ロールオーバー発生に対する初期濃度差の影響*

宗 像 鉄 雄^{*1}, 棚 澤 一 郎^{*2}Numerical Study on Effect of Initial Concentration Difference
on Onset of Rollover

Tetsuo MUNAKATA and Ichiro TANASAWA

Momentum, heat and mass transport processes leading to rollover of density-stratified liquid layers in a vessel are investigated numerically. The main purpose of the study is to clarify the effect of initial concentration difference on the onset of rollover. We have calculated a number of cases in which the upper and lower fluids have initially different concentrations and different heating conditions. The result reveals that the initial concentration difference greatly influences the time elapsed before the onset of rollover. If the heating conditions are equal and the initial concentration difference is small, the rollover onset time is shortened. When the initial concentration difference is the same and the heating condition is changed, the rollover onset time is shortened with increasing of wall heat flux. The processes leading to rollover are as follows. Initially, two convection are induced in the upper and lower fluids separately, this situation being continued for a certain period, while the concentration is diffused with the convection. Finally, a large amount of the lower high-density fluid reaches the top surface, and then the fluids are suddenly mixed together.

Key Words: Heat and Mass Transfer, Double Diffusive Natural Convection, Rollover, LNG Tank, Numerical Analysis

1. は じ め に

熱と物質の同時移動現象は理工学の種々の分野で重要な現象であり、例えば、LNGタンク、熱エネルギー貯蔵用ソーラポンド、半導体や合金系の材料育成過程等において観測される。いずれの場合も密度差に起因する浮力は、温度差によるものと濃度差によるものの二つから構成される。温度と濃度の同時拡散を伴う流動は二重拡散対流と呼ばれ、温度場と濃度場の組合せにより種々の流動パターンが観測される。

本研究で取扱うロールオーバー現象は、二重拡散対流の典型的な一例である。LNG貯蔵タンクの残存量が少なくなると新しいLNGを導入するが、残存しているLNGと新しいLNGとでは、産地による違いや、残存しているLNGの揮発成分の蒸発などのため、異なった組成割合と物性値になることがある。その場合、二つのLNGはすぐには混合せず、上層と下層とに分離した密度成層が形成され、それぞれの層内に二つの自然対流が発生する。しかし、上層のLNGは、引き続

く蒸発によって次第に密度が高くなり、力学的に不安定となる。また、2液層界面を通しての熱・物質移動によっても不安定は助長されることがある。ある条件下では、上層と下層のLNGが急速に混合し、下層の揮発成分が突然蒸発するため、タンク内の圧力が急上昇し、きわめて危険な状態となる。最もよく知られている最近の例は、1971年に発生したイタリアのLa Speziaの事故である。新しいLNGを加えてから18h後、タンク内の圧力が約40%上昇し、安全バルブが1.5~2h開放され、185000kgの蒸発ガスが大気中に放出された。このときの残存LNGと新しく追加したLNGとの密度差・温度差は、それぞれ9kg/m³、2Kであった。その後、Sarsten⁽¹⁾やActon⁽²⁾により同様な事故例が報告されている。

密度成層化した二流体の安定性に関しては、安定性を示す尺度として安定性パラメータ R と呼ばれる変数が多い研究者によって用いられている(例えば、Turner⁽³⁾⁽⁴⁾、Takaoら⁽⁵⁾、Newellら⁽⁶⁾、菅原ら⁽⁷⁾、室ら⁽⁸⁾)。これは、 $R = \beta_s \Delta C / \beta_T \Delta T$ で定義されるもので、 β_s 、 β_T は濃度および温度による体膨張係数、 ΔC 、 ΔT は上下層間の濃度差および温度差である。

安定性パラメータは、安定化させる力 $\beta_s \Delta C$ と不安定化させる力 $\beta_T \Delta T$ との比を表しているため、これを

