凝固過程の動的な応答に関する数値解析*
(周期的冷却温度変化に対する固相厚さの応答)木村 繁 男^{*1}, 岡 島 厚^{*1}
木 綿 隆 弘^{*1}, 村 井 孝 行^{*2}Numerical Analysis on Dynamic Response of Solidifying Process
(Response of Ice Layer Growth due to Time-Varying Cooling Temperature)Shigeo KIMURA^{*3}, Atsushi OKAJIMA,
Takahiro KIWATA and Takayuki MURAI^{*3} Faculty of Engineering, Kanazawa University, Kodatsuno 2-40-20, Kanazawa-shi, Ishikawa, 920-8667 Japan

This paper investigates dynamic responses of ice-layer growth when water is cooled from the top boundary with time-varying cooling temperature. One-dimensional and two-dimensional numerical models, both of which consider convective heat transfer at the ice-water boundary, are formulated respectively. The Stefan number, the modified Rayleigh number and the cooling temperature are identified as the key parameters of solidifying process. The results of dynamic responses of ice-layer formation from the two models agree well, and this proves the usefulness of one-dimensional model at high Rayleigh number regime, where direct numerical simulation of convective flow is impossible.

Key Words: Solidification, Conjugate Heat Transfer, Natural Convection, Phase Change, Numerical Analysis, Moving Boundary

1. 緒 言

凝固・融解現象はわれわれの身近に観察される着氷、製氷などの小規模なものから、湖の結氷・氷解、極地に存在する氷の量の長期的変動、惑星の内部構造の進化(地殻厚さの長期的変動)などの大規模なものまで多種多様な形態で現れる物理現象である。工学の分野においても金属材料開発・製造に関連した組織制御は重要な問題である。先端技術である半導体製造分野でも均一な単結晶シリコンウェーハの製造に関連して溶融液内の対流制御が課題となっている⁽¹⁾。さらに生体工学の分野では臓器・食品の冷凍保存技術の高度化を目指した非平衡凝固現象の解明が必要となっている⁽²⁾。

歴史的に見ると、凝固についての理論的検討は、Stefan や Neumann による一方向性凝固問題の解析により始められた⁽³⁾。これは凝固点あるいはそれ以上の温度を有する液相の境界が、突然凝固点以下に冷却されて形成される固相の成長について考察したもので

ある。これらの解析においては、液相からの熱流束は熱伝導によるものであると仮定されている。しかし、実際には液相内に生じる温度や溶質濃度の不均一な分布のために対流の発生が避けられない。したがって固液界面での熱流束は対流熱伝達が支配的となる。このため対流熱伝達を考慮した凝固・融解現象についての研究は近年数多くなされている。本論文で取扱っている矩形容器内の水の凍結過程に関する最近の例をあげれば、PIV 手法を用いた実験と数値計算を実施した Kowalewski らによる一連の研究がある⁽⁴⁾⁻⁽⁶⁾。

これまでの凝固に関する研究では冷却面温度はつねに一定であると仮定されてきた。しかし、地中熱交換器を用いた地下水や溶融マグマからの熱抽出を考えると、熱交換器周囲の固相の成長は抽熱量を変動させることになり、安定した熱抽出を実現するためには固相成長を制御する必要がある。また、湖面の結氷・氷解プロセスと気温の季節変動、極地の氷層厚さと長期気象変動との関係について明らかにするためには、冷却面温度変動に対する固相厚さの応答について理解することが不可欠となる⁽⁷⁾。そこで、本研究では矩形空間内の水が上方から凝固点以下で等温冷却される。最も基礎的な凝固・融解問題を取り上げた。そして、冷却面温度変動に対する固液界面の応答について、一次元、

