



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	上向き水平冷却面上における水溶液凍結層の解析
Author(s)	福迫, 尚一郎; Fukusako, Shoichiro; 山田, 雅彦 他
Citation	北海道大學工学部研究報告, 149, 91-99
Issue Date	1990-02-28
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/42213
Type	departmental bulletin paper
File Information	149_91-100.pdf



上向き水平冷却面上における水溶液凍結層の解析

福迫 尚一郎 山田 雅彦

(平成元年9月30日受理)

An Analytical Study of Freezing Characteristics of an Aqueous Binary Solution on Upper Facing Cooled Plate

Shoichiro FUKUSAKO and Masahiko YAMADA

(Received September 30, 1989)

Abstract

An analytical study has been performed to investigate the freezing characteristics of an aqueous binary solution on an upper facing cooled plate. In the analysis, the effect of concentration diffusion was assumed to be neglected, and furthermore, one dimensional conduction heat transfer with thermal equilibrium was assumed. The Landau's transformation method and five point implicit method were employed to solve the governing equations. Ethylene glycol solution, which is utilized as a secondary coolant, was adopted as the testing solution. The analytical results were favorably compared with the experimental ones. It was found that the assumptions adopted in the present study were only available for the conditions under which the dendritic ice layer normal to the cooled plate is formed.

1. 緒 言

純水中に他の物質を溶解したいわゆる水溶液は、その凍結に際して溶質の濃度に依存した平衡凝固温度の低下と、凍結の進行に伴なって溶質が析出されることによって生ずる構成的過冷のため、通常の氷が均一層と見なせるのに対し、一般に固液共存の不均質層となり、溶質の種類、濃度、冷却条件、および対流の有無等によってその性状が異なるという特徴を有する。

これらの特徴は、工業的には不凍液としての二次冷媒への利用や、冷却条件によって凍結層が液状になる性質を利用して、氷蓄冷システムの蓄冷材として利用されており、また、水溶液の凍結問題は海水の凍結による淡水化や、食品、血液等の凍結保存など多くの重要な分野に深く関連している。

このため、その熱的性質や凍結挙動に関する詳細な検討が必要となっており、様々な冷却条件下において形成される凍結層の性状を実験的に検討すると同時に、凍結量などを解析的に予測することが重要である。

しかし、水溶液の凍結問題は厳密には熱力学的非平衡問題であると同時に、凍結層の物性値が凍結層の構成に大きく依存するなど不明な点が多いことから、従来の解析においては、凍結層に対して、物性値を仮定するとともに、熱力学的に局所平衡を仮定して解析を行なっている。

水溶液の凍結問題の解析については、これまでに塩化ナトリウム水溶液⁽¹⁾⁻⁽⁵⁾および塩化アンモニウム水溶液⁽⁶⁾⁻⁽¹⁰⁾に関して、いくつかの報告がなされている。

本研究は、一般に二次冷媒として広く用いられているエチレングリコール水溶液の凍結に関して解析を行なったもので、濃度拡散を無視した一次元熱伝導問題としての取扱の適用可能な条件や範囲に関して検討を行なっている。

記 号

C_e : 平衡濃度	wt%		ギリシャ文字
C_0 : 初期濃度	wt%	δ :	凍結層厚さ m
C_p : 定圧比熱	$\text{kJ/kg}\cdot\text{K}$	η :	(28)式で定義される 凍結層内座標
Fo :	フーリエ数	x :	温度伝導率 m^2/s
f_s :	固相率	λ :	熱伝導率 $\text{W/m}\cdot\text{K}$
H :	初期液高さ m	ξ :	(29)式で定義される 液域内座標
L :	水の凍結潜熱 J/kg	ρ :	密度 kg/m^3
R :	(14)式で定義される 無次元凍結層厚さ	τ :	時間 s
t :	無次元時間 (= Fo)		添字
T :	温度 $^{\circ}\text{C}$	f :	凍結点
T_0 :	水の凍結温度 0°C	s :	氷
x :	冷却面からの垂直方向座標 m	l :	液域
x^* :	(9)式で定義される 無次元座標	w :	冷却面
Ya :	ヤコブ数	m :	凍結層
		∞ :	初期

