University

Michio SANJOU, Graduate School of Engineering, Kyoto University

(Received 1 May, 2011; in revised form 31 May, 2011)

1 はじめに

気液界面を通してのガス交換機構の解明は、環境変動の予測手法を確立する上で重要な研究課題である。近年では、地球温暖化問題との関わりから、大気–海洋間 CO_2 フラックスの高精度評価を目指した研究が勢力的に行われている（例えば、Jähne・Monahan 編¹⁾、Jähne & Haußecker²⁾、Garbe・Handler・Jähne 編³⁾を参照）。気液界面のガスフラックスを規定する物質移動係数がガス交換速度である。従って、流体力学の観点から行われるガス交換研究の主要なターゲットはガス交換速度を定量的に評価するための方法論の確立である。界面ガス交換は、機械工学、化学工学、土木工学、大気海洋科学等の多くの分野の研究対象となっている。様々な種類の界面輸送現象があるが、そこには通底する共通の乱流機構があり、その理解には流体力学の知見が不可欠である。本論文では、界面輸送現象を取り扱う学問を“界面水理学”と呼称する⁴⁾。界面水理学の研究対象は気液界面のガス交換に限定されない。例えば、気液界面での運動量・熱の輸送や、水底泥界面の化学物質の輸送も重要な研究課題であり、界面水理学の対象は多岐に渡る。

環境科学において重要となるのは、 CO_2 や O_2 のよ

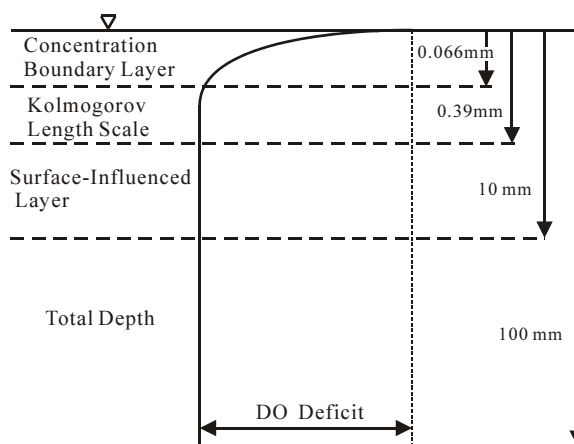


図 1 滑面開水路流における気液界面近傍の乱流・濃度境界層の典型的なスケール⁵⁾

うな低溶解性気体である。そのような気体では気液界面近傍に形成される溶存気体の濃度境界層は非常に薄くなり、そこでのミクロな乱流機構がガス交換速度を規定している。図 1 に、気液界面近傍に形成される境界層の一例として、 O_2 を対象とした $R_* = 2,300$ の滑面開水路流における乱流・濃度境界層の典型的なスケールを示す⁵⁾（ここで R_* は摩擦速度と水深で定義されたレイノルズ数である）。界面近傍には多くの境界層が階層的に存在しており、各層の長さスケールは乱流状態に依存して変化する。Surface-influenced layer は乱流場が界面の影響を受けて変形する層であり、その厚さは積分長さスケール程度である。また、溶存気体の濃度境界層はたかだ

*〒816-8580 福岡県春日市春日公園 6-1

† E-mail: sugihara@esst.kyushu-u.ac.jp

**〒615-8530 京都市西京区京都大学桂

‡ E-mail: michio.sanjou@water.kuciv.kyoto-u.ac.jp

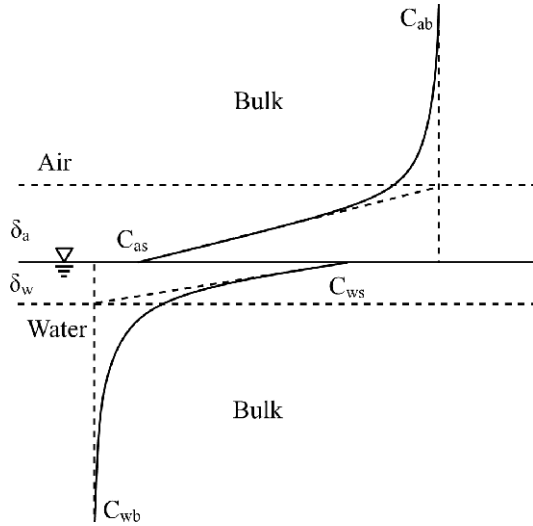


図2 気液界面近傍の気体濃度境界層

か数十 μm ～数百 μm 程度である．そのため，境界層内の乱れや溶存気体濃度を計測することは困難であり，そのことがガス交換速度のモデル化の進展を妨げる大きな要因になっていた．しかし，近年の計測技術の発達に伴うデジタル画像解析や微小センサー等の登場によって，界面近傍のミクロな乱流輸送現象を直接計測することが可能となってきた³⁾．さらに，コンピューターの発達は，数値計算に基づくガス交換研究を後押ししている^{6), 7), 8)}．計測技術・計算機の発達は，理論，数値計算，実験の効果的な融合を推し進め，ガス交換機構の解明やモデルの進展を促している．

本論文では，気液界面における乱流とガス交換に関する実験研究とモデル化の現状と進展に焦点を当てた解説を試みる．ガス交換の基礎理論と代表的なモデルの概要について述べ，それらを基に行われてきた代表的な乱流システムの実験研究について説明する．

2 ガス交換の基礎理論とモデル

本節では，気液界面を通して気相から液相へ向けてガス輸送が起こっている場合を考える．気相・液相の界面近傍には気体の濃度境界層が形成されており，界面から離れた領域での各相の濃度は乱流混合のために一様であるとする（図2）．このように十分に混合されている境界層外の領域はバルク領域と呼ばれる．ガス輸送は界面上と各バルク領域の濃度差が推進力となって駆動される．定常状態においては，気相・液相を移動するガスフラックスは一致し，フラックス F は次式のように表される．

$$F = k_G (C_{ab} - C_{as}) = k_L (C_{ws} - C_{wb}) \quad (1)$$

ここで， k_G ， k_L はそれぞれ気相および液相の物質移動係数である．一般に CO_2 や O_2 のような低溶解性気体ではヘンリー定数が大きく，ガス交換は液側抵抗支配になる．そのため，界面を通して輸送されるフラックス F は液側のフラックスによって規定される．従って， CO_2 や O_2 などの低溶解性気体を対象とする場合，輸送係数として液相物質移動係数 k_L のみを考えればよいことになる．なお，以降，ガス交換速度とは液相物質移動係数を意味することに注意する．以上より，低溶解性気体のフラックス F を表現するバルク式は次式のようになる．

$$F = k_L (C_s - C_b) \quad (2)$$

ここで， C_s ， C_b はそれぞれ液相における溶存気体の界面濃度とバルク濃度である．

ガス交換速度のモデル化についてはこれまでに様々な研究が行われてきた．Lewis & Whitman⁹⁾ は，ガス交換速度に関する“境膜モデル(film model)”を提案している．このモデルでは，気相と液相の界面近傍には定常な濃度境界層が形成されており，それらの境界層でのみ気体の分子拡散が生じていると考える．彼らのモデルでは，液相での溶存気体の分子拡散係数を D ，液相濃度境界層厚さを δ_w とするとガス交換速度 k_L が次のように表される．

$$k_L = \frac{D}{\delta_w} \quad (3)$$

実際の濃度境界層は乱流によって非定常に変動しているはずであるが， δ_w を統計量と考えればこのモデルを実用的な界面輸送問題に適用できる場合がある．

次に，より流体力学的な観点から構築されたガス交換モデルについて述べる．今，界面を原点として鉛直下向きに z 軸をとる．溶存気体の濃度境界層は界面近傍の乱流渦のスケールに比べて十分に薄いものとする．従って，濃度境界層内では水平流速の鉛直変化は無視でき，連続の式より次式が得られる．

$$\frac{\partial w}{\partial z} = - \left(\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} \right) = - \beta(x, y, t) \quad (4)$$

ここで， u ， v ， w はそれぞれ x ， y ， z 方向の流速を， β は界面での流速発散(surface divergence)を示す．界面の動揺が無視できるとすると $z = 0$ において $w = 0$ となり，鉛直流速 w は次式のように表される．

$$w = - \beta(x, y, t) z \quad (5)$$

従って、境界層近似に基づく溶存気体濃度 C の移流拡散方程式は次式ようになる。

$$\frac{\partial C}{\partial t} + u \frac{\partial C}{\partial x} + v \frac{\partial C}{\partial y} - \beta z \frac{\partial C}{\partial z} = D \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \quad (6)$$

