Double-diffusive convection on the solid-liquid interface in the early stage of solidification

メタデータ	言語: jpn 出版者: 公開日: 2017-10-05 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: メールアドレス: 所属:
URL	http://hdl.handle.net/2297/32862

固相成長初期段階における固液界面近傍での二重拡散対流

上田 将誉[*1]，木村 繁男[*2]，木綿 隆弘[*3]，小松 信義[*3]

Double-Diffusive Convection on the Solid-Liquid Interface in the Early Stage of Solidification

Masanori UEDA [*1], Shigeo KIMURA, Takahiro KIWATA and Nobuyoshi KOMATSU

[*1] Graduate School of Mechanical Engineering, Kanazawa University,
Kakuma-machi, Ishikawa, 920-1192, Japan

In the present study, we report on the effect of double diffusive convection associated with solute discharge in the early stage of unidirectional solidification from above. Two-dimensional numerical simulations have been conducted to clarify the concentration, temperature and heat flux on the solid-liquid interface under a constant solid layer growth rate. The moving boundary due to solid layer growth was formulated according to the boundary tracking method. The simulations were conducted by varying the initial conditions; concentration, solid layer growth rate and heating temperature at the bottom. The effects of thermal and solutal Rayleigh number on the concentration and the convective heat flux at the solid-liquid boundary were discussed, and the associated correlations to predict those values as functions of the initial thermal and solutal Rayleigh numbers as well as the speeds of solidification were derived.

Key Words : Heat Transfer, Double-diffusive Convection, Natural Convection, Directional Solidification

1. 緒　　言

凝固・融解現象は，食品の冷凍や解凍，土壌や湖面，水道管の凍結など，我々の身の周りに多く見られる現象である．また，工学的な分野に目を向けてみると，金属材料の開発，鋳造などに見られる多成分融液からの固相析出過程において，固相内の組成や組織構造は固相の成長速度と固液界面近傍の溶質濃度分布によって多様に変化する(1)．ゆえに，固液界面成長の速度や液相内の対流・濃度分布を能動的に制御することができれば，生成する固相内の組成や微細組織構造を自在に設計できると考えられる．

例えば，非常にゆっくりと固相を成長させると，溶質濃度の低い層を形成させることができる．一方，凝固速度を増加させると界面近傍の溶質濃度の不均一性を誘発し，非一様な成長となる(2)．この固液界面の形態学的不安定性の結果として，固液界面にはマッシー相と呼ばれる針状の結晶と溶質濃度の高い融液の共存層が形成される(3)．

液相内と同様，マッシー相内でも浮力差による自然対流が生じ，生成された固相内部の特性に大きな変化を与える．特に，自然対流により生じる欠陥として，チムニーやフレックルなどが挙げられ，これらに関する研究もなされている(4)～(6)．また，温度制御や可視化の容易さなどの観点から，合金系融液と物理的特性が似ている塩化アンモニウム水溶液（NH_4Cl）など水溶液系の供試流体を用い，凝固過程について多くの実験が行われた(4), (5), (7)．一方向凝固中に発生する浮力駆動の二重拡散対流については，塩化アンモニウム水溶液（NH_4Cl）などの水溶液系の他にSn-Pb系融液を用いた実験や数値計算も行われている(8), (9), (10), (11)．また，固相成長やマッシー相を考慮した2成分系融液の凝固に関する数値モデルとして，境界固定法を用いたもの(12)や，エンタルピー法とダルシー則に基づく定式化が行われている(13), (14)．

[*] 原稿受付　2012 年 03 月 21 日
[*1] 金沢大学大学院自然科学研究科機能機械科学専攻（〒920-1192　石川県金沢市角間町）
[*2] 正員，金沢大学環日本海域環境研究センター
[*3] 正員，金沢大学 理工学域 機械工学類
E-mail: ueda@ryuko.ms.t.kanazawa-u.ac.jp

一方向凝固中における平均的なマッシー相成長を模擬する１次元数値モデルが，著者らによって提案されている．このモデルでは，液相内の温度Rayleigh数を十分高く保つことによって，固液界面へ流入する熱流束は固液界面位置に依らず一定とされており，この近似により界面成長の正確な予測が可能である[15]．しかし，これは冷却面温度を一定と仮定した準定常状態の近似であり，固相成長初期段階における大きな濃度変化を伴う系において，十分な近似とは言えない．

本研究では，亜共晶濃度の一方向凝固を対象とし，冷却面温度の能動的制御のみにより固液界面成長を操作し，固液界面近傍の濃度分布を変化させることで，生成される固相内の組成や微細組織構造の制御を最終目的としている．また，冷却面温度の予測には，計算コストが小さく，制御すべき冷却面温度の決定が容易である１次元数値モデルの適用が考えられる．しかし，溶質排出を伴うような２成分系融液の凝固において，以下の相互作用により固液界面近傍の条件を予測するのが難しい．

(1)　固相成長により界面近傍での液相内濃度分布が変化する．
(2)　結果として固液界面での平衡温度が変化する．
(3)　時間と共に液相内の温度および濃度Rayleigh数が変化する．

すなわち，所定の固相成長速度，また所定の溶質濃度層の析出を実現するために冷却面温度の予測制御を行う際，１次元数値モデル適用において必要となる固液界面での平衡温度，および液相側から固液界面へ流入する熱流束が，上記の相互作用のために，容易に予測することができない．

そこで今回は，固相内の組成分布や組織構造の制御を行うという最終目的を達成するための予備的検討を数値実験により行うこととした．２成分系融液の凝固過程に関して上で箇条書きした困難を克服するために，固液界面直下の液相内での濃度と熱流束の情報を，与えられた固相成長速度，初期濃度，および初期加熱状態をパラメータとして記述することを本論文の目的とする．具体的には矩形容器内の２成分系水溶液が，初期において下方加熱により活発に対流しており，固液界面および下面（加熱）近傍を除き，一様な濃度および温度場が実現されている場合を想定する．この条件が満足されている時，固液界面に一定速度の成長を与え，界面近傍での溶質排出，濃度上昇に伴う凝固点降下，濃度差および温度差の上昇に伴う Rayleigh 数の増加が，固液界面での熱平衡温度や固液界面へ流入する熱流束にどのような変化を与えるかについて，２次元数値解析により明らかにした．