* 原稿受付 2001年4月2日。

^{*1} 正員、金沢大学工学部(〒920-8667 金沢市小立野2-40-20)。^{*2} 学生員、金沢大学大学院。

E-mail: skimura@t.kanazawa-u.ac.jp

二次元数値モデルにより数値的に検討した。特に、ここでは、対流計算が実質不可能な高レーレー数領域での一次元数値モデルの有用性について検証することを目的としている。

記 号

- C : 比熱 J/(kg·K)
 f : 固液界面位置 m
 F : 無次元固液界面位置
 g : 重力の加速度 m/s²
 k : 熱伝導率 W/(m·K)
 H, W : 鉛直方向高さ, 水平方向幅 m
 l : 一次元モデル代表長さ m
 L : 潜熱 J/kg
 Nu : 平均ヌッセルト数 $= q''H/k_L(T_H - T_C)$
 Pr : プラントル数 $= \nu/\alpha_L$
 q'' : 平均熱流束 W/m²
 Ra_M : 修正レーレー数 $= gH^3[1 - \bar{\rho}/\rho_0]/\alpha_L\nu$
 S : 無次元潜熱 $= L/[C_s(T_0 - T_C)]$
 Ste_M : 修正ステファン数 $= (\rho C)_L(T_H - T_0)/\rho_s L$
 t : 時間 s
 u, v : 速度ベクトル成分 m/s
 x, y : 物理座標 m
 X, Y : 無次元座標
 ギリシャ文字
 α : 熱拡散率 m²/s
 δT : 温度振幅 °C
 λ : 無次元温度振幅
 θ : 無次元温度
 ρ : 密度 kg/m³
 τ : 無次元時間
 μ : 粘性係数 Pa·s
 ν : 動粘性 m²/s
 ω : 角速度 rad/s
 $\tilde{\psi}$: 流れ関数 m²/s
 $\tilde{\zeta}$: 渦度 s⁻¹
 添 字
 O : 凝固点
 C : 低温壁
 H : 高温壁
 L : 液相
 S : 固相
 $*$: 二次元計算

2. 数 値 解 析 法

2.1 二次元数値シミュレーション 計算モデル

は図1に示すように矩形空間内で上部から固相が成長する場合を考える。相変化による体積変化を無視し、流体は非圧縮ニュートン流体で、浮力項中の密度以外の物性値は温度に依存しない(Boussinesq 近似)。また流れ関数 $\tilde{\psi}$ と渦度 $\tilde{\zeta}$ は次のように定義する。

$$u = \frac{\partial \tilde{\psi}}{\partial y}, \quad v = -\frac{\partial \tilde{\psi}}{\partial x} \quad \dots\dots\dots (1)$$

$$\tilde{\zeta} = \frac{\partial v}{\partial x} - \frac{\partial u}{\partial y} = -\nabla^2 \tilde{\psi} \quad \dots\dots\dots (2)$$

流れ関数と渦度を用いた無次元支配方程式は次のようになる。

液相:

$$\zeta = -\nabla^2 \psi \quad \dots\dots\dots (3)$$

$$\frac{D\zeta}{D\tau^*} = Pr \nabla^2 \zeta + Pr \frac{\partial}{\partial X^*} \left(\frac{\rho g H^3}{\alpha \mu} \right) \quad \dots\dots\dots (4)$$

$$\frac{D\theta_L}{D\tau^*} = \nabla^2 \theta_L \quad \dots\dots\dots (5)$$

固相:

$$\frac{\partial \theta_s}{\partial \tau^*} = \frac{\alpha_s}{\alpha_L} \nabla^2 \theta_s \quad \dots\dots\dots (6)$$

固液界面:

$$\begin{aligned} \frac{\partial F^*}{\partial \tau^*} = Ste_M \left(\frac{k_s}{k_L} \cdot \frac{T_0 - T_C}{T_H - T_0} \cdot \frac{\partial \theta_s}{\partial Y^*} - \frac{\partial \theta_L}{\partial Y^*} \right) \\ \times \left[1 + \left(\frac{\partial F^*}{\partial X^*} \right)^2 \right] \quad \dots\dots\dots (7) \end{aligned}$$

式(3)～(6)に関する境界条件を以下に示す。

$$\psi = 0, \quad \theta_L = 1, \quad \zeta = -\frac{\partial^2 \psi}{\partial Y^{*2}} \quad \text{on } Y^* = 0$$

$$\psi = 0, \quad \theta_L = 0, \quad \theta_s = 0,$$

$$\zeta = -\left[1 + \left(\frac{\partial F^*}{\partial X^*} \right)^2 \right] \frac{\partial^2 \psi}{\partial Y^{*2}} \quad \text{on } Y^* = F^*$$

$$\theta_s = -1 \quad \text{on } Y^* = 1$$

$$\psi = 0, \quad \frac{\partial \theta_L}{\partial X^*} = \frac{\partial \theta_s}{\partial X^*} = 0, \quad \zeta = -\frac{\partial^2 \psi}{\partial X^{*2}}$$

Fig.1 Two-dimensional model

$$\text{on } X^*=0, H/W \dots\dots\dots (8)$$

無次元量は以下のように定義される。

$$\begin{aligned} X^* &= \frac{x}{H}, \quad Y^* = \frac{y}{H}, \quad F^* = \frac{f}{H}, \quad \tau^* = \frac{a_L t}{H^2}, \\ \theta_L &= \frac{T_L - T_0}{T_H - T_0}, \quad \theta_S = \frac{T_S - T_0}{T_0 - T_C}, \quad \psi = \frac{\tilde{\psi}}{a_L}, \\ \zeta &= \frac{\tilde{\zeta} H^2}{a_L}, \quad Pr = \frac{\nu}{\alpha}, \\ Ste_M &= \frac{(\rho C)_L (T_H - T_0)}{\rho_S L} \end{aligned} \dots\dots\dots (9)$$

