

水溶液の加熱冷却による二重拡散対流

山根 岳志, 外山 和宏, 城石 昭弘,
吉田 正道, 宮下 尚

緒 言

多成分融液の凝固を伴う材料製造プロセスには温度勾配と濃度勾配が共存し、そのため条件によってはその液相部に薄い界面によって分けられた水平セルの多成層構造が形成されることがあり、これを二重拡散対流と呼ぶ。つまり二重拡散対流とは拡散速度の大きく異なる2つの浮力成分が共存する系において、それぞれの成分が生成する密度差を推進力とした2つの対流が並立することにより形成される複雑な対流状態を意味する¹⁾。

二重拡散対流に関する研究は海洋学の分野から始まり、当初は salt-finger, salt-fountains などの現象を説明するために温度、濃度勾配が共に垂直方向に存在する系を対象としていた。しかし近年、新素材の発展に伴い単結晶製造や急速冷却技術による非晶質合金製造など多成分融液の凝固とそれに伴う結晶成長を利用した技術が不可欠となってきた。凝固プロセスにおける熱と溶質の移動現象は水平温度勾配による二重拡散対流を含んでおり、これが結晶成長に大きく影響する可能性のあることが考えられるため、多成分融液の凝固プロセスに及ぼす二重拡散対流の影響の理解、つまり二重拡散対流に伴う移動現象の解明は、材料の開発・製造技術の向上を目指す上で大きな意味を持つ。そこで凝固プロセスの精密制御や生成材料の高品質化に対する要求の高まりとともに、系に水平温度勾配を与える場合を対象とした研究が盛んに行われるようになったが^{2,3)}、依然として結晶成長と二重拡散の相互関係の解明はなされていない。

このような背景から、筆者らは密閉容器に封入された水溶液の凝固に伴う二重拡散対流を対象に現象の解析を行ってきた。その結果系内の温度場と流れ場の可視化、濃度測定を行うことにより、二重拡散の発生条件、二重拡散による多重セルの成長過程などを明らかにした^{4,5)}。しかしセル構造形成時の界面付近での移動現象等に対する理解は得られておらず、また、凝固過程に及ぼす二重拡散対流の影響も十分に明らかにされていない。そこで本研究では凝固過程に及ぼす二重拡散対流の影響を検討するためには、まず二重拡散対流現象に対する詳細な知見が必要と考え、炭酸ナトリウム水溶液の2層の階段状濃度勾配に水平温度勾配を与えたときに発生する凝固を伴わない二重拡散対流を対象に現象の解析を行った。そして様々な実験条件のもとで系内の温度場と流れ場の可視化及び二重拡散界面の崩壊時間の測定を行い、二重拡散現象の詳細を調べるとともに矩形容器のアスペクト比が二重拡散対流に及ぼす影響について検討した。

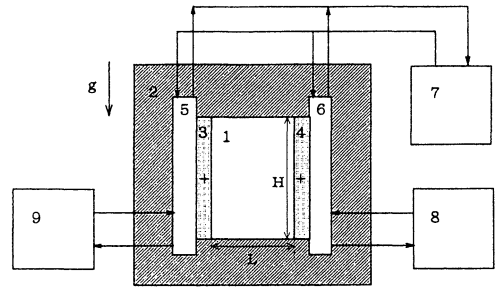
1. 実験装置および方法

実験装置の概略を Fig. 1 に示す。これら実験装置は恒温室に設置されている。本研究で用いたテス

トセクションは矩形容器であり、アスペクト比 A は内寸法が高さ $H=44\text{mm}$ 、幅 $L=40\text{mm}$ 、奥行き $W=30\text{mm}$ の $A=1.1$ 、それに対して幅 L が半分の $A=2.2$ 、高さ H が半分の $A=0.55$ の3種類である。テストセクションは左側面が冷却壁、右側面が加熱壁である。なおテストセクション内部に2層の濃度成層が作れるよう、高さが $H/2$ の位置に薄いスリットを水平に挿入できるようになっている。そして左右側壁の背面にはそれぞれ冷却室、加熱室が存在し、試験部全体は厚さ60mmの発泡スチロールによって断熱されている。

