流動過冷却水の凝固過程の初期現象*

斎藤 彬夫^{*1}, 大河 誠司^{*1}, 熊野 寛之^{*1}
宝 積 勉^{*1}, 山田 雄一^{*2}The Initial Phenomena in the Freezing Process
of the Supercooled Water FlowAkio SAITO^{*3}, Seiji OKAWA, Hiroyuki KUMANO,
Tutomu HOZUMI and Yuichi YAMADA^{*3} Department of Mechanical Engineering and Science, Tokyo Institute of Technology,
2-12-1 Ookayama, Meguro-ku, Tokyo, 152-8552 Japan

In relation to the transportation of supercooled water, physical phenomena at the initial stage of solidification of supercooled water were studied, experimentally. In order to observe the inward growth phenomenon, a duct having a rectangular cross section was used. The cold copper plates with a constant temperature were placed at the top and bottom of the duct. Two side walls of the duct were made of acrylic material in order to observe the ice growth. It was found that ice grew on the inner surface towards the upstream direction at a constant speed. It related to the surface temperature and the type of the material. On the other hand, ice growth towards inside related to the inlet water temperature, surface temperature and flow rate. Type of the ice was dendrite ice. Time lag of inward ice growth and its melting at various locations were also investigated. The mechanism of the phenomenon was suggested that the existence of dendrite ice prevent a smooth laminar flow and the supercooled water near the cooling surface is mixed with the inner flow having relatively high temperature. It causes the ice to melt at downstream faster than that of upstream.

Key Words: Supercooled Water, Transportation, Solidification, Growth Rate, Surface

1. 緒論

管内流や平行平板間の流れが冷却されて凝固する現象は、寒冷地における冬季の水管の破損などに関連して、古くから多くの研究者によって研究されてきた⁽¹⁾⁻⁽⁹⁾。その場合、流れに接する壁面上に形成される稠密な固相が、準定常過程で徐々に内側に成長し、流れを閉塞に至らせる過程が主として対象となっている。Mulligan, J.C. and Jones らは⁽¹⁾、水平管内の凍結時の熱伝達と圧力降下を実験的に研究している。Thomason, S.B ら⁽²⁾、及び Cho, C. and Ozisik, M.N.は⁽⁴⁾、管内乱流の凍結を扱っている。Gilpin, R.R. は^{(3), (5)}、遷移領域と乱流領域を含むレイノルズ数に対する管内凝固の系を研究し、狭窄と拡大を繰り返す特徴的な固液相変化面形状が生じる現象を明らかにしている。平田・石川ら⁽⁷⁾は、管内流が閉塞に至る条件を示している。また、関ら⁽⁶⁾、及び山田ら⁽⁹⁾は、平行2平板間の流れの凝固を研

究している。さらに、智田・田島らは⁽⁸⁾、曲がり管内の流れについて、閉塞の限界条件を示している。

以上の一連の研究とは別に、近年、電力負荷平準化の解決策の一つとして、ダイナミック型に代表される氷蓄熱システムが注目されており、それに関連して、流動過冷却水の凝固時の核生成条件についての研究が重要になっている。氷蓄熱システムは、スタティック方式とダイナミック方式に大別されるが、ダイナミック方式には、多くの利点があるにもかかわらず、技術的に未解決な部分が多いため、未だ十分に活用されていないのが現状である。過冷却水の凝固の能動制御も課題の一つとして挙げられ、過冷却状態を維持したまま輸送する技術の開発が求められている。そのような背景を踏まえて、管内流動過冷却水中の凝固核の発現条件に関する研究が行われている^{(10), (11)}。著者らの一部も、液体の流れの影響をも含めた、機械的外因と凝固核発現の関係を詳細に実験した⁽¹²⁾。

一方、管内流動過冷却水中にひとたび凝固核が発現した場合、初期の凝固過程がどのように進行するかについては、凝固核の発現条件と同等に重要であるにもかかわらず、十分な研究が行われていない。前述の、

* 原稿受付 2000年7月19日。

^{*1} 正員、東京工業大学大学院理工学研究科(〒152-8552 東京都目黒区大岡山2-12-1)。^{*2} ソニー(株)(〒141-8680 東京都品川区北品川6-7-35)。

E-mail: asaaito@mech.titech.ac.jp

準定常状態で稠密な固相が成長する凝固過程においても、凝固開始の際には、多かれ少なかれ過冷却水の凝固から始まっており、過冷却水中の初期の固相の伝播過程の研究は重要である。