式(6)を解く際の初期条件および境界条件は次式で表される。

$$\left. \begin{array}{l} I.C. \quad C = C_b \quad \text{at } t = 0 \\ B.C. \quad C = C_s \quad \text{at } z = 0 \\ \quad \quad C \rightarrow C_b \quad \text{as } z \rightarrow \infty \end{array} \right\} \quad (7)$$

これらの条件は、ガス交換の流体力学モデルを構築する際に広く用いられている。

Higbie¹⁰⁾は、非定常項と鉛直拡散項がつり合った場の式(6), (7)に基づいて、乱れによる非定常なガス交換を考慮した“浸透モデル(penetration model)”を提案した。彼のモデルでは、流体のエレメントが時間 t_{exp} だけ界面に露出して非定常なガス輸送が起こり、その後にバルク領域から移動してきたフレッシュなエレメントに瞬間的に置き換わるという一連のプロセスが繰り返し起こっていると考える。非定常項と拡散項のつり合った場の式(6), (7)の解析解として、エレメントが界面に露出してから時間 t だけ経過した時のフラックス F は次のように与えられる。

$$F = -D \frac{\partial C}{\partial z} \Big|_{z=0} = \sqrt{\frac{D}{\pi t}} (C_s - C_b) \quad (8)$$

上式から t_{exp} 間における平均ガス交換速度は

$$k_L = 2 \sqrt{\frac{D}{\pi t_{\text{exp}}}} \quad (9)$$

のようになる。

浸透モデルでは t_{exp} 後に流体エレメントが一斉に更新すると考えるが、エレメントは乱れによってランダムに更新されていると考える方が現実の描像に近いであろう。Danckwerts¹¹⁾はそのような観点から表面更新理論(surface-renewal theory)と呼ばれる、より統計的なガス交換モデルを提案した。図3に示すように、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に界面を更新しガス交換を行っている微小なエレメントの集合を考える。ただし、界面での更新は一様定常確率現象であると仮定する。表面に露出してから時間 τ だけ経過したエレメントの年齢分布を $\phi(\tau, r)$ で表す。ここで、 ϕ は τ だけでなく、単位面積あたりにフレッシュなエレメント ($\tau = 0$) が占める面積 r の関数である。 r は時間的に見れば各点において単位時間あたりに界面が更新される確率に相当し、表面更新率 (surface-renewal rate) と呼ばれる。年齢 τ のエレメント内の界面ガスフラックスを F_e とすると統計的に定常な気液界面での平均ガスフラックス F は次式のように表される。

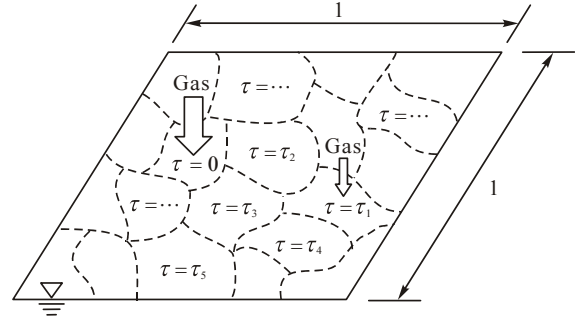


図3 気液界面を構成する流体エレメントの概念図

$$F = \int_0^{\infty} F_e \phi(\tau, r) d\tau \quad (10)$$

ただし、年齢分布関数 ϕ は全年齢 $\tau = 0 \sim \infty$ に渡って積分した場合に 1 となる必要があり、一般に次式の関数形を用いる。

$$\phi(\tau, r) = r \exp(-r d\tau) \quad (11)$$

Danckwerts の標準理論では F_e に Higbie の式(8)を適用する。その結果、表面更新理論におけるガス交換速度は次式のように与えられる。

$$k_L = \sqrt{Dr} \quad (12)$$

上式は、“表面更新モデル(surface-renewal model)”と呼ばれることが多いが、Higbie の浸透モデルに基づいているという意味から、“Danckwerts-Higbie モデル”と呼ぶべきかもしれない (本論文では以下 DH model)。このモデルが提案されて以降、気液界面のガス交換を考える際に、このモデルを基盤として交換速度を議論することが多い。ただし、表面更新を担う乱れをどのように流体力学的に定義し、更新率をどのように与えるべきかという問題が残っている。

溶存気体の移流拡散方程式の移流効果に着目する立場のガス交換モデルも多い。その代表的なものとして“渦セルモデル(eddy-cell model)”がある^{12), 13), 14)}。なお、ここでは乱流渦として定常な 2 次元渦が周期的に配置されている場を対象とするものを渦セルモデルとしている。このモデルでは、溶存気体の濃度境界層は渦のスケール L に比べて十分薄いとして、代表速度 V 、周期 L で x 方向に正弦的に変化する速度場を考える。そのような速度場に対する式(6), (7)の解析解を、露出時間 t_{exp} と渦スケール L で時空間平均したガス交換速度は次式のようになる¹⁴⁾。

$$k_L = \frac{2\sqrt{2}}{\pi} F(t_{\text{exp}}) \sqrt{\frac{DV}{L}} \quad (13)$$

ただし、 $F(t_{\text{exp}})$ は無次元露出時間 $t_{\text{exp}} (\equiv t_{\text{exp}} V/L)$ の関数である。このモデルは、Higbie の浸透モデルに移流効果を加えた修正モデルと見ることもできる。もし露出時間 t_{exp} が乱れの時間スケール L/V を用いて普遍表示できるとすれば、 t_{exp} は定数になる。従って、そのような渦セルモデルでは、ガス交換を支配する代表的な乱れの速度スケールと長さスケールを与えることができればガス交換速度を評価可能となる。DH model の表面更新率 r は時間の逆数の次元をもち、乱れが表面更新を規定すると考えれば、 r を乱れの代表時間スケールの逆数 V/L を用いてスケールリングできると考えることは自然である。その場合、式(13)は形式的には DH model と等価になる。これは、DH model も拡散方程式に基づく Higbie の浸透モデルを基礎にしているためであり、両者の等価性は拡散方程式の解の性質と捉えることができる。

ガス交換を支配する乱れのスケールリングについては大きく2つの立場がある。一つは、積分スケールの乱流渦がガス交換を支配するとした Fortescue & Pearson¹²⁾ のモデル (いわゆる large-eddy model; 以下 LE model) である。式(13)の V , L として積分スケールの乱流速度 u と長さ l を用いて、交換速度を u で無次元化すると形式的に次式が得られる。

$$\frac{k_L Sc^{1/2}}{u} \propto Re^{-1/2} \quad (14)$$

ただし、式(13)の $F(t_{\text{exp}})$ は定数として扱っている。 $Re (\equiv ul/\nu)$ はマクロな速度スケールと長さスケールで定義された乱流レイノルズ数、 $Sc (\equiv \nu/D)$ はシュミット数であり、 ν は液相流体の動粘性係数である。従って、LE model では、マクロな速度スケールで無次元化されたガス交換速度は、マクロなスケールで定義されたレイノルズ数の $-1/2$ 乗に比例する。

もう一つの立場は、ガス交換を支配する V , L が、それぞれ Kolmogorov scale の速度 $u_K = (\nu\epsilon)^{1/4}$ および長さ $l_K = (\nu^3/\epsilon)^{1/4}$ でスケールリングできるというものである。このスケールリングは small-eddy model (以下 SE model) と呼ばれる (Banerjee et al.¹⁵⁾, Lamont & Scott¹³⁾)。この場合、マクロなスケールで無次元化されたガス交換速度とレイノルズ数の間には次式のような $-1/4$ 乗則の関係が成り立つ。

$$\frac{k_L Sc^{1/2}}{u} \propto Re^{-1/4} \quad (15)$$

ただし、このようなレイノルズ数依存性の違いは、マクロスケールによる無次元交換速度とレイノルズ数の間に見られることに注意する。マクロスケールとミクロスケールのどちらの乱流渦がガス交換を支配するのかによって交換速度のスケールリング則が異なるという性質は、ガス交換研究の基盤のようなもの

