

剪断のある界面近傍における気液相互作用

Interaction between gas and liquid phases near a sheared interface

長谷川 洋介、東京大学大学院、文京区本郷 7-3-1, E-mail: hasegawa@thtlab.t.u-tokyo.ac.jp

笠木 伸英、東京大学大学院、文京区本郷 7-3-1, E-mail: kasagi@thtlab.t.u-tokyo.ac.jp

Yosuke Hasegawa, Dept. of Mech. Eng., The University of Tokyo, 7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-8656, Japan

Nobuhide Kasagi, Dept. of Mech. Eng., The University of Tokyo, 7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-8656, Japan

Direct numerical simulation of the coupled air-water turbulent flow has been carried out. Streaky structures with different spacings are observed in both gas and liquid phases near the interface. However, the spacings are almost same in shear-based units in both phases ($l_G^+, l_L^+ \sim 100$). We apply a Lagrangian method to passive scalar transfer for high Schmidt numbers ($Sc = 100, 300, 500, 1000$). With increasing the Schmidt number, scalar markers tend to cluster around the low speed streak regions in the liquid phase. Quasi-streamwise vortices which penetrate a very thin concentration boundary layer in the liquid phase play an important role in mass transfer. Due to the large density difference between gas and liquid, the interphase interaction is observed in the gas side. On the other hand, in the liquid phase, effects of shear fluctuations imposed by the gas flow are negligibly small and turbulent structures in liquid are determined only by the Reynolds number of the liquid flow.

1. 序論

気液界面における物質輸送は、化学工学や地球環境科学などの分野で頻繁に見受けられ、化学プラントなどの性能予測や向上、また環境問題を考える際に、そのさらなる理解が望まれる。近年、気液界面乱流に対して、直接数値シミュレーションが適応されるようになり、従来実験では取得が困難であったより詳細なデータが得られるようになってきた⁽¹⁻⁴⁾。しかし、自由界面近傍の乱流構造、特に、剪断によって生成されるストリーク構造や渦構造、またそれに伴う物質輸送のメカニズムに関しては未解明な点が数多く残されている。

現実の気液界面におけるガス交換を考えると、多くの場合、液側でのシュミット数は非常に高く($Sc \sim 1000$)、界面ごく近傍の微細な乱流構造が物質輸送を支配している。そのため、実験においては速度と濃度場の同時計測が困難である一方、直接数値計算においても、従来のオイラー法では微細な濃度場の構造を解像する、膨大な計算格子が必要となり、計算負荷は非常に大きなものとなる。

本研究では、剪断のある気液界面乱流場の直接数値シミュレーションを行うと共に、ラグランジュ法を適用することで、高シュミット数($Sc=100, 300, 500, 1000$)での濃度場の計算を行い、速度場、濃度場における両相間での相互作用と物質輸送のメカニズムに関して考察を行う。

2. 計算手法

本研究で扱う計算領域を Fig. 1 に示す。気液両相に関してチャンネル幅を等しく δ とし、流れ方向、スパン方向にそれぞれ $2.5\pi\delta$, $\pi\delta$ とした。流れ場は気液対向流型のものを想定し、それぞれ逆方向に一定圧力勾配の条件を課している。また、チャンネル幅 δ と、界面の摩擦速度 u_τ に基づくレイノルズ数は気、液それぞれの相で $Re_{\tau G}=300$, $Re_{\tau L}=150$ とした。これは、風速が 2 m/s でチャンネル幅を 3 cm とした時の標準状態の空気と水の物性値に近い条件となっている。この時、気側の粘性長さ ($l_G^+ = \nu_G/u_{\tau G}$) は液側のそれ ($l_L^+ = \nu_L/u_{\tau L}$) の半分となる。また、比較のため気、液両相で粘性長さを等しいとした計算、すなわち、両相のレイノルズ数が等しいとした計算 ($Re_{\tau G} = Re_{\tau L} = 150$) も行った。また、どちらのケースに関しても、気液の密度比、 $\rho_L/\rho_G = 841$ とした。本研究で行った計算条件に関して纏めたものを Table 1 に示す。境界条件に関しては、流れ方向、スパン方向に関して、周期境界条件とし、気側上端および液側下端の境界においてはその影響を小さくするため free-slip 条件とした。また、本研究で対象とする低レイノルズ数流れに関しては、界面変形の影響は非常に小さいとして無視し、界面において速度と剪断応力の連続条件を課した。濃度場に関しては、気側上端、液側下端の境界でそれぞれ等スカラー濃度条件 ($C_{GB}=1.0, C_{LB}=0$)、界面においては、ヘンリー則とスカラー濃度束の連続条件を課した。ヘンリー則より、界面のスカラー濃度の境界条件は以下ようになる。