2. 解 析

2.1 解析モデル

本研究では、解析にあたって、下記の仮定を導入する。

- ① 一次元熱伝導問題で、対流の影響は無視できる。
- ② 熱力学的平衡状態にある。
- ③ 濃度拡散は温度拡散に比較してその影響を無視し得るほど充分小さい。
- ④ 氷結晶中に溶質が取り込まれない。
- ⑤ 未凍結層の濃度は初期濃度 C_0 で一定である。

上記の仮定を適用し、図1および図2に示す解析モデルを導入する。

2.2 基礎方程式

図1及び図2に示す解析モデルより、凍結層及び未凍結層に対してそれぞれ、下記の基礎方程式が与えられる。

凍結層：

$$\rho_m C p_m \frac{\partial T_m}{\partial \tau} = \frac{\partial}{\partial x} \left[\lambda_m \frac{\partial T_m}{\partial x} \right] + \rho_s L \frac{df_s}{d\tau} \quad (1)$$

未凍結層：

$$\rho_l C p_l \frac{\partial T_l}{\partial \tau} = \lambda_l \frac{\partial^2 T_l}{\partial x^2} \quad (2)$$

2.3 初期および境界条件

初期条件は、凍結開始時において、液温度一定とする。境界条件は、初期液層の高さ ($x=H$) において、液の初期温度が維持されるとする。

従って、初期条件は

$$\tau = 0 ; T_m = T_l = T_\infty \quad (3)$$

境界条件は、

$$x = 0 ; T_m = T_w \quad (4)$$

$$x = H ; T_l = T_\infty \quad (5)$$

また、凍結層と未凍結層の界面では、相変化を考慮した熱バランスより、

$$x = \delta ; T_m = T_l = T_0(C_0) \quad (6)$$

$$\lambda_m \frac{\partial T_m}{\partial x} = \lambda_l \frac{\partial T_l}{\partial x} + \rho_m L \frac{\partial \delta}{\partial \tau} \quad (7)$$

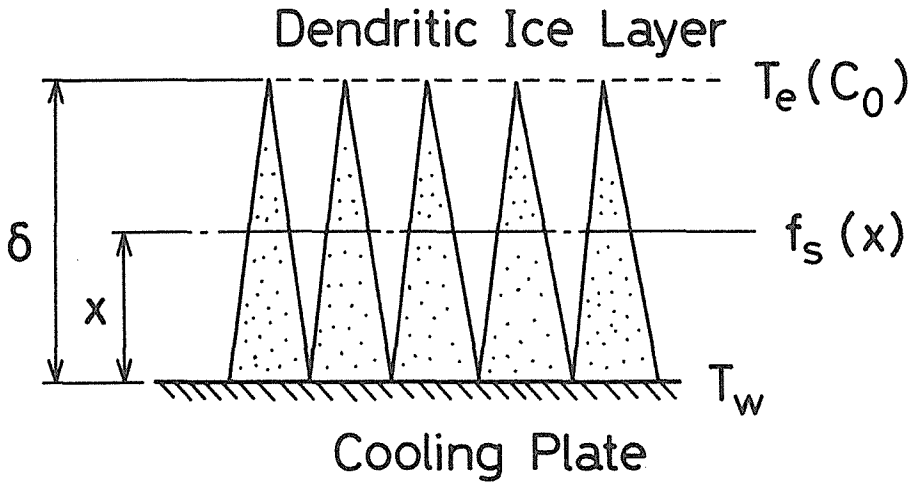


図1 解析モデル

2.4 無次元変数の導入

凍結層の物性値は、液相及び固相の質量分率で決定する。

$$C p_m = \sum_k C p_k f_k \quad \lambda_m = \sum_k \lambda_k f_k \quad \rho_m = \sum_k \rho_k f_k \quad (k = s, l) \quad (8)$$

