上昇気泡からの高シュミット数条件下における物質輸送の数値解析手法の開発

足立 理人^{*1}, 大森 健史^{*2}, 梶島 岳夫^{*3}Development of numerical method for mass transfer from a buoyant bubble
under a high Schmidt number conditionRihito ADACHI^{*1}, Takeshi OMORI^{*2} and Takeo KAJISHIMA^{*3}^{*1,*2,*3} Department of Mechanical Engineering, Osaka University
2-1 Yamadaoka, Suita-shi, Osaka 565-0871, Japan

Received 4 March 2016

Abstract

Under a high Schmidt number condition, concentration boundary layers get much thinner than momentum boundary layers. Resolution requirement to numerically capture the steep concentration gradient near an interface is therefore significantly high. This article presents a novel VOF-based method to predict mass transfer from gas-liquid interfaces using a computational grid of a marginal resolution required for the solution of the Navier-Stokes equation. The solution procedure to the mass conservation equation is divided into two steps: the dissolution and diffusion step and the advection step. The concentration profiles near gas-liquid interfaces, which are identified as segments (in case of two-dimensional computations) in each computational cell, are reconstructed in terms of the complementary error function by virtue of the boundary layer approximation to the solution of the unsteady advection-diffusion equation of mass. The amount of dissolution from the interfaces and diffusion in the vicinity of the interfaces is obtained by taking advantage of the reconstructed concentration profile on each interface segment. In the advection step, the un-smoothness of concentration profiles in the interface cells is explicitly taken into consideration by taking full advantage of a VOF advection scheme. The present method is validated in two-dimensional test problems with the Schmidt number of 100 which cover a pure diffusion problem and a mass transfer problem from a freely rising buoyant bubble. The validation shows the present method is capable of resolving a concentration boundary layer which is as thin as a computational cell. The reduction rate in the overall computational cost is $O(10^{-3})$ compared to one of the conventional methods (Ezu et al., 2011) without the subgrid-scale resolution.

Key words : Computational fluid dynamics, Multiphase flow, Volume-of-fluid method, Bubble, Mass transfer

1. 緒 言

液中の上昇気泡から気体成分を溶解させる操作は、多くの工業的分野において用いられ、例えば、水質浄化装置、反応装置や二酸化炭素の海洋隔離装置 (Kajishima et al., 1997) などの性能を決定づける。これらの装置において高い気体溶解効率を達成するためには、気泡の大きさ、形状、上昇速度、集団としての振る舞い等に加えて、気体の溶解・拡散・移流といった物質輸送の基礎過程に対する深い理解が必要となる。多数の気泡の相互干渉によって生じる複雑な流れおよび物質輸送を実験もしくは数学的な手法のみによって解析することは困難であるが、

No.16-00079 [DOI:10.1299/transjsme.16-00079], J-STAGE Advance Publication date : 15 June, 2016

^{*1} 正員, 大阪大学大学院 (〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1) (現 三菱電機 (株))

^{*2} 正員, 大阪大学工学研究科

^{*3} 正員, フェロー, 大阪大学工学研究科

E-mail of corresponding author: t.omori@mech.eng.osaka-u.ac.jp

数値計算による解析は領域全体で流れ場および濃度場の詳細な情報の取得を可能とし、種々の因子の効果を個別に調査可能であるため、有効な手段であるといえる。

多くの工業プロセスにおいて用いられる酸素や二酸化炭素といった難溶性気体では、気体の液相側における拡散係数 D_l と液体の動粘性係数 ν_l の比であるシュミット数 $Sc = \nu_l / D_l$ が大きく、液相側界面近傍に形成される濃度境界層は速度境界層と比較して薄くなる。数値解析においては、移流に加え、気体成分の溶解および薄い濃度境界層内での拡散過程を正しく再現することが要請される。

高シュミット数条件下における上昇気泡からの物質輸送の数値解析手法は、いまだ確立されているとはいえない。薄い濃度境界層を直接計算することは、計算コストの増大のため、複数の気泡を含む流れにおいては現実的ではない。そこで、Volume of Fluid (VOF) 法において得られる界面の幾何情報に基づいて界面近傍での物質輸送量を計算する手法が提案されている (Alke et al., 2010; Bothe and Fleckenstein, 2013) が、高シュミット数条件への適用に課題がある。また、Front Tracking 法を用いて、濃度境界層厚さをパラメータとして与え、境界層内に近似的な濃度分布を仮定して物質輸送量を計算する手法も提案されている (Aboulhasanzadeh et al., 2012; Aboulhasanzadeh et al., 2013)。しかし、仮定する濃度形状は気液界面からの距離の二次式で表される点、基準とする濃度境界層厚さに任意性がある点に問題がある。

本研究では、高シュミット数条件下において、速度場の解析に必要な程度の格子解像度で、濃度境界層が薄い状況下においても気体成分の溶解・拡散量を高精度に計算可能な手法の開発をおこなう。濃度場の移流には VOF 法を基にした得津ら (2011) の手法と三次精度 MUSCL 法を連成した手法を採用し、気体成分の溶解量および濃度境界層内での拡散量を境界層近似解に基づき算出する手法を新たに提案する。

本論文では、提案手法を二次元静止気泡周囲の物質拡散問題に対して適用し、濃度境界層が計算セルの幅に満たない状況下においても気体成分の溶解・拡散量を高精度に計算可能であることを示す。また、二次元上昇気泡周囲濃度場の解析に対して、提案手法を用いた低格子解像度の計算精度が従来手法による高格子解像度の計算に匹敵することを示す。

主 な 記 号

t	時間
$\boldsymbol{v}$	流速
p	静圧
$\boldsymbol{g}$	重力加速度
ρ	流体密度
μ	流体粘度
f	液相体積率
c	気体成分濃度
D_l	液相内における気体成分の物質拡散係数
χ	界面からの距離
ψ	界面法線方向を表す角度
δ	各界面セルにおいて求められる濃度境界層厚さ
m	計算格子の解像度比