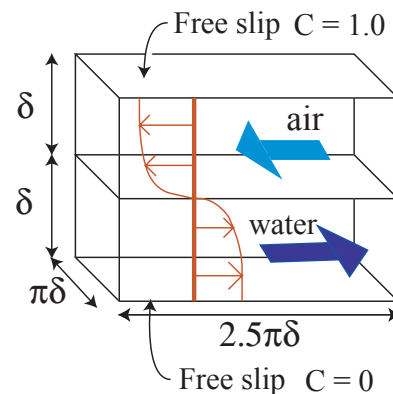


Fig. 1 Computational domain

Table 1 Computational parameters

	Re_τ Gas phase	Re_τ Liquid phase	ρ_L / ρ_G Density ratio	$l_{\tau L} / l_{\tau G}$ Viscous length ratio
Case 1	300	150	841	2.0
Case 2	150	150	841	1.0

$$C_{Li} = \alpha \cdot C_{Gi} \quad (1)$$

ここで C_{Gi} , C_{Li} はそれぞれ気、液相での界面のスカラー濃度である。 α は溶解度であり、局所の圧力に依存するだけでなく、物質によっても大きく異なる。しかし本研究で対象とする流れ場に関して、気側の圧力変動は大気圧に対して十分小さく無視できるため、 $\alpha=1.0$ で一定とした。これは、標準状態の二酸化炭素の溶解度に近い値となっている。気液両相の支配方程式は、連続の式、非圧縮 Navier-Stokes 方程式、スカラー濃度の輸送方程式であり以下のように書ける。

$$\frac{\partial u_i}{\partial x_i} = 0 \quad (2)$$

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

$$\frac{\partial c}{\partial t} + u_j \frac{\partial c}{\partial x_j} = \frac{1}{Re_\tau \cdot Sc} \frac{\partial^2 c}{\partial x_j \partial x_j} \quad (4)$$

空間離散化には擬スペクトル法を用い、流れ方向、スパン方向にはフーリエ級数展開を、界面鉛直方向にはチェビシェフ関数展開を用いた。各相において、流れ方向、界面垂直方向、スパン方向にそれぞれ、Case1 では 128, 128, 128, Case2 では 64, 64, 64 のモードを設けた。時間離散化は対流項に二次精度アダムス・パッシュウォース法を、拡散項にクランク・ニコルソン

法を用いた。

濃度場に関しては、オイラー法による計算ではシュミット数を気液両相共に、 $Sc_G = Sc_L = 1.0$ とした。高シュミット数においては、濃度境界層が非常に薄く、濃度場の構造が微細となるため、オイラー法での計算は困難となる。そのため、本研究ではラグランジュ法を適用することで、高シュミット数($Sc_L = 100, 300, 500, 1000$)の濃度場の計算を行った。ラグランジュ法では、オイラー法と異なり、濃度場の輸送方程式を解くための計算格子を配置せず、多数のスカラー粒子の確率密度分布からスカラー濃度を決定する。各々の粒子は各ステップ毎に、対流による効果と、分子拡散による効果によって移動する。対流の効果に関しては各粒子の位置での流速 u_i 、また分子拡散の効果に関しては、三次元のランダムウォークによって以下のように表される。

$$\Delta x_i = u_i(x_0, t) \cdot \Delta t + \sigma_m \cdot W \quad (5)$$

$$\sigma_m = \sqrt{\frac{2}{Sc} \Delta t} \quad (6)$$

ここで、 W は平均が0で分散が1となるガウス分布より決まる乱数である。計算手法の詳細に関してはPapavassiliou and Hanratty⁽⁵⁾を参照されたい。

3. 速度場の統計量

気液両相での、界面からの距離 y^+ に対する速度乱れ成分をFig. 2, 3に示す。ここで、速度乱れ成分は、各々の相の界面摩擦速度($u_{\tau G}, u_{\tau L}$)によって無次元化されている。また比較のため、 $Re_\tau = 150$ での壁乱流のデータもプロットした。界面の近傍を除いては、両相の乱れ分布は似た傾向を示している。しかし、界面では液側の速度乱れは最大値を取るのに対して、気側の界面での乱れは小さく、壁乱流に近い分布となっている。界面の境界条件として速度の連続条件を課しているため、界面で両相の有次元の速度乱れは厳密に等しい。しかし、密度比が大きいため($\rho_L/\rho_G = 841$)界面摩擦速度は気側が液側に対して29倍大きく、無次元での値は気側で非常に小さな値となっている。これより、界面の境界条件は液側に対しては自由界面の条件に近く、気側に対してはno-slip条件に近いことが分かる。Case 1とCase 2を比較すると、気側ではレイノルズ数の増大に伴い、界面垂直方向とスパン方向の速度変動が増加している。これは、主に圧力歪み相関項による流れ方向乱れエネルギーの再分配が促進されたためであり、壁乱流と同じ傾向を示している。一方液側に関してはCase 1とCase 2でレイノルズ数に変化はなく、Case 2で若干界面近傍で流れ方向速度乱れが減少しているものの、他の成分の分布に大きな変化は見られない。