のになっている。これまでの研究の多くは、レイノルズ数依存性を通じて支配渦の議論を行うことが多く、 $-1/2$ 乗則が現れるか、 $-1/4$ 乗則が現れるかによって、対象のガス交換機構を解釈してきた。ただし、単一の代表スケールの乱流渦 (一つの表面更新率) によって界面輸送を記述するというコンセプトがどこまで有効であるのかは不明であり、そのような視点からの研究も必要であると思われる。

次に気液界面の stagnation においてガス交換の鉛直輸送が卓越する場合を考えてみよう。そのような点の近傍では水平方向の移流効果は相対的に小さくなることから、式(6)は次式のように簡単化できる (stagnation-flow approximation)。

$$\frac{\partial C}{\partial t} - \beta z \frac{\partial C}{\partial z} = D \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \quad (16)$$

これはガス交換モデルの定式化の際にしてしばしば用いられる近似である (例えば, Chan & Scriven¹⁶⁾, Theofanous et al.¹⁴⁾, McCready et al.¹⁷⁾)。この場合、界面発散 β がガス交換を支配する重要な物理量となる。界面発散が正の領域では、流体の発散的な運動のために溶存気体の濃度境界層が薄く引き延ばされ、局所的に濃度勾配が増大する。そのため、そこではより効率的にガス交換が行われているはずである。McCready et al. は、式(16)に基づいて界面発散変動スペクトルを理論的に取り扱い、ガス交換速度と界面発散の rms 値を関係づける次のモデルを提案した。

$$k_{L+} Sc^{1/2} = 0.71 \beta_{\text{rms}+}^{1/2} \quad (17)$$

ただし、 k_{L+} および $\beta_{\text{rms}+}$ は摩擦速度と水の動粘性係数で無次元化されたガス交換速度および界面発散の rms 値を示す。“界面発散モデル (surface divergence model; 以下 SD model)” の最も基本的なものは、次式のようにガス交換速度が β_{rms} の平方根に比例する。

$$k_L = a \sqrt{D \beta_{\text{rms}}} \quad (18)$$

ここで a は比例係数である。

Banerjee¹⁸⁾ は、McCready の結果を利用して、ガス交換速度に対して次式のモデルを提案している。

$$\frac{k_L Sc^{1/2}}{u} \approx Re^{-1/2} \tilde{\beta}_{\text{rms}}^{1/2} \quad (19)$$

ここで、 $\tilde{\beta}_{\text{rms}}$ は無次元化された界面発散の rms 値である。さらに、Banerjee et al.¹⁹⁾ は、 $\tilde{\beta}_{\text{rms}}$ を積分スケールの乱流統計量を用いて表示し、Hunt & Graham²⁰⁾ のブロッキング理論に基づいて次式のようなモデルを示した。

$$\frac{k_L Sc^{1/2}}{u} \approx \frac{b}{Re^{1/2}} \left[0.3 (2.83 Re^{3/4} - 2.14 Re^{2/3}) \right]^{1/4} \quad (20)$$

ただし、 b は比例係数である。上式は、積分スケールの乱流速度と長さがわかれば交換速度を評価できるという意味では実用性の高いモデルである。

栗谷・安部²¹⁾は、移流項と鉛直拡散項がつり合うと仮定した場合の式(16)の解析解に基づいて、界面発散に基づくガス交換モデルを提案した。彼らは、Kolmogorov scale の乱流特性量を用いて界面発散を定量化し、開水路乱流場の実験データに基づいてモデルの妥当性を検討している。

Tsumori & Sugihara²²⁾は、界面発散のスケールリングについて次のような解釈を与えた。Taylor microscale λ は次式のように定義されている。

$$\lambda^2 \equiv \frac{\overline{u'^2}}{(\partial u'/\partial x)^2} \quad (21)$$

厳密さに多少目をつむれば、上式の定義から、 β_{rms} の大きさは次のように見積もれるであろう。

$$\beta_{rms} \sim \left[\overline{(\partial u'/\partial x)^2} \right]^{1/2} \sim \frac{u}{\lambda} \propto \left(\frac{\varepsilon}{\nu} \right)^{1/2} \quad (22)$$

ここで、 u' は界面における x 方向の流速変動である。界面発散 β_{rms} は時間の逆数の次元をもち、式(22)はそれが歪み速度で規定されることを示している。そして、Taylor microscale は、乱れによって形成される界面発散領域の空間的な広がりを表す尺度と解釈できるであろう。また、歪み速度は Kolmogorov scale と結びついたミクロなスケールであり、エネルギー散逸率 ε と動粘性係数 ν を用いて表現することができる。彼らは、振動格子乱流場の実験値に基づいて、これらのスケールリングが妥当であることを検証した。式(22)を(18)に代入して、改めてマクロな乱流スケールで無次元化すると、式(15)と形式的に同じスケールリング則が得られる。このことは、少なくともモデル式としては SE model と SD model が等価であることを示唆する。SD model, SE model, LE model, そして DH model の相互関係の理解は、より普遍的なガス交換モデルの構築において不可欠であると思われる。それらの関係が明らかになった時、ガス交換現象の物理的描像はかなり鮮明になるはずである。

3 界面水理学における乱流とガス交換の計測手法

3.1 界面における乱流計測

レーザードップラー流速計(LDA)はサンプリングボリュームが極めて小さく非接触であるために、細かなスケールの渦構造まで高精度に計測できる。ただし LDA は点計測のため、乱流の組織構造を直接捉えることは難しい。一方、PIV や PTV は画像デー

タを用いた多点同時計測なので、瞬時の時空間構造を評価できる。一般に標準的な PIV では2次元平面上の2成分の流速分布を知ることができるが、国内外の複数の研究グループによってその3次元化が図られている。実用性の高いステレオ PIV では、レーザーライトシート(LLS)に対して傾斜させて配置した複数のカメラ画像からシートに垂直方向の流速成分(面外成分とよぶ)を評価するため、平面上の流速の全3成分を得ることができる。

水理分野では、Wells et al.²³⁾が開水路乱流にステレオ PIV を適用し、その有用性を指摘している。これに対して、平面の計測領域を立体化したものがスキヤニング PIV である。これは LLS を高速で面外方向に移動させながら計測することで空間内のベクトル分布を得るものである。Ushijima & Tanaka²⁴⁾ は光学スキャナーを利用して回転水槽流れの立体構造を計測した。また Sanjou & Nezu²⁵⁾ はミラー付のジュラルミン製アームをモーター軸に複数取り付けたスキヤニング装置を作成して複断面開水路流れの3次元乱流構造を解明した。ただしスキヤニング PIV では、異なる LLS の照射位置で計測された画像には若干の時刻差があるため、厳密には同時刻のベクトル分布が得られるわけではないので注意が必要である。これをさらに発展させたものとして、Hori & Sakakibara²⁶⁾ はステレオと組み合わせたステレオ・スキヤニング PIV を実行し、3次元空間における流速3成分の計測に成功している。なお、このような立体空間の3成分計測を実現するためのものとして、ホログラムやトモグラフィ技術を応用した PIV^{27), 28)} も提案されており、今後も大いに発展が期待できる。

さて PIV も LDA と同様に大型スケールの水路や実河川への適用には課題があるが、表面流の計測に限れば、洪水河川の画像解析などで大きな力を発揮する。Fujita et al.²⁹⁾ は、実河川スケールの解析に特化させた独自の手法である LS-PIV を開発している。またこのような水平面の2次元 PIV では式(4)の界面発散が評価できるため、実河川のガス交換特性の解明に大きく貢献することが期待される。

3.2 LIF によるガス交換計測と界面抽出

近年、超小型プローブの開発によってガス交換現象をより正確に捉えられるようになってきた。また画像計測である LIF(laser-induced fluorescence)法は溶存気体の輸送特性を時間空間的に知ることができ、これまでに複数のグループによって技術面での改良と現象解明が進められている^{30), 31)}。LIF は PIV との相性もよく、流速と溶存気体の同時計測が可能であ