水は 4°C 付近で密度が最大になることを考慮して浮力項の密度は次式で表す (0°C ≤ T ≤ 20°C)⁽⁸⁾。

$$\begin{aligned} \rho &= \rho_0 (1 + a' T + b' T^2 + c' T^3 + d' T^4)^{-1} \dots\dots\dots (10) \\ \rho_0 &= 999.8396 \text{ kg/m}^3 \\ a' &= -0.678964520 \times 10^{-4} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}, \\ b' &= 0.907294338 \times 10^{-5} \text{ } (^\circ\text{C}^{-1})^2 \\ c' &= -0.964568125 \times 10^{-7} \text{ } (^\circ\text{C}^{-1})^3, \\ d' &= 0.873702983 \times 10^{-9} \text{ } (^\circ\text{C}^{-1})^4 \end{aligned}$$

また、修正 Re 数は、次式のようにになる。

$$Ra_M = \frac{g H^3}{\alpha_L \nu} \left| 1 - \frac{\bar{\rho}}{\rho_0} \right| \dots\dots\dots (11)$$

ここで、 α_L , ν , $\bar{\rho}$ は $(T_H + T_0)/2$ における値である。

また、固液界面位置の変化に対しては、境界固定法⁽⁹⁾に従い座標変換することで対応した。初期条件の固相厚さと固相内温度分布はノイマンの厳密解より決定した。液相は $\theta_L = 0$ であり、 $\tau^* = 0$ で上面温度が $\theta_S = -1$ に、底面温度が $\theta_L = 1$ に突然変化したと仮定した。解法としては、式(3)～(5)から、液相内の温度分布、渦度、流れ関数、また、式(6)より固相内の温度分布を求めた。その後、熱平衡の式により凍結界面位置を求めた。式(3)～(7)の離散化に関しては、空間の差分近似に四次精度多点差分⁽¹⁰⁾、時間の差分近似に Clank-Nicolson 法を用いた。

2.2 一次元数値シミュレーション 計算モデルを図2に示す。相変化による体積変化を無視し、液相

Fig. 2 One-dimensional model

内での対流に起因する固液界面での熱流束を一定と仮定すると無次元支配方程式と境界条件は次のようになる。ただし、冷却温度は $\sin$ 曲線で与えられる周期変動を仮定した。

固相内エネルギー式：

$$\frac{\partial \theta_S}{\partial \tau} = \nabla^2 \theta_S \dots\dots\dots (12)$$

固液界面での熱平衡式：

$$\frac{\partial F}{\partial \tau} = \frac{1}{S} \left(\frac{\partial \theta_S}{\partial X} \Big|_{X=F} - 1 \right) \dots\dots\dots (13)$$

境界条件

$$\theta_S = -1 + \lambda \sin \Omega \tau \quad \text{on } X=0 \dots\dots\dots (14)$$

$$\theta_S = 0 \quad \text{on } X=F \dots\dots\dots (15)$$

無次元量の定義は以下のとおりである。

$$\begin{aligned} \theta_S &= \frac{T_S - T_0}{T_0 - T_C}, \quad X = \frac{x}{l}, \quad F = \frac{f}{l}, \quad \tau = \frac{\alpha_S}{l^2} t, \\ \Omega &= \frac{l^2}{\alpha_S} \omega, \quad S = \frac{L}{C_S (T_0 - T_C)}, \quad \lambda = \frac{\delta T}{T_0 - T_C} \end{aligned} \dots\dots\dots (16)$$

ここで、代表長さ l は固液界面が熱平衡状態にあることを仮定し、式(13)から求めた。

$$l = \frac{k_S (T_0 - T_C)}{q''} \dots\dots\dots (17)$$

固液界面位置の変化については、境界固定法により対応した。式(12), (13)の離散化について、空間の差分近似には四次精度多点差分、時間進行法には Adams-Bashforth 法を用いた。初期条件としては、 $\tau = 0.02$ でのノイマンの厳密解より得られる固液界面位置と固相内温度分布を用いた。

3. 結果および考察

3.1 二次元数値シミュレーションの検証 二次元数値解析の妥当性の検証のため、まず、密度逆転層を有するレーレー・ベナール対流について、Blake ら⁽¹¹⁾と同一条件(アスペクト比 0.5)で解析を行った。図3は平均ヌセルト数と修正レーレー数の関係である。Blake らの結果と比較して多少の差があるが、こ