気液界面近傍($y^+ = 5$)のCase 1における両相の瞬時の x - z 断面内の乱流構造をFig. 4に示す。濃淡は流れ方向速度の乱れ成分を表し、白は界面近傍($y^+ < 30$)における変形歪みテンソルの第二不変量の等値面を示す。両相において、界面近傍の剪断によってストリーク構造が形成されていることが確認できる。しかし、気側のストリーク構造や渦構造は、液側に対して長さスケールが大きく異なる。これは、気側の粘性長さが液側のそれに対して、半分となっているためであると考えられる。Fig. 5に界面近傍における、流れ方向速度変動のスパン方向二点相関を示す。横軸は、各々の相での粘性長さで無次元化した。ストリーク間隔は、気側でおよそ $\Delta z_G^+ \sim 100$ であるのに対して、液側では $\Delta z_L^+ \sim 130$ と若干広いものの、両者は近い値となった。以上の結果より、界面近傍であっても両相の乱流構造は各々の相の粘性長さによって支配されていることが分かる。

4. スカラー濃度場

シュミット数が低いケースに関して、オイラー法により濃度場に関して計算を行った。Fig. 6に平均スカラー濃度分布を示す。本研究における計算条件のように、溶解度 $\alpha = 1.0$ の場合、両相のシュミット数が等しい場合においても、大部分のスカラー濃度変化は液側で起きている。Fig. 7に気液両相のスカ