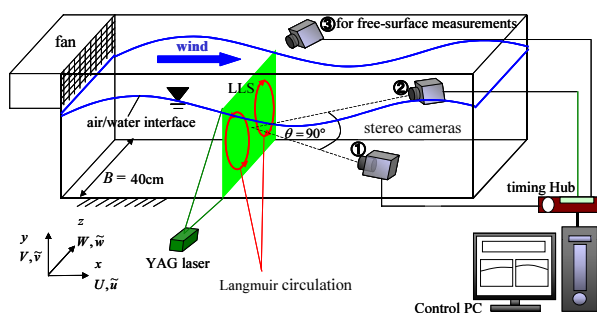


図4 ステレオPIVと水面形状追跡を同期させる計測システム

るという利点もある。例えば2つのカメラを用意して、片方のカメラにはレンズフィルタを装着し、PIVのトレーサーを除去して発光ウラニンのみの画像を得るような工夫をすれば、PIVとLIFの同時計測が可能である。さらに輝度によって水層と空気層がクリアに判別できるので水と空気の界面形状の抽出にも利用することができる。宮本ら³²⁾は界面形状の判定アルゴリズムを提案した。このような界面追跡法とPIVを組み合わせれば界面極近傍に存在する乱流組織渦の詳細な構造を明らかにすることができる。Sanjou et al.³³⁾は、図4に示すように、風洞水槽の水層を対象に3台の高速度カメラを同期させてステレオPIV計測と界面形状の追跡を同時に行った。このようにPIVとLIFを同期させることで流速ベクトルと熱、濃度、界面形状などのスカラー量との瞬時の関係を知ることができる。これは、水・空気境界が時空間的に変化する界面水理学の物質輸送現象を解明する際に威力を発揮する。溶存気体濃度の計測においてはLIFに基づく計測法が今後さらに普及することが予想されるが、図1で説明したように界面ガス交換現象は極めて小さなスケールの境界層を扱うものであるため、LIFの適用限界に関する正しい指標や計測精度の評価を整理しておく必要がある。また現状では、主として溶存気体濃度分布の定性的評価に使用されており、高精度な定量計測を実現するためのキャリブレーション法の確立が急務である。

4 ガス交換研究の対象となる乱流システム

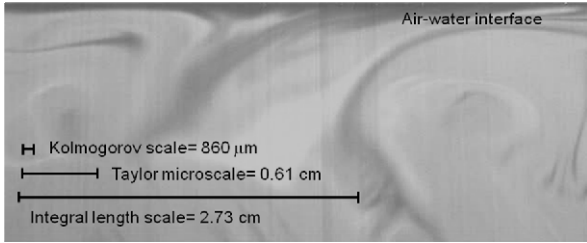
4.1 振動格子乱流場

振動格子乱流は、静止流体中における格子振動によって形成される乱流場である。この乱流は、近似的に平均流がなく、一様等方に近い理想的な乱れである³⁴⁾。乱流速度や長さスケールは、格子の振動幅や振動数を変化させることによって調節できる。このような単純乱流場において界面近傍の乱れ特性やガス交換の素過程を調べることは、乱流によるガス

交換機構の解明やガス交換速度のモデル化を行う上で重要である。

Chu and Jirka³⁵⁾は、微小酸素電極と熱線流速計を用いて振動格子乱流場における気液界面近傍の溶存 O_2 の濃度境界層と乱れ特性について検討した。彼らは、ガス交換速度と乱流レイノルズ数の間に $-1/2$ 乗則の関係が成り立つとして、振動格子乱流場のガス交換がLE modelで記述できるとした。また、流速変動と濃度変動のコスペクトルから、フラックスに対しては低周波帯の乱れの寄与が大きく、比較的大きな乱れがガス交換を支配していると報告した。中村・村井³⁶⁾は、振動格子乱流場において渦セルモデルによる解析と微小酸素電極を用いた O_2 のガス交換実験を行った。両者の比較を通して、彼らも交換速度がLE modelを用いて記述できるとした。一方、Asher & Pankow³⁷⁾およびDickey et al.³⁸⁾は、振動格子乱流場のガス交換はSE modelを用いて記述できると報告している。このように、同じ乱流システムにおいても異なるレイノルズ数依存性を示す実験結果が存在する。

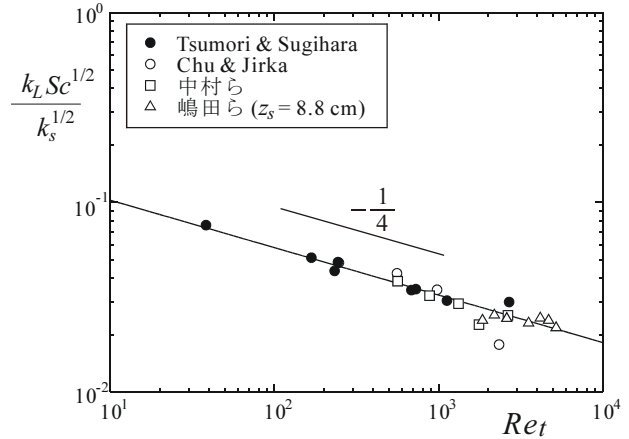
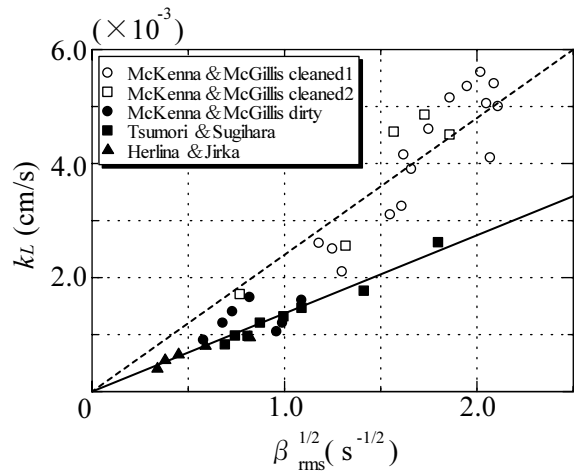
McKenna & McGillis³⁹⁾は、界面活性物質がガス交換速度に及ぼす影響を明らかにするために、振動格子乱流場における気液界面の流速場をPIVで計測し、 O_2 をトレーサーとした交換速度の評価を行った。彼らは、丹念に界面活性物質を取り除いた“きれいな”界面のデータと、界面活性剤(oleyl alcohol)を添加したものを含めた“汚れた”界面のデータを定量的に比較した。その結果、同じ乱流レイノルズ数でも界面活性物質の有無によって交換速度が大きく変化し、界面活性物質はガス交換速度を著しく低下させることを示した。島田ら⁴⁰⁾は、振動格子乱流場において、作業流体に塩水と真水を用いた場合に CO_2 の交換速度がどのように変化するかを調べている。その結果、ガス交換速度は界面近傍の大スケール渦の発生周波数の平方根に比例し、塩水での交換速度の値は真水に比べて50%程度まで低下することが見出されている。このような交換速度の低下は、界面に存在する極微量の界面活性物質が、分子拡散係数に及ぼす電解質の効果を見かけ大きくするためであるとされた。また、長田ら⁴¹⁾は、気液界面上に極微量の重油が存在する場合に、 CO_2 交換速度がどのように変化するかを振動格子乱流水槽を用いて調べている。界面上の重油による汚れが存在する場合、交換速度は減少し、その減少率は重油膜濃度の増加に伴い大きくなるとされた。ただし、重油膜濃度がある程度以上になるとその効果は飽和する。このよう

図5 LIFによるCO₂吸収過程の可視化²²⁾

に、“汚れた”界面においては交換速度が低下することは実験的見地から正しいように思われる。なお、その効果は界面崩壊がある場合には相対的に小さくなることも明らかになっている。

Tsumori & Sugihara²²⁾は、振動格子乱流場における気液界面の乱流構造とガス交換速度 k_L の関係について検討した。図5にLIFによって可視化された鉛直断面におけるCO₂のガス吸収過程の一例(実験条件はRun1)を示す。図中には代表的な乱流スケールが示されている。画像の黒い部分がCO₂の高濃度領域に対応している。この画像からは、少なくともKolmogorov scaleの乱流渦がCO₂輸送に寄与しているようには見えない。彼らは、実験結果に基づいて、 k_L が β_{rms} の1/2乗に比例することを確認した。図6は、無次元交換速度と乱流レイノルズ数の関係を示している。また、比較のために他の研究者のデータ(Chu & Jirka³⁵⁾、中村ら⁴²⁾、島田ら⁴⁰⁾)もプロットされている。ここで、 $Re_t (\equiv k_s^2 / \varepsilon_s \nu)$ は乱流レイノルズ数であり、 k_s および ε_s はそれぞれ界面での乱れエネルギーとエネルギー散逸率を示す。これらの乱れ特性量の値として、Tsumori & Sugiharaのデータに対してはPIVによる計測値を用いている。その他のデータについては界面での計測値がないため、Matsunaga et al.³⁴⁾によるバルク領域の乱れ特性量に関する半経験式を用いて評価している。この図より、無次元交換速度は乱流レイノルズ数の-1/4乗に比例し、そのレイノルズ依存性はSE modelやSD modelのそれと同じであることがわかる。LIFによる結果を考慮すると、SD modelの機構がガス交換を支配すると考えることが自然であるように思われる。

