

風波乱流による気液界面での炭酸ガス吸収シミュレーション

Direct Numerical Simulation of Carbon-dioxide Gas Absorption Caused
by Turbulent Free Surface Flows

功刀 資彰*

*京都大学大学院工学研究科

Tomoaki Kunugi*

*Graduate School of Engineering, Kyoto University

E-mail: kunugi@nucleng.kyoto-u.ac.jp

1. はじめに

地球規模での二酸化炭素（あるいは、単に炭素）の循環については、人間活動が顕在化する以前には若干の変動はあったものの、約30億年前には大気、海洋ともにほぼ現在の組成になっており、二酸化炭素の空気中の濃度もほぼ一定を保っていたと言われている。ところが、人間活動の顕在化、特に、産業革命以後の石炭や石油等の化石燃料の使用により、1980年代末では炭素換算で年間約55～60億トンが排出され、大気中の二酸化炭素が増加し始めたが、このうちの約半量の二酸化炭素（約30～35億トン）しか大気中には蓄積されておらず、残りの炭素がどこへ行ったのかが問題となった。これは「ミッシング・シンク(Missing Sink)」問題と呼ばれ、その行方については、二酸化炭素の増加による光合成の増加で植物圏に蓄積されたとする説や北方（ロシア）における植林実績などとするものもあるが、一方で、焼き畑農業や森林開発に伴う熱帯雨林の破壊による非定常な二酸化炭素の放出（約10～40億トン）も示唆されているため、現在では、残りの行き先は海洋しかないというのが一般的な見方である[1]。地球温暖化の原因となる温室効果ガスには様々な種類のものがあり、放出ガス量とそれによる濃度上昇という直接的な関係以外に、大気中での光化学反応によるガス分解や減衰、および海洋などへのガス吸収を考慮する必要がある。特に、二酸化炭素に関しては海洋への吸収が重要であり、大気中の二酸化炭素分圧と海洋表層水中の二酸化炭素分圧の差が駆動力になって大気と海洋のガス移動が発生する。この際、大気と海洋間の対流による物質伝達係数もガス移動量の大きさを決める重要な因子であり、現在のガス移動モデルでは海洋面上方10m位置での風速と経験的に決めた物質移動係数を用いて海洋表面上でのガス移動量を評価している。しかし、このモデルでは大気乱流による海洋表面での波の発生や砕波および気泡の巻き込みなどは考慮しておらず、その妥当性は疑問視されている。

したがって、大気・海洋間の乱流風波による相互作用、特に、海洋表面からの二酸化炭素ガス吸収や熱流束等のスカラー流束の海洋中への乱流輸送を検討することは、海洋表面におけるガス移動速度の評価に極めて重要である。また、これは単に地球環境問題にとどまらず、海浜・河川工学や気液自由界面を有する産業機器における乱流熱物質移動問題の本質に通ず