Fig. 3 The average Nusselt number as a function of the modified Rayleigh number

れは本研究でより厳密な密度近似式と、より高い空間解像度(格子点数)を用いたためである。しかし、対流が発生する修正レーレー数の値が6000でほぼ同じであり、また、ヌッセルト数の増加率が一致していることより、対流計算が妥当であると考えられる。

3.2 冷却面温度変動がない場合の固相の成長

二次元計算で冷却面温度変動がない場合の固相の成長過程について、修正レーレー数が $Ra_M = 5 \times 10^4$ の場合と、修正レーレー数が高い $Ra_M = 10^6$ の場合の結果を図4, 5に示す。等温線図と流線図は、固相厚さがほぼ一定となったときのものである。

$Ra_M = 5 \times 10^4$ の場合、高温壁、低温壁、固液界面での平均ヌッセルト数は約2.5に、固相厚さは $F^* =$

0.215にそれぞれ収束する。等温線図、流線図からわかるように固液界面の変形、二つの対流セル、密度逆転層を界とした安定領域、不安定領域が明確にとらえられている。

$Ra_M = 10^6$ の場合を図5に示す。図5(b)から高温壁、固液界面での平均ヌッセルト数が振動しているのがわかる。等温線図からも液相内でブルームの上昇、下降が活発で、対流が非定常であることが明らかである[図5(a)]。一方、低温壁での平均ヌッセルト数はほぼ一定に落ち着き、固相厚さも一定値に収束する。このように液相内が非定常であってもステファン数(S^{-1})が比較的小さい場合は固相厚さは時間平均熱流束により決定される。このことから液相が乱流となる高レーレー数領域(数値解析が事実上不可能)でも、熱流束一定を仮定する一次元モデルにより固相厚さの動的な変動を解析することができる。

Fig. 4 Numerical results for $Ra_M = 5 \times 10^4$, $S = 40$, $Pr = 11.573$, $T_H = 8^\circ\text{C}$, and $T_C = -1^\circ\text{C}$

Fig. 5 Numerical results for $Ra_M = 1 \times 10^6$, $S = 40$, $Pr = 11.573$, $T_H = 8^\circ\text{C}$, and $T_C = -4^\circ\text{C}$

3.3 冷却面温度変動に正弦振動を与えた場合

冷却面温度が周期的に変動する場合に固液界面位置がどのように応答するかを調べた。ここではその一例として、冷却面温度変動に正弦振動を与えた場合について一次元、二次元計算を行った。冷却面の無次元温度振幅 $\lambda=0.1$ を固定し、ステファン数の逆数を $S=40, 20, 5, 1$ 、無次元角速度を $\Omega=1.5, 1.0, 0.5, 0.2$ と変化させてそれぞれ計算した。また、二次元数値シミュレーションでは、対流が非定常で固液界面形状が不規則形状となる修正レーレー数 $Ra_M=10^6$ という条件を与えている。この場合の固相厚さは平均値である。一次元数値解析における熱流束 q'' は二次元計算の平均ヌッセルト数から決定した。

図6は $S=40, \Omega=0.2$; $S=20, \Omega=0.5$; $S=5, \Omega=1.0$ の三つの場合の固相厚さの時間変化を示したものである。いずれの結果でも一次元と二次元の数値シ

(a) $S=40, \lambda=0.1, \Omega=0.2$

(b) $S=20, \lambda=0.1, \Omega=0.5$

(c) $S=5, \lambda=0.1, \Omega=1.0$

Fig. 6 Dynamic history of dimensionless ice-layer subject to a periodic change of cooling temperature ($Ra_M=10^6$)

ミュレーションの間には固相の成長段階から非常によい一致が見られ、十分に時間がたった後では、ほぼ完全に一致している。ただし、ステファン数の逆数 S が小さく、固相の成長速度が大きい場合では、固相の成長段階 ($0 \leq \tau < 10$) において、多少の差が生じている。これは、一次元計算の場合では計算開始直後から熱流束一定という条件を与えているのに対し、二次元計算では対流が発生していない状態を初期条件としているためである。このように S が小さく固液界面の移動速度が大きい場合は、固相の成長段階において対流の成長過程の影響が顕著に現れてくる。しかし、十

Fig. 7 Amplitude of solid-liquid interface oscillation as a function of angular frequency ($Ra_M=10^6, \lambda=0.1$)

Fig. 8 Phase lag of solid-liquid interface oscillation as a function of angular frequency ($Ra_M=10^6, \lambda=0.1$)