2.　2 次元数値解析

2・1　固液界面のモデル化

図１に本研究で対象とする物理モデルを示す．上面冷却，下方加熱，側壁断熱とし，固相は上面から一方向に成長するとした．また，実験的な可視化性や温度制御の容易さから，供試流体として亜共晶濃度の硝酸ナトリウム水溶液（$NaNO_3$）を仮定した．

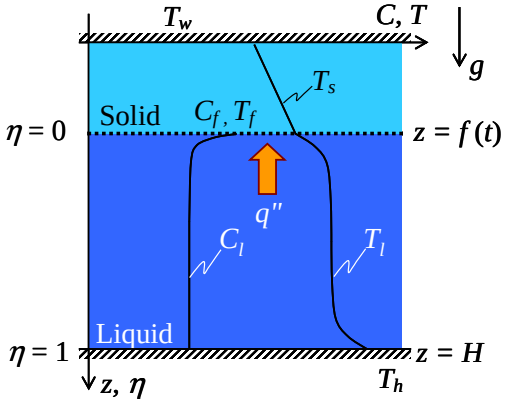


Fig.1 Schematic diagram illustrating the coordinate system used in the analysis and a representative temperature and concentration profiles.

固液界面での諸現象を模擬するため，以下の仮定を置く．

(1) 固液界面は冷却面温度の制御により一定速度で成長している.
(2) 固液界面でのマッシー相の形成は考慮せず，固相成長時の界面形状は水平方向に平滑とする.
(3) 固液界面の温度は液相線温度に従う（平衡凝固の仮定）.
(4) 共晶温度以上での凝固において，固相内の溶質の溶解度はゼロとする.
このうち（1）は本研究を特徴付ける仮定であり，冷却面温度を適切に降下させることにより実現されているものとする.（2）は，固相成長速度が溶質の拡散速度に比べて小さければ成立する.（4）は２成分系として亜共晶濃度の硝酸ナトリウム水溶液を仮定した結果である.

上面の冷却面から下方にとった座標をz（垂直方向）とし，以下の独立変数η:

$$\eta = \frac{z - f(t)}{H - f(t)}, \tag{1}$$

を導入する境界固定法[11]を用いて固相成長を定式化した. 今回の計算では, 凝固が進行する際, 融液内の溶質は, すべて液相側へ排出されるとする．尚，Hは液相内全体の高さ[m]である

2・2 支配方程式

本研究では, 密閉容器内の凝固過程を対象とし, 液相内では活発な自然対流が起こっているとした. 流れ場は, 2 次元非圧縮，非定常，粘性，層流流れと仮定した．また，液相内の密度は温度と濃度によってのみ変化し，相変化による体積変化はないと仮定した．液相内支配方程式は，連続の式(2)，Navier-Stokes 方程式(3)，(4)，エネルギ方程式(5)と濃度輸送方程式(6)の 5 つである.

連続の式

$$\frac{\partial u}{\partial x} + \left(\frac{\partial \eta}{\partial z}\right)\frac{\partial w}{\partial \eta} = 0 \tag{2}$$

Navier-Stokes 方程式

$$\frac{\partial \rho u}{\partial t} + \frac{\partial \rho uu}{\partial x} + \left(\frac{\partial \eta}{\partial t}\right)\frac{\partial \rho u}{\partial \eta} + \left(\frac{\partial \eta}{\partial z}\right)\frac{\partial \rho wu}{\partial \eta} = -\frac{\partial P}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial x}\left(\mu\frac{\partial u}{\partial x}\right) + \left(\frac{\partial \eta}{\partial z}\right)\frac{\partial}{\partial \eta}\left[\mu\left(\frac{\partial \eta}{\partial z}\right)\frac{\partial u}{\partial \eta}\right] \tag{3}$$

$$\frac{\partial \rho w}{\partial t} + \frac{\partial \rho uw}{\partial x} + \left(\frac{\partial \eta}{\partial t}\right)\frac{\partial \rho w}{\partial \eta} + \left(\frac{\partial \eta}{\partial z}\right)\frac{\partial \rho ww}{\partial \eta} = -\left(\frac{\partial \eta}{\partial z}\right)\frac{\partial P}{\partial \eta} + \frac{\partial}{\partial x}\left(\mu\frac{\partial w}{\partial x}\right) + \left(\frac{\partial \eta}{\partial z}\right)\frac{\partial}{\partial \eta}\left[\mu\left(\frac{\partial \eta}{\partial z}\right)\frac{\partial w}{\partial \eta}\right] + \rho g \tag{4}$$

エネルギ方程式

$$\frac{\partial T_l}{\partial t} + \frac{\partial uT_l}{\partial x} + \left(\frac{\partial \eta}{\partial t}\right)\frac{\partial T_l}{\partial \eta} + \left(\frac{\partial \eta}{\partial z}\right)\frac{\partial wT_l}{\partial \eta} = \frac{\partial}{\partial x}\left(\alpha_l\frac{\partial T_l}{\partial x}\right) + \left(\frac{\partial \eta}{\partial z}\right)\frac{\partial}{\partial \eta}\left[\alpha_l\left(\frac{\partial \eta}{\partial z}\right)\frac{\partial T_l}{\partial \eta}\right] \tag{5}$$

濃度輸送方程式

$$\frac{\partial C_l}{\partial t} + \frac{\partial uC_l}{\partial x} + \left(\frac{\partial \eta}{\partial t}\right)\frac{\partial C_l}{\partial \eta} + \left(\frac{\partial \eta}{\partial z}\right)\frac{\partial wC_l}{\partial \eta} = \frac{\partial}{\partial x}\left(D_l\frac{\partial C_l}{\partial x}\right) + \left(\frac{\partial \eta}{\partial z}\right)\frac{\partial}{\partial \eta}\left[D_l\left(\frac{\partial \eta}{\partial z}\right)\frac{\partial C_l}{\partial \eta}\right] \tag{6}$$

ここで, x は z 軸と垂直な方向（水平方向）の座標，u, w はそれぞれ x, z 方向の速度成分[m/s]，ρ は密度[m^3/kg]，g は重力加速度[m/s^2]，μ は粘度[Pa・s]，P は圧力[Pa]，C は溶質濃度[wt%]，添え字の“l”は液相を意味する.