る重要な知見として利用可能である。

2. 地球流体における流体力学的相似則と乱流スカラー輸送

一般に、連続体レベルの流体運動を記述する基礎方程式は、Navier-Stokes 式であり、質量保存則である連続の式とともに用いられる。一方、熱物質移動現象を記述する基礎方程式は、エネルギー式および物質移動式である。これらの基礎方程式は、対象とする系の代表的なスケール（基本次元：時間、長さ、質量）で各物理量を無次元化すること（ π 定理による次元解析）によって、単位の取り方に依存せずに異なった熱流動場で生ずる現象を同一の視点で議論することが可能となることは良く知られている。流動場における代表的な無次元数はレイノルズ数（ $Re=UL/v$ ； U は代表速度、 L は代表長さ、 v は動粘度）であり、Navier-Stokes 式の慣性項と粘性項の比を表しており、例えば $Re \ll 1$ では慣性項を無視でき、 $Re \gg 1$ では粘性項の寄与は小さいと見積もることができる。したがって、レイノルズ数が同じであれば現実の大きなスケールの流れ場を実験室規模の模型実験で代替でき、これは流体力学的相似則と呼ばれている。回転系の上に成層している地球流体について考える場合、コリオリ力やプラント・バイサラ振動数 N （流体の柱が成層流体中で上下に微小変位したときの重力の復元力によって生ずる振動の振動数）に起因するロスビー数（コリオリ力に対する慣性力の比、 $\varepsilon=U/Lf_0$ ； f_0 は代表緯度 ϕ_0 でのコリオリパラメータ f の値）やエクマン数（コリオリ力に対する粘性力の比、 $E=v_t/L^2 f_0$ ； v_t は乱流渦動粘性）等の無次元数が主要なパラメータと考えられる。地球規模での循環モデルも数多く提唱・開発されているが、最小の格子サイズが 50km 程度あり、乱流風波による大気と海洋の相互作用は格子以下の現象として粗視化された 0 次モデル化として取り扱われているのが現状である。しかし、地球温暖化原因物質の収支を考える上で、二酸化炭素ガスの海洋吸収を定量化することは将来の温暖化予測の鍵であるため、地球スケールで見ると極めて小さなスケールではあるが、乱流風波による大気と海洋の相互作用の直接数値シミュレーション手法を開発することは極めて重要である。現在、地球シミュレータが開発されつつあるが、この最新の超並列ベクトル計算機の性能を以ってしても上記の多重スケールを同時に扱うことは困難である。本稿では、第一近似として地球の曲率を無視した解析体系を取り扱うこととし、このためロスビー数やエクマン数は無視できるほど小さいとしていることを予め断っておく。

さて、流体力学的相似則が成り立っている流れ場においても、流体の物性値によってはスカラー（熱や物質）量の輸送の大きさは異なってしまうため、物性値に関する無次元数も導入する必要がある。エネルギー式におけるプラントル数（ $Pr=v/a$ ； a は温度拡散率）と物質輸送式におけるシュミット数（ $Sc=v/D$ ； D は拡散係数）である。これらプラントル数やシュミット数はスカラー量拡散に対する運動量拡散の割合を表しており、特に $Pr \gg 1$ や $Sc \gg 1$ の場合は熱・物質の拡散によるスカラー輸送量が運動量拡散で運ばれるスカラー輸送量に比べて著しく小さい、すなわち、速度境界層の厚さ（ δ_v ）に比べて温度・濃度境界層の厚さ（ δ_T ）が薄いこと（ $\delta_v \gg \delta_T$ ）を意味している。地球温暖化問題では大気中の二酸化炭素ガスの海洋吸収に伴う物質輸送は、二酸化炭素ガスの水への拡散係数が極めて小さいため $Sc=600$ 程度となり、濃度境界層の厚さが速度境界層に比べて極めて薄い、すなわち、溶存ガス濃度が高い領域が

海洋表面付近に局在化するため、海洋表面での乱流風波による攪拌効果がガス輸送速度に大きな影響を及ぼすものと予想される。

3. 気液表面を伴う乱流数値解析

現在までに気液界面近傍での乱流構造及び熱物質移動機構解明を目的として数々の実験的および数値解析的研究が行われてきた。最近の計算機の発達は乱流解析の分野において、Navier-Stokes 式を直接数値積分する手法(DNS: Direct Numerical Simulation)を可能とし、Lam and Banerjee[2]は、気液界面が変形しない場合の自由界面乱流(開水路乱流場とも呼ばれる)について、自由界面境界にすべり壁条件を課すことでDNSとして初めて成功した。その後、Lombardiら[3]は気相・液相の相互作用を初めて考慮したDNSを行っている。彼らは、気相・液相を別々に解き、自由界面でのせん断応力をそれぞれ相手側の相界面参照し合うことで気液相互作用を考慮している。自由界面の変形を考慮した流体計算としては、Komoriら[4]、Broueら[5]が曲線座標系を用いて自由界面を直交座標系へ座標変換を施した解析を行っているが、界面変形の程度は小さく、乱流風波による砕波などはこれらの方法では扱うことはできない。

これらにスカラー場を考慮した開水路乱流場のDNSも行われており[6-8]、浮力を考慮した安定成層開水路乱流のDNSも行われている[9]。スカラー場の境界条件としては、速度場が開水路(下壁面が滑り無し条件で自由界面がすべり壁条件)もしくはクエット流れ(開水路の自由界面に一定速度条件を課す)に対して、4種類の熱的境界条件を組み合わせがある。