本研究では二重拡散対流現象の進行に伴う系内の温度分布の時間変化を把握するため感温液晶による温度場の可視化を行った。感温液晶はB.D.H. Chemical Ltd.製のカイラルネマチック型のものを使用した。呈色範囲は $29\sim 40^\circ\text{C}$ であり、 30°C 付近で温度の高い側から青、緑、黄、赤に呈色する。緑は 29.7°C に相当し、青は 30.1°C 以上である。温度変化に対する時定数は0.2秒、粒径は $10\sim 15\mu\text{m}$ 、比重は1.02である。また本研究では、ポリスチレン粒子を用いた系内の流れ場の可視化も行った。ポリスチレン粒子は比較的粒径が大きく、球状であり光の反射に方向性がないため容易に流れ場を可視化することができる。これを写真撮影すると明瞭な流跡線が得られるが、本実験範囲において流れは層流であり、また露出時間が非定常現象の巨視的変化の時間スケールに比べて短いためこれを流線とみなして差し支えない。なお、粒径は $70\sim 150\mu\text{m}$ 、比重は1.04である。写真撮影の際の露出時間は2秒とした。

本研究で用いた溶液は無色透明の炭酸ナトリウム水溶液である。濃度勾配は最も単純な2層（上層が低濃度、下層が高濃度）の安定な濃度成層であり、これを側方から加熱・冷却することにより実験を開始する。その瞬間が $t=0$ である。実験条件をTable 1に示す。また、同表に併せて示した界面崩壊時間 t_m はその条件において流体が明らかに他層に流れ出し始めたと判断された時間に相当する。



1. テストセクション 2. 断熱材 3. 冷却壁
4. 加熱壁 5. 冷却室 6. 加熱室 7. 初期設定用恒温槽 8. 加熱用恒温槽 9. 冷却用恒温槽 + 熱電対設置位置

Fig. 1 実験装置概略図

Table 1 実験条件及び結果

ΔC [wt%]	ΔT [$^\circ\text{C}$]	R [-]	$Ra_c \times 10^{-6}$ [-]		$Ra_h \times 10^{-6}$ [-]		t_m [min]		
$A = 2.2$	2.2	2.2	2.2		2.2		2.2		
1.1	1.1	1.1	1.1		1.1		1.1		
0.55	0.55	0.55	0.55		0.55		0.55		
0.4	3.0	0.367	0.78	6.22	2.12	16.95	210	270	214
0.4	4.5	0.551	1.17	9.34	2.12	16.95	150	197	137
0.4	6.0	0.734	1.56	12.45	2.12	16.95	92	141	119
0.4	7.5	0.918	1.95	15.56	2.12	16.95	63	25	61
0.8	6.0	0.367	1.56	12.45	4.24	33.91	192	271	179
0.8	9.0	0.551	2.33	18.67	4.24	33.91	125	176	117
0.8	12.0	0.734	3.11	24.90	4.24	33.91	80	129	90
0.8	15.0	0.918	3.89	31.18	4.24	33.91	44	49	25
1.6	12.0	0.367	3.11	24.90	8.48	67.81	177	258	142
1.6	18.0	0.551	4.67	37.35	8.48	67.81	109	175	111
1.6	24.0	0.734	6.22	49.80	8.48	67.81	77	107	78
1.6	30.0	0.918	7.78	62.25	8.48	67.81	30	36	27