Herlina & Jirka^{43), 44)}は、振動格子乱流場を対象としたPIVとLIFによる一連の実験研究を行っている。彼らは、O₂をトレーサーとするLIFの可視化結果に基づいて、小さな渦(Kolmogorov scaleと積分スケールの中間的なスケール)と大きな渦の両方が界面でのガス輸送に寄与しているように見えると報告している⁴³⁾。彼らは、ガス交換速度と界面発散の関

図6 ガス交換速度と乱流レイノルズ数の関係²²⁾図7 ガス交換速度と界面発散の関係⁴⁴⁾

係についても検討している⁴⁴⁾。図7に、彼らのデータに対するガス交換速度と $\beta_{rms}^{1/2}$ の関係を示す。ここでは、McKenna & McGillis³⁹⁾のデータとTsumori & Sugihara²²⁾のデータも比較のために示されている。この図より、交換速度は $\beta_{rms}^{1/2}$ に比例しており、振動格子乱流場にSD modelが適用できることがわかる。彼らは、界面活性物質のないケース(cleaned)の方がSD modelの比例係数が大きくなるとしており、このことは先に述べた界面活性物質の効果に関する一連の研究結果を支持する。また、彼らは無次元交換速度の乱流レイノルズ数依存性についても検討している。その結果、複数の研究者のデータ(相対的に汚れた界面のもの)を俯瞰的に見て、高レイノルズ数領域ではSE modelの-1/4乗則の関係が、低レイノルズ数領域ではLE modelの-1/2乗則の関係が現れていると報告している。しかし、レイノルズ数依存性の変化は実験精度に埋没する可能性が高いため、この傾向を明瞭に示すには、より広範囲のレイノルズ数

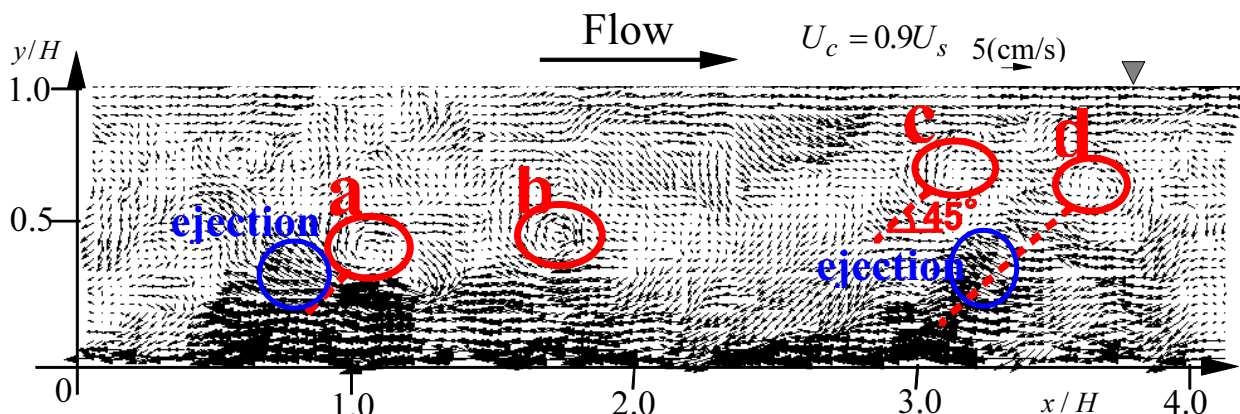


図8 開水路の組織乱流構造の一例 (Sanjou & Nezu⁵²⁾から作成)

を対象とした精密な実験が必要であると思われる。

振動格子乱流を用いた実験については、ここで述べたもの以外にも多数の研究がある。さらに、現在も最先端の研究に活用されており、今後もこのシステムから多くの有用な知見が得られるであろう。

4.2 開水路乱流場

河川流のように、乱れの生成が主に底面シアーによる流れ場におけるガス交換も非常に興味深いトピックである。界面シアーはほぼゼロであるから界面におけるガス交換速度は、平均流速、水深、路床勾配および底面摩擦速度などに関連づける試みが多く、の既往研究において行われてきた。例えば、Gulliver & Halverson⁴⁵⁾は、ガス交換速度、ペクレ数およびレイノルズ数の関係を実験的に明らかにした。また、Moog & Jirka⁵⁾は、水深、流速、路床勾配を系統的に変化させて、これらがガス交換に与える影響を考察し、SE model および LE model との比較を行った。ただし、これらの研究では水深平均的なマクロな視点からガス交換現象を考察しているため、底面シアーが卓越する開水路流れにおける乱流特性や交換速度のパラメタリゼーションにおいて未解明な部分が多く残されている。またアスペクト比の小さな狭幅水路の場合、2次流の影響で最大流速点が水面下に降下するとともに水面付近の乱流構造も変化する。

開水路のガス交換を理解するには、まず開水路の乱流特性、とくにバースティングなどの組織構造を正確に把握する必要がある。乱流境界層には組織的な渦構造の存在が半世紀以上も前から報告されており、様々な概念モデルや物理モデルが提唱されている。ヘアピン渦とバーストの関係性や組織渦の概念モデルについては Robinson⁴⁶⁾によって詳細にまとめられている。また、Nino & Garcia⁴⁷⁾は、底面近傍の組織的な乱流構造が土砂の輸送や巻上げに重要な

役割をもつことを指摘しており、土砂水理においても無視できない存在となっている。このような組織構造は外層にまで及び、これらが乱れエネルギーの輸送に大きな影響を与えることがわかっている。例えば、Hunt & Graham²⁰⁾は、気液界面近傍にはエネルギー再配分の観点からこの領域特有の乱流構造が存在することを示した。Komori et al.⁴⁸⁾は、底面バーストと気液界面の表面更新渦の関係性を指摘している。この成果は、界面ガス交換が気液界面だけでなく、空間的に離れた壁面で生成する組織構造にも密接に関係する事を改めて認識させるものである。

瀬津・中山⁴⁹⁾は、2台のLDAによる同時計測を行い、開水路乱流における組織渦の時空間特性を評価するとともに、路床で発生するバースト現象が気液界面に及ぼす影響について検討した。このような開水路気液界面の組織乱流構造の解明と底面バーストとの関係は、ガス交換研究における重要なトピックの一つであり、今後のさらなる研究進展が望まれる。さて、流量の増加や風の影響によって実河川の気液界面は時々刻々変化する。また、山岳部のような急勾配河川では、高フルード数状態となり水面波が発生しやすい。したがって、このような移動界面条件におけるガス交換特性の解明は自然水域の物質輸送を考える上で重要な研究課題といえる。

中山・瀬津⁵⁰⁾は、急勾配開水路のPIV計測に基づいて、高フルード数条件では、水面波によって気液界面近傍の乱れ構造やバースティング特性が変化するという興味深い報告を行った。Rashidi & Banerjee⁵¹⁾は、風応力によって気液界面に強制的に流速シアーが与えられた開水路流れを対象として、気液界面近傍でも壁面境界層と同様のストリーク構造が存在することを明らかにした。

図8は基準移流速度 $U_c = 0.9U_s$ からみた相対座標における瞬間ベクトル $(\hat{u} - U_c, \hat{v})$ の一例である⁵²⁾。

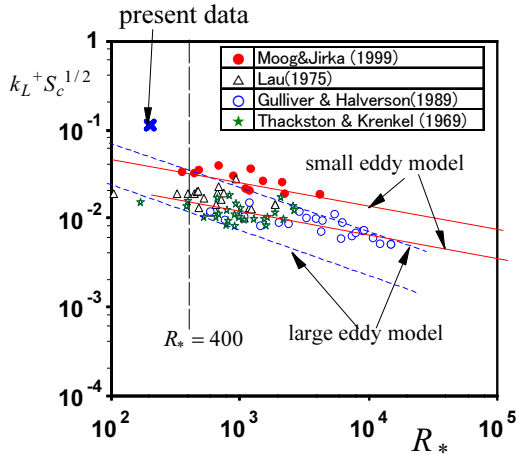


図9 開水路のガス交換速度の比較
(山上・禰津⁵³⁾から作成)