* 原稿受付 平成6年2月22日。

^{*1} 正員、工業技術院機械技術研究所(●305 つくば市並木1-2)。^{*2} 正員、東京大学生産技術研究所(●106 東京都港区六本木7-22-1)。

用いることは、定性的には有効である。しかし、このパラメータは、二流体層間の境界に発生する局所的な現象を表現するためには有効でない。森岡ら⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾は、二流体層間の密度差が零に近づくと下層の鉛直壁に沿った流体の境界層が上層に侵入し、その後二流体間の境界がしだいに下降するという現象を観測した。

著者らの研究室においてもエタノール水溶液を用いた小規模な実験を行った結果、同様なプロセスが観測された⁽¹¹⁾。本研究では、このようなロールオーバー現象に対して数値シミュレーションを行い、著者らの実験結果を確認し、現象の過程を明らかにしようとするものである。

記 号

- C : 無次元濃度 $= (C' - C_L) / \Delta C$
 C' : 濃度
 C_H : 上層の流体の初期濃度
 C_L : 下層の流体の初期濃度
 D : 濃度拡散係数
 g : 重力
 H : 容器の高さ
 i : ノード番号
 Pr : プラントル数
 $\dot{q}$: 加熱に関する壁面熱流束
 Ra_s : 濃度レーレー数
 Ra_s^* : 修正レーレー数
 Sc : シュミット数
 T : 無次元温度 $= (T' - T_i) / (\dot{q} H / \lambda)$
 T' : 温度
 T_i : 初期温度
 t : 時間
 u, w : x, z 方向の流速
 $\mathbf{v}$: 速度ベクトル
 W : 容器の幅
 x, z : 座標
 β : 風上差分の係数
 β_s : 濃度に関する体膨張係数
 β_T : 温度に関する体膨張係数
 ΔC : 上下流体層間の初期濃度差 $= C_H - C_L$
 α : 温度拡散係数
 λ : 熱伝導率
 ν : 動粘性係数
 τ : 無次元時間
 τ_c : 初期濃度分布に関する無次元拡散時間
 ω : 渦度
 ξ, η : 座標変換後の座標

ϕ : 流れ関数

2. 数値解析の方法

2・1 モデルおよび支配方程式 数値計算に用いたモデルを図1に示す。本計算においては、流れ場、温度場、濃度場は二次元的に変化すると仮定し、さらに、容器の幅と高さは等しいと仮定した。初期状態として、容器内は濃度のみが異なる成層した二層流体で満たされ、次に側壁から流体が加熱される場合を考える。一般には、温度場と濃度場が同時に存在する場合、温度こう配による濃度拡散(Soret 効果)や濃度こう配による熱拡散(Dufour 効果)が発生するが、これらの効果は、熱伝導や分子拡散と比較して十分に弱いため本解析では考慮しない。通常の支配方程式(連続の式、 $N-S$ 方程式、エネルギー式、拡散方程式)に対して無次元化を行い、渦度、流れ関数を導入すると、以下の支配方程式が得られる。なお、本無次元化では、エタノール濃度を基準としたため、濃度が高いほど密度が小さくなっている。

(1) 渦度輸送方程式

$$\frac{\partial \omega}{\partial \tau} + (\mathbf{v} \cdot \text{grad}) \omega = \nabla^2 \omega - \frac{Ra_s^*}{Pr} \frac{\partial T}{\partial x} - \frac{Ra_s}{Sc} \frac{\partial C}{\partial x} \quad \dots\dots\dots (1)$$

(2) エネルギー式

$$\frac{\partial T}{\partial \tau} + (\mathbf{v} \cdot \text{grad}) T = \frac{1}{Pr} \nabla^2 T \quad \dots\dots\dots (2)$$

(3) 拡散方程式

$$\frac{\partial C}{\partial \tau} + (\mathbf{v} \cdot \text{grad}) C = \frac{1}{Sc} \nabla^2 C \quad \dots\dots\dots (3)$$

(4) ポアソン方程式

$$\nabla^2 \phi = \omega \quad \dots\dots\dots (4)$$

(5) 流れ関数-渦度関係式

$$u = \frac{\partial \phi}{\partial z}, \quad w = -\frac{\partial \phi}{\partial x} \quad \dots\dots\dots (5)$$