但し、 $f_s + f_l = 1$

ここで、座標、温度、および時間などの変数を以下のように無次元化する。

$$x^* = x/H \quad (9)$$

$$T_m^* = (T_m - T_w)/(T_0 - T_w) \quad (10)$$

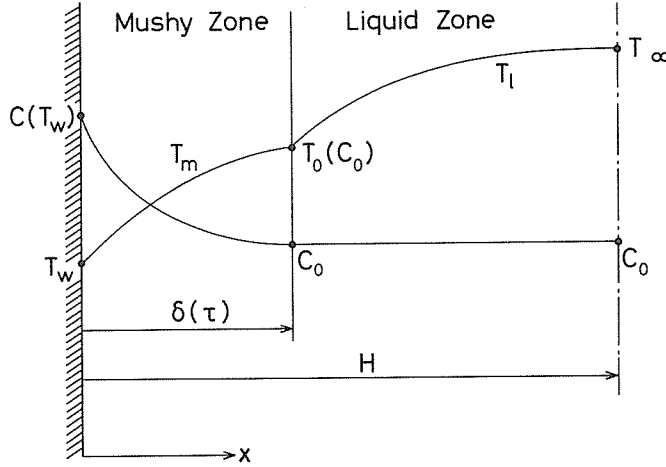


図2 解析モデル

$$T_l^* = (T_l - T_0)/(T_\infty - T_0) \quad (11)$$

$$t = x_l \tau / H^2 (= Fo) \quad (12)$$

$$Ya = Cp_l (T_0 - T_w) / L \quad (13)$$

$$R = \delta / H \quad (14)$$

また、物性値は、すべて液の物性値を用い下記のように無次元化する。

$$\rho_k^* = \rho_k / \rho_l, \quad Cp_k^* = Cp_k / Cp_l, \quad \lambda_k^* = \lambda_k / \lambda_l \quad (15)$$

2.5 基礎方程式及び境界条件の無次元化

前節で無次元化した変数(9)～(15)式を(1)式に代入する。ここで、温度濃度平衡曲線を下記のように3次式で近似する。

$$T_m = T_A C + T_B C^2 + T_C C^3 \quad (16)$$

$$\text{ここに、} C = C^* C_0 \quad (17)$$

また、この法則と $C_s = 0$ の仮定より

$$f_s = (C - C_0) / C \quad (18)$$

とする。以上の関係より、(1)式は、

$$\left[\rho_m^* Cp_m^* - \frac{F(C^*)}{Ya} \right] \frac{\partial T_m^*}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x^*} \left[\lambda_m^* \frac{\partial T_m^*}{\partial x^*} \right] \quad (19)$$

となる。但し、

$$F(C^*) = \frac{1}{(C^*)^2} \frac{T_0 - T_w}{C_0 (T_A + 2T_B C_0 C^* + 3T_C C_0 (C^*)^2)} \quad (20)$$

また、(2)式は、

$$\frac{\partial T_l}{\partial t} = \frac{\partial^2 T_l}{\partial x^{*2}} \quad (21)$$

となる。凍結層界面における境界条件(7)式は、

$$\frac{\partial T_m^*}{\partial x^*} = \frac{1}{\lambda_m^*} \left[\frac{T_0 - T_\infty}{T_0 - T_w} \right] + \frac{\rho_m^*}{\lambda_m^*} Y a \frac{dR}{dt} \quad (22)$$