ここでは、開水路のセンターラインに LLS を照射して PIV 計測した結果を示している。 $y/H=0$ および 1.0 はそれぞれ路床および気液界面を意味する。 x は流下方向を表し、 U_s は表面流速である。 $x/H=0.5 \sim 1.0$ および $x/H=3.0 \sim 3.5$ に底面側で強いエジェクションがみられ、その下流側の上方 45 度の方向に渦構造 **a** および **d** が観察される。これらはそれぞれヘアピン渦のレッグ部とヘッド部に対応する。渦 **b** および **c** はヘッドのみであるが、これは LLS がこれらの渦の中央ラインから横断方向に少しずれた鉛直面を照射したためと思われる。4つの渦 **a**, **b**, **c** および **d** は時間とともに下流に輸送される。特に **a** と **b** および **c** と **d** は近接しながら輸送されるので、ヘアピンが群体化したパケットを構成していることがわかる。

山上・禰津⁵³⁾はアスペクト比1の狭幅開水路流れにおける乱流構造とガス交換の関係を実験的に調べた。小型水路において PIV と LIF の同時計測を行い、 CO_2 のガスフラックスを定量的に評価した。ガスフラックス F は次のように表せる。

$$F \cong -D \frac{\partial C}{\partial y} + \overline{c'v'} \quad (23)$$

ここで C は時間平均濃度、 v' および c' はそれぞれ瞬間鉛直流速および瞬間濃度の平均値からの偏差である。 y は鉛直座標である。右辺第1項は分子拡散を、第2項は乱流拡散を表している。この実験で得られた無次元交換速度について、開水路における過去の実験データとの比較を図9に示した。無次元化に用いた速度スケールは摩擦速度 u_* 、長さスケールは水深 H である。Moog & Jirka⁵⁾ は $R_* \equiv u_* H / \nu > 400$ で

SE model が適用できるとしている。一方で LE model は低レイノルズ数の流れに適合している。本実験条件は $R_* = 204$ なので、LE model と比較する。

$R_* < 400$ の領域に存在する既往データを用いて2つの線をプロットした。本データはこれらの線の間から上方にはずれることがわかる。既往データはアスペクト比が大きい条件で実験されており、2次流の影響が小さい。一方、本研究では2次流によって velocity-dip が生じるために界面付近の乱れが増加する。そのために既往結果よりも大きい交換速度が得られたと思われる。ここではアスペクト比による影響を紹介したが、水面上の風や波においても開水路流れのガス交換特性が変化することが指摘されており、今後の研究の進展が待たれる。

4.3 風波乱流場

実海洋ではその表面に風波が存在するため、従来から風波気液界面での乱流やガス交換について様々な実験研究が行われている。Toba & Kawamura⁵⁴⁾は風波が発生すると気液界面から水底に向かって下向きバースト (Downward bursting) と呼ばれる大規模な下降流が間欠的に発生し、その到達深度が有義波高の約5倍の深さにまで及ぶことを報告した。また Komori et al.⁵⁵⁾は、風波乱流場において、表面更新渦や大規模下降流が発生することを指摘している。このように、風波直下には特有の乱流特性や組織構造が存在することが明らかにされている。

風波気液界面の状態は風速の影響を強く受けるため、ガス交換速度と気流の平均風速や摩擦速度との関係がこれまで主に調べられてきた。しかしながら、風波乱流境界層の発達状態は、風速だけで決まるではなく、吹送距離にも依存するはずである。従って、風波気液界面のガス交換速度を適切にモデル化するためには、風波の発達状態を反映した風波特性量を用いる必要があると考えられる。Toba & Koga⁵⁶⁾が提唱した $R_B \equiv u_*^2 / \nu_a \omega_p$ (u_* : 気流の摩擦速度、 ν_a : 空気の動粘性係数、 ω_p : 風波のピーク角周波数) で定義される風波レイノルズ数が、風波気液界面の流体力学的特性を規定するという仮説がある⁵⁷⁾。Zhao et al.⁵⁸⁾は、 R_B のみを用いて Jähne et al.⁵⁹⁾の風洞水槽実験データのパラメタリゼーションを試みている。ただし、彼らが使用した実験データは風洞水槽全体の平均的な交換速度を測定したものである。このような場合、彼ら自身も指摘しているように、交換速度をどの吹送距離における風波特性量と関係づけるべきかという本質的な問題が生じる。

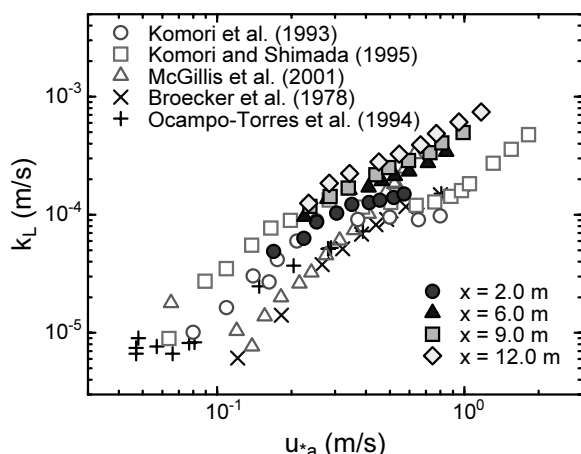


図 10 風波乱流場における CO_2 交換速度の吹送距離依存性 (津守ら⁶³⁾ から作成)

Ocampo-Torres et al.⁶⁰⁾は、循環式の風洞水槽を用いることによって、 CO_2 の交換速度を測定した。彼らは、空気中の CO_2 濃度の時間変化と水中の溶存 CO_2 濃度の時間変化からガス交換速度を評価しており、得られた交換速度は水槽全体の平均的な値である。従って、彼らのデータから局所的な交換速度と風波特性量の関係を見出すことは困難である。また、Ocampo-Torres & Donelan⁶¹⁾は、同じ風洞水槽を用いて吹送距離を 2 倍にした実験も行っており、吹送距離が大きくなればガス交換速度が増大するという結果を得ている。

ガス交換速度と風波特性量の関係を厳密に議論するためには、吹送距離ごとの局所的な交換速度を測定する必要がある。局所的な交換速度を測定した研究として、Komori et al.⁵⁵⁾および Komori & Shimada⁶²⁾実験がある。彼らは、風洞水槽の気流側にコントロールボリュームを設定し、ボリューム内の CO_2 収支を測定することで特定の吹送距離区間における CO_2 フラックスを評価している。局所的な交換速度は気流の摩擦速度と共に大きくなるが、その増加率は中風速領域で一旦飽和傾向を示し、さらに高風速になると再度増加することが報告されている。また、組織渦の発生周波数として定義された表面更新率に基づいて、風波気液界面のガス交換に表面更新理論が適用可能であると述べている。

津守ら⁶³⁾は、吹送距離(2.0, 6.0, 9.0, 12.0m)ごとに気流側 CO_2 濃度と風速の鉛直分布を測定し、プロファイル法を用いて局所的な CO_2 フラックスを算定した。また、疎水性多孔質膜チューブによる気液平衡器を用いて水側の溶存 CO_2 濃度を測定した。これらの測定値から、風波気液界面におけるガス交換速度を吹送距離ごとに評価した。図 10 にガス交換速度と摩擦速度の関係における吹送距離依存性を示す。こ

こで、 x は吹送距離を示しており、比較のために Ocampo-Torres et al., Broecker et al.⁶⁴⁾の実験値および McGillis et al.⁶⁵⁾の実海洋での観測値がプロットされている。この図より、彼らの実験値では、同じ摩擦速度に対しては吹送距離が大きくなるほどガス交換速度が増大することがわかる。彼らはさらに、風波特性量に基づく交換速度のパラメタリゼーションを行った。摩擦速度 u_{*a} で無次元化された交換速度が、風波クーリガン数 $Ke(\equiv u_{*a}^3 / g \nu_a)$ と風波の発達状態を表す波齢 $g/\omega_p u_{*a}$ を用いて普遍表示できることが示された。ただし、 g は重力加速度を示す。彼らは吹送距離則を満たすデータのみを解析対象としており、得られた実験式は Toba の 3/2 乗則⁶⁶⁾に基づく変換により、 R_B と波齢の 2 つの無次元数を用いた表現に書き換えることもできる。重要なことは、うねりの存在しない純粋な風波気液界面のガス交換速度は独立な 2 つの無次元風波パラメータを用いて普遍表示されると考えている点である。