- (1) 気相速度場と液相速度場は別々に解くが、気液界面でのせん断力として相手側の影響を取り込む場合の条件であり、気相側境界と液相側境界に一定温度差を与え、気液界面の変形は考慮せずに熱エネルギー式を解く場合[3]
- (2) 開水路の下壁に滑り無し条件と熱流束一定条件を与え、自由表面側には滑り壁条件と断熱もしくは温度一定条件を与える場合[8]
- (3) 流れ場の境界条件は(b)と同一だが熱的境界条件の付与は壁面と自由界面で逆となる場合 [10]
- (4) (2)と流れ場の境界条件は同一だが壁面と自由界面間に一定温度差を設定した場合 [6][9]

多くの研究においては、自由界面および壁面での速度・温度乱れが無いことを仮定しており、(4)の場合を対象としている。

上記の開水路乱流の数値解析結果から、下壁から生じた乱流構造は自由界面まで到達し、熱物質移動機構を支配していることが明らかになりつつある[6]。また、実験的見地からKomoriら[11]は自由界面近傍に出現する表面更新渦(Surface renewal vortex)は積分長さスケール程もある大規模渦と関連しており、界面を通して熱輸送の6割以上がこの大規模表面更新渦によると指摘している。海洋学者の間では、この表面更新渦は、バブル、パッチ、乱流渦など、定義はあいまいではあるが、いずれも重要であると指摘されている[12-14]。

一方、大気・海洋を対象と考える場合には、下壁面の影響を無視する境界条件を課さねばならない。近年、著者らはMARS法[15]を用いた乱流風波による気液界面の大きな変形を伴

う自由界面乱流のDNSを行った[16]。この場合、底面の境界条件にすべり条件を適用しているが、液相部分では静水圧で流れが成層化するために下部境界付近での液流速は極めて小さくなっており、より現実的な大気・海洋面を実現している。次節で研究の概要を紹介する。

3.1 混相流数値解析法 (MARS) の支配方程式

MARS法では、着目した微小体積セル内に同時に存在する多相流体は、そのセルの質点中心速度 \mathbf{u} で移動する、いわゆる「1流体モデル」に基づいているため、流体は一つの運動方程式に支配される。解析空間の任意の点 $(x_i, i=1,2,3)$ 周りのセルに占める各物質(液体、気体)の時空間分布は体積率関数 $f(t, x_i)$ を使ってモデル化し、体積率関数の空間微分により自由界面の傾きを定義する。流体の空間分布 $\langle f \rangle$ は、セルにおける気液の体積比の総和として次式で表せる。

$$\langle f \rangle \equiv \sum f_n = 1.0, \quad (n = g, l) \quad (1)$$

ここで f_n は物質 n (気体: g , 液体: l) の体積率、 $\langle \rangle$ は平均を表す。

多相流を一つの流体として取り扱うため、物性値 ϕ は各相の平均値 $\langle \phi \rangle$ として次式で定義する。また、ここでは非圧縮性粘性流体を仮定し、気体の圧縮性の影響等は考慮しないものとする。

$$\langle \phi \rangle = \sum (f_n \phi_n) \quad (2)$$

以下、液体・気体の両領域の連続式及び運動方程式を Fractional step 法の一つである 2 段階 Projection 法[17]で解くことになる。

多相 n 流体の連続式は、次のように書ける。

$$\frac{\partial \langle f \rangle}{\partial t} + \sum [\nabla \cdot (f_n \mathbf{u}) - f_n \nabla \cdot \mathbf{u}] = 0 \quad (3)$$

ここで左辺の第3項は一見不必要に思えるが、PLIC(Piecewise Linear Interface Calculation)法で f の勾配を考慮した体積輸送を行う場合には、移動流体量の数値的な保存性を担保する観点から不可欠である、すなわち、気泡が急激な変形移動に伴う局所的な渦運動による界面輸送の遅れで生ずる分裂気泡のような floating thumb の問題を回避する方策である。