著者らの一部は、先に、氷核の発現直後における氷の初期成長過程に着目し、透明なポリカーボネイト管を用いて円管内を流れる過冷却水の凝固過程の観察を行なっている⁽¹³⁾。その結果、管閉塞に繋がる初期のデンドライト発現の様相を明らかにし、管壁に沿った氷の伝播速度と管壁面温度の関係を示している。しかし前報においては、管壁を通して氷の成長を観測したため、氷と水の共存する氷結晶先端部分の詳細な観測が困難であった。

本論文は、流動過冷却水の凍結時における氷の初期成長と伝播の過程を詳細に観察する目的で、矩形流路を流れる水を上下方向から冷却し、水平方向に観察する可視化実験を行い、氷の初期成長過程に特徴的な現象と、そのメカニズムを解明することを目的としている。

2. 実験装置及び実験方法

2.1. 実験装置 実験装置全体の系統図を図1に示す。実験装置は、装置本体、純水循環系、冷却用ブラインおよび断熱用ブライン循環系により構成され、それらに、圧力および温度分布の経時変化を測定する計測部と、装置各部の温度変化に基づいてブライン温度を制御する温度制御部とが取り付けられている。

装置本体の詳細図を図2(a)(b)に示す。図2(a)は、流れ方向に寸法を縮小した図に成っている。図1および図2(a)において、純水は右から左方向に流れる。図2(b)に示す通り、中心部に純水が流れ、それを上下から冷却する形で冷却用ブラインが流れる構造になっている。純水は、水道水をイオン交換機を通して比抵抗を $1\text{M}\Omega\cdot\text{cm}$ 以上にした後、限外濾過で微粒子を除去し、さらに蒸留したものを用いる。なお、実機レベルでは水道水を用いることが一般的であるが、本論文で扱う氷発現直後の非定常過程においては、その純度は大きい影響を及ぼさないものと思われる。冷却用ブラインに、約50wt%のエチレングリコール水溶液を用いる。純水流路の寸法は、高さ10mm、幅20mmの矩形断面である。純水流路は、入り口に近い側の断熱区間と、出口に近い側の試験区間で構成されている。純水流路の上下壁は銅製の伝熱板でできており、流路内を流れる純水を上下から冷却する。また、側壁は透明なアクリル製の断熱壁でできており、内部で成長する氷の様子を側面か

Fig. 1 Schematic diagram of experimental apparatus

(a) Details of the apparatus

(b) Cross section

Fig. 2 Main apparatus

ら観察できるようになっている。

純水循環系では、恒温槽内で純水を $0.4\sim 1.4^\circ\text{C}$ の所定の一定温度に制御し、装置本体入り口部に設置された圧力測定部を経た後、装置本体の純水流路に流入させる。1.5mの断熱区間においては、ブライン温度を純水の流入温度に等しく設定し、流路内を流れる純水の温度を変化させることなく速度の十分発達した層流にする。後述する実験条件に対しては、断熱区間の長さは、助走区間として十分な長さである。その後、約4mの試験区間においてブラインとの熱交換により純水を冷却し、過冷却状態にする。純水は、装置本体を出た後、約5mの放熱区間を経て再び 0°C 以上の温度となり、流

量計を経て恒温槽に戻る。

ブライン循環系統は、4つに区分される。1つは断熱区間用、残り3つは試験区間における冷却に用いる。断熱区間用ブライン循環系統には純水入り口温度と同じ温度のブラインが流れており、純水と熱の授受を行うことなく速度境界層のみを発達させる。また、試験区間においては、全長4mある伝熱板の温度を均一に保つため、冷却ブライン系統を3つの小区間に分け、それぞれの小区間においてブラインを純水と同じ方向に高速で流し、ブラインの出入り口温度差を小さく抑えている。予め数値計算により、各小区間での冷却熱量がほぼ等しくなるように試験区間を不等分割し、3小区間の長さを決めた。その結果、各小区間の長さは、それぞれ700mm, 1400mm, 1900mmである。

純水の流路下流側には、任意の時刻に、過冷却水中に水を発現させることのできるトリガー部が設けられている。このトリガー部は、側面を断熱した銅製の棒と上部容器により構成される簡単な構造であり、棒の上端は容器中に露出し、また下端は伝熱板を貫いて純水に接し、伝熱板の下面の一部を構成している。容器内に液体窒素を流入させることにより、棒が冷やされ、純水に面した棒の表面で水を発現させる仕組みになっている。後述する実験において、トリガー部を冷却しなければ純水は過冷却状態を保ち、トリガー部を冷却すると速やかに氷が発現する。