上添字

$()^n$ 時間ステップ

下添字

$()_{i,j}$ 計算セルの空間インデックス

$()_{g,l}$ 気相または液相

2. 計 算 手 法

2.1 基礎方程式

液相および気相は非圧縮ニュートン流体とし、各相における流体の運動は以下の連続の式および運動量保存式にしたがう。

$$\nabla \cdot \mathbf{v} = 0 \quad (1)$$

$$\frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla \mathbf{v} = -\frac{1}{\rho} \nabla p + \frac{1}{\rho} \nabla \cdot [\mu \{ \nabla \mathbf{v} + (\nabla \mathbf{v})^T \}] + \frac{1}{\rho} \mathbf{f}_s + \mathbf{g} \quad (2)$$

t は時間、 $\mathbf{v}$ は流体の速度、 p は静圧、 $\mathbf{g}$ は重力加速度、 ρ は流体の密度、 μ は流体の粘度であり、表面張力の影響は体積力として $\mathbf{f}_s$ と表している。

また、液相内における気体成分濃度 c_l は以下の移流拡散方程式にしたがう。

$$\frac{\partial c_l}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla c_l = D_l \nabla^2 c_l \quad (3)$$

D_l は液相内における気体成分の物質拡散係数である。気体成分の溶解に伴う気相の体積変化については考慮せず、物質量の保存は液相内においてのみ考えることとする。また、各物性値は気相成分の濃度に依存しないものとする。

気液界面を捕獲する手法である VOF 法においては、各計算セルにおいて液相体積率 f を定義する。液相で満たされたセルにおいては $f = 1$ 、気液界面が存在するセルにおいては $0 < f < 1$ 、気相で満たされたセルにおいては $f = 0$ となる。液相体積率 f は以下の移流方程式にしたがう。

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla f = 0 \quad (4)$$

提案する物質輸送モデルにおいては気液界面位置が幾何学的に一意に定まっている必要があるので、界面の再構成には mixed Youngs-centered method (Aulisa et al., 2007) を、移流には split Lagrangian-explicit scheme (Gueyffier et al., 1999) (LE 法) を採用しており、本論文においては、計算格子は直交等間隔であることを前提としている。なお、本論文では扱っていないが、気相体積変化を伴う流れに対する VOF 法との組み合わせにおいても本手法の物質量に対する保存性が損なわれることはない。

式(2)において用いる流体の密度 ρ は、液相体積率 f と、液相の密度 ρ_l および気相の密度 ρ_g を用いて各計算セルで以下の式によって定義する。

$$\rho = f\rho_l + (1-f)\rho_g \quad (5)$$

同様に、粘度 μ は、液相体積率 f と、液相の粘度 μ_l および気相の粘度 μ_g を用いて各計算セルで以下の式によって定義する。

$$\mu = f\mu_l + (1-f)\mu_g \quad (6)$$

なお、気泡レイノルズ数 Re_b およびシュミット数 Sc はそれぞれ以下のように定義する。

$$Re_b = \frac{\rho_l D U_{term}}{\mu_l} \quad (7)$$

$$Sc = \frac{\mu_l}{\rho_l D_l} \quad (8)$$

ただし、 D は気泡の等価直径、 U_{term} は気泡の終端速度である。

2.2 計算手順の概要

速度と圧力のカップリングには部分段階法を用いる。式(3)の時間発展は、得津ら(2011)と同様に溶解・拡散ステップと移流ステップに分離することによっておこなう。本研究では、液相内においてのみ濃度場の計算をおこなうので、液相側から見た境界条件として気液界面上で飽和濃度 c_0 を与える。 c_0 は、気相の分圧 p_g および

Henry 数 H を用いて $c_0 = p_g/H$ と定められるが、本論文の計算範囲内においては、等温であり、流体運動や表面張力、気泡の上昇に伴う圧力の変化は十分小さいため、 c_0 は一定としている。

溶解・拡散ステップにおいては、気液界面上の濃度を $c_l = c_0 = \text{const.}$ であるとして以下の拡散方程式を解くことによって、気体成分の界面からの溶解および液相内での拡散を計算する。

$$\frac{\partial c_l}{\partial t} = D_l \nabla^2 c_l \quad (9)$$

移流ステップにおいては、気液界面付近では得津ら (2011) や Davidson と Rudman (2002) と同様の手法を用いて、バルク領域では三次精度 MUSCL 法を用いて界面の移動に整合するように以下の移流方程式を解く。

$$\frac{\partial c_l}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla c_l = 0 \quad (10)$$

以下に時間 t^n から t^{n+1} に時間刻み幅 Δt だけ進行する手順を示す。

1. 気体成分の溶解・拡散を 2.3.2 で詳述する手法によって計算し、 $\tilde{c}_l^n$ を求める (溶解・拡散ステップ)。
2. 液相体積率 f^n の移流を 2.1 節で説明した手法によって、溶解・拡散ステップ後の濃度 $\tilde{c}_l^n$ の移流を 2.3.3 で詳述する手法によって計算し、 f^{n+1} および c_l^{n+1} を求める (移流ステップ)。
3. 式 (5) および式 (6) から ρ^{n+1} および μ^{n+1} を求める。
4. 表面張力 f_s を、Continuum Surface Force モデル (Brackbill et al., 1992) における識別関数としてレベルセット関数を用いる手法 (Sussman and Puckett, 2000) を用いて計算する。
5. 圧力項を除いた式 (2) の離散式から部分段階速度 $\mathbf{v}^F$ を計算する。
6. 圧力方程式

$$\nabla \cdot \left(\frac{1}{\rho^{n+1}} \nabla p^{n+1} \right) = \frac{1}{\Delta t} \nabla \cdot \mathbf{v}^F \quad (11)$$

を解き、得られた p^{n+1} を用いて以下のように部分段階速度を修正することで、式 (1) を満たす速度 $\mathbf{v}^{n+1}$ を得る。

$$\mathbf{v}^{n+1} = \mathbf{v}^F - \frac{\Delta t}{\rho^{n+1}} \nabla p^{n+1} \quad (12)$$

2.3 物質輸送モデル

提案する溶解・拡散モデルは、高シュミット数条件下における境界層近似 (Stewart et al., 1970; Bird et al., 2002) に基づいており、各計算セルで切り取られた微小気液界面要素ごとに、要素法線方向に対して境界層近似解と似た濃度分布を用いて、気体の溶解量および気液界面近傍における拡散量を計算する。また、提案する溶解・拡散モデルを用いる際には、急勾配の濃度分布を高精度に移流するために、気液界面付近においては LE 法を、バルク領域においては三次精度の MUSCL 法を採用する。ここでは、境界層近似および、時間 t^n から t^{n+1} に進行する際の溶解・拡散ステップと移流ステップのアルゴリズムについて説明する。