図1 ロールオーバー現象の計算モデル

ここで、各無次元数は以下のように定義されている。

$Pr = \nu/\kappa$: プラントル数

$Sc = \nu/D$: シュミット数

$Ra_s = \frac{g\beta_s H^3 \Delta C}{D\nu}$: 濃度レーレー数

$Ra_s^* = \frac{g\beta_s H^3 \dot{q}}{\kappa\nu\lambda}$: 修正レーレー数

さらに、容器の中央面に対して現象が対称と仮定し、自由表面におけるマランゴニ効果と蒸発を無視(実際の LNG タンクでは、上部流体からの蒸発が重要な因子と考えられるが、著者ら⁽¹¹⁾などの小規模実験では蒸発の影響は少なく、本シミュレーションもその条件に合せている)すると、以下の境界条件が得られる。

(1) 底部 ($z=0.0$)

$$\psi=0, \frac{\partial\psi}{\partial z}=0, \frac{\partial T}{\partial z}=0, \frac{\partial C}{\partial z}=0 \dots\dots\dots (1)$$

(2) 左側壁 ($x=0.0$)

$$\psi=0, \frac{\partial\psi}{\partial x}=0, \frac{\partial T}{\partial x}=-1, \frac{\partial C}{\partial x}=0 \dots\dots\dots (7)$$

(3) 上部自由表面 ($z=1.0$)

$$\psi=0, \frac{\partial^2\psi}{\partial z^2}=0, \frac{\partial T}{\partial z}=0, \frac{\partial C}{\partial z}=0 \dots\dots\dots (8)$$

(4) 中央部 ($x=0.5$)

$$\psi=0, \frac{\partial^2\psi}{\partial x^2}=0, \frac{\partial T}{\partial x}=0, \frac{\partial C}{\partial x}=0 \dots\dots\dots (9)$$

2.2 計算方法 以上の支配方程式と境界条件を用い差分法により計算した。なお、高精度の計算とするため、以下の方法を用いた。

(1) 座標変換 速度の大きい領域でメッシュ分割が密となるように以下の座標変換式を用いた。図 2 に物理面において生成された分割数 40×80 の場合のグリッドを示す。

$$\xi = \frac{1}{12} \left\{ 4 \left(\frac{4x}{W} - 1 \right)^7 - 2 \left(\frac{4x}{W} - 1 \right) + 6 \right\} \quad \left(0 \leq x \leq \frac{W}{2} \right) \dots\dots\dots (10)$$

$$\eta = \frac{2}{5} \operatorname{erf} \{ 5(2z-1) \} + \frac{2}{5} (2z-1)^9 + \frac{2}{5} z + \frac{4}{5} \quad (0 \leq z \leq 1) \dots\dots\dots (11)$$

(2) 三次風上差分 支配方程式中の対流項は次に示す三次風上差分を用いて差分化した。

$$u \frac{\partial \omega}{\partial x} = u \frac{\omega_{i-2} - 8\omega_{i-1} + 8\omega_{i+1} - \omega_{i+2}}{12\Delta x} + \beta |u| \frac{\omega_{i-2} - 4\omega_{i-1} + 6\omega_i - 4\omega_{i+1} + \omega_{i+2}}{12\Delta x} \dots\dots\dots (12)$$

ここで、係数 β は、

$\beta=0$: 四次中心差分

$\beta=1$: 三次風上差分 (UTOPIA)

$\beta=3$: 三次風上差分 ($K-K$)

であり、本計算においては、 $K-K$ 法を用いた。また、支配方程式の他の項については、空間に対しては二次の中心差分、時間積分に対しては ADI 法、ポアソン方程式の解法には SOR 法を用い、SOR 法の収束判定条件としては、各計算ステップにおいて各格子点における相対誤差が 10^{-3} 以下とした。したがって、時間項を含む方程式については、五重対角行列を計算した。