図3の黒丸印および星印に示すように、上下の伝熱板内には合計18箇所熱電対が内壁面近傍に埋め込まれており、伝熱板温度を測定するとともに、氷の先端到達位置を推定するのに使用する。星印は、トリガー位置に相当する。伝熱面の側面から、伝熱面に沿って直径2mm、深さ13mmの穴を水平に明け、その中に直径0.1mmの銅-コンスタンタン熱電対を挿入した後、熱伝導率の高いドータイト接着剤で穴を塞いでいる。なお、図3の下部の数字は、各熱電対の位置を、上流端から下流方向に、または、トリガー位置から上流方向に、それぞれ見た値を示す(単位cm)。

純水流量は、図1に示すように、装置本体に流入する直前の位置に設置されたダイヤフラム圧力センサーの測定値から換算して求めると同時に、純水が恒温槽に戻る直前に設置されたテーパ式流量計の指度と比較・確認している。即ち、同位置における圧力センサーの指度は、恒温槽に内蔵されたポンプの能力と、ポンプの吐出口から圧力センサー位置までの圧力損失とによって決まり、その値と純水流量の関係は、装置に固有である。予備実験によって、圧力センサーの指度

Fig.3 Test section and the locations of thermocouples

と流量の関係を求めている。詳しい方法は、既に報告した通りである⁽¹³⁾。

2.2. 実験条件 実験は、伝熱面温度を $-0.1 \sim -2.8^{\circ}\text{C}$ 、純水流量を1.0, 1.5, 2.0 l/min., 純水流入温度を $0.4 \sim 1.4^{\circ}\text{C}$ の範囲で変化させ、様々な条件下で行なった。本実験条件におけるRe数は、代表長さに水力直径、代表速度に平均流速を用いると、およそ620, 930, 1240程度であり、全て層流域にある。

2.3. 実験手順 実験は以下の手順で行った。

(1) 恒温槽で所定の温度に設定した純水を、初期設定流量で装置本体に循環させる。同時に、純水と同じ温度に設定されたブラインを、断熱区間に循環させる。さらに、試験区間の冷却用に温度設定されたブラインを循環させる。ブラインの温度は、予備実験を通して、伝熱面温度を所定の温度の $\pm 0.1^{\circ}\text{C}$ 以内に保てる値を経験的に把握し、その値に設定している。

(2) 純水の温度および流量、断熱区間用のブライン温度、ならびに伝熱面温度の全てが所定の定常値になるのを待つ。

(3) トリガー位置に氷を発現させ、その後の氷の伝播・成長・消滅の様子をVTRカメラにより撮影すると同時に、装置各部の温度ならびに圧力の経時変化を測定する。

3. 結果および考察

3.1. 氷の伝播の様相 伝熱面近傍の流れが過冷却状態に保たれている時に、突然、トリガー位置に氷が発現すると、氷は過冷却温度にある伝熱面表面に沿って、容易に目視出来ない程の薄氷の状態、流れの上流方向に伝播・成長する。薄氷が伝播する際の観察結果の詳細については、既に報告した通りである⁽¹³⁾。薄氷が伝熱面に沿って上流方向に伝播した後、薄氷の表面から過冷却水中にデンドライトが成長してくる。その様子については、3.3節で説明する。伝熱面に埋め込まれた熱電対の位置を薄氷の先端位置が通過すると、指度が過冷却解消温度から 0°C にまで急激に上昇することから、薄氷の先端位置の移動を測定できる。伝熱

Fig. 4 Measurements of freezing time at various locations

面温度 -2.0°C 、純水流量 1.50 l/min. 、純水流入温度 0.5°C の場合について、トリガー位置に氷が発現した時刻($t=0\text{ [s]}$)からの、薄氷の先端位置の経時変化を図4に示す。なお、純水流入温度および純水流量は、氷の発現にもかかわらず実験中ほぼ一定値を示していた。

3.2. 伝熱面に沿った薄氷の伝播速度 図4の直線の傾きは、伝熱面各位置での氷の伝播速度を表す。同図より、氷の伝播速度は、トリガー位置からの距離にかかわらず一定であることが分かる。