2.3.1 境界層近似

液相内の気液界面近傍において次の四つの仮定をおこなう。

- 仮定 1 薄い濃度境界層内において溶解気体の拡散による流束は最も近い界面上での単位法線ベクトルと平行である
 仮定 2 薄い濃度境界層内において溶解気体の対流による流束は無視できる
 仮定 3 界面に沿った濃度境界層厚さは局所界面曲率半径に対して薄い
 仮定 4 濃度境界層は互いに重ならない

これらの仮定の下で式 (3) は以下のように簡略化される。

$$\frac{\partial c_l}{\partial t} - \left(\chi \frac{\partial \ln s}{\partial t} \right) \frac{\partial c_l}{\partial \chi} = D_l \frac{\partial^2 c_l}{\partial \chi^2} \quad (13)$$

$$s = s(u, w, t) = \left| \frac{\partial \mathbf{r}_S}{\partial u} \times \frac{\partial \mathbf{r}_S}{\partial w} \right| \quad (14)$$

Fig. 1 Definition of a local coordinate on an interface segment.

ここで, χ は気液界面からの距離を, u および w は界面に沿った座標を, r_s はその座標における位置ベクトルを表す. この方程式の解析解は, 初期に液相内全域で $c_l = 0$, 気液界面上 ($\chi = 0$) で $c_l = c_0 = \text{const.}$ という条件の下で以下のように求められる.

$$\frac{c_l}{c_0} = \text{erfc}\left(\frac{\chi}{\delta(u, w, t)}\right) \quad (15)$$

$$\delta(u, w, t) = \sqrt{4D_l \int_0^t \left[\frac{s(u, w, \bar{t})}{s(u, w, t)} \right]^2 d\bar{t}} \quad (16)$$

ここで, c_0 は液相側気液界面における濃度, erfc は相補誤差関数であり, δ は濃度境界層厚さを表す関数である. したがって, 境界層近似が成り立つ範囲において濃度分布は濃度境界層厚さをパラメータとする相似形になることがわかる.

2.3.2 溶解・拡散ステップ

ここでは, 図示の簡単のために二次元の場合を考える.

1. 図1のような気液界面付近の計算セルにおいて, 気相から液相へ向かう界面法線方向に座標 χ (気液界面上で $\chi = 0$ とする) を定義し, 気液界面付近において χ 方向に溶解気体濃度分布 $c_l(\chi)$ を以下のように仮定する.

$$c_l(\chi) = c_0 \text{erfc}\left(\frac{\chi}{\delta}\right) \quad (17)$$

ただし, χ および δ は気液界面を有する計算セルごとに定義し, 界面法線方向は界面の幾何学的再構成を行う際に与えられる. $c_0 = \text{const.}$ は気液界面上における溶解気体濃度であり, 境界条件として与える. δ は濃度境界層厚さを表し, 現時点では未知数である.

2. 未知数である δ を定める前段階として, 次式を満たす δ' をニュートン法を用いて求める.

$$L \left[\int_0^\Delta c_0 \text{erfc}\left(\frac{\chi}{\delta'}\right) d\chi \right] = \Sigma N \quad (18)$$

Δ は濃度境界層を包含するよう定めればよく, 高シュミット数条件下では小さな値で十分である. 本論文では, 3.2 節で後述するが, 上昇する気泡表面に発達する最大濃度境界層厚さを包含するように $5\Delta x$ としている. 長さ L および溶解気体量の近似値 ΣN の与え方については, χ 軸と x 軸のなす角度 ψ ($-\pi \leq \psi < \pi$) の値によって場合分けをおこなう. 対称性から, 以下の2つの場合について考えればよい. $-\pi/9 \leq \psi \leq \pi/9$ の場合には, 図2 (Case 1) に示すように L および ΣN は以下のように与える.

$$L = \Delta y \quad (19)$$

$$\Sigma N = N_{i,j}^n + N_{i+1,j}^n + N_{i+2,j}^n + N_{i+3,j}^n + N_{i+4,j}^n \quad (20)$$

Δy は y 方向の格子幅, $N_{i,j}^n$ はセル (i, j) が有する溶解気体量であり, ΣN は図2 (Case 1) の二重斜線部に存在する溶解気体量である. また, $\pi/9 < \psi < 7\pi/18$ の場合には, 図2 (Case 2) に示すように L および ΣN は以下のように与える.

$$L = \sqrt{(\Delta x)^2 + (\Delta y)^2} \quad (21)$$

Fig. 2 Schematic of the cell arrangements for the evaluation of the RHS of Eq. (18): $-\pi/9 \leq \psi \leq \pi/9$ for Case 1 and $\pi/9 < \psi < 7\pi/18$ for Case 2.

$$\begin{aligned} \Sigma N = & \frac{1}{2}(N_{i,j-1}^n + N_{i-1,j}^n) + N_{i,j}^n + \frac{1}{2}(N_{i+1,j}^n + N_{i,j+1}^n) \\ & + N_{i+1,j+1}^n + \frac{1}{2}(N_{i+2,j+1}^n + N_{i+1,j+2}^n) + N_{i+2,j+2}^n \\ & + \frac{1}{2}(N_{i+3,j+2}^n + N_{i+2,j+3}^n) + \frac{1}{2}N_{i+3,j+3}^n \end{aligned} \quad (22)$$

Δx および Δy はそれぞれ x および y 方向の格子幅であり、 ΣN は図 2 (Case 2) 中の二重斜線部に存在する溶解気体量の近似である。このようにして与えた L および ΣN に対して、気液界面を有するそれぞれの計算セルにおいて式 (18) を δ' について解く。場合分けの閾値となる ψ の値には 0 より大きく $\pi/4$ より小さい値を用いればよい。本論文で $\pi/9$ という特定の値を用いているのは、3.1 節の図 8 からわかるように、球形気泡の計算において球直径に対し 20 という格子解像度を用いたとき、界面セルの分布が格子方向に沿わなくなる角度が概ね $\pi/9$ となるからである。