(3) 初期濃度分布 上下層の境界で初期濃度分布がステップ状に変化していると、差分化による誤差が増大する。そこで、本計算では、以下に示す一次元拡散問題の厳密解を初期濃度分布として与えた。

$$C(z, \tau) = \frac{1}{2} \operatorname{erfc} \left(\frac{\frac{1}{2} - z}{2\sqrt{\frac{\tau_c}{Sc}}} \right) \dots\dots\dots (13)$$

なお、本計算では、上下層の境界層厚さが薄く、かつ境界層内の格子点数が比較的多くなるように $\tau_c=0.1$ としたが、今後、結果に与える初期濃度分布の影響を明確にし、適切な値を用いなければならないと思われる。

(4) 無次元数 前報⁽¹¹⁾の実験結果(表 1 に熱物性値を示す)と比較するため無次元数として次の値を用いた。

$Pr=30$

$Sc=5\,500$

$Ra_s=4.415 \times 10^9$ ($\Delta C=0.5$ wt%)

図 2 物理面での格子分割

表 1 50%エタノール水溶液の熱物性値

Diffusivity of concentration (D)	$5.0 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$
Height of container (H)	0.08 m
Volumetric expansion coefficient for concentration (β_S)	$2.42 \times 10^{-3} \text{ 1/wt\%}$
Volumetric expansion coefficient for temperature (β_T)	$8.54 \times 10^{-4} \text{ 1/K}$
Thermal diffusivity (κ)	$9.5 \times 10^{-8} \text{ m}^2/\text{s}$
Thermal conductivity (λ)	$0.318 \text{ W/m}\cdot\text{K}$
Kinematic viscosity (ν)	$2.75 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$

表 2 種々の格子分割における CPU 時間

Mesh Size	CPU Time
20×40	14 min. 18 sec.
40×80	85 min. 16 sec.
60×120	768 min. 34 sec.

$$Ra_s = 8.830 \times 10^9 \quad (\Delta C = 1.0 \text{ wt\%})$$

$$Ra_s = 1.766 \times 10^{10} \quad (\Delta C = 2.0 \text{ wt\%})$$

$$\tau = 4.3 \times 10^{-4} t \quad (t = 5 \text{ min. when } \tau = 0.13)$$

(5) 格子分割数 実際の計算を行う前に、計算結果に対する格子分割数の影響を調べた。図 3 は、座標 $x=0.03715$, $z=0.2514$ における流れ関数 ψ 、温度 T 、濃度 C の値の時間変化である。 20×40 の場合を除いて、 40×80 , 60×120 の格子分割数の場合には、ほぼ同様な変化を示していることがわかる。なお、本計算は、富士通製はん用コンピュータ FACOM M 1800 を用いたが、このときの CPU 時間を表 2 に示す。格子分割数として 60×120 を用いると、CPU 時間は約 13 h 必要となることがわかる。一般に、格子分割数を増大したほうが計算精度は高くなるが、 60×120 の場合の CPU 時間は、多数回の計算を行う場合には許容できない時間であること、また、計算結果は 40×80 の場合も、 60×120 の場合とほぼ同様な変化を示すことなどの理由により、以下の計算結果では、格子分割数として 40×80 を用いた。

3. 結果および考察

計算は、上下層の各初期濃度差に対して、修正レーレー数を変化させながら多数回行った。流れ場、温度場、濃度場の時間変化の典型的な様相を図 4 に示す。図 4 は、初期段階においては、側壁加熱により流れ場(温度差による浮力対流)が発達し、対応する下層の濃度場が上層に対して凹となるように変化することを示している。これは、下層の流体が、側壁で上昇し、上層の流体が中央部で下降するためである。時間が経過すると、壁面において下層の低濃度流体が、上層に貫通するようになるが、上層の高濃度流体は容器中央において、それほど下層には貫通しない。これは、温度こう配が壁面近傍で大きいため、壁面での加熱が下層の重い流体を上層に持ち上げるのに十分な浮力を有しているのに対し、容器中央の上下層境界部では、計算した時間の範囲内では温度場・濃度場が初期状態とそれほど変化しないため、界面が安定に存在できるためである。最終的には、下層の低濃度流体が最上部表面に到達し、最上部から低濃度流体が下降し始める。このとき、中央面に形成されていた濃度境界面は、ほぼ水