となる。また、境界条件は、

$$T_m^*(0, t) = 0 \quad (23)$$

$$T_m^*(R, t) = 1 \quad (24)$$

$$T_l^*(R, t) = 0 \quad (25)$$

$$T_l^*(1, t) = 1 \quad (26)$$

2.6 境界固定法の適用

界面移動問題の解法の一つとして、Landau⁽¹¹⁾による境界固定法を適用する。ここで、図3に示す新座標を導入する。

$$\text{界面位置: } x = R(t) \quad (27)$$

$$\text{凍結層: } \eta = x/R(t) \quad (0 \leq \eta \leq 1) \quad (28)$$

$$\text{液層: } \xi = (x - R(t))/(1 - R(t)) \quad (0 \leq \xi \leq 1) \quad (29)$$

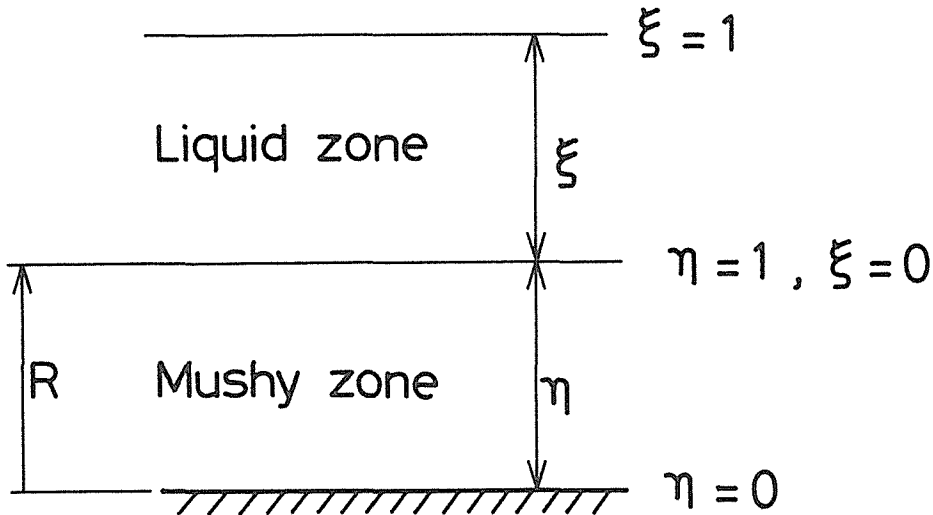


図3 境界固定法座標系

以上の座標変換を(18)および(20)式、さらに境界条件(22)～(26)式に適用すると次式を得る。

$$FF(C^*) \frac{\partial T_m}{\partial t} = \frac{\lambda_m}{R^2} \frac{\partial^2 T_m}{\partial \eta^2} + \left\{ \frac{1}{R^2} \frac{\partial T_m}{\partial \eta} + \frac{\eta}{R} \frac{dR}{dt} FF(C^*) \right\} \frac{\partial T_m}{\partial \eta} \quad (30)$$

$$\frac{\partial T_l}{\partial t} = \frac{1}{(1-R)^2} \frac{\partial^2 T_l}{\partial \xi^2} + \frac{1-\xi}{1-R} \frac{dR}{dt} \frac{\partial T_l}{\partial \xi} \quad (31)$$

但し、

$$FF(C^*) = \rho_m^* C p_m^* - F(C^*) / Y a \quad (32)$$

また、界面の熱バランスは、(22)式より、

$$\frac{1}{R} \frac{\partial T_m}{\partial \eta} = \frac{1}{\lambda_m^*} \left[\frac{T_0 - T_\infty}{T_0 - T_w} \right] + \frac{\rho_m^*}{\lambda_m^*} Y a \frac{dR}{dt} \quad (33)$$

2.7 新凍結層界面の計算

(33)式に

$$\frac{dR}{dt} = \frac{1}{2\Delta t}(3R - 4RP + RPP) \quad (34)$$

なる関係を代入して整理すると、

$$f(R) = KC \cdot R^3 + (KD - KC) \cdot R^2 - (KA + KB + KD) \cdot R + KA = 0 \quad (35)$$

を得る。但し、 Δt は時刻刻み、また、

$$KA = \frac{\partial T_m}{\partial \eta} \quad (36)$$

$$KB = \frac{1}{\lambda_m} \left[\frac{T_\infty - T_0}{T_0 - T_m} \right] \frac{\partial T_i}{\partial \xi} \quad (37)$$

$$KC = \frac{\rho_m}{\lambda_m} Y a \frac{3}{2\Delta t} \quad (38)$$

$$KD = \frac{\rho_m}{\lambda_m} Y a \frac{1}{2\Delta t} (RPP - 4RP) \quad (39)$$

ここで、 R は新凍結層界面、 RP は前時刻刻みに於ける凍結層界面、 RPP は前々時刻刻みに於ける凍結層界面をそれぞれ表わす。

(35)式の解は界面位置を表わしており、区間 $[0, 1]$ に解が存在するはずであるから、二分法を用いて解を求める。ここで、凍結層界面では $f_s = 0$ であるが、本解析では f_s に充分小さな値 (1×10^{-7} 程度) を仮定して与え解析を行なった。