本研究では，基礎方程式の離散化は有限体積法に基づいて行い，計算格子にスタガード格子，圧力と速度のカップリングには SIMPLER，圧力方程式の解法には点 jacobi 前処理法と組み合わせた GPBi-CG 法[16]を用いた．速度場の移流項には 2 次精度 Quick スキーム，温度と濃度の移流項には，密度場の振動を最小限に抑えるため 5 次精度 WENO スキーム[17, 18]を，その他の項には 2 次精度中心差分を用いた．時間進行法には，移流項に 2 次精度 Adams-Bashforth 法，拡散項に 2 次精度 Crank- Nicolson 法を用いた.

図 2 に計算格子の概要を示す．計算領域は x 方向に H = 100 [mm]，z 方向に H = 100 [mm]とし，計算格子点数は，300 点×200 点とした(図 2 のメッシュは見やすさに配慮し， 50×50 の場合を示してある). 固相成長と共にメッシュが鉛直方向に変化することが分かる.

また，液相内の温度 Rayleigh 数と濃度 Rayleigh 数はそれぞれ以下のように定義され，供試流体の密度には近似式(9)を用いた.

温度 Rayleigh 数： $$Ra_T = \frac{g(H-f)^3}{\alpha_l \nu}\left|1 - \frac{\rho_h}{\rho_{\max,T}}\right| \tag{7}$$

濃度 Rayleigh 数： $Ra_C = \dfrac{g(H-f)^3}{\alpha_l \nu}\left|1-\dfrac{\rho_h}{\rho_{\max,C}}\right|$ (8)

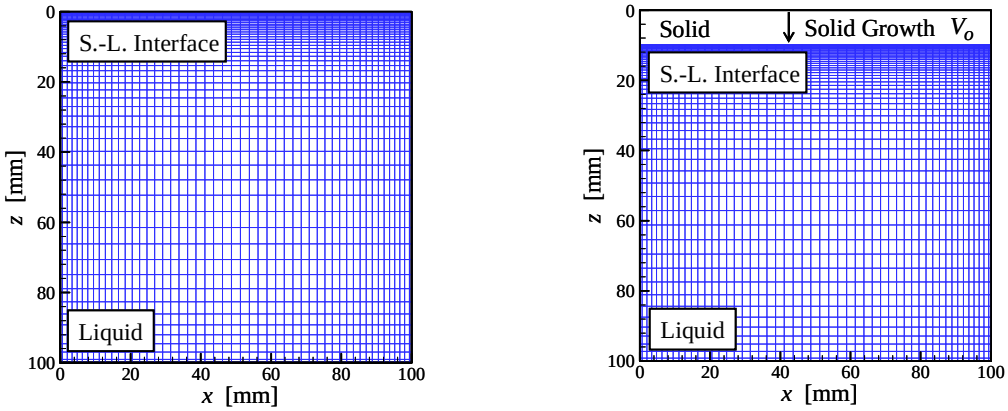
$\rho = A(T_l - T_{max})^2 + B$ (ただし $-5 < T_l < 0$ ℃, $0 < C_l < 38$ wt%) (9)

$T_{\max} = 4.0293(1-0.5266C_l)$ (10)

$A = \left(-7.37473\times10^{-3}\right)+\left(4.31458\times10^{-5}\right)C_l+\left(4.14901\times10^{-7}\right)C_l^{\,2}$ (11)

$B = \left(9.99972\times10^{2}\right)+\left(7.06644\times10^{0}\right)C_l+\left(5.06003\times10^{-2}\right)C_l^{\,2}$ (12)

尚，$\rho_{max,T}$ と $\rho_{max,C}$ はそれぞれ温度のみと溶質濃度のみに基づく最大密度とし，ρ_h は加熱面での密度，T_{max} は密度極大点を表す.



(a) $F = 0.0$ (b) $F = 0.1$

Fig.2 Representative examples of computational grid.

2・3 境界条件

固液界面，下面，側面の境界条件を以下にまとめる.

(1) 固液界面($z = f(t)$)

本研究では，固液界面でのマッシー相を考慮しない平滑な固液界面を仮定しており，速度場には non-slip 条件を採用した.

また，本モデルでは境界固定法を導入しており，固液界面上で座標変換による移流速度が発生する．しかし，固相内の溶解度をゼロとするため，座標変換による移流速度をゼロとし，固液界面へ流入する溶質濃度流束 J''_f を遮断することで，界面近傍に堆積する溶質排出を模擬した．また，固液界面での温度は液相線温度に従うと仮定し，固液界面の溶質濃度 C_f から液相線温度 $T_{Liquidus}$=T_f を求めた.

$$u = w = 0, \quad T_f = T_{Liquidus}(C_f) = -m_L C_f, \quad J''_f = \left\{\left(\frac{\partial \eta}{\partial t}\right)+\left(\frac{\partial \eta}{\partial z}\right)w\right\}C_l - D_l\left(\frac{\partial \eta}{\partial z}\right)\frac{\partial C_l}{\partial \eta} = 0 \tag{13}$$

(2) 加熱面($z = H$)

速度場に non-slip 条件，濃度場に勾配ゼロを採用した．また，液相内の Rayleigh 数 Ra を高く保ち，液相から固液界面への時間平均的な熱流束を一定に保つため，加熱面温度一定を与えた.

$$u = w = 0, \quad T_l = T_h, \quad \left(\frac{\partial \eta}{\partial z}\right)\frac{\partial C_l}{\partial \eta} = 0 \tag{14}$$

(3) 側面($x = 0, H$)