3. セル (i, j) と辺および頂点を共有する合計 8 個のセルとセル (i, j) 自身のうち、気液界面が存在するセルにおいて算出した δ' を平均することによって、 δ を定める。例えば、図 2 (Case 1) の場合には、セル (i, j) とその上下のセルで δ' が求められているので、

$$\delta_{i,j}^n = \frac{1}{3}(\delta_{i,j-1}^n + \delta_{i,j}^n + \delta_{i,j+1}^n) \quad (23)$$

のように定める。また、図 2 (Case 2) の場合には以下のように定める。

$$\delta_{i,j}^n = \frac{1}{5}(\delta_{i,j-1}^n + \delta_{i+1,j-1}^n + \delta_{i-1,j}^n + \delta_{i,j}^n + \delta_{i-1,j+1}^n) \quad (24)$$

このようにして、気液界面を有する全セルにおいて濃度境界層厚さ δ を定める。ただし、最初期の時間ステップにおいては液相に溶解気体が存在しないので、一次元拡散方程式の解析解から

$$\delta^1 = \sqrt{4D_l \Delta t} \quad (25)$$

と与える。ここまでの手順で、気液界面を有する全セルにおいて、気液界面近傍の液相側濃度分布が定まる。

4. 気液界面からの気体の溶解量および、気液界面付近のセル界面における拡散による物質移動量を、式 (17) で表される濃度分布を用いて計算する。例えば図 3 のように $0 \leq \psi < \pi/2$ の場合には、セル (i, j) における気液

Fig. 3 Mass diffusion calculated from the concentration profile in cell (i, j) in the case of $0 \leq \psi < \pi/2$.

界面からの気体の溶解量 $F_{i,j}^n|_{int}$ は以下のように計算する．

$$F_{i,j}^n|_{int} = L_{i,j}^n|_{int} \Delta t D_l \left(- \frac{dc_l(\chi)_{i,j}}{d\chi} \Big|_{AB} \right) \quad (26)$$

ここで、 $L_{i,j}^n|_{int}$ はセル (i, j) における気液界面の長さであり、幾何学的に再構成された界面の線分長さとして求められる．また、セル (i, j) 付近のセル界面における拡散による物質移動量はそれぞれ以下のように計算する．

$$\left. \begin{aligned} F_{i+1/2,j}^n &= \Delta t D_l \int_{y_B}^{y_C} \left(- \frac{\partial c_l(\chi)_{i,j}}{\partial x} \Big|_{BC} \right) dy \\ F_{i+3/2,j}^n &= \Delta t D_l \int_{y_H}^{y_G} \left(- \frac{\partial c_l(\chi)_{i,j}}{\partial x} \Big|_{HG} \right) dy \\ F_{i+1/2,j+1}^n &= \Delta t D_l \int_{y_C}^{y_E} \left(- \frac{\partial c_l(\chi)_{i,j}}{\partial x} \Big|_{CE} \right) dy \\ F_{i+3/2,j+1}^n &= \Delta t D_l \int_{y_G}^{y_F} \left(- \frac{\partial c_l(\chi)_{i,j}}{\partial x} \Big|_{GF} \right) dy \\ F_{i,j+1/2}^n &= \Delta t D_l \int_{x_A}^{x_C} \left(- \frac{\partial c_l(\chi)_{i,j}}{\partial y} \Big|_{AC} \right) dx \\ F_{i+1,j+1/2}^n &= \Delta t D_l \int_{x_C}^{x_G} \left(- \frac{\partial c_l(\chi)_{i,j}}{\partial y} \Big|_{CG} \right) dx \\ F_{i,j+3/2}^n &= \Delta t D_l \int_{x_D}^{x_E} \left(- \frac{\partial c_l(\chi)_{i,j}}{\partial y} \Big|_{DE} \right) dx \\ F_{i+1,j+3/2}^n &= \Delta t D_l \int_{x_E}^{x_F} \left(- \frac{\partial c_l(\chi)_{i,j}}{\partial y} \Big|_{EF} \right) dx \end{aligned} \right\} \quad (27)$$

なお、点 A の座標を (x_A, y_A) のように表している．式 (27) における積分は台形公式により数値的に行い、被積分関数は $\partial c_l / \partial x = \cos \psi dc_l / d\chi$ 及び $\partial c_l / \partial y = \sin \psi dc_l / d\chi$ の関係において、幾何学的に再構成された界面（図 3 の例では線分 AB）を含む直線への距離を χ とすることにより求める． $-\pi \leq \psi < -\pi/2$ 、 $-\pi/2 \leq \psi < 0$ 、 $\pi/2 \leq \psi < \pi$ の場合においても、それぞれの方向に対して溶解気体量およびセル界面における拡散による物質移動量を、対称性を考慮して同様に計算する．気液界面を有するそれぞれのセルに対して式 (27) のように計算するため、拡散による物質移動量が複数回計算されるセル界面（例えば図 3 の $(i+1/2, j+1)$ など）が生じる．一つのセル界面に対して複数回計算された拡散による物質移動量は絶対値が最大のものを採用する．

Fig. 4 Choice of the advection schemes near an interface segment. Amount of advected mass is calculated direction-wise. The indices LE and MU indicate the values calculated by LE method and $MUSCL$ method respectively.

5. ここまでの手順では，気液界面から離れており拡散による物質移動量を計算していないセル界面が存在する．そのようなセル界面における拡散による物質移動量は式(9)を差分法により解くことによって計算する．離散化には，空間に対して二次精度中心差分法，時間に対して二次精度 Crank-Nicolson 法を用いる．
6. 各計算セルにおける溶解気体量の時間 Δt あたりの増分 $\Delta N_{i,j}^n$ を以下のように計算する．

$$\Delta N_{i,j}^n = F_{i,j}^n|_{int} + F_{i-\frac{1}{2},j}^n - F_{i+\frac{1}{2},j}^n + F_{i,j-\frac{1}{2}}^n - F_{i,j+\frac{1}{2}}^n \quad (28)$$