運動方程式は、ナビエ・ストークス方程式中で表面張力を CFS モデル[18]に基づく体積力 F_V として考慮した(詳細は原著論文を参照の事)。

$$\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} = \mathbf{G} - \frac{1}{\langle \rho \rangle} \nabla P - \nabla \cdot \boldsymbol{\tau} + - \frac{1}{\langle \rho \rangle} \mathbf{F}_V \quad (4)$$

ここで、 \mathbf{G} は重力項、 ∇P は圧力勾配項、また CSF モデルおよび粘性応力 $\boldsymbol{\tau}$ は次式で定義した。

$$\mathbf{F}_V = \sigma \kappa \nabla f_n \langle \rho \rangle / \bar{\rho} \quad (5)$$

$$\boldsymbol{\tau} = - \left[\frac{\langle\langle \mu \rangle\rangle}{\langle\langle \rho \rangle\rangle} \right] \left[(\nabla \mathbf{u}) + (\nabla \mathbf{u})^T \right] \quad (6)$$

ただし、 σ は表面張力係数、 $\bar{\rho}$ は気液界面での算術平均密度である。 $\langle\langle \phi \rangle\rangle$ は ϕ の界面での物性値として、格子セル内を占める体積(面積)の多い流体(相)の値で代表させる意味である。また、界面曲率 κ は、注目計算セル周囲の流体率の勾配である界面法線ベクトル $\mathbf{n} = \nabla f_n$ を用いて次式から求められる。

$$\kappa = \frac{1}{|\mathbf{n}|} \left[\left(\frac{\mathbf{n}}{|\mathbf{n}|} \cdot \nabla \right) |\mathbf{n}| - (\nabla \cdot \mathbf{n}) \right] \quad (7)$$

本解析手法による体積保存は極めて良好で、以前に実施した碎波を伴う水平管内層状流のスラッグ-プラグ流解析において、100万タイムステップ計算後で0.001%程度であった[19]。

二酸化炭素ガスの物質輸送方程式には以下の方程式を用いた。

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle \rho \rangle C + \nabla \cdot (\langle \rho \rangle \mathbf{C} \mathbf{u}) = \nabla \cdot (D \nabla C) + S \quad (8)$$

ここで、 C は二酸化炭素ガスの濃度(モル分率)、 D は分子拡散係数、 S は以下のHenry則に基づいて求まる界面での単位体積当りの吸収モル流束である。

$$C_s = P_s / H \quad (9)$$

ここで、 P_s は界面の瞬時圧力、 C_s は飽和溶解度に相当する界面圧力 P_s に対応する飽和濃度、 H は P_s に対応するHenry定数である。

3.2 自由表面変形を伴う混相流シミュレーション

図1に解析体系および境界条件を示す。気相と液相は平行に流れており、流れ方向(x)に $L=0.281\text{m}$ 、幅(z)方向に $W=0.157\text{m}$ 、高さ(y)方向に $2h=0.05\text{m}$ ：気相と液相の高さは共に $h=0.025\text{m}$ である。本流れ場の駆動力は気相運動エネルギーであり、気液界面でのせん断力による運動エネルギー移動が界面変形および乱流エネルギー生成・輸送を誘起し、結果として気相炭酸ガスの液相へのガス吸収を促進する機構を明らかにすることを目的として混相流シミュレーションを実施した。

流れ場の境界条件としては、流れ方向と幅方向に周期境界条件、気相の上部境界および液相の下部境界は共に滑り壁条件とした。初期の気液界面は $h=0.025\text{m}$ の位置にあり、気相のレイノルズ数 $Re(=U_\infty h / \nu)$ ： U_∞ は境界層外縁速度、 ν は動粘度) = 3459とした。また初期の液相流速には気相流速の1/100を与えた。計算に用いた格子数は、流れ方向192、幅方向128、高さ方向300である。計算の時間刻みはCourant数と連続式の残差によるが、 $10^{-6} \sim 10^{-5}$ 秒とした。格子依存性については、高さ(y)方向の格子幅について $167\mu\text{m}$ の等間隔格子の場合と最小格子幅(界面付近)が $30\mu\text{m}$ の不等間隔格子の結果を比較し、界面付近での乱流エネルギー収支が妥当であった後者の不等間隔格子を採用した。