速度場に non-slip 条件，温度場，濃度場に勾配ゼロを採用した.

$$u = w = 0, \quad \frac{\partial T_l}{\partial x} = \frac{\partial C_l}{\partial x} = 0 \tag{15}$$

ここで，m_Lは液相線温度の勾配を表す正の値とし，添字の“f”，“h”はそれぞれ固液界面，加熱面を意味する．

2・4 数値計算の妥当性

上面冷却，下面加熱および側面断熱とした正方密閉容器内の自然対流を仮定し， Nasreddine ら[19]による 2 次元数値計算との比較を行った．計算条件は容器内の温度 Rayleigh 数 Ra_T を $10^4, 10^5, 10^6$ と変化させ，定常状態となった後，加熱面での平均 Nusselt 数および局所 Nusselt 数の比較を行った．各 Rayleigh 数における平均 Nusselt 数の結果を表 1 に示す．Ra_T=10^6 において最大 0.3%程度の差であり，また局所 Nusselt 数においても良い一致を示したため，本計算コードは妥当であると考えられる．

Table 1 Comparison of mean Nusselt numbers on the hot wall with other study ref.(19).

Rayleigh num. Ra_T	Averaged Nusselt num. on the hot wall Nu_h	
	Pres. study (Grid size 50×50)	Ref.[19] (256×256)
10^4	2.1558	2.1581
10^5	3.9085	3.9103
10^6	6.3261	6.3092

2・5 初期条件

固液界面を成長させず $f(t) = 0$ に保ち，初期濃度 C_o と初期温度差 $\Delta T = (T_h - T_f)$を与え，図 3 に示すように，加熱面と固液界面での熱流束が時間平均的に等しくなるまで計算した．図 4 にその時の温度場と流れ場（流跡線）を示す. 液相内は, おおよそシングルセルが支配的であり, 周期的に発生する熱プルームが上下面へ輸送される. 今回の解析ではこの熱的平衡状態を定常状態と見なし，初期条件とした．その後，固液界面を一定速度 V_o で成長させ, 解析を行った.

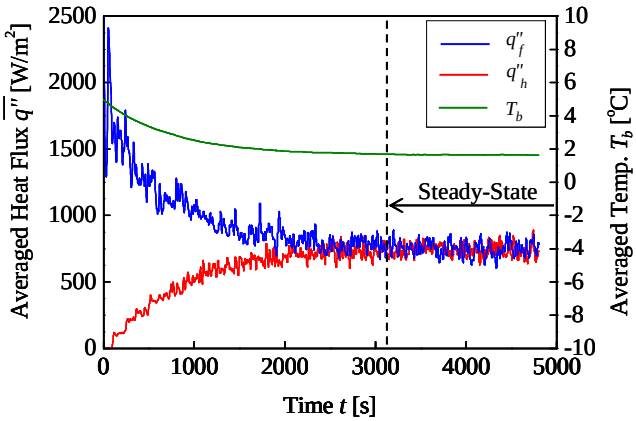
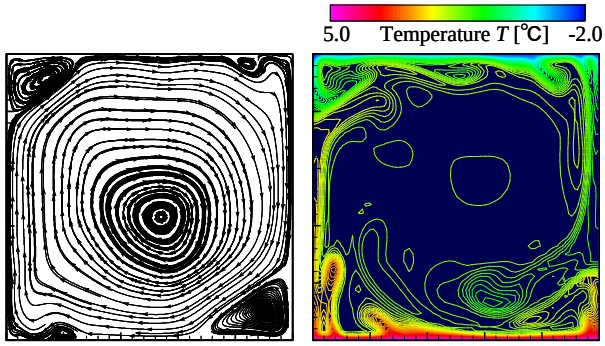


Fig.3 Time series of space averaged heat fluxes and the bulk temperature (T_b) in the liquid region. The initial and boundary conditions; C_o=5 [wt%], T_h=5 [°C], V_o=0[mm/h].



(a) Streamlines (b) Temperature Field

Fig.4 Computational results at the steady-state (t = 3500 [s]). The initial and boundary conditions; C_o=5 [wt%], T_h=5 [°C], V_o=0[mm/h].

2・6 計算条件

計算は，(1) 固液界面を成長させず，固液界面温度 T_f を液相線温度 $T_{Liquidus}$ 以上の T_o ($> T_{Liquidus} = m_L C_o$)で定常に保ち，その後，固液界面での温度を $T_{Liquidus}$ へ瞬時に変化させる計算，(2) 実際に固液界面を成長させる場合の 2 種類を行った.このうち (1) の計算では，(2) における凝固点降下による熱流束の非定常特性を定量的に評価するための比較として行った.

(1) 初期濃度 C_o = 5 [wt%], 加熱面温度 T_h = 5 [°C], 成長速度 V_o = 0 [mm/h], 固液界面温度 $T_f = T_o$ = 0 [°C] (>$T_{Liquidus}$) に保ち，まず定常となるまで計算を行った．その後，固液界面温度を平衡温度 $T_{Liquidus}$ に瞬時に変化させ，固液界面での熱流束 q''_f と加熱面での熱流束 q''_h が時間平均的に等しくなる定常状態まで計算を行った．

(2) 初期濃度 C_o = 5, 10 [wt%]，加熱面温度 T_h = 0，5 [°C]，固液界面の成長速度 V_o = 5，10，15 [mm/h]の範囲でそれぞれ各条件の組み合わせについて解析を行った．計算は，それぞれ，実時間で 1200 (s) 計算された．また，今回の温度 Rayleigh 数と濃度 Rayleigh 数の範囲は以下のようになる．

$$6\times10^6 < Ra_T < 1\times10^8, \quad 4\times10^8 < Ra_C < 1\times10^9 \tag{16}$$

3. 結果と考察

3・1 熱流束の非定常特性

図 5，図 6 に，時間に対する平均熱流束 $\overline{q''}$ の変化およびその予測値および対流熱伝達率 h を示す．尚，結果は冷却面温度を $T_{Liquidus}$（平衡温度）に変化させた時点からの結果である．また，予測値に関しては後述する．