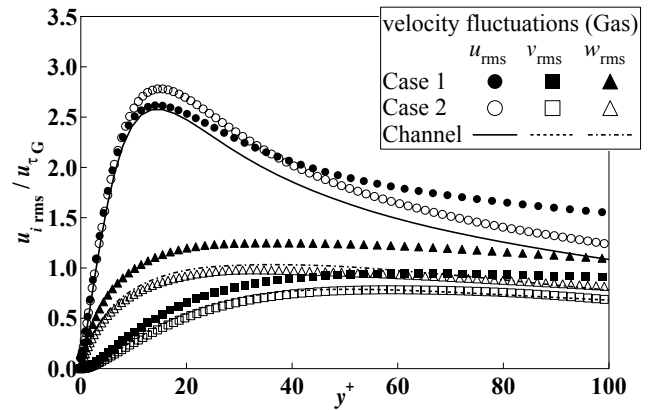


Fig. 2 Velocity fluctuations in the gas phase

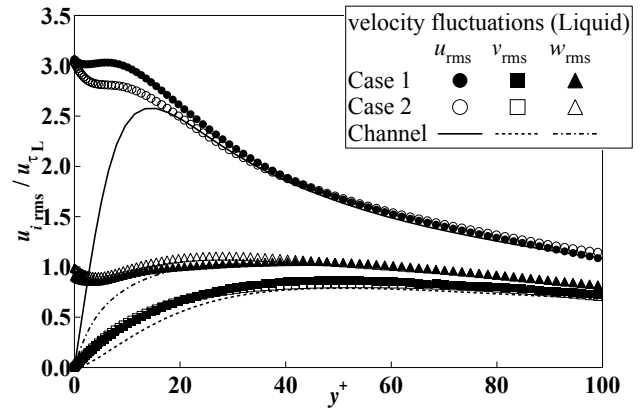


Fig. 3 Velocity fluctuations in the liquid phase

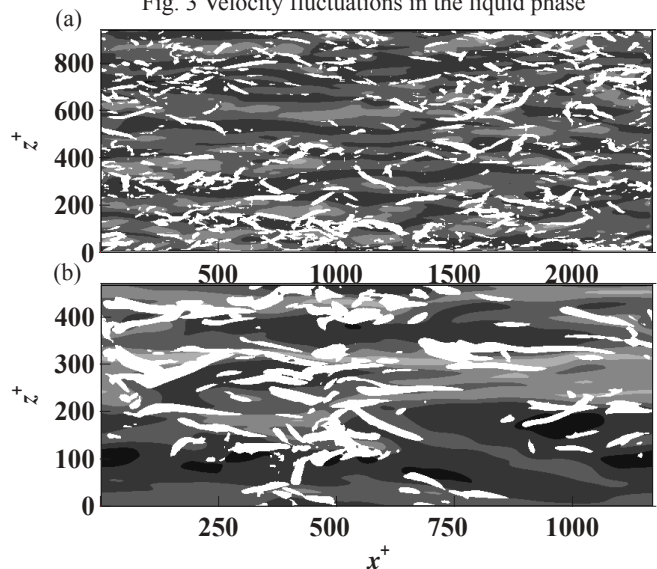


Fig. 4 Streaks and vortical structures near the interface

(a) gas phase, (b) liquid phase

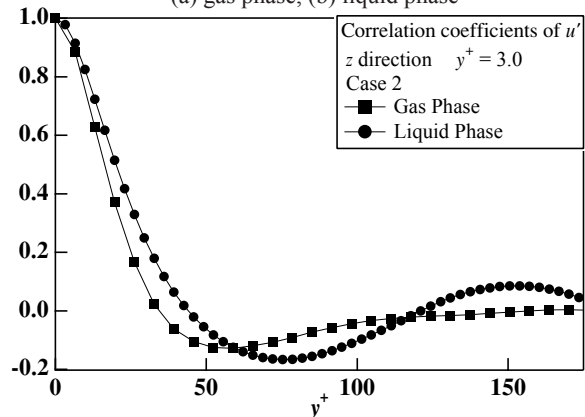


Fig. 5 Spanwise two-point correlations in both phases

ラー濃度変動を示す。物質輸送に対する抵抗は、液側が非常に大きい。液側界面はほぼ等スカラー条件に近い状態になっていることが分かる。一方、気側では液側によって生成される濃度変動の影響が大きく、界面で最大値を取っている。Fig. 8に両相におけるスカラー濃度場と流れ方向速度、界面鉛直方向速度の相関を示す。流れ方向速度変動とスカラー濃度変動の相関 $R_{c'u'}$ に関しては、液側で若干高いが、およそ似た傾向を示している。一方、液側界面近傍では気側に比べて、スカラー濃度場と界面鉛直方向の速度変動の相関 $R_{c'y'}$ が非常に高く保たれていることが分かる。また特に、気側界面ごく近傍 $y^+ < 1.0$ では相関が負の値を持つ、すなわち、逆勾配拡散が確認できる。

界面近傍の濃度場と速度場の関係をより詳しく調べるため、 $Sc_G = Sc_L = 1.0$ の場合の界面におけるスカラー濃度束変動と、両相で界面鉛直方向に y^+ 離れた位置での速度変動、濃度変動との相関を求めた(Fig. 9)。ここで、相関 C_α の定義は

$$C_\alpha(y, \Delta t) = \frac{q'(x, z, t)|_{interface} \cdot \alpha'(x, y, z, t + \Delta t)}{q'_{rms}|_{interface} \cdot \alpha'_{rms}} \quad (7)$$

である。 q' は、界面での濃度フラックス、 α は速度もしくはスカラー濃度である。速度変動 u' 、 v' に関しては、Fig. 9に示すように気液両相での主流方向、界面に向かう方向をそれぞれ正とした。Fig. 10に結果を示す。一般的に、気側に比べると液側の速度変動、濃度変動の相関が非常に高く、界面スカラー濃度束は液側の乱流構造に支配されていることが分かる。特に、液側 $y^+ = 15$ においても相関は高く、縦渦構造によって引き起こされる界面鉛直方向の速度変動と、それに伴う流れ方向速度変動が確認できる。一方、気側では界面近傍 $y^+ < 3$ において、界面に向かう流れが発生しているが、流れ方向速度、スカラー濃度変動に関しては負の相関を示している。計算結果から得られた界面近傍の濃度場と速度場の概念図をFig. 11に示す。液側における縦渦構造が、界面におけるスカラー濃度束を引き起こす直接の要因である。さらに、その液側の流れに駆動されるように気側界面ごく近傍に、界面に向かう流れが誘発される。しかし二相間の大きな密度比のため、この気側の界面垂直方向速度乱れの漸近挙動は、液側のそれに対して非常に小さく $(1/29)$ 、この領域では分子拡散が支配的である。そのため、液側の縦渦構造によって引き起こされたスカラー濃度変動が界面から分子拡散によって輸送され、気側の濃度場に大きな影響を及ぼしている。そのため気側界面近傍では、界面垂直方向速度変動とスカラー濃度変動の相関が負の値を持つことになる。

空気と水のように非常に両者の密度比が大きな場合、気側の乱流場は界面がno-slipの境界条件に近くなる。Sirkar and Hanratty⁽⁶⁾らは、界面近傍の濃度場の輸送方程式を線形近似し、界面鉛直方向速度変動の漸近挙動が y^{+2} に比例することを用いて、以下の式を得た。

$$W_K(\omega) = \frac{W_\beta(\omega) \cdot 4\bar{K}^2}{\omega^3 \cdot Sc} \quad (8)$$