分時間が経過した後の固液界面位置の変動には影響がほとんど出ない。

3・4 固液界面振動振幅 冷却面温度の周期的変動が固液界面振動振幅に与える影響についてステファン数の逆数 S と無次元角速度 Ω についてまとめたものを図 7 に示す。固液界面振動振幅は S が大きい場合は小さく、 S が小さい場合は大きくなる。 S が大きいと相変化に必要な熱量が大きくなり、その結果固液界面位置の移動速度は遅くなる。また、 Ω が大きくなるにつれて固液界面振動振幅が小さくなり、零に漸近する傾向が得られている。これは冷却面での温度変動が変動周波数に比例して固相内で指数関数的に減衰するためである。

3・5 位相遅れ 冷却面温度に正弦振動を与えた場合、固液界面位置も正弦振動となるがその間には位相の遅れがある。この位相遅れについてまとめたものを図 8 に示す。 S あるいは Ω が大きくなると位相遅れが大きくなる。これも固液界面位置の移動速度が S に反比例して小さくなり、また、冷却面温度変動が固相内で Ω に比例して減衰するためである。

4. 結 論

本研究では、矩形空間内の水が上方から凝固点以下で等温冷却され、下方から自然対流熱伝達が存在する場合の水層の生成過程について検討した。特に冷却面温度が時間的に変化する場合の水層厚さの変動のようすを数値的に明らかにした。液相からの熱流束一定を仮定する一次元数値計算と完全二次元数値計算の結果を比較して以下の結果を得た。

また、計算パラメータの範囲は $5 \leq S \leq 40$, $0.2 \leq \Omega \leq 1.5$, $\lambda = 0.1$, $Ra_M = 10^6$ である。

(1) 一次元と二次元数値計算の比較において、固相厚さの時間変動に関して非常によい一致が得られ、その違いは 5% 以下である。このことから対流の影響

による不規則な界面形状であっても平均固相厚さは、一次元数値計算で十分計算できることを示した。

(2) 固液界面位置の位相遅れと界面位置振動振幅を温度変動周波数の関数として示し、一次元数値計算の有効性を明らかにした。なお、二次元計算結果との違いは最大で 20% 程度である。

文 献

- (1) 尾添紘之, Cz 法における磁場による自然対流の制御, *ながれ*, **19** (2000), 296-305.
- (2) 多田幸生・義岡秀晃・中村宗功・林勇二郎, 過冷却を伴う三成分溶液のマイクロ凝固, *Thermal Sci. Eng.*, **19-1** (2001), 1-11.
- (3) Stefan, J., Über die Theorie der Eisbildung, insbesondere über die Eisbildung im polarmeere, *Annal. Phys. Chem.*, **42** (1891), 269-286.
- (4) Kowalewski, T. A. and Rebbow, M., An Experimental Benchmark for Freezing Water in the Cubic Cavity, *Proc. ISACHT'97*, Turkey, (1997), 149-156.
- (5) Kowalewski, T. A., Cybulski, A. and Rebbow, M., Particle image Velocimetry and Thermometry in Freezing Water., *Proc. 8th Int. Symp. Flow Visualiz.* Edinburgh, (1998), 24.1-24.8.
- (6) Giang, M., Kowalewski, T. A., Fulvio, S. and Leonaldi, E., Natural Convection during Ice Formation: Numerical Simulation vs. Experimental Results., *Comput. Assist. Mech. Eng. Sci.* **7** (2000), 321-342.
- (7) Kimura, S. and Vynnycky, M. (Sarler, B., Brebbia, C. A. and Power, H., eds.), Time History of Ice-Layer Formation at the Cooled Top Boundary and Its Dynamic Response to the Time-Varying Cooling Temperature, *Moving Boundaries*, **V** (1999), 47-56, WIT Press.
- (8) 藤井啓・藤井丕夫, グラスホフ数について, 第 11 回伝熱シンポジウム講演論文集, (1974), 369-372.
- (9) Duda, J. L., Malone, M. F. and Notter, R. H., Analysis of Two-Dimensional Diffusion-Controlled Moving Boundary Problems., *Int. J. Heat Mass Transf.*, **18** (1975), 901-910.
- (10) 齊藤武雄, 多点前進差分法による多次元伝熱問題の解析, *機論*, **50-459**, B(1984), 2704-2708.
- (11) Blake, K. R., Poulikakos, D. and Bejan, A., Natural Convection Near 4°C in a Horizontal Water Layer Heated from Below, *Phys. Fluids*, **27**, PartII, (1984), 2608-2616.