図 5 から，上面の固液界面の温度を変化させた後，液相内の混合平均温度 T_b が徐々に下がっていくこと，および固液界面での熱流束 q''_f が相対的に大きく，加熱面での熱流束 q''_h が相対的に小さな値を示すことがわかる．これは，固液界面の温度変化に伴い，液相内の混合平均温度 T_b との間により大きな温度差が生まれたためである．

一方，図 6 から熱流束の緩慢な時間変化と比較して，対流熱伝達率 h および冷却面，加熱面での対流熱伝達率 h_f, h_h は非常に早い段階で定常に達しているのが分かる．尚，h_f，h_h および平均対流熱伝達率 h_b はそれぞれ次のように定義される．

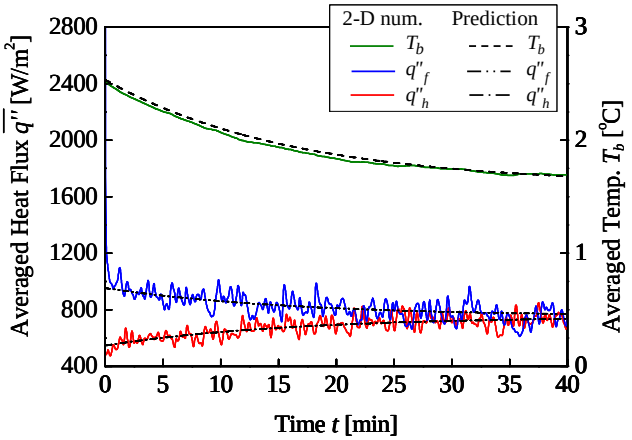


Fig.5 Time series of space averaged heat flux and temperature in the liquid region after the upper wall temperature is switched from T_o to $T_{Liquidus}$. The initial and boundary conditions; C_o=5 [wt%], T_h=5 [°C], V_o=0[mm/h].

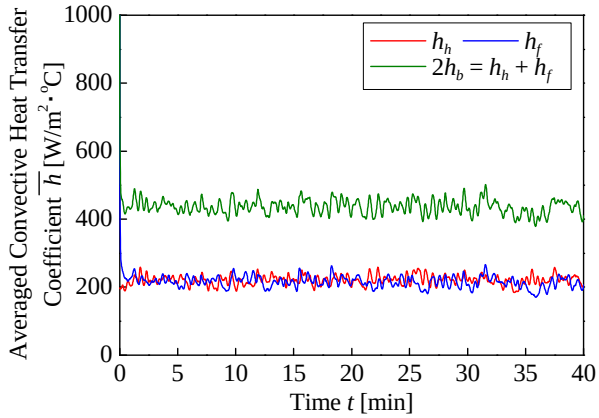


Fig. 6 Time series of convective heat transfer coefficients after the upper wall temperature is switched from T_o to T_L. The initial and boundary conditions; C_o=5 [wt%], T_h=5 [°C], V_o=0[mm/h].

$$q''_f(t) = h_f\left(T_b(t) - T_f\right), \quad q''_h(t) = h_h\left(T_h - T_b(t)\right), \quad h_b = \frac{1}{2}\left(h_f + h_h\right) \tag{17}$$

ここで，一般式として一定速度 V_o で固相が成長している時の液相内のエネルギ保存を混合平均温度と集中熱容量の概念を用いて定式化すると，

$$\rho c_p\left(H - V_o t\right)\frac{dT_b}{dt} = h_h\left(T_h - T_b\right) - h_f\left(T_b - T_f\right) \tag{18}$$

となる．図 6.から対流熱伝達率 h は時間平均的にほぼ一定とみなせるので，式(18) は以下のように解かれる．

$$T_b(t) = T_e + \Delta T_o \exp\left[-\left(t/t_C\right)ln\left(1-F\right)^{-1/F}\right] \tag{19}$$

$$t_c = \frac{\rho c_p H}{2h_b}, \quad T_e = \frac{h_h T_h + h_f T_f}{2h_b}, \quad F = \frac{V_o t}{H}, \quad \Delta T_o = T_b(0) - T_e \tag{20}$$

ここで，ΔT_o は凝固開始初期段階で発生する温度差，$t_c = (\rho c_p H / 2h_b)$ は時定数であり，液相内の温度に関する非定常特性を表す重要なパラメータとなる．また，F は固相の占める体積割合を表し，F=0.1 程度まででであればほぼ無視出来る（V_o=0 の時は，$F \to 0$ となる）．上記の式(19)から求められた予測曲線を図 5 に重ねて示す．

これらの考察から，固液界面で溶質が排出され，凝固点降下が起こった場合でも，熱伝達率 h_f と h_h が分かれば，液相内の混合平均温度 T_b および，固液界面への熱流束 q''_f の時間的変化を予測することができると考えられる．

3・2　溶質排出による効果

図 7~10 に初期濃度 C_o = 5 [wt%]，加熱面温度 T_h = 5 [°C]，成長速度 V_o = 15 [mm/h]の時の解析結果を示す．固液界面近傍の平均濃度 $\overline{C_f}$ は固液界面の成長と共に増加するが，図 7 に示すように液相内の混合平均濃度 C_b との差を取ると，濃度成層の崩壊後，時間平均的にほぼ一定値となることがわかる．混合平均濃度 C_b は固相率 F から容易に求める事ができる値であるから，界面近傍の液相側濃度 C_f および対応する平衡温度 T_f は十分予測可能であると考えられる．

図 8 に示すように，固液界面近傍での濃度成層崩壊後，3・1 の溶質濃度の変化を考慮しない解析と同様，界面および加熱面での対流熱伝達率 h_f, h_h は非常に早い段階で時間平均的にそれぞれ一定値となった．しかし，先の場合とは違い，h_f に対する h_h の値は 70%程度となった．これは，界面近傍での溶質排出が対流熱伝達率を上昇させたものと考えられる．溶質濃度による密度変化が支配的である様子は図 10 の上面（固液界面）から下降する