ここで、 W_K 、 W_β はそれぞれガス交換係数と界面垂直方向速度変動のスペクトル、 \bar{K} は平均のガス交換係数を表す。一方、McCready and Hanratty⁽⁷⁾らは、自由界面に対しても同様の解析を行った。ただしこの場合、界面鉛直方向速度変動の漸近挙動が y^+ に比例するため、以下のようになる。

$$W_K(\omega) = \frac{W_\beta(\omega) \cdot \bar{K}^2}{\omega^2} \quad (9)$$

これらの式より、特に壁面近傍では分母が ω の三乗に比例しており、シュミット数も含まれているため、高シュミット数における高周波数の濃度変動は大きくダンピングされることが予測される。また、近年DNSにおいても同様の傾向が見られている^(8,9)。今回の結果においても、壁乱流に近い気側では十分時間が経過後においても、濃度乱れの相関が負の大きな値を持っており、界面でのスカラー濃度束に対する気側界面近傍の濃度場の応答が液側に比べて緩やかであることが分かる。また、自由界

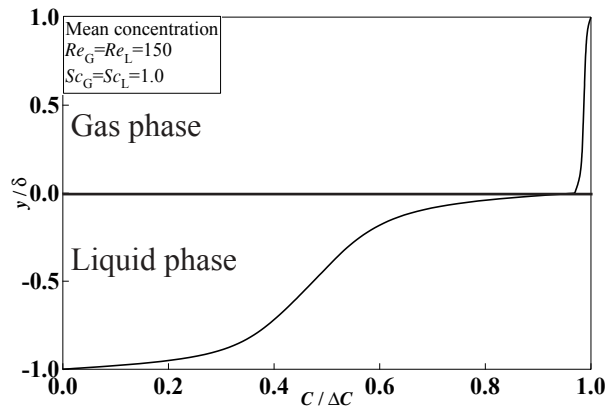


Fig. 6 Mean concentration at a low Schmidt number ($Sc=1.0$)

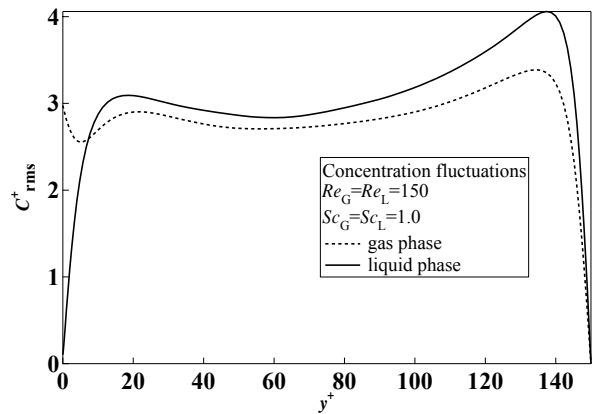


Fig. 7 Concentration fluctuations at a low Schmidt number ($Sc=1.0$)

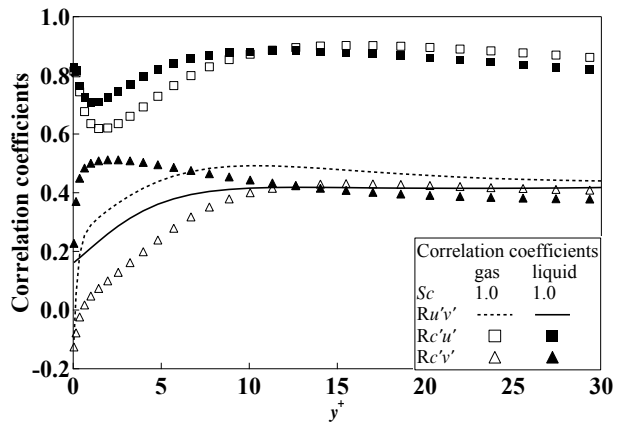


Fig. 8 Correlation coefficients at a low Schmidt number ($Sc=1.0$)