純水流量および純水流入温度を、それぞれ、 $1.0\sim 2.0\text{ l/min.}$ ならびに $0.4\sim 1.4^{\circ}\text{C}$ の範囲のさまざまな値に設定し、氷の伝播速度を測定すると、図5(a)の●印の結果が得られる。図5(a)において、純水流量および純水流入温度がさまざまに変化しているにも関わらず、氷の伝播速度は伝熱面温度のみの関数として表せることが分かる。本測定結果から導かれた、氷の伝播速度と銅の伝熱面温度の関係式を図中に示した。図5(a)には比較のため、著者らの一部が、先に、ポリカーボネイト円管を冷却伝熱面に用いて得た結果を▲印で示す。氷の伝播速度が、冷却伝熱面の材質に強く依存することが分かる。

図5(b)(c)は、図5(a)の●印のデータを、純水流量および純水流入温度の比較的狭い範囲に分類して表示し直したものである。図5(b)(c)より、氷の伝播速度と壁面温度の関係は、純水流量および純水流入温度に影響されないことが確認できる。このことは、過冷却水の流れの場において、純水流量および純水流入温度が変化しても、最初に氷が伝播する壁面に接する部分の水は静止しており、かつ、壁面と同じ温度になっているためと考えられる。

3.3. デンドライトの成長と消滅の特性 系全体での氷の伝播と、それに続くデンドライト氷の発生およ

(a) Effects of the surface material

(b) Effects of the flow rate of the water

(c) Effects of the entrance temperature of the water

Fig. 5 Relation between the freezing velocity and the surface temperature

び消滅の過程を総合的に検討するため、同時に3台のVTRカメラを用い、それぞれの場所における状況を観

Fig.6 Observation areas of each VTR camera

測した。図6に、各カメラA-Cの位置と観測範囲を示す。

伝熱板温度 -2.0°C 、純水流量 1.50 l/min. 、純水流入温度 0.5°C の場合について、図6の観測位置A-Cにおける特徴的な時刻に対する結果を図7に示す。

各写真の上下端は冷却伝熱面であり、純水は右から左へと流れている。時間はトリガー位置において氷が発現した時刻（観測位置Aの写真の左上方に氷が発現している）を $t=0\text{ sec}$ としている。トリガー位置に氷が発現してから約8秒後には、伝熱面に沿って氷が上流方向に伝播し、そこからデンドライトが成長し始めている様子が見える。この時刻において、観測位置Aの右端部分は、目視では、未だ氷に覆われていないように見えるが、図4の測定結果によると、既に薄氷で覆われていることになる。約28秒後には、氷はさらに上流に広がり、観測位置Bにも、僅かにデンドライトが発現し始めている。約37秒後ならびに約41秒後の図を見ると、観測位置Bにおけるデンドライトは、時間

とともに成長し、その領域が上方に広がっている。また、この時刻には、下面の冷却伝熱面上にもデンドライトが出現している。これは、上流から剥がれた小さい氷片などが、過冷却状態の下面に触れたことがきっかけとなったものと思われる。約55秒後になると、観測位置A, Bにおいて成長していたデンドライトが縮退し、消滅に向かっている様子が見える。なお、観測位置Aの左上方に残存している氷は、トリガー位置近傍が液体窒素によって、低温に冷却された影響を残しているものである。約82秒後ならびに約97秒後の図を見ると、最上流の観測位置Cにデンドライトが出現し始め、時間とともに成長し、その領域がさらに上方へと広がっていく様子が見える。

以上の結果は、以下のように要約できる。

- (1) 伝熱面のある場所に氷が発現すると、伝熱面に沿って薄氷が上流方向に広がる。
- (2) 次に、薄氷からデンドライトが出現し、次第に成長する。その領域は、上流方向に広がる。
- (3) その後、一度成長したデンドライトは再び縮退・消滅に向かい、デンドライトの成長する領域は上流に移動して行く。