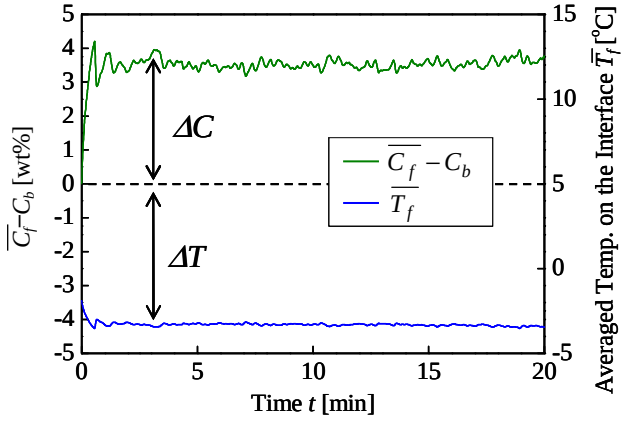


Fig. 7 Time series of temperature on the solid-liquid interface and the concentration difference between the interface and the bulk in the liquid region. The initial and boundary conditions; C_o=5 [wt%], T_h=5 [°C], V_o=15 [mm/h].

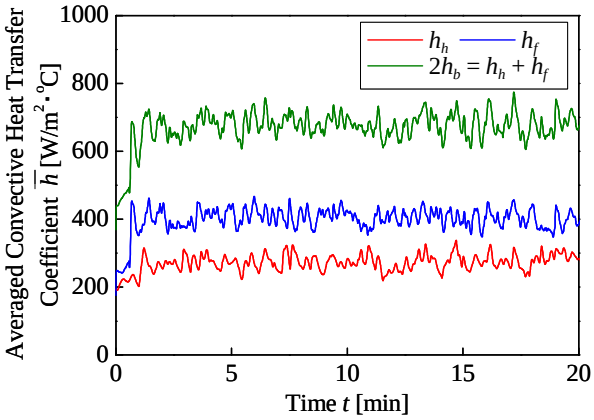


Fig.8 Time series of convective heat transfer coefficients. The initial and boundary conditions; C_o=5 [wt%], T_h=5 [°C], V_o=15 [mm/h].

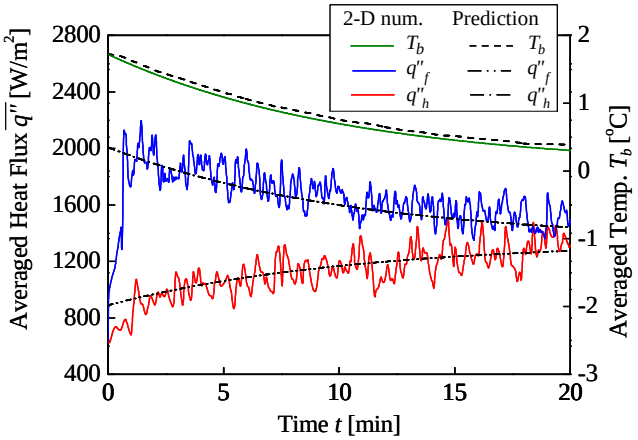
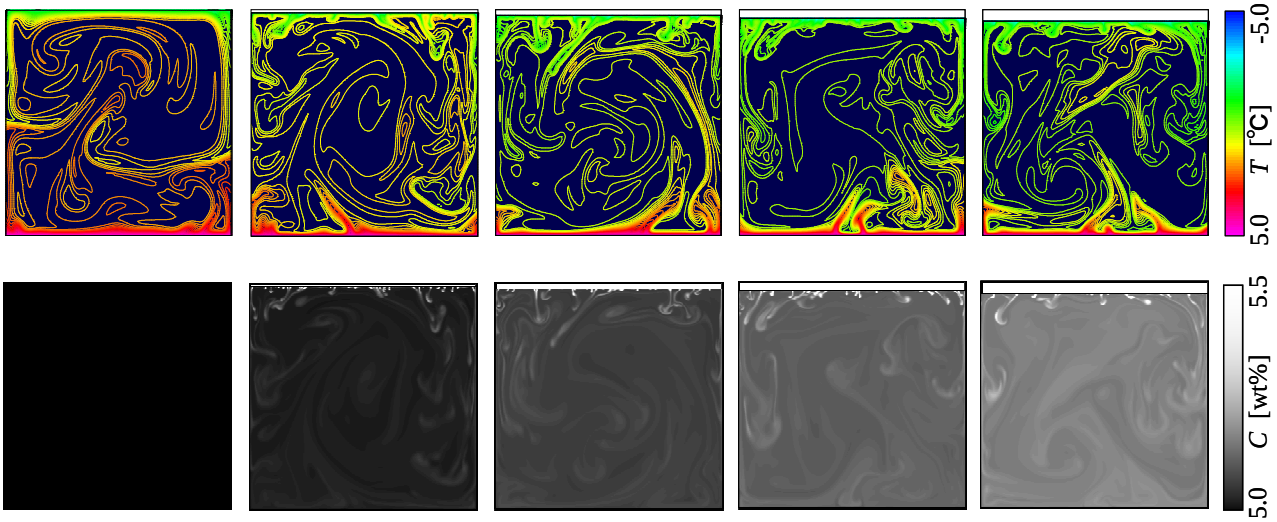


Fig.9 Time series of space averaged heat flux and bulk temperature in the liquid region and the predicted values by eq.(17), (18). The initial and boundary conditions; C_o=5 [wt%], T_h=5 [°C], V_o=15 [mm/h].

プルーム構造が濃度場と温度場で一致していることからも分かる．

図 9 に見るように，固液界面での平衡温度の低下に伴い，固液界面での熱流束は初期において急激に増加し，混合平均温度 T_b の減少と共に加熱面での熱流束と同程度の値へ漸近している．また，上記で求めた対流熱伝達率 h から式(17), (19)を用いて，時間進行と共に変化する熱流束を計算することができ，図に見るように両者は良い



(a) t = 0 [s]　(b) t = 300 [s]　(c) t = 600 [s]　(d) t = 900 [s]　(e) t = 1200 [s]

Fig.10 Computational resuls of the concentration and temperature fields. The initial and boundary conditions; C_o=5 [wt%], T_h=5 [°C], V_o=15 [mm/h].