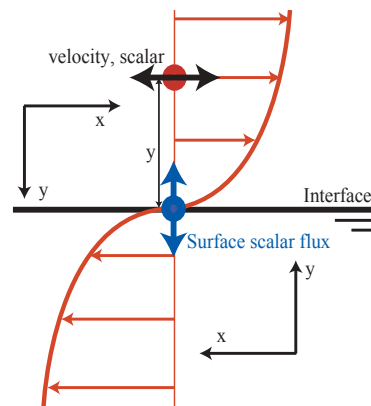


Fig. 9 Coordinate system for calculation of correlation coefficients

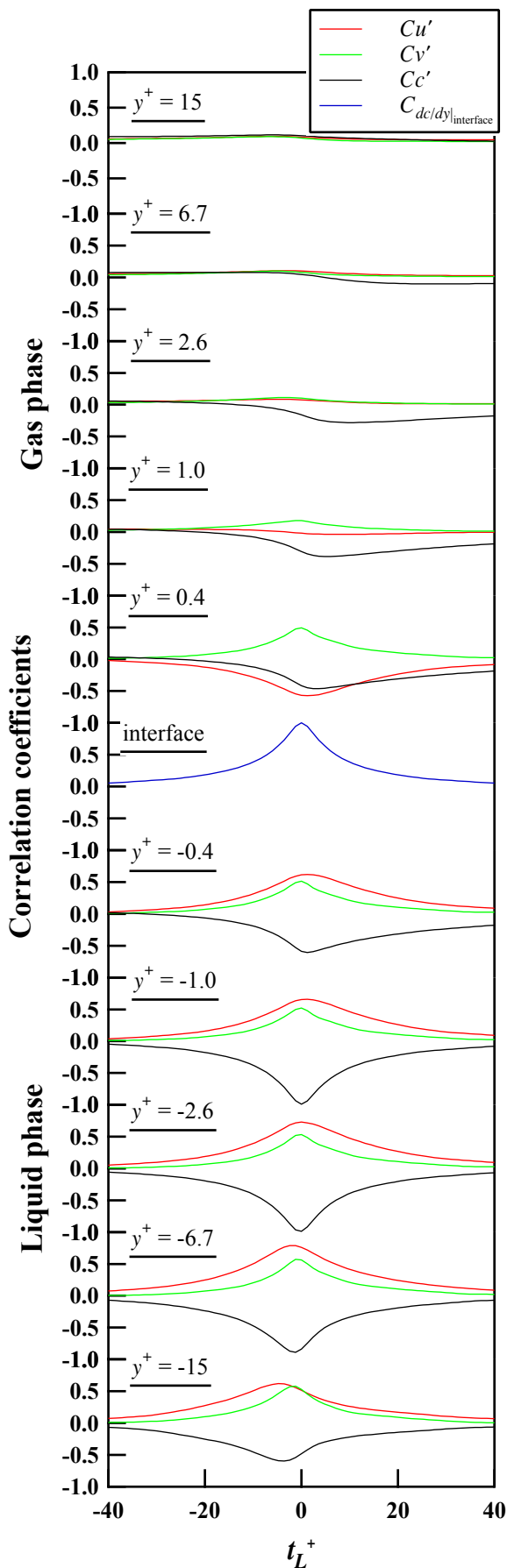


Fig. 10 Space and time correlation coefficients between surface scalar flux and velocity and scalar fields near the interface

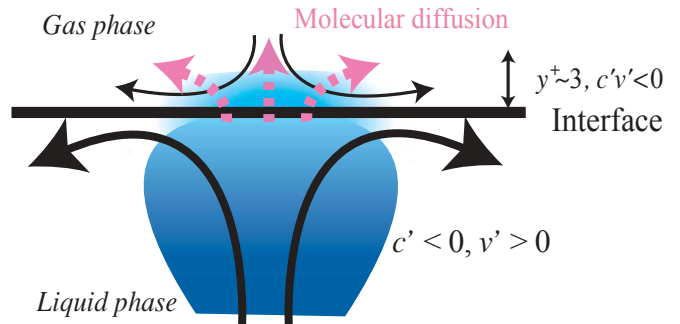


Fig. 11 Mechanism of mass transfer across an air-water interface

面では高シュミット数においても界面近傍の速度変動に対する濃度場の応答性は高く、界面鉛直方向の速度変動とスカラー濃度の相関が、壁乱流に比べ高く保たれると考えられる(Fig. 8)。

5. 高シュミット数における物質輸送

前節において、低シュミット数における気液界面近傍の濃度場に関して考察を行ったが、実際の気液界面におけるガス交換を考慮すると、多くの物質は液側のシュミット数が非常に高い。ここでは、ラグランジュ法を用いて高シュミット数におけるガス交換係数を求め、物質輸送のメカニズムに関して考察を行う。

粒子の初期条件として、96x96個の粒子を気液界面に均等に配置し、気液界面は等スカラー濃度条件を仮定し、液側の濃度分布のみを解いた。原理的には、若干の修正を施すことでラグランジュ法を用いて、気液両相の濃度場を解くことも可能であるが、計算負荷は非常に大きなものとなる。また、Fig. 6の低シュミット数における平均分布から、液側のシュミット数が高くなった場合、液側における物質輸送に対する抵抗が全体の抵抗の大部分を占めることが分かる。そのため、本研究では液側のスカラー濃度場のみを考慮する。