丹野ら⁶⁷⁾は、4.0m, 10.0m, 15.0m の吹送距離においてプロファイル法に基づく CO_2 フラックスの測定を行い、交換速度の吹送距離依存性について検討を行っている。彼らの結果では、風洞流入部中心における時間平均風速(基準風速)で整理した場合、基準風速が 7m/s 以上の高風速領域においてのみ吹送距離依存性が見られた。ただし、そのような吹送距離依存性は、摩擦速度に対してプロットした場合には明瞭ではなかった。Komori & Shimada の小型の風洞水槽のデータとの比較も行われており、摩擦速度が大きな領域において小型風洞水槽との差異が観察されている。彼らは、各吹送距離における気流境界層外の一様風速値(境界層外縁に相当する位置での最大風速を与えた)に対してガス交換速度をプロットした場合、小型水槽のデータを含めてガス交換速度の吹送距離依存性が見られなくなるという興味深い結果を示した。これらのことから、彼らはガス交換速度を表示するためのパラメータとして気流側境界層外の一様風速が推奨されると述べている。

風波気液界面におけるガス交換速度の波浪依存性(吹送距離依存性)については確定的な結論を得るには至っていないのが現状である。風波乱流場の界面輸送現象は、乱れ、波浪、碎波、気泡が複雑に絡み合った現象であり、その理解は未だ断片的なものに過ぎない。先進的な計測技術や数値計算手法が、現象の理解を促進する大きな力になることは間違いないであろう。

5 まとめ

本論文では、界面水理学において見られる乱流とガス交換に焦点を当てた解説を行った。界面輸送現象については未解明な部分が多いが、乱流が与える影響は極めて大きい。2 節ではガス交換の基礎理論と代表的なモデルの進展についてレビューを行った。この中で乱流の組織構造が大きく関係する表面更新と界面発散の概念について触れた。これらを実験的に評価するには高精度な計測システムが必要であり、3 節では組織乱流の解明に有力な PIV と LIF について述べた。4 節では具体的な流れ場として振動格子乱流場、開水路乱流場および風波乱流場を取り上げ、興味深い実験結果やガス交換の特性について説明した。界面水理学は発展途上のホットな研究分野であり、理論モデル、計測手法、数値シミュレーション手法の進歩と共に今後益々発展することが期待される。そのためには研究領域の垣根を越えた学際的な協力が必要であると思われる。

謝辞：著者の一人(S.Y)が界面水理学の分野で研究するきっかけを与えて下さった故角野昇八先生（大阪市立大学名誉教授）に深く感謝致します。角野先生より多くのご助力・ご助言を賜りました。ここに記して心より感謝の意を表します。

引用文献

- 1) Jähne, B. & Monahan, E. C. (eds.): Air-Water Gas Transfer, AEON Verlag & Studio, Hanau (1995), 900.
- 2) Jähne, B. & Haußecker, H.: Air-water gas exchange, Annual Rev. Fluid Mech., 30 (1998) 443-468.
- 3) Garbe, C. S., Handler, R. A. & Jähne, B. (eds.): Transport at the Air-Sea Interface, Springer-Verlag Berlin, Heidelberg (2007), 320.
- 4) 角野昇八, 細井由彦, 竹原幸生, 朝位孝二, 杉原裕司, 中村由行, 吉岡洋, 平口博丸, 江藤剛治, 中山忠暢: 水表面での気体輸送に関する研究の最新の動向, 土木学会論文集, No.656/II-52 (2000), 269-287.
- 5) Moog, D. B. & Jirka, G. H.: Air-water gas transfer in uniform channel flow, J. Hydraulic Eng., 125(1), (1999) 3-10.
- 6) Kunugi, T., Satake, S. & Ose, Y.: Direct numerical simulation of carbon-dioxide gas absorption caused by turbulent free surface flow, Int. J. Heat Fluid Flow, 22 (2001) 245-251.
- 7) Hasegawa, Y. & Kasagi, N.: Hybrid DNS/LES of high Schmidt number mass transfer across turbulent air-water interface, Int. J. Heat Mass Transfer, 52 (2009) 1012-1022.
- 8) Komori, S., Kurose, R., Iwano, K., Ukai, T. & Suzuki, N.: Direct numerical simulation of wind-driven turbulence and scalar transfer at sheared gas-liquid interfaces, J. Turbulence, 11 (2010) 1-20.
- 9) Lewis, W. K. & Whitman, W. G.: Principles of gas absorption, Ind. Eng. Chem., 16 (1924) 1215-1220.
- 10) Higbie, R.: The rate of absorption of a pure gas into still liquid during short period of exposure, AIChE Trans., 31 (1935) 365-390.
- 11) Danckwerts, P. V.: Significance of liquid-film coefficients in gas absorption, Ind. Eng. Chem., 43 (1951) 1460-1467.
- 12) Fortescue, G. E. & Pearson, J. R. A.: On gas absorption into a turbulent liquid, Chem. Eng. Sci., 22 (1967) 1163-1176.
- 13) Lamont, J. C. & Scott, D. S.: An eddy cell model of mass transfer into the surface of a turbulent liquid, AIChE J., 16 (1970) 513-519.
- 14) Theofanous, T. G., Houze, R. N. & Brumfield, L. K.: Turbulent mass transfer at free, gas-liquid interfaces, with applications to open-channel, bubble and jet flows, Int. J. Heat Mass Transfer, 19 (1976) 613-624.
- 15) Banerjee, S., Rhodes, E., Scott, D. S.: Mass transfer to falling wavy liquid films in turbulent flow, Ind. Eng. Chem. Fundam., 7 (1968) 22-27.
- 16) Chan, W. C. & Scriven, L. E.: Absorption into irrotational stagnation flow-A case study in convective diffusion theory, Ing. Eng. Chem. Fund., 9(1) (1970) 114-120.
- 17) McCready, M. J., Vassiliadou, E. & Hanratty, T. J.: Computer simulation of turbulent mass transfer at a mobile interface, AIChE J. 32 (1986) 1108-1115.
- 18) Banerjee, S.: Turbulence structure and transport mechanisms at interfaces, 9th Int. Heat Transfer Conf., Keynote Lectures, I (1990) 395-418.
- 19) Banerjee, S., Lakehal, D. & Fulgosi, M.: Surface divergence models for scalar exchange between turbulent streams, Int. J. Multiphase Flow, 30 (2004) 963-977.
- 20) Hunt, J. C. R. & Graham, J. M. R.: Free stream turbulence near plane boundaries, J. Fluid Mech., 84 (1978) 209-235.