一致を示している．

各条件における濃度差($\overline{C_f}$ -C_b) の結果を図 11 に示す．図 11 からこの濃度差は温度 Rayleigh 数にはあまり依存せず，成長速度 V_o と初期濃度 C_o により決定されていることが分かる．これは，今回行った解析範囲が，温度 Rayleigh 数に対する濃度 Rayleigh 数が 10 倍程度大きかったためと考えられる．また，この図から界面近傍の溶質濃度の時間変化は，成長速度 V_o と初期濃度 C_o が決まれば予測できると考えられる．

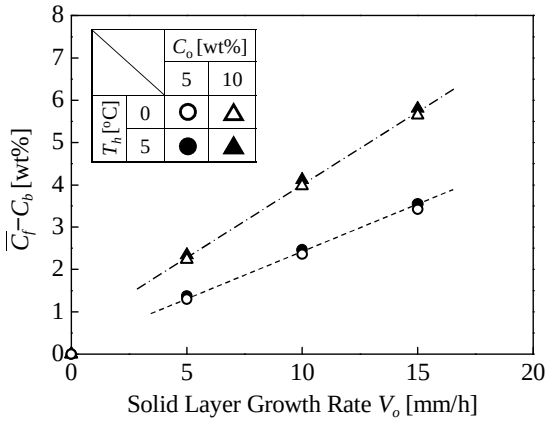


Fig.11 Relations between the concentration differences and solid layer growth rates with different bottom temperatures.

図 12 に液相内での有効 Rayleigh 数 $\log_{10}(Ra_T+ Ra_C)$ に対する固液界面での Nusselt 数 $\log_{10}(Nu_f)$ の変化を示す．この図から，Nu_f と$(Ra_T+ Ra_C)$との間に以下の関係式(21)；

$$Nu_f \approx 0.1343\left(Ra_T + Ra_C\right)^{0.3063} \qquad (\text{ただし}\quad 6\times10^6 < Ra_T < 1\times10^8,\quad 4\times10^8 < Ra_C < 1\times10^9) \qquad (21)$$

を導くことができ，Nusselt 数 Nu_f と Rayleigh 数の和$(Ra_T+ Ra_C)$との間におよそ 1/3 乗の関係があることが分かる．また，Nusselt 数 Nu の定義から，対流熱伝達率 h との間に次の関係式(22)が成り立つ．

$$Nu_f = \frac{h_f(H-f)}{k} \tag{22}$$

よって，各初期条件から対流熱伝達率 h_f を予測することができる．

図 13 は加熱面での対流熱伝達率 h_h の変化を表す. 縦軸に(h_h/h_f)をとり, 横軸には液相内の有効 Rayleigh 数(Ra_T+ Ra_C)に対する濃度 Rayleigh 数 Ra_C の比 Ra_C/(Ra_T+ Ra_C)をとった．この図から，Ra_C の割合の増加に伴い上下面間の対流熱伝達率の差が大きくなり，逆に Ra_C の割合の減少に伴い(h_h/h_f)は 1 に近づいて行くことが分かる（図 6 から，液相内が温度 Rayleigh 数のみに支配されている場合，すなわち，液相内で濃度差が生じず液相内の濃度 Rayleigh 数 Ra_C＝0 であるとき, 上下面の対流熱伝達率 h は時間平均的に同値となり(h_h/h_f)=1 となる. したがって，Ra_C /(Ra_T+Ra_C)=0 のとき(h_f/h_h)=1 となる）．これは，溶質排出により生じる上下面での対流熱伝達率 h の差が，液相内の有効 Rayleigh 数(Ra_T+ Ra_C)に対する濃度 Rayleigh 数 Ra_C の割合により予測できることを意味する．実際には，固液界面での対流熱伝達率 h_f は図 12 より液相内の有効 Rayleigh 数により予測できるため，その値を用いて図 13 により加熱面での対流熱伝達 h_h を予測することができる．

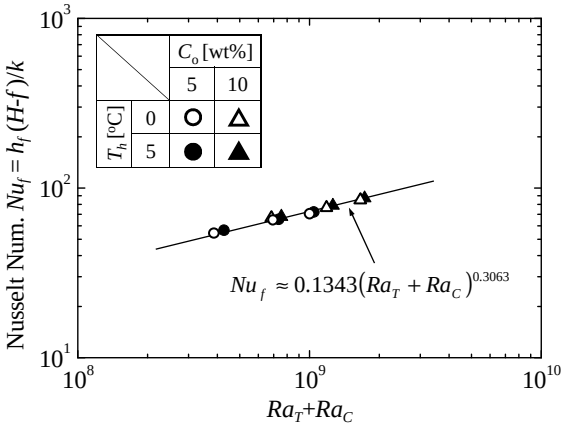


Fig.12 Relation between the convective heat transfer coefficients on the solid-liquid interface and the Rayleigh number in the liquid region.

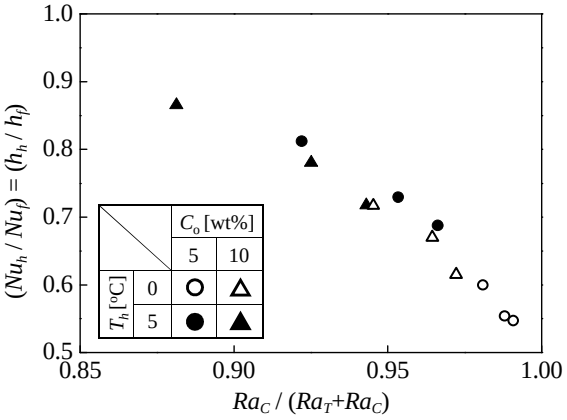


Fig.13 Relation between (h_h / h_f) and (Ra_C/ (Ra_T+ Ra_C)).