2.8 方程式の離散化および解法

(30)および(31)式の基礎方程式を5点陰伏法を採用して離散化する。すなわち、

$$\frac{\partial \Phi}{\partial t} = \frac{3\Phi_{i,j} - 4\Phi_{i,j-1} + \Phi_{i,j-2}}{2\Delta t} \quad (40)$$

$$\frac{\partial^2 \Phi}{\partial n^2} = \frac{\Phi_{i+1,j} - 2\Phi_{i,j} + \Phi_{i-1,j}}{(\Delta n)^2} \quad (41)$$

$$\frac{\partial \Phi}{\partial n} = \frac{\Phi_{i+1,j} - \Phi_{i-1,j}}{2\Delta n} \quad (42)$$

ここで、 Φ は T_i または T_m 、 n は η または ξ 、 $\Phi_{i,j}$ の j は時刻刻み、 i は η または ξ 座標の刻みである。上式を(30)および(31)式に代入して整理すると、

$$A_n \Phi_{i-1,j} + B_n \Phi_{i,j} + C_n \Phi_{i+1,j} = D_n \quad (43)$$

の形に整理でき、これらの離散化方程式をトーマス法を用いて解いた。

3. 解析結果および考察

3.1 温度分布

温度分布の時間変化の計算結果を、図4および図5に示す。また、図中には、実験結果⁽¹²⁾も併記してある。いずれの場合も、計算値は実測値と比較的良好一致を示している。図中には、凍結層界面位置の実測値も示してある。温度分布の計算値の線が、初期濃度 C_0 における平衡凍結温度 T_f と交わる点が界面位置の計算値を示していることから、いずれの場合も、凍結層厚さは計算値よりも実測値が、わずかに低い値を示していることがわかる。

また、両図より、実際の凍結界面の温度は、 T_f よりも約 $0.5 \sim 1.5^\circ\text{C}$ ほど低くなっていることが

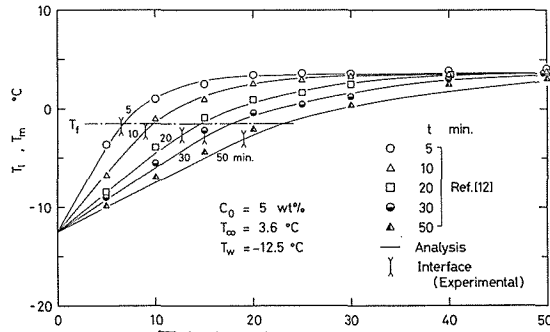


図4 温度分布

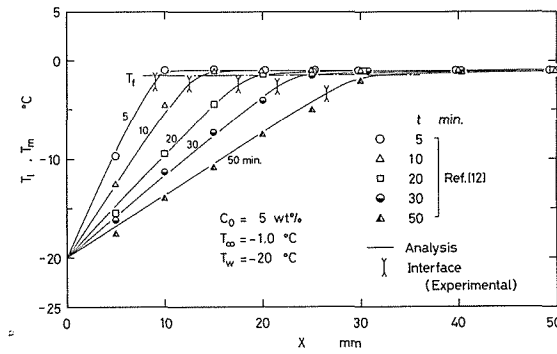


図5 温度分布

読み取れるが、これは、凍結の進行とともに界面前方に溶質が析出され、この部分の濃度が初期濃度 C_0 よりも高くなり、その結果平衡凍結温度 T_f が低下することによるものと考えられる。

3.2 凍結層厚さの時間変化

凍結層厚さの時間変化についての計算結果を、図6および図7に示す。図の横軸はフーリエ数、縦軸は無次元凍結層厚さを表わしている。また、図中には、実験⁽¹²⁾における結果も併記してある。

図6に示した結果は、いずれの場合も実測値と計算値が比較的良好一致を示している。これらの条件は、実験⁽¹²⁾において冷却面に垂直な針状の氷が観察された場合である。

また、図において、フーリエ数が大きくなるに従って実測値が計算値よりもやや低めの値を示している。これは、本解析では、液域の濃度は初期濃度 C_0 で一定と仮定しているが、実際には、