界面から粒子を放出した後、粘性時間で $t^+ = 100$ 経過した際の、異なるシュミット数のスカラー粒子の x - z 断面内の分布を Fig. 12 に示す。ここで背景の濃淡は、界面から $y^+ = 3$ における流れ方向速度乱れ分布を示している。また、ここでは界面近傍に存在する粒子のみを表示した。流れ場は同一のものを用い、シュミット数のみを $Sc = 0.1, 1.0, 100$ と変化させた。シュミット数が増加するに従って、スカラー粒子は低速ストリークに集中する傾向にあることが分かる。これは、高シュミット数ではスカラー粒子はほぼ流れに追従するため、界面での surface divergence、

$$\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial w}{\partial z} = -\frac{\partial v}{\partial y} \quad (10)$$

が負となる領域に、引き込まれるためであると考えられる(Fig. 13)。これら低速領域にトラップされた高シュミット数のスカラー粒子が、チャンネル中央へ輸送される際の周囲の流れ場を Linear Stochastic Estimation によって求めたものを Fig. 13 に示す。抽出条件としては、 $Sc = 100$ のスカラー粒子が液側 $y^+ = 3$ の位置にある x - z 断面を界面から液相内部へと通過した際の粒子速度の確率密度分布より得られた速度を用いた。界面下の点はスカラー粒子を表し、ベクトルは x - y 断面内の速度成分を示す。液側界面下に縦渦構造がみられ、気側には特徴的な構造は見受けられなかった。これより、液側の縦渦構造によって引き起こされる速度変動が、界面ごく近傍における速度変動を誘発し高シュミット数での物質輸送を支配していることが分かる。これは、前節で触れた低シュミット数におけるオイラー法による計算結果とも一致する。

最後に、本研究で得られたガス交換係数を Fig. 14 に示す。ま

た、比較のために Hanratty⁽¹⁰⁾によって纏められた実験データと Calmet and Magnaudet⁽¹¹⁾による $Re_{\tau L} = 1280, Sc_L = 200$ における LESの結果も示す。今回の計算結果は、実験データに対して若干小さな値となっているが、良い一致を示していると言える。実験データによると、ガス交換係数 K^+ は、比較的広いレイノルズ数に渡って、ほぼ以下の式で書き表される。

$$K^+ = K / u_{\tau L} = 0.12 \sim 0.15 \cdot Sc^{-0.5} \quad (11)$$

Case1, Case2 双方ともに、ガス交換係数は $Sc^{-0.5}$ に比例し、値に大きな違いは見られなかった。これは、物質輸送が液側近傍の縦渦構造に支配されているためであり、気側のレイノルズ数の影響は小さいためであると考えられる。

6. 結言

気液界面乱流の速度場、スカラー濃度場の直接数値シミュレーションを行い以下の結論を得た。

1. 両相の密度比が非常に大きい場合、両相の乱流構造は界面近傍においても、各々の相の粘性長さで支配されている。
2. 自由界面では、界面鉛直方向速度乱れ成分と濃度乱れ成分の相関が高く、液側で生成される縦渦構造が、界面スカラー濃度束に大きく寄与している。
3. 気側界面ごく近傍 ($y_G^+ < 1$) において、液側の影響を強く受ける領域が見られた。具体的には、液側で起きる splating によって界面に向かう速度変動が生成され、同時に界面下から輸送された、低スカラー濃度が界面から分子拡散によって輸送される。そのため、この領域では、界面鉛直速度乱れとスカラー濃度乱れが負の相関を持つ領域が確認される。
4. 液側における縦渦構造は、界面ごく近傍の速度変動に大きく寄与しており、高シュミット数においても物質輸送を支配している。

参考文献

- (1) Lam, K., and Banerjee, S., "On the condition of streak formation in a bounded turbulent flow," *Phys. Fluids*, A4 (2), (1992), pp. 306-320.
- (2) Komori, S., Nagaosa, R., and Murakami, Y., "Turbulent structure and mass transfer across a sheared air-water interface in wind-driven turbulence," *J. Fluid. Mech.*, vol. 249, (1993), pp. 161-183.
- (3) Lombardi, P., Angelis, V. D., and Banerjee, S., "Direct Numerical Simulation of Near-Interface Turbulence in Coupled Gas-Liquid Flow," *Phys. Fluids*, Vol. 8, No. 6, (1996), pp. 1643-1665.
- (4) Nagaosa, R., "Direct numerical simulation of vortex structures and turbulent scalar transfer across a free surface in a fully developed turbulence," *Phys. Fluids*, Vol. 11, No. 6, (1999), pp. 1581-1595.
- (5) Papavassiliou, D., and Hanratty, T. J., "The use of Lagrangian methods to describe turbulent transport of heat from a wall," *Industrial Eng. Chem. Res.*, Vol. 34, (1995), pp. 3359-3367.
- (6) Sirkar, K. K., and Hanratty, T. J., "Relation of turbulent mass transfer to a wall at high Schmidt numbers to the velocity field," *J. Fluid. Mech.*, Vol. 44, part3, (1970), pp. 589-603.
- (7) McCready, M. J., and Hanratty, T. J., "Concentration fluctuations close to a gas-liquid interface," *AIChE J.*, Vlo. 30, No. 5, (1984), pp. 816-817.
- (8) Na, Y., Papavassiliou, D. V., and Hanratty, T. J., "Use of direct numerical simulation to study the effect of Prandtl number on temperature fields," *Int. J. Heat Mass Transfer*, Vol. 20, (1999), pp. 187-195.
- (9) Na, Y., and Hanratty, T. J., "Limiting behavior of turbulent scalar transport close to a wall," *Int. J. Heat Mass Transfer*, Vol. 43, (2000), pp. 1749-1758.
- (10) Hanratty, T. J., "Effect of gas flow on physical absorption," *Air-Water Gas Transfer*, ASCE (Civil Engineers), New York.
- (11) Calmet, I., and Magnaudet, J., "High Schmidt number mass transfer through turbulent gas-liquid interfaces," *Int. J. Heat Fluid Flow*, Vol. 19, (1998), pp. 522-532.