- 21) 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 II, (1971) 491-492.
- 22) Tsumori, H. & Sugihara, Y.: Lengthscales of motions that control air-water gas transfer in grid-stirred turbulence, *J. Mar. Syst.*, 66 (2007) 6-18.
- 23) Wells, J., C., Sugimoto, H., Nguyen, C., V. & Kishida, K.: Camera calibration for stereo P.I.V. with a front-rear camera arrangement –application to open-channel flow, *Ann. J. of Hydraulic Eng., JSCE*, 47 (2003) 451-456.
- 24) Usijima, S. & Tanaka, N.: Particle tracking velocimetry using laser-beam scanning and its application to transient flows driven by rotating disk, *Trans. of ASME, J. Fluids Eng.*, 116 (1994) 265-272.
- 25) Sanjou, M. and Nezu, I. : Turbulence structure and coherent motion in meandering compound open-channel flows, *J. Hydraulic Res.*, 47(5), (2009) 598-610.
- 26) Hori, T., & Sakakibara, J.: High Speed Scanning Stereoscopic PIV for 3D Vorticity Measurement in Liquids, *Measurement Sci. and Technol.*, 15 (6) (2004) 1067-1078.
- 27) Meng, H. & Hussain, F.: Holographic particle velocimetry : A 3D measurement technique for vortex interactions, coherent structures and turbulence, *Fluid Dyn. Res.*, 8, (1991) 33-52.
- 28) Elsinga, G.E., Scarano, F., Wieneke, B. & van Oudheusden, B. W.: Tomographic particle image velocimetry, *Exps. Fluids*, 41 (2006) 933-947.
- 29) Fujita, I., Muste, M. & Kruger, A.: Large-scale particle image velocimetry for flow analysis in hydraulic engineering applications, *J. Hydraulic Res.*, 36 (1998) 397-414.
- 30) 竹原幸生, 加藤明秀, 江藤剛治, 風波による炭酸ガスの取り込み過程の可視化, 海岸工学論文集, 46 (1999) 101-105.
- 31) 森信人, 今村正裕: 2 色 LIF-PIV を用いた水表面におけるガス交換過程の計測, 海岸工学論文集, 49 (2002) 96-100.
- 32) 宮本仁志, 神田徹, 大江和正: 画像解析による水面変動・流速の同時計測法と開水路凹部流れへの適用, 水工学論文集, 45 (2001) 511-516.
- 33) Sanjou, M., Nezu, I. & Komatsu, T.: Experimental study on Langmuir circulation using a stereoscopic PIV, *Proc. of 7th Int. Symp. Stratified flows*, Roma, (2011, will appear).
- 34) Matsunaga, N., Sugihara, Y., Komatsu, T. & Masuda, A.: Quantitative properties of oscillating-grid turbulence in a homogeneous fluid, *Fluid Dyn. Res.*, 25 (1999) 147-165.
- 35) Chu, C. R. & Jirka, G. H.: Turbulent gas flux measurements below the air-water interface of a grid-stirred tank, *Int. J. Heat Mass Transfer*, 35 (1992) 1957-1968.
- 36) 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, 46 (1999) 111-115.
- 37) Asher, W. E. & Pankow, J. F.: The interaction of mechanically generated turbulence and interfacial films with a liquid phase controlled gas/liquid transport process, *Tellus*, 38B (1986) 305-318.
- 38) Dickey T. D., Hartman, B., Hammond, D. & Hurst, E.: A laboratory technique for investigating the relationship between gas transfer and fluid turbulence, Brutsaert, W. & Jirka, G. H. (eds.), *Gas Transfer at Water Surfaces*, D. Ridel, (1984) 93-100.
- 39) McKenna, S. P. & McGillis, W. R.: The role of free-surface turbulence and surfactants in air-water gas transfer, *Int. J. Heat Mass Transfer*, 47 (2004) 539-553.
- 40) 島田隆司, 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), 64/621 (1998) 1470-1477.
- 41) 長田孝二, 白尾龍太郎, 小森悟: 気液界面を通しての炭酸ガス輸送に及ぼす界面重油汚染の影響, 日本機械学会論文集(B), 68/671 (2002) 1871-1877.
- 42) 中村由行, 村井大享, 小松利光, 油島栄蔵, 井上徹教, 柴田敏彦: 微小酸素電極を用いたガス交換機構に関する実験的研究, 海岸工学論文集, 44 (1997) 1236-1240.
- 43) Herlina & Jirka, G. H.: Application of LIF to investigate gas transfer near the air-water interface in a grid-stirred tank, *Exps. Fluids*, 37 (2004) 341-349.
- 44) Herlina & Jirka, G. H.: Experiments on gas transfer at the air-water interface induced by oscillating grid turbulence, *J. Fluid Mech.*, 594 (2008) 183-208.
- 45) Gulliver, J. S. & Halverson, M. J.: Air-water gas transfer in open channels, *Water Resources Res.*, 25(8) (1989) 1783-1793.
- 46) Robinson, S. K.: Coherent motions in the turbulent boundary layer. *Ann. Review Fluid Mech.*, 23

- (1991) 601-639.
- 47) Nino, Y. & Garcia, M. H.: Experiments on particle-turbulence interactions in the near-wall region of an open channel flow: implications for sediment transport, *J. Fluid Mech.*, 326 (1996) 285-319.
- 48) Komori, S., Murakami, Y. and Ueda, H.: The relationship between surface-renewal and bursting motions in an open-channel flow, *J. Fluid Mech.*, 203 (1989) 103-123.
- 49) 禰津家久・中山忠暢：自由水面近傍における組織渦の時空間相関構造に関する研究, 土木学会論文集, 586/II-42 (1998) 51-60.
- 50) 中山忠暢, 禰津家久：開水路流れにおけるバーストの水面近傍での挙動及び乱れ構造との関連性について, 土木学会論文集, 635/II-49 (1999) 31-40.
- 51) Rashidi, M. & Banerjee: Turbulence structure in free-surface channel flows, *Phys. Fluids*, 31(9) (1988) 2491-2503.
- 52) Sanjou, M. & Nezu, I.: Turbulent structure and coherent vortices in open-channel flows with wind-induced water waves, *Environmental Fluid Mech.*, 11(2) (2011) 113-131.
- 53) 山上路生, 禰津家久：狭幅開水路流れにおける水・空気界面のガス輸送特性, 水工学論文集, 55 (2011) 1129-1134.
- 54) Toba, Y. and Kawamura, H.: Wind-wave coupled downward-bursting boundary layer (DBBL) beneath the sea surface, *J. Oceanogr.*, 52 (1996) 409-419.
- 55) Komori, S., Nagaosa, R. & Murakami, Y.: Turbulence structure and mass transfer across a sheared air-water interface in wind-driven turbulence, *J. Fluid Mech.*, 249 (1993) 161-183.
- 56) Toba, Y. & Koga, M.: A parameter describing overall conditions of wave breaking, whitecapping, sea-spray production and wind stress, *Oceanic Whitecaps*, Monahan, E. C. & Mac Niocaill G. (eds.), D. Reidel, (1986) 37-47.
- 57) Toba Y., Komori, S., Suzuki, Y. & Zhao, D.: Similarity and dissimilarity in air-sea momentum and CO₂ transfers: the nondimensional transfer coefficients in light of the windsea Reynolds number, *Ocean-Atmosphere Interactions Vol. 2*, Perrie W. (ed.), WIT press, (2006) 53-82.
- 58) Zhao, D., Toba, Y., Suzuki, Y. & Komori, S.: Effect of wind waves on air-sea gas exchange: Proposal of an overall CO₂ transfer velocity formula as a function of breaking-wave parameter, *Tellus*, 55B (2003) 478-487.
- 59) Jähne, B., Wais, T., Memery, L. Caulliez, G., Merlivat, L., Munnich, K. O. & Coantic, M.: He and Rn exchange experiments in the large wind-wave facility of IMST, *J. Geophys. Res.*, 90 (1985) 11989-11997.
- 60) Ocampo-Torres, F. J., Donelan, M. A., Merzi, N. & Jia, F.: Laboratory measurements of mass transfer of carbon dioxide and water vapor for smooth and rough flow conditions, *Tellus*, 46B (1994) 16-32.
- 61) Ocampo-Torres, F. J. & Donelan, M. A.: On the influence of fetch and the wave field on the CO₂ transfer process: Laboratory measurements, *Air-Water Gas Transfer*, Jahne, B. & Monahan, E. C. (eds.), AEON Verlag & Studio, Hanau (1995) 543-552.
- 62) Komori, S. & Shimada, T.: Gas transfer across a wind-driven air-water interface and the effects of sea water on CO₂ transfer, *Air-Water Gas Transfer*, Jahne, B. & Monahan, E. C. (eds.), AEON Verlag & Studio, Hanau (1995) 553-569.
- 63) 津守博通, 杉原裕司, 増田章：風波気液界面における二酸化炭素交換速度の評価に関する実験的研究, 土木学会論文集, 782/II-70 (2005) 101-116.
- 64) Broecker, H. C., Petermann, J. & Siems, W.: The influence of wind on CO₂-exchange in a wind-wave tunnel, including the effect of monolayers, *J. Mar. Res.*, 36 (1978) 595-610.
- 65) MacGillis, W. R., Edson, J. B., Hare, J. E. & Fairall, C. W.: Direct covariance air-water CO₂ fluxes, *J. Geophys. Res.*, 106 (2001) 16729-16745.
- 66) Toba, Y.: Local balance in the air-sea boundary processes. I: On the growth process of wind waves, *J. Oceanogr. Soc. Jpn.*, 28 (1972) 109-120.
- 67) 丹野賢二, 大坪周平, 小森悟：風波気液界面を通しての物質移動に及ぼす吹送距離の影響, 日本機械学会論文集(B), 73/731 (2007) 1510-1517.