気液界面を有していないセルにおいては $F_{i,j}^n|_{int}$ はゼロとなり，気相のみを有するセルの界面における拡散による物質移動量もゼロとなる．図3の例では $F_{i-\frac{1}{2},j}^n$ および $F_{i,j-\frac{1}{2}}^n$ がゼロである． $\Delta N_{i,j}^n$ を用いて溶解・拡散ステップ後の溶解気体量 $\tilde{N}_{i,j}^n$ および液相中の溶解気体成分濃度 $\tilde{c}_{l,i,j}^n$ を以下のように計算する．

$$\tilde{N}_{i,j}^n = N_{i,j}^n + \Delta N_{i,j}^n \quad (29)$$

$$\tilde{c}_{l,i,j}^n = \frac{\tilde{N}_{i,j}^n}{f_{i,j}^n \Delta x \Delta y} \quad (30)$$

式(9)の時間発展解を求めるための以上の手続きにおいて，各計算セル界面での物質拡散流束は常に1種類の方法によって算出しており，保存性は損なわれていない．

2.3.3 移流ステップ

提案する溶解・拡散手法を用いる際には，急勾配の濃度分布を高精度に移流するために，気液界面付近においては LE 法を，バルク領域においては三次精度の $MUSCL$ 法を採用する．

移流は座標方向ごとにおこない，順序を時間進行の度に交換する．ここでは，図4に示すような x 方向の移流を考える． $\tilde{c}_l$ や F の右上添字 LE および MU は，それぞれ LE 法および $MUSCL$ 法によって $\tilde{c}_l$ から求められる値であることを示す．例えば，計算セル i における移流ステップ後の濃度 $c_{l,i}^{n+1}$ は以下のように計算する．

$$c_{l,i}^{n+1} = \tilde{c}_{l,i}^{n,LE} + F_{i-\frac{1}{2}}^{n,LE} - F_{i+\frac{1}{2}}^{n,LE} \quad (31)$$

このように，気液界面付近の計算セル境界における濃度の移流（点線矢印）には LE 法を，気液界面から離れた計算セル境界における濃度の移流（実線矢印）には三次精度の $MUSCL$ 法を用いて計算する．

3. 物質輸送モデルの検証

流れ場の解析は直交等間隔格子を用いた有限差分法によっておこなう．式(2)の離散化にはスタガード格子を用い，空間に対して二次精度中心差分法を，時間に対して対流項に二次精度 Adams-Bashforth 法を，粘性項に二次精度 Crank-Nicolson 法を用いる．

Fig. 5 Computational domain for the time-dependent diffusion problem in 3-1: Gaseous phase is centered at (x_b, y_b) . $(x_b, y_b) = (2D, 2D)$ for Case 1 and $(x_b, y_b) = (2D - 0.5\Delta x, 2D - 0.5\Delta y)$ for Case 2.

3-1 二次元静止気泡周囲の物質拡散

提案手法を二次元静止気泡周囲の物質拡散問題に対して適用した計算の結果を解析解と比較し、提案手法が計算セルの幅に満たない濃度境界層内における物質輸送を解析可能であることを示す。この検証においては式(1)および(2)は解かず、気体の溶解・拡散のみを扱う。

図5に示す計算領域において、次の二次元拡散方程式を提案手法によって計算した結果を解析解と比較する。

$$\frac{\partial c_l}{\partial t} = D_l \left(\frac{\partial^2 c_l}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 c_l}{\partial y^2} \right) \quad (32)$$

計算は、円形気泡の中心が $(x_b, y_b) = (2D, 2D)$ の Case 1 と、 $(x_b, y_b) = (2D - 0.5\Delta x, 2D - 0.5\Delta y)$ という Case 2 の2通りの場合についておこなう。初期条件として気泡外部で $c_l = 0$ を与え、境界条件として気液界面上で $c_l = c_0 = 1$ を、気液界面から十分離れた計算領域境界上で $c_l = 0$ を与える。パラメータとして、気泡直径 $D = 1\text{mm}$ 、格子幅 $\Delta x, \Delta y = 0.05\text{mm}$ 、拡散係数 $D_l = 1 \times 10^{-8}\text{m}^2/\text{s}$ を与える。なお、気泡直径に対する格子数 $D/\Delta x = 20$ という解像度は3-2節での本提案手法による計算においても用いる。解析解は、以下の条件の下で式(32)を $c_l = c_l(r, t)$ について解くことで求める。ただし、気泡中心を原点として r は原点からの距離、 R は気泡半径である。

$$\begin{cases} c_l(R, t) = c_0 = \text{const.} \\ c_l(\infty, t) = 0 \\ c_l(r, 0) = 0 \end{cases} \quad (33)$$

図6は、原点Oを通る水平方向の直線上の濃度分布である。横軸 x は原点Oからの x 方向座標である。曲線は式(32)の解析解を、塗りつぶされたボックスは解析解におけるセル体積平均値を、破線のボックスは提案手法を用いた場合における溶解気体濃度のセル体積平均値を表す。横軸 x は原点Oからの距離を、縦軸は濃度を表している。図6(a)および(b)は、気泡の中心位置が $(x_b, y_b) = (2D, 2D)$ の場合(Case 1)における計算結果であり、 $x = 0.5\text{mm}$ の位置に気液界面が存在するものとして解析解による濃度分布を示している。同図の計算結果においては、 $0.45\text{mm} < x < 0.50\text{mm}$ のセルにおいて液相がわずかに存在しているためにセル体積平均濃度は1よりも小さくなっている。これは、矩形格子を用いて気液界面を切り取っているために生じたものであり、提案手法の適用によって生じた問題ではない。図6(c)および(d)は、気泡の中心位置が $(x_b, y_b) = (2D - 0.5\Delta x, 2D - 0.5\Delta y)$ の場合(Case 2)における計算結果であり、 $x = 0.475\text{mm}$ の位置に気液界面が存在するものとして解析解による濃度分布を示している。それぞれの計算結果において、濃度境界層内部におけるセル体積平均濃度は、相対誤差3%以内で解析解と一致している。また、図6(a)および(c)では濃度境界層厚さが1セル程度の時間においても濃度場は解析解と良好に一致している。

Fig. 6 Concentration profiles of the exact solution and the present numerical solution on the horizontal line passing through the bubble center: (a) Case 1 at 0.02 sec, (b) Case 1 at 0.2 sec, (c) Case 2 at 0.02 sec, (d) Case 2 at 0.2 sec. The solid lines show the analytic profile of Eq. (32), the solid line boxes show the cell averaged concentration values of the analytic solution and the dashed line boxes show cell the averaged concentration values calculated from the present model. The present model well predicts the concentration distribution in the concentration boundary layer whose thickness is no larger than the computational cell width even when the gas-liquid interface position is not symmetric to the computational cells.