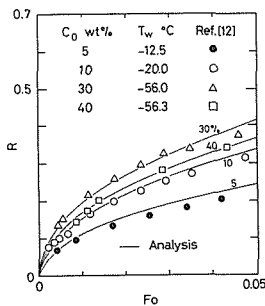


図6 凍結層厚さ

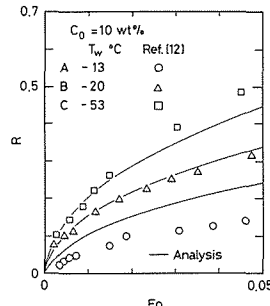


図7 凍結層厚さ

凍結の進行に伴う溶質の析出によって、凍結層界面近傍の濃度が初期濃度よりも高くなるためではないかと思われる。

図7におけるA, B, Cは、実験においてそれぞれ凍結層が、冷却面に斜め方向の針状になった場合、図6における条件のように、冷却面に垂直な針状の凍結層が形成された場合、および急冷のため白色不透明の凍結層が形成された場合について、計算値と測定値を比較したものである。

Aの場合、斜め方向であっても針状の凍結層になっていれば、解析の仮定と大幅に異なることはないが、この場合には、初期温度および冷却温度が高く、条件が比較的徐冷になるため過冷却になりやすく、また、このように凍結速度が遅くなる条件では、凍結層界面における濃度拡散の影響が大きくなることによって凍結層の成長が妨げられるため、濃度拡散を考慮していない本解析の値に比べて凍結層厚さが小さくなる傾向を示すものと思われる。

また、Cの場合の凍結層は、急冷によって溶質が凍結層内に取り込まれるため、解析における仮定が適用できなくなる。図において実測値が計算値よりも大きな値を示しているのは、針状の凍結層を仮定した本解析の場合と比較して、溶質を内部に取り込んだ凍結層の場合、凍結層の熱伝導率が大きくなるためではないかと推定される。

Bの条件においては、計算値は測定値と良い一致が得られている。本解析法のように濃度移動を無視し、凍結層を各断面における固相率で算定する場合、図6に示す範囲では解析結果と実験値の良い一致が得られる。しかし、急冷によって凍結層内に溶質を取り込む場合や、極端な徐冷になる場合、また、濃度移動の影響が無視できなくなる場合には、本解析方法は適用できなくなる。

4. 結 言

水平冷却面上におけるエチレングリコール水溶液の凍結挙動について解析を行った結果、本研究を行った範囲内で以下のことが明らかとなった。

- 1) 本研究における解析法は、濃度による影響が大きくなりすぎない程度の希薄溶液で、初期濃度、温度、および冷却温度の諸条件によって規定される冷却条件が、極端な急冷あるいは徐冷にならない領域、すなわち、針状の凍結層が形成される条件の下においては十分に適用できる。
- 2) 今後は、さらに様々な条件下における凍結層の取扱方法を確立すると共に、それらの適用範囲を明確にする必要がある。

参 考 文 献

- 1) 林勇二郎ら：第17回日本伝熱シンポジウム講演論文集，(昭55)，p.523.
- 2) O'Callaghan, O. G., et al.: J. Heat Transfer, 102 (1980), p. 673.
- 3) O'Callaghan, O. G., et al.: Int. J. Heat Mass Transfer, 25-4 (1982), p. 553.
- 4) Fang, L. J., et al.: J. Heat Transfer, 106 (1984), p. 385.
- 5) O'Callaghan, O. G., et al.: Int. J. Heat Mass Transfer, 25-4 (1982), p. 563.
- 6) Christensen, M. S., et al.: Int. J. Heat Mass Transfer, 32 (1989), p. 69
- 7) Bennon, W. D., et al.: Int. J. Heat Mass Transfer, 30 (1987), p. 2161
- 8) Bennon, W. D., et al.: Int. J. Heat Mass Transfer, 30 (1987), p. 2171
- 9) Bennon, W. D., et al.: Int. J. Heat Mass Transfer, 31 (1988), p. 2147
- 10) Bennon, W. D., et al.: Numerical Heat Transfer, 13 (1988), p. 277
- 11) Fukusako, S., et al.: Annual Review of Numerical Fluid Mechanics and Heat Transfer, p. 351.

- 12) 福迫尚一郎ら：日本機械学会論文集（B編），55巻520号（平元-12），p. 3787.