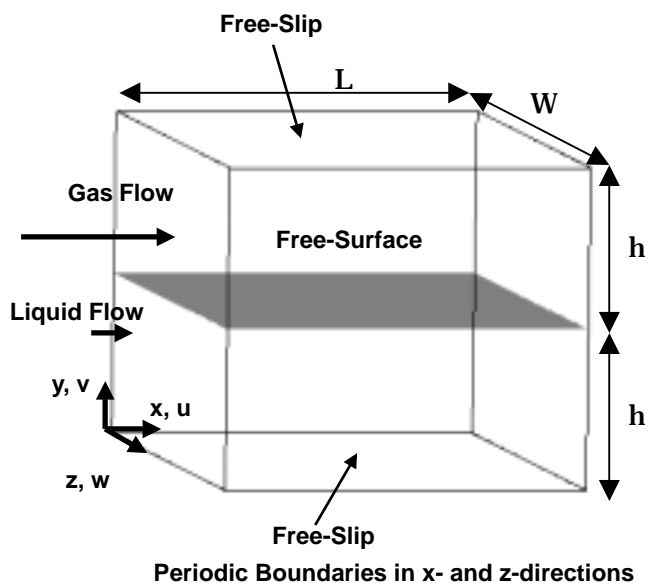


Fig.1 Coordinate system and boundary conditions for turbulent free-surface flow

図2は瞬時の気液界面形状を $f=0.5$ の等値面で表示したものである。流れ方向にCapillary waveの挙動が可視化されている。2~3のdowndraftに起因すると思われる小さな巻き込み渦や気泡の発生、液滴の飛散も観察された。このときの気相側摩擦速度は $u_{\tau(g)}=0.08\text{m/s}$ で液相側摩擦速度は $u_{\tau(l)}=0.02\text{m/s}$ であった。本解析が比較的低レイノルズ数 $Re_{\tau(g)}=130$ 程度の条件であることと、気相・液相間の気液界面を通してのエネルギー輸送が考慮しているため、計算初期では気相の乱流は一旦弱くなるが、その後、気液相互作用のため界面が変動し始めると界面下での乱れが増大し、気相側乱流量も回復する傾向のあることが分かった。

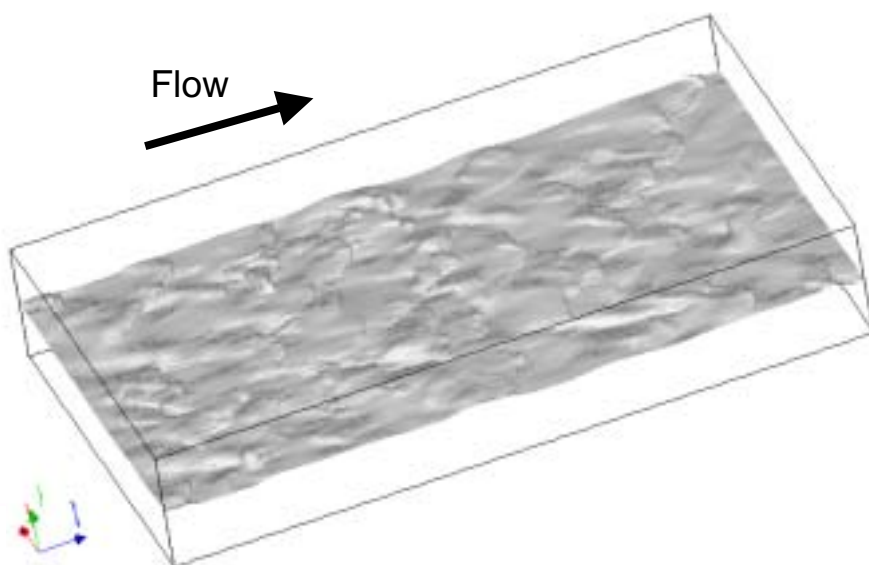


Fig. 2 A snapshot of the instantaneous flow visualization of the free surface behavior