Fig. 7 Concentration profiles of the exact solution and the present numerical solution on the line $\theta = \pi/4$ for the Case 1: (a) at 0.02 sec (b) at 0.2 sec. The solid lines show the analytic profile of Eq. (32) and the dashed line boxes show the cell averaged concentration values calculated from the present model. The present model well predicts the concentration distribution in the direction which is not parallel to the grid lines (See also Fig. 8).

図7は円形気泡の半径方向と x 軸とのなす角度 $\theta = \pi/4$ の方向の濃度分布を示しており、横軸は原点 O からの距離である。同図から分かるように $\theta = \pi/4$ の方向に対しても解析解と良好に一致している。なお、溶解量算出における場合分けは濃度分布の等方性に大きな影響を与えておらず、濃度境界層厚さは界面に沿って一様であることが図8に示す等高線図から分かる。濃度が0または1に近い値の濃度等高線が円形でないのは、濃度が0または1となる計算セルが階段状に配置されていることの影響を受けるためである。

Fig. 8 Contours of the concentration and the concentration boundary layer thickness at 0.02 sec for the Case 1. The dotted lines represent the computational grid. The concentration boundary layer thickness is defined only in the interface cells and given zero elsewhere (not used in the calculations). The locations of the variables, which affect the appearance of the contours, are chosen to be the cell centers for the simplicity of the visualization.

Fig. 9 Total amount of gas dissolved in the liquid normalized by the initial amount of gas in the bubble. The relative error of the computed value to the exact one is less than 3% even at the beginning of the dissolution process.

図9は液相内の溶解気体量の時間変化を示している．横軸は時間 [sec]，縦軸は初期の気泡内に存在する気体量で規格化した溶解気体量である．解析解と計算結果との間の相対誤差は全ての時間において3%以内である．このように，濃度境界層厚さが1セルに満たない計算開始直後においても溶解・拡散量を良好に計算できることが提案手法の利点である．

3.2 二次元上昇気泡からの物質輸送

提案手法を二次元上昇気泡周囲の濃度場解析に適用した結果を得津ら(2011)の手法を用いた高格子解像度の計算結果と比較し，提案手法は粗い計算格子を用いた場合であっても，高解像度計算に匹敵する精度で濃度場を解析可能であることを示す．

上昇気泡周囲の濃度場解析に対して，初期気泡径に対する格子数 $D/\Delta x = 20$ の解像度において提案手法を用いた計算を，得津ら(2011)の手法を用いた高解像度計算と比較する．計算に用いる領域を図10に，パラメータを表1に示す． m は解像度比を表しており，得津らの手法を用いた計算においては1から12の値を用いる．気泡レ

Table 1 Numerical parameters.

Initial bubble diameter	[m]	D	1×10^{-3}
Grid width	[m]	$\Delta x, \Delta y$	$5 \times 10^{-5}/m$
Cells per diameter	[—]	$D/\Delta x$	$20m$
Liquid phase density	[kg/m ³]	ρ_l	1×10^3
Gaseous phase density	[kg/m ³]	ρ_g	1
Liquid phase viscosity	[kg/(m·s)]	μ_l	1×10^{-3}
Gaseous phase viscosity	[kg/(m·s)]	μ_g	2×10^{-5}
Gravitational acceleration	[m/s ²]	g	2.025
Surface tension	[kg/s ²]	σ	4.5×10^{-4}
Diffusivity	[m ² /s]	D_l	1×10^{-8}
Schmidt number	[—]	$Sc = \mu_l/(\rho_l D_l)$	1×10^2
Bubble Reynolds number	[—]	$Re_b = (\rho_l U_{\text{term}} D)/\mu_l$	29

Fig. 10 Computational domain and the initial bubble shape and position for the mass transfer problem in 3-2. Slip wall conditions are imposed on all boundaries.

イノルズ数 Re_b には、代表速度として気泡の終端速度 U_{term} を用いている．解像度比 m を 1 から 12 に変化させた際の気泡の終端速度の相対誤差は $O(10^{-3})$ 程度であり、 $D/\Delta x = 20$ は流れ場の解析には十分な解像度であるといえる．また、気泡後端での濃度境界層厚さは $\sqrt{D_l D/U_{\text{term}}} = D/\sqrt{Re_b Sc}$ 程度となるので、式 (18) における積分範囲の上端として $5\Delta x = D/4$ は十分な大きさであるといえる．なお、重力加速度 g や表面張力係数 σ 等の決定に際しては、変形しながら上昇する気泡周囲の流れが層流となるように、モルトン数 $M = g\mu_l^4(\rho_l - \rho_g)/(\rho_l^2 \sigma^3)$ 、エトベス数 $EO = g(\rho_l - \rho_g)D^2/\sigma$ および気泡レイノルズ数 $Re_b = \rho_l D U_{\text{term}}/\mu_l$ という三つの無次元数を用いて整理された実験結果 (Clift et al., 1978) を参考に行っている．

図 11 は、気泡の上昇速度が一定となった時間 0.18sec における溶解気体濃度分布をカラーマップで示している．図 11 (a) は $m = 1$ の解像度における提案手法を用いた計算の結果、図 11 (b) は $m = 12$ の解像度における得津らの手法を用いた計算の結果である．同図 (a) と (b) において、気泡の後流領域の濃度分布に相違が見られる．この相違はバルク領域における濃度の移流計算に対する解像度不足によって生じている．図 12 は、 $y = 5.5\text{mm}$ の気泡後流領域における水平方向の、時間 0.18sec での濃度分布を示している．十字の点は得津らの手法を用いた

Fig. 11 Concentration distribution of the dissolved gas in the liquid phase at 0.18 sec. The shown value of the concentration is an averaged value in each computational cell. The rise velocity of the bubble reached the terminal velocity by 0.18 sec: (a) Present model, $m = 1$ (b) Ezu model, $m = 12$. The diffused concentration profile in the wake region computed by the present model is purely due to the low spacial resolution in the region away from the gas-liquid interface. The spacial resolution has an impact on the accuracy of the calculation of the advection equation in the bulk region.