本研究で設定した条件下では、上記の定性的な傾向に大差はなかった。

Fig.7 Growth and decay of the dendritic ice at various locations of the path

Fig. 8 Temperature distribution of the water flow
at the initial condition

Fig. 9 Model of the phase change phenomena
occurring around the dendrite

3.4. デンドライトの成長・消滅挙動の考察 下流側から上流側へとデンドライトの成長と融解が移動する現象のメカニズムを考えてみることにする。

図 8 は、実験の初期状態の温度分布を数値計算によって求めた結果である。図中の実線が 0°C の等温線を表し、それより伝熱面側の領域が過冷却状態に、また中心側の流域が 0°C 以上の温度状態にある。本研究で設定した条件下では、流れの中心部分の初期温度は、いずれも 0°C より高かった。なお、数値計算の精度については、温度測定が可能な出口の混合平均温度によって検証し、十分な精度が得られていることを確認している。さらに、熱電対を挿入しても凝固する心配のない 0°C 以上の温度条件下で予備実験を行ない、数値解析の結果が実験値とよく一致することも確認している。図 8 の状態で、下流域の伝熱面上に突然氷が発現すると、氷は、最も成長しやすい伝熱面に沿って薄い氷を形成しながら上方に伝播する。さらに、薄い氷から、過冷却状態の水の中にデンドライトが成長する。上流側で氷が生成し始めるとまわりの過冷却水は冷熱を奪われ 0°C まで上昇する。しかし、下流側の氷は 0°C の水が流ただけでは融解することはない。次に、上流にデンドライトが生成されると、潜熱の放出による温度上昇とデンドライトが流れを阻止することによる温度場の乱れにより、図 9 に示すように下流域において中心部と混合された 0°C 以上の水が伝熱面近傍にも流れていくと思われる。下流域に一度形成されたデンドライトが、上流域でのデンドライトの成長によって再溶解するのは、上記の理由によるものと考えられる。

4. 結論

流動過冷却水中における氷の初期成長過程について実験を行ない、以下に示す結論を得た。

(1) 流動過冷却水に接する冷却伝熱面上に氷が出現すると、伝熱面に沿って薄氷が上流方向に広がる。氷の伝播速度は、伝熱面の温度と材質に強く依存するが、流速および流入温度には、殆ど影響されない。銅面上の氷の伝播速度と伝熱面温度の関係式を示した。

(2) 薄氷からデンドライトが出現し、次第に成長した後、一度成長したデンドライトが再び縮退・消滅に向かう現象を明らかにし、そのメカニズムを考察した。

最後に、本研究に日本学術振興会「未来開拓学術研究推進事業委託費(97P01003)」を使用したことを記し、謝意を表する。

参考文献

- (1) Mulligan, J.C. and Jones, D.D., Experiments on Heat Transfer and Pressure Drop in a Horizontal Tube with Internal Solidification, *Int. J. of Heat and Mass Transf.*, 19(1976), 213-219.
- (2) Thomason, S.B., Mulligan, J.C. and Everhart, J., The Effect of Internal Solidification on turbulent Flow Heat Transfer and Pressure Drop in a Horizontal Tube, *Trans. ASME, J. Heat Transf.*, 100-Aug.(1978), 387-394.
- (3) Gilpin, R.R., The Morphology of Ice Structure in a Pipe at or Near Transition Reynolds Numbers, *Heat Transfer - San Diego 1979, AIChE Symposium Series 189*, 75(1979), 89-94.
- (4) Cho, C. and Ozisik, M.N., Transient Freezing of Liquids in Turbulent Flow inside Tubes, *Trans. ASME, J. Heat Transf.*, 101-Aug.(1979), 465-468.
- (5) Gilpin, R.R., Ice Formation in a Pipe Containing Flows in the Transition and Turbulent Regions, *Trans. ASME, J. Heat Transf.*, 103-May(1981), 363-368.
- (6) Seki, N., Fukusako, S. and Younan, G.W., Ice-Formation Phenomena for Water Flow between Two Cooled Parallel Plates, *Trans. ASME, J. Heat Transf.*, 106-Aug.(1984), 498-505.
- (7) Hirata, T. and Ishikawa, M., Freezing-off conditions of a pipe containing a flow of water, *Int. J. Heat and Mass Transf.*, 28-2(1985), 331-337.
- (8) 智田喜久二・田島守, 90° ベンド内層流の凝固閉そく限界, *機論*, 54-497(1988), 163-167.
- (9) Yamada, M., Fukusako, K., Kawanami, T. and Oh, C.,

Freezing Heat Transfer between Two Cooled Parallel Plates with Separated Region, Proc. of 11th IHTC, 7(1998), 247-252.

(10) 六串俊己・高橋燦吉, 管内流における過冷却度と氷の成長について, 化学工学論文集, 7-5(1981), 449-453.

(11) 平田哲夫・田中邦章, 過冷却を伴う円管内流水の凍結開始条件, 第28回日本伝熱シンポジウム講演論文

集, (1991-5), 325-327.

(12) 斎藤彬夫・大河誠司・宇根浩・田之頭健一・戸敷晃, 過冷却水の凝固に影響を及ぼす外的要因に関する研究, 冷凍協会論文集, 8-2(1991), 151-160.

(13) 斎藤彬夫・大河誠司・石井剛人, 流動過冷却水の非定常凝固現象, 冷凍協会論文集, 15-3(1997), 203-212.