図3は速度変動の二乗平均値のy方向分布を示したものである。3成分共に界面付近にピークを持っており、流れ方向成分(u_{rms})が卓越しているのは当然だが、幅方向成分(w_{rms})と垂直成分(v_{rms})が同じような大きさを持っていることが分かる。従来の開水路乱流DNSは自由界面に滑り壁条件：界面で垂直方向速度およびその変動分を零と仮定($v=v_{rms}=0$)しており、本解析結果は自由境界問題に従来型の境界条件が適用できないことを指摘していると言える。

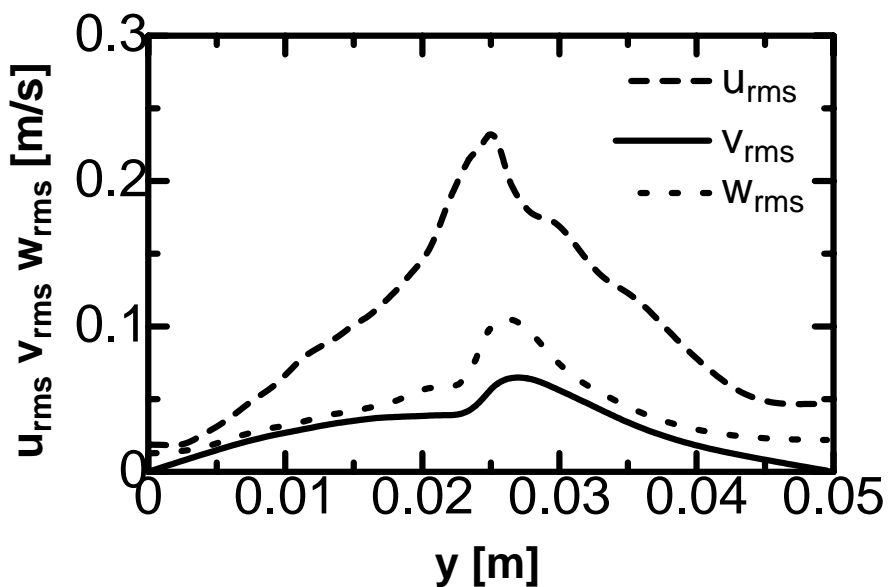


Fig. 3 Root mean square of velocity fluctuation distribution

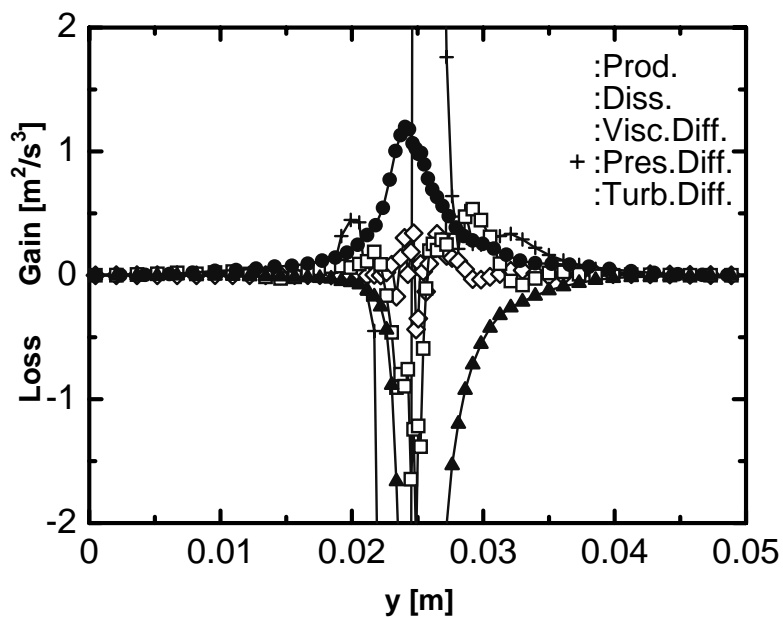


Fig. 4 Budget of turbulent kinetic energy

図4は乱流エネルギー収支を示したものであり、 \square は turbulent production(TP)、 \square は turbulent dissipation(E)、 \square は viscous diffusion(VD)、 $+$ は pressure diffusion(PD)、 \square は turbulent diffusion(TD)を表している。なお、turbulent convectionは全領域でほぼ零であった。TP、E、PDは界面領域で大きく、主としてPDはEとバランスしている。また、VDも界面領域で変化しているが値は小さい。このように、一応の乱流統計量は得られているが、界面の非定常変動による気液混合効果が統計量に混入してしまうため、これ以上大きなレイノルズ数の流れ場についての定量的な評価は未だ難しい課題であろう。