Fig. 12 The concentration profiles along the horizontal line at $y = 5.5$ mm through the wake of the bubble at 0.18 sec. Doubling the spacial resolution ($m = 2$) gives a comparable result to the calculation by Ezu model with $m = 12$ spacial resolution. The reduction of the computational cost by the present model is still significant.

$m = 12$ の解像度，四角の点および三角の点はそれぞれ提案手法を用いた $m = 1$ および $m = 2$ の解像度における計算結果である．同図において $m = 2$ の解像度でバルク部の濃度分布は良好な結果が得られていることから，提案手法を用いた計算は $m = 12$ の解像度の計算に対してはるかに少ない格子分割数で可能であるといえる．

図 13 は，液相内の溶解気体量の時間変化を示している．横軸は時間 [sec]，縦軸は初期の気泡内に存在する気体量で規格化した溶解気体量である．実線は提案手法を用いた計算の結果を，点は得津らの手法を用いた場合に解像度比 m を 1 から 12 で変化させた計算の結果である．計算初期には気液界面近傍に形成される濃度境界層が計算格子で捉えられる厚さではないために，得津らの手法を用いた計算においては溶解速度が小さく見積もられる．得津らの手法（一次精度であることを確認している）を用いた計算の結果に対して Richardson 補外を適用することによって $m = 12$ での五次精度の近似値を求め，その近似値から 0.11sec 以降の平均溶解速度を求めると 2.260/sec

Fig. 13 Total amount of gas dissolved from the buoyant bubble normalized by the initial amount of gas in the bubble. The solid line shows the result by the present model and the symbols by the Ezu model.

Fig. 14 Concentration profiles calculated from the present and the Ezu model at 0.16 sec: (a) Concentration profile along the vertical line passing through the bubble center (b) Concentration profile along the horizontal line passing through the bubble center.

となる．提案手法を用いた計算における 0.11sec 以降の平均溶解速度（図 13 の実線の傾き）は 2.194/sec であるので， $m = 12$ での平均溶解速度の近似値と 3% 以内の相対誤差で一致している．なお，計算開始直後にグラフが上に凸，すなわち溶解速度が大きくなっているが，図 9 や既往の研究（Bothe and Fleckenstein, 2013; Aboulhasanzadeh et al., 2012）にも同様の傾向が見られる．計算初期のような濃度境界層が薄い状況であっても提案手法は溶解・拡散量を精度よく計算可能である．

図 14 は時刻 0.16sec における気液界面付近の濃度分布を示しており，十字の点は $m = 12$ の解像度における得津らの手法を用いた計算の結果，ボックスは $m = 1$ の解像度における提案手法を用いた計算の結果である．同図 (a) は，気泡の重心を通る鉛直方向の直線に沿った濃度分布を，同図 (b) は，気泡の重心を通る水平方向の直線に沿った濃度分布を示している．図 14 (a) においては， $6.2\text{mm} \leq y \leq 6.25\text{mm}$ のセルに気液界面が存在し，図 14 (b) においては， $2.6\text{mm} \leq x \leq 2.65\text{mm}$ のセルに気液界面が存在する．提案手法では濃度境界層が薄い状況下においても気体の溶解・拡散を良好に計算できていることがわかる．

提案手法を用いた計算の結果は，気体溶解速度や気泡周囲の濃度分布に関して高解像度計算の結果と良好な一致を示している．本論文で示したような気液界面挙動が複雑でない計算範囲では，2.3.1 で説明した境界層近似解を用いて気泡からの物質輸送を解析することは妥当であるといえる．

本節における計算には，Intel Xeon E5-2670v2 プロセッサの 10 コアを用いた．0.18sec までの計算に対して，提案手法を用いた $m = 1$ の解像度では約 19 分，得津らの手法を用いた $m = 12$ の解像度では約 24 日の時間を要した．このように，提案手法を用いた計算は，従来法によって同程度の結果が得られる高解像度計算の 1/1800 程度のコストで可能である．

4. 結 言

高シュミット数条件下において，速度場の解析に必要な程度の格子解像度で，上昇気泡からの物質輸送を高精度に解析することが可能な計算手法を開発した．この手法は，液相側気液界面近傍に仮定した境界層近似解と相似な形状の濃度分布に基づいて，気体成分の溶解量および薄い濃度境界層内での拡散量を計算する．また，濃度分布の移流には気液界面付近で LE 法を，バルク領域で三次精度の MUSCL 法を採用している．本手法の特徴をまとめると以下ようになる．

1. 濃度境界層厚さが計算格子幅に満たない状況下においても，上昇気泡からの物質輸送を高精度に解析することが可能である．
2. 濃度場の高解像度差分計算による解析と比較して計算コストを大幅に削減することが可能である．

本論文では $Sc = 100$ という条件の下で提案手法の検証をおこない，良好な結果を得た．本手法の特徴 1 から，より高いシュミット数条件下における計算に対しても提案手法は原理的に適用可能である．最後に，三次元問題や濃度境界層が剥離を伴う場合への本手法の適用および今後の発展について述べる．

1. 三次元問題に対しては特に濃度境界層厚さを求めるアルゴリズムの実装が煩雑化することが考えられる．濃度境界層厚さを求める際の積分範囲として界面セルのみを考え，積分を数値的に行う手法の開発が本手法の今後の発展として考えられる．
2. 剥離点近傍においては濃度境界層が厚くなっており，速度場の解析に必要な計算格子解像度があれば，濃度場の解析についても通常の差分法による計算が可能であると考えられる．境界層近似解を援用する方法と差分法を使用する領域の判定法については今後の研究の課題である．