(a) 流れ関数

(b) 温度

(c) 濃度

図 3 $Ra_s = 4.415 \times 10^9$, $Ra^* = 1.64 \times 10^9$ における流れ関数、温度、濃度の時間変化に対する格子分割の影響 ($x=0.03715$, $z=0.2514$)

図 4 典型的な流れ場, 温度場, 濃度場の時間変化 ($Ra_s=4.415 \times 10^9$, $Ra^*=1.64 \times 10^9$) 図 5 $Ra^*=4.10 \times 10^9$ の場合の濃度変化 図 6 $Ra^*=9.02 \times 10^9$ の場合の濃度変化

平面を保ちながら底部に向かって下降し始める。これらの結果は、著者らの観測結果⁽¹¹⁾とよく一致している。

このとき、濃度分布は、 $Ra^* = 4.10 \times 10^9$ については図5および $Ra^* = 9.02 \times 10^9$ については図6のように変化している。なお、これらの曲線は、次のような x 方向に関する平均化により求めた。

$$C(z, \tau) = \frac{2}{W} \int_0^{W/2} C(x, z, \tau) dx \quad \dots\dots\dots (14)$$

図5より、濃度レーレー数が大きくなると、すなわち、上下層間の初期濃度差が大きくなると、上下層の境界面が安定して存在していることがわかる。これは、壁面において温度こう配は負、濃度こう配は正となっているため、壁面における濃度差による浮力が、温度差による浮力とは反対方向に働くためである [式(1)参照]。したがって、下層の低濃度流体が、上層に侵入すると、温度差および濃度差を総合した浮力は減少し、また、初期濃度差が大きくなるほどこの効果が顕著になる。さらに、図6に示したように、修正レーレー数が増大しても、上記の理由により、濃度レーレー数が増大するに伴い境界面が安定化している。しかし、 $Ra_s = 4.415 \times 10^9$ の場合には、上層の自由表面近傍の濃度は、最初に零に近づいた後は再び増加し、最終的にはほとんどフラットな分布となる。したがって、この状態は、完全に混合した状態と考えられる。

図7は、 $Ra^* = 4.10 \times 10^9$ の場合の上下層流体の混合平均濃度の変化を示したもので、以下の式により計算した。

$$|C(\tau)|_{\text{lower}} = \frac{2}{H} \int_0^{H/2} C(z, \tau) dz \quad \dots\dots\dots (15)$$

図7 $Ra^* = 4.10 \times 10^9$ における上下層の混合平均濃度変化

$$|C(\tau)|_{\text{upper}} = \frac{2}{H} \int_{H/2}^H C(z, \tau) dz \quad \dots\dots\dots (16)$$

ここで、 $C(z, \tau)$ は、式(14)から求められる。

ここで、上層の濃度は1からしだいに減少し、また、下層の濃度は零からしだいに増加する。濃度レーレー数が最も大きくなると、上下層の平均濃度は、ほぼ直線状に変化する。しかし、濃度レーレー数が小さくなると、この濃度変化は急速に変化するようになり、最も小さな濃度レーレー数においては、上下層の濃度は、ある時点で逆転し、その後ゆっくりと変化するようになる。このような傾向は、修正レーレー数を大きくすると、さらに明確になる。 $Ra^* = 9.02 \times 10^9$ の場合の結果を図8に示すが、この場合には、上下層の濃度は $Ra^* = 4.10 \times 10^9$ の場合よりも早く逆転し、その後、下層の濃度は最大に、また、上層の濃度は最小に近づき、最終的には、それぞれ再び減少または増大するという傾向を示す。このような傾向は、上下層の濃度が完全に一樣化するまで続くものと思われる。なお、図7, 8において、上下層全体を平均化した濃度が0.5となっていないのは、式(1)～(4)の計算誤差および式(14)～(16)の積分誤差によるものである。