3.3 乱流ガス交換速度の推算と実験結果との比較

前節で明らかとなったように、界面付近に大きな垂直方向速度変動(v_{rms})が生成され、これによる乱流スカラー量輸送は、界面変形しない場合に比較して著しく増大することは容易に予想できる。本解析では、二酸化炭素ガスの界面吸収を Henry 則でモデル化し、得られた DNS データの統計解析から速度濃度相関と平均濃度の空間勾配を求めて空気側から水側への乱流ガス交換速度 k_L を推算したところ、 $k_L=5 \times 10^{-7} \sim 2 \times 10^{-6} \text{ m/s}$ を得た。この値は、図5に示すように、Liss and Merlivat[20]のデータとほぼ一致することが分かった。

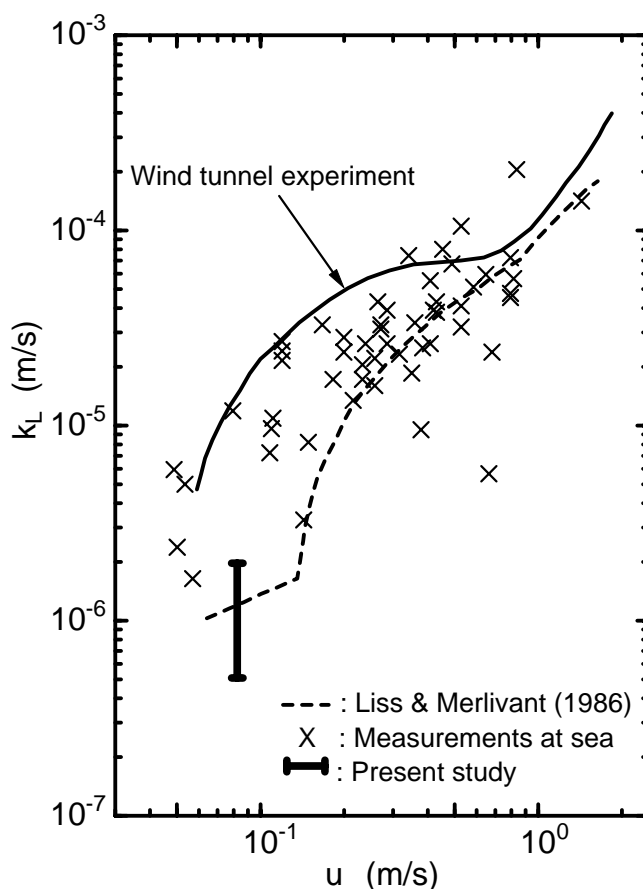


Fig. 5 Comparison of gas exchange rates between measuring data and the present DNS result

4. おわりに

大気と海洋の相互作用による海洋への炭酸ガス吸収の問題については、乱流風波による乱流物質移動速度の増加が実測値や実験値で報告されており、著者らの DNS 解析結果を含め自由界面での波立ちによる垂直方向の運動量輸送の増大が乱流混合を促進するものと考えられ始めている。しかし、大気海洋相互作用は地球スケールの気流・海流運動、砕波時の生成気泡のスケールでの運動、ガス吸収に伴う極めて薄い濃度境界層の存在など多重スケールに亘る相関と強非線形性を含むため、その全てを取り扱うことは将来的に見ても相当な困難を伴うものと考えられる。今後、マクロなモデルとそこでフィルタリングされたミクロな構造を繋ぐ方法論やモデリングの研究がますます重要となり、混相流の DNS はその基礎的な知見や指針を与える重要な手法となると言えよう。