文 献

- Aboulhasanzadeh, B., Hosoda, S., Tomiyama, A. and Tryggvason, G., A validation of an embedded analytical description approach for the computations of high Schmidt number mass transfer from bubbles in liquids, *Chemical Engineering Science* Vol. 101 (2013), pp. 165–174.
- Aboulhasanzadeh, B., Thomas, S., Taeibi-Rahni, M. and Tryggvason, G., Multiscale computations of mass transfer from buoyant bubbles, *Chemical Engineering Science* Vol. 75 (2012), pp. 456–567.
- Alke, A., Bothe, D., Kroger, M., Weigand, B., Weirich, D. and Weking, H., Direct numerical simulation of high Schmidt number mass transfer from air bubbles rising in liquids using the Volume-of-Fluid-Method, *ERCOFTAC Bulletin, Dispersed Multiphase Flow: From Micro- to Macro-Scale Numerical Modeling*. Bulletin 82 (2010), pp. 50–59.
- Aulisa, E., Manservigi, S., Scardovelli, R. and Zaleski, S., Interface reconstruction with least-square fit and split advection in three-dimensional Cartesian geometry, *Journal of Computational Physics*, Vol. 225, No. 2 (2007), pp. 2301–2319.
- Bird, R., Stewart, W. E. and Lightfoot, E. N., *Transport Phenomena*, 2nd edition, John Wiley and Sons, Inc (2002).
- Bothe, D. and Fleckenstein, S., A Volume-of-Fluid-based method for mass transfer processes at fluid particles, *Chemical Engineering Science* Vol. 101 (2013), pp. 283–302.
- Brackbill, J. U., Kothe, D. B. and Zemach, C., A continuum method for modeling surface tension, *Journal of Computational Physics*, Vol. 100, No. 2 (1992), pp. 335–354.
- Clift, R., Grace, J. R. and Weber, M. E., *Bubbles, Drops, and Particles*, Academic Press (1978).
- Davidson, M. R. and Rudman, M., Volume-of-fluid calculation of heat or mass transfer across deforming interfaces in two-fluid flow, *Numerical Heat Transfer, Part B*, Vol. 41, No. 3–4 (2002), pp. 291–308.
- 得津裕太郎, 大森健史, 梶島岳夫, 上昇する気泡周りの流れと物質移動に関する数値シミュレーション, *混相流*, Vol. 24, No. 5 (2011), pp. 539–547.
- Gueyffier, D., Li, J., Nadim, A., Scardovelli, R. and Zaleski, S., Volume-of-Fluid interface tracking with smoothed surface stress method for three-dimensional flows, *Journal of Computational Physics*, Vol. 152, No. 2 (1999), pp. 423–456.
- Kajishima, T., Saito, T., Nagaosa, R. and Kosugi, S., GLAD: A gas-lift method for CO₂ disposal into the ocean, *Energy*, Vol. 22, No. 2–3 (1997), pp. 257–262.

- Stewart, W. E., Angero, J. B. and Lightfoot, E. N., Forced convection in three-dimensional flows: II. Asymptotic solutions for mobile interfaces, *Journal of American Institute of Chemical Engineers*, Vol. 16, No. 5 (1970), pp. 771–786.
- Sussman, M. and Puckett, E. G., A coupled Level Set and Volume-of-Fluid method for computing 3D and axisymmetric incompressible two-phase flows, *Journal of Computational Physics*, Vol. 162, No. 2 (2000), pp. 301–337.

References

- Aboulhasanzadeh, B., Hosoda, S., Tomiyama, A. and Tryggvason, G., A validation of an embedded analytical description approach for the computations of high Schmidt number mass transfer from bubbles in liquids, *Chemical Engineering Science* Vol. 101 (2013), pp. 165–174.
- Aboulhasanzadeh, B., Thomas, S., Taeibi-Rahni, M. and Tryggvason, G., Multiscale computations of mass transfer from buoyant bubbles, *Chemical Engineering Science* Vol. 75 (2012), pp. 456–567.
- Alke, A., Bothe, D., Kroger, M., Weigand, B., Weirich, D. and Weking, H., Direct numerical simulation of high Schmidt number mass transfer from air bubbles rising in liquids using the Volume-of-Fluid-Method, *ERCOFTAC Bulletin, Dispersed Multiphase Flow: From Micro- to Macro-Scale Numerical Modeling*. Bulletin 82 (2010), pp. 50–59.
- Aulisa, E., Manservigi, S., Scardovelli, R. and Zaleski, S., Interface reconstruction with least-square fit and split advection in three-dimensional Cartesian geometry, *Journal of Computational Physics*, Vol. 225, No. 2 (2007), pp. 2301–2319.
- Bird, R., Stewart, W. E. and Lightfoot, E. N., *Transport Phenomena*, 2nd edition, John Wiley and Sons, Inc (2002).
- Bothe, D. and Fleckenstein, S., A Volume-of-Fluid-based method for mass transfer processes at fluid particles, *Chemical Engineering Science* Vol. 101 (2013), pp. 283–302.
- Brackbill, J. U., Kothe, D. B. and Zemach, C., A continuum method for modeling surface tension, *Journal of Computational Physics*, Vol. 100, No. 2 (1992), pp. 335–354.
- Clift, R., Grace, J. R. and Weber, M. E., *Bubbles, Drops, and Particles*, Academic Press (1978).
- Davidson, M. R. and Rudman, M., Volume-of-fluid calculation of heat or mass transfer across deforming interfaces in two-fluid flow, *Numerical Heat Transfer, Part B*, Vol. 41, No. 3–4 (2002), pp. 291–308.
- Ezu, Y., Omori, T. and Kajishima, T., Numerical simulation of flow and mass transfer around rising bubbles, *Japanese Journal of Multiphase Flow*, Vol. 24, No. 5 (2011), pp. 539–548 (in Japanese).
- Gueyffier, D., Li, J., Nadim, A., Scardovelli, R. and Zaleski, S., Volume-of-Fluid interface tracking with smoothed surface stress method for three-dimensional flows, *Journal of Computational Physics*, Vol. 152, No. 2 (1999), pp. 423–456.
- Kajishima, T., Saito, T., Nagaosa, R. and Kosugi, S., GLAD: A gas-lift method for CO₂ disposal into the ocean, *Energy*, Vol. 22, No. 2–3 (1997), pp. 257–262.
- Stewart, W. E., Angero, J. B. and Lightfoot, E. N., Forced convection in three-dimensional flows: II. Asymptotic solutions for mobile interfaces, *Journal of American Institute of Chemical Engineers*, Vol. 16, No. 5 (1970), pp. 771–786.
- Sussman, M. and Puckett, E. G., A coupled Level Set and Volume-of-Fluid method for computing 3D and axisymmetric incompressible two-phase flows, *Journal of Computational Physics*, Vol. 162, No. 2 (2000), pp. 301–337.