ロールオーバー現象においては、現象が発生するまでの時間を予測することが完全性の面から非常に重要である。著者らは、ロールオーバー発生時間として、上下層間の境界面が自由表面上に達した時間と定義した。すなわち、簡単に述べれば、 $C = 0.5$ の濃度が自由表面上に現れた時点でロールオーバーが発生したと判断した。図9に、ロールオーバー発生時間の計算結果を実験結果⁽¹¹⁾と比較して示す。なお、図9で、低修正レーレー数領域の計算結果が記入されていないのは、壁面加熱

図8 $Ra^* = 9.02 \times 10^9$ における上下層の混合平均濃度変化

図9 ロールオーバー発生時間

量が減少するとロールオーバー発生までの時間が長くなり、計算時間が増大し計算が困難となるので、修正レイレー数の小さい領域では計算できなかったためである。図9から、初期濃度差が小さい場合、または、壁面加熱量が大きい場合にロールオーバーが発生しやすいことがわかる。この傾向は、著者らの実験結果とも定性的には一致している。実験結果と定量的に一致しない理由は、ロールオーバー発生時間の定義が計算と実験とで異なっていること、計算では自由表面上のマランゴニ効果等を無視したことなどのためであると思われる。図7および図8中に示したシンボルは、ロールオーバー発生時刻を示しており、ロールオーバーが発生する前の濃度変化の傾向をわかりやすくするために記入したものであり、図7, 8から、濃度変化の一次微分が、ロールオーバー発生時刻付近で変化していることがわかる。すなわち、ロールオーバー発生前は、上下層の濃度がほぼ直線状に下降または上昇しているのに対し、発生後は、ゆっくりとした濃度変化に変わっている。

しかしながら、実際のLNGタンクにおいては、自由表面上の蒸発やマランゴニ効果等もロールオーバー発生時刻に対して大きな影響を与えと考えられるため、今後これらの効果を明らかにしなければならない。さらに、容器の大きさの効果も重要になり、容器内

の流れは乱流になっているとも考えられる。したがって実際のLNGタンク内のロールオーバー現象をシミュレーションするためには、これらの効果も考慮して解析しなければならない。

4. ま と め

ロールオーバー現象に対する初期濃度差の影響を小型のモデルを用いて数値的に解析し、以下の結果が得られた。

- (1) 実験結果とほぼ一致する計算結果が得られた。
- (2) ロールオーバーを発生させる最も重要な機構は加熱壁に沿って下層流体が上層へ侵入することである。
- (3) 初期濃度差が大きくなると、加熱壁面近傍での濃度差に起因する浮力が、温度差に起因する浮力と反対方向に働くため、上下層の境界面は比較的安定になる。
- (4) ロールオーバー発生時刻は、初期濃度差と側壁の加熱量に依存する。初期濃度差が大きくなると、ロールオーバー発生は困難になり、また、加熱量が小さくなっても、ロールオーバーの発生が遅くなる。

文 献

- (1) Sarsten, J. A., *Pipeline Gas J.*, **199**(1972), 37.
- (2) Acton, A. and Van Meerbeke, R. C., *Paper Presented 8th Int. Conf. LNG*, Session III, Paper 12(1986), 1.
- (3) Turner, J. S., *Int. J. Heat Mass Transf.*, **8**(1965), 759.
- (4) Turner, J. S., *Buoyancy Effects in Fluids*, (1973), Cambridge University Press.
- (5) Takao, S. and Narusawa, U., *Int. J. Heat Mass Transf.*, **23**(1980), 1283.
- (6) Newell, T. A. and Von Driska, P. M., *Natural Convection in Enclosure-1983, HTD-26*, ASME, (1983), 11.
- (7) 菅原・ほか5名, 三菱重工技報, **21**-2(1984), 1.
- (8) 室・ほか7名, 川崎重工技報, **93**(1986), 1.
- (9) 森岡・塩冶, 冷凍, **56**-644(1981), 529.
- (10) Morioka, M. and Enya, S., *Heat Transf. Jpn. Res.*, **12**(1984), 48.
- (11) Arita, T., ほか4名, *Natural Convection in Enclosure-1992, HTD-198*, ASME, (1992), 67.