4. 結言

本研究では, 100 mm×100 mm の 2 次元密閉空間内 2 成分系融液を上方から一方向凝固させることを想定した数値実験を行った．その結果，固相厚さが薄い成長初期の段階において，与えられた固相成長速度，初期濃度および下方からの初期加熱条件に対して，固液界面直下液相の溶質濃度と熱流束に関して以下の結果を得た.

(1) 固液界面での溶質濃度と液相内の混合平均溶質濃度の差は，時間平均的にほぼ一定値となり，その値は成長速度と初期濃度にのみ比例する.

(2) 固液界面と加熱面での対流熱伝達率は，界面近傍での濃度成層の崩壊後，非常に早い段階で時間平均的に一定値となり，その値は温度 Rayleigh 数と濃度 Rayleigh 数により予測できる.

(3) 固液界面への熱流束は，固相成長直後に熱流束が増加し，その後，液相内の平均温度の減少と共に緩やかに一定値へ収束していく．この時の液相内の混合平均温度，固液界面と加熱面での熱流束の非定常特性は上記の対流熱伝達率により予測する事ができる.

謝辞

本研究の研究費の一部は科学研究費補助金(課題番号 22560191) によっている．記して謝意を表す.

主要記号

C : 溶質濃度 [wt%]

D : 物質拡散係数 [m^2/s]

F ; 固相率 [-]
H : 水槽深さ [m]
Nu : 平均 Nusselt 数 [-]
Ra : Rayleigh 数 [-]
T : 温度 [℃]
V : 固相の成長速度 [m/s]
f ; 固相厚さ [m]
c_p : 比熱 [J/(kg･℃)]
h : 平均対流熱伝達率 [W/(m^2･℃)]
k : 熱伝導率 [W/(m･℃)]
m : 液相線温度の勾配 [-]
q'' : 熱流束 [W/m^2]
t : 時間 [s]
α : 熱拡散係数 [m^2/s]
ν : 動粘度 [m^2/s]
ρ : 密度 [kg/m^3]

文献

(1) Peppin, S. S. L., Huppert, H. E. and Worster, M. G., “Steady-state solidification of aqueous ammonium chloride”,*Journal of Fluid Mechanics*, Vol. 599, (2008), pp. 465–476.

(2) Davis, S. H., “Theory of Solidification”,*Cambridge University Press*, (2001).

(3) Worster, M. G.., “Convection in mushy layers”, *Journal of Fluid Mechanics*, Vol. 29, (1997), pp. 91–122.

(4) Huppert, H. E., “The fluid mechanics of solidification”, *Journal of Fluid Mechanics*, Vol. 212, (1990), pp. 209–240.

(5) Huppert, H. E. and Hallworth, M. A., “Solidification of NH_4Cl and NH_4Br from aqueous solutions contaminated with $CuSO_4$: the extinction of chimneys”,*Journal of Crystal Growth*, Vol. 130, (1993), pp. 495–506.

(6) Kurz, W. and Fisher, D. J., “Fundamentals of Solidification”, *3rd Edn. Aedermannsdorf: Trans Tech. Publications*, (1989).

(7) Tan, F.L., “Upward or downward solidification of a binary alloy inside a rectangular enclosure”, *Applied Thermal Engineering*, Vol. 28, (2008) , pp. 1962–1973.

(8) Rosa, D. M., Spinelli, J. E., Ferreira, I. L. and Garcia, A., “Cellular/Dendritic Transition and Microstructure Evolution during Transient Directional Solidification of Pb-Sb Alloys”, *Metallurgical and Materials Transactions A*, Vol. 39, No. 9, (2008), pp. 2161-2174.

(9) Katz, R. F. and Worster, M. G.., “Simulation of directional solidification, thermochemical convection, and chimney formation in a Hele-Shaw cell”,*Journal of Computational Physics*, Vol. 227, (2008), pp. 9823–9840.

(10) Okumura, K., Kuwabara, M., Sassa, K. and Muchi, I., “Theoretical Analysis and Model Experiment on Thermosolutal Convection during Unidirectional Solidification in the Vertical Direction”, *the Iron and Steel Institute of Japan*, Vol. 75, (1989), pp. 618–625.

(11) Youmin, Y., Cho L. C. and CHEN, C. F., “Effect of gravity modulation on the stability of a horizontal double-diffusive layer”, *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 589, (2007), pp. 183–213.

(12) 齋藤武雄, “移動境界伝熱学”, 養賢堂出版株式会社, (1994).

(13) Chakrabortya, S., Dutta, P., “Three-dimensional double- diffusive convection and macrosegregation during non-equilibrium solidification of binary mixtures.”, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, Vol. 43, (2003), pp. 2115–2134.

(14) Voller, V.R., Brent A.D. and Prakash, C., “The modelling of heat, mass and solute transport in solidification systems. ”, *International Journal of Heat Mass Transfer*, (1989), pp. 1717–1732.

(15) 木村繁男, 野原傭平, 木綿隆弘, 小松信義, “上方冷却による 2 成分系水溶液の凝固プロセス”, 日本機械学会論文集 B 編, Vol. 75, No. 753, (2009), pp.1143–1150.

(16) Zhang, S. L., “A class of product-type Krylov-subspce methods for solving nonsymmetric linear systems.”, *Journal of Computational and Applied Mathematics*, (2002), pp. 297–305.

(17) Kasem, T. H. M. A., “潜堤上波動場を対象とした WENO Level Set 法に基づく気液混相流モデルの開発”, 土木学会論文集 B2, Vol. 66, No. 1, (2010), pp.036-040.

(18) Shu, C.W., “Essentially non-oscillatory and weighted essentially non-oscillatory schemes for hyperbolic conservation laws”, *Advanced numerical approximation of nonlinear hyperbolic equations*, (1998), pp. 325-432.

(19) Nasreddine O., Nader B. C., Brahim B. B. and Taieb L., “Numerical simulation of two-dimensional Rayleigh–Bénard convection in an enclosure”, *Comptes Rendus Mecanique*, Vol. 336, (2008), pp. 464–470.