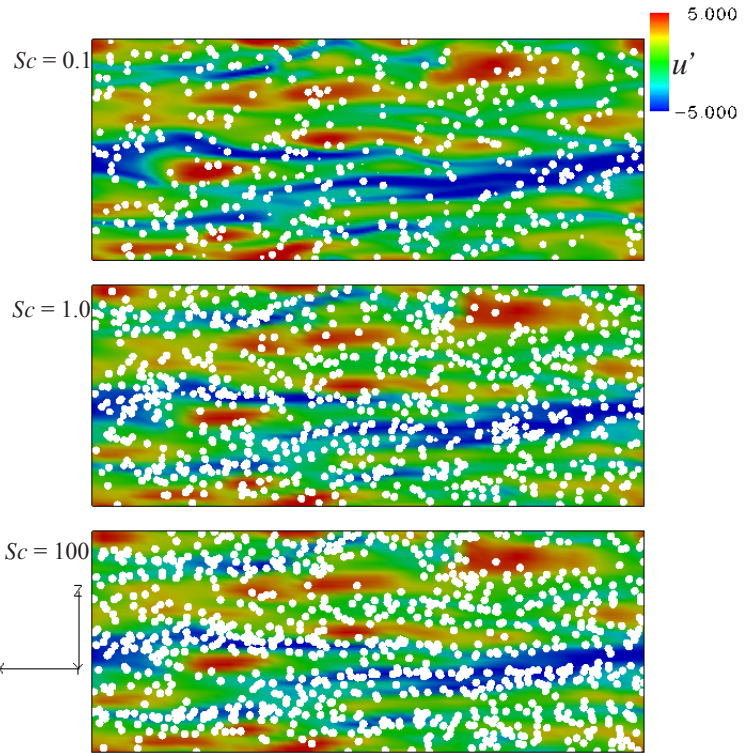


Fig. 12 Distributions of scalar markers at different Schmidt numbers

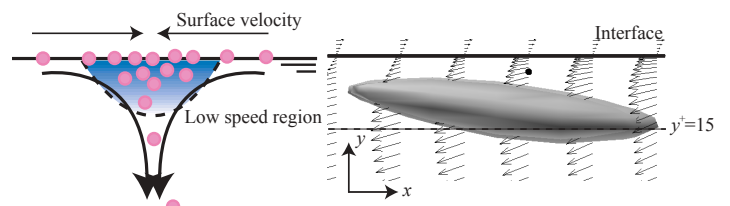


Fig. 13 Mechanism of mass transfer at high Schmidt numbers

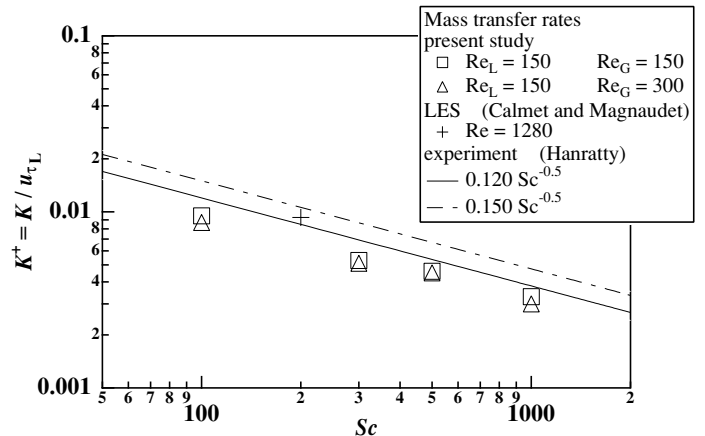


Fig. 14 Gas transfer rates at high Schmidt numbers