参考文献

- [1] 茅陽一編：地球環境工学ハンドブック（1993）12章
- [2] K. Lam and Banerjee, "On the condition of streak formation in a bounded turbulent flow," *Phys. Fluids*, **A4(2)** (1992) 306.
- [3] P. Lombardi, V. D. Angelis and S. Banerjee, "Direct numerical simulation of near-interface turbulence in coupled gas-liquid flow," *Phys. Fluids*, **8** (1996) 1643.
- [4] S. Komori, N. Nagaosa, Y. Murakami, S. Chiba and K. Kuwahara, "Direct numerical simulation of three-dimensional open-channel flow with zero-shear gas-liquid interface," *Phys. Fluids*, **A5** (1993) 115.
- [5] V. Broue, S. A. Orszag and I. Staroselsky, "Interaction of surface waves with turbulence: direct numerical simulations of turbulent open-channel flow," *J. Fluid Mech.*, **286** (1995) 1.
- [6] R. Nagaosa, "Direct numerical simulations of vortex structures and turbulent scalar transfer across a free surface in a fully developed turbulence," *Phys. Fluids*, **11**, 6 (1999) 1581.
- [7] R. A. Handler, J. R. Saylor, R. I. Leighton and A. L. Rovelstad, "Transport of a passive scalar at a shear-free boundary in a fully-developed turbulent open channel flow," *Phys. Fluids*, **11**, 9 (1999) 2607.
- [8] M. Rashidi, G. Hestroni and S. Banerjee, "Mechanisms of heat and mass transport at gas-liquid interface," *Int. J. Heat Mass Transfer*, **34**, 7 (1991) 1799.
- [9] 永扇龍一、斎藤隆之："十分に発達した安定成層開水路乱流場の構造," 日本機械学会論文集, B編, **63** (1997) 1170.
- [10] T. Kunugi, s. Satake and A. Sagara, "Direct numerical simulation of turbulent free-surface high Prandtl number fluid flows in fusion reactors," *Nucl. Instrum. And Meth. In Phys. Res. A* **464** (2001) 165.
- [11] T. Kunugi et al., *Turbulence, Heat and Mass Transfer 3*, Edited by Y. Nagano, K. Hanjalic and T. Tsuji, turbulent free-surface, Aichi Shuppan (2000) 225.

- [12] S. Komori, Y. Murakami and H. Ueda, "The relationship between surface-renewal and bursting motions in an open-channel flow," *J. Fluid Mech.*, **203** (1989) 103.
- [13] Asher, W.E. and J.F. Pankow, "Prediction of gas/water mass transport coefficients by a surface renewal model", *Environ. Sci. Technol.*, **25**, 7 (1991) 1294-1300.
- [14] J. R. Saylor and R. A. Handler, "Gas transport across an air-water interface populated with capillary waves," *Phys. Fluids*, **9**, 9 (1997) 2529.
- [15] L. Memery and L. Merlivat, In *Gas transfer at water surface*, ed. W. Brutsaert & G.H. Jirka (1984) 247.
- [16] 功刀資彰, "自由界面を含む多相流の直接数値解法", *日本機械学会論文集*, B 編, **63** (1997) 1576.
- [17] A. J., Chorin, "Numerical solution of the Navier-Stokes equations," *Math. of Comput.*, **22** (1968) 745
- [18] J. U., Brackbill, Kothe, D. B. and Zemach, C., "A continuum method for modeling surface tension," *J. Comput. Phys.*, **100** (1992) 335
- [19] T. Kunugi, Y. Ose and M. Banat, "Slug-plug flow analyses of stratified flows in a horizontal duct by means of the MARS", *Proc. 5th ASME/JSME Joint Thermal Engineering Conf.*, San Diego, USA (1999) CD-ROM AJTE99-6435
- [20] P. S. Liss, and L. Merlivat, In *The role of air-sea exchange in geochemical cycling*, Buat-Menard, P., ed., Reidel, (1986) 113.