なお全ての実験において初期温度は 30°C 、平衡濃度は $3.8\text{wt}\%$ である。

この系を支配するパラメータは熱レイリー数 Ra_t 、溶質レイリー数 Ra_c 、アスペクト比 A 、プラントル数 Pr 、シュミット数 Sc である。なお、 Ra_t と Ra_c の比を浮力比 R と定義する。二重拡散界面の安定性はこの浮力比に大きく依存し、 R が小さいほどその界面は安定な状態で存在するようになる。ただし、本実験の場合セル界面は必ず崩壊する。これは上下層の濃度差が時間の経過と共に減少し R が次第に大きくなるためである。一方では R の維持（濃度差の維持）を行えば安定な状態で二重拡散界面を保つことが可能であり、これを利用したものがソーラーポンドである。

2. 二重拡散対流の概略

まず密閉容器内 2 層系二重拡散対流の特徴が最も顕著に現れる $A=1.1$ 、 $\Delta T=15^{\circ}\text{C}$ 、 $\Delta C=0.8\text{wt}\%$ の条件における温度場と流れ場の可視化結果を用いて、本実験系における二重拡散対流現象の発生から崩壊までのプロセスについて説明する。なお、この条件における界面崩壊時間 t_m は 49 分であった。

Fig. 2 は温度場の可視化写真、Fig. 3 は流れ場の可視化写真であり、各写真の下に示した数字は実験開始後の時刻 t を崩壊時間 t_m によって無次元化したものである。

2 層の階段状濃度勾配の右側を加熱、左側を冷却し実験を開始すると各層の両壁面近傍において熱浮力による自然対流が発生し、その場で反時計回りの渦を形成する (a)。そしてその渦は両側から容器中央へと成長していき、各層でひとつの対流となる。この流れの発達に伴って、まず冷却壁側に現れた等温線は大きく蛇行し始める。その際界面付近に対流の影響を受けずに静止している領域が確認される（以後この領域を中間層と称する）(b)。この中間層は初め比較的厚いものの、時間とともに薄くなり、上下各層が完全に発達した熱対流に支配される頃にはほとんど視認されなくなる。このとき各層の温度分布は水平方向に一様となり、流れは壁面近傍および界面近傍にはほぼ限定される。そして層間には僅かに傾いた鮮明な界面が形成される。その後温度場は変化しなくなり、系は温度的擬定常状態となる (c)。しかしこの間も物質移動は続いており界面の傾きは僅かずつ増していく。

やがて上下層の濃度差が小さくなり界面の傾きが大きくなると、界面付近の等温線が波打ち始める。このとき界面間には時計回りの小さな渦が数珠状に確認される (d)。この波打ち現象が現れると、間もなく加熱壁近傍においては上向きに、冷却壁近傍においては下向きに界面が浸透を始め、他層へ目立って突出する（以後この突出部を垂直境界層と称する）(e)。そして界面は急激にその傾きを増していく。大きく傾いた界面はやがて加熱壁側から崩壊し、下層の流体が上層に流れ込み、上下層の混合が始まる。このときの対流は 3 次元的でありその流れに伴って等温線は大きく乱れる（ソルトフィンガー現象）(f, g)。その後、流体の濃度は均一化し、ひとつの熱対流に支配されるようになる (h)。

以上が二重拡散対流の主要な特徴を含んだ実験結果である。なお、アスペクト比が一定の場合、各条件によって観察された温度場と流れ場の発達過程は大局的にみて大差はないが、界面崩壊時間は R により大きく異なり、そして Ra_t 、 R が大きな実験ほど熱対流の強さの影響により、垂直境界層は顕著に発達する。以下に本研究で注目された興味深い現象について詳しく説明する。

擬定常状態及びソルトフィンガー 温度的擬定常状態が成立している間は濃度は安定に、そして温度場の可視化写真でも明かな通り、温度は不安定に成層している。これは温度分布は不安定であっても濃度分布がこれをカバーし、密度分布は結果として安定なものとなっているためであり、二重拡散対流の大きな特徴である。

一方、界面崩壊直後系内は右上が高温高濃度、左下が低温低濃度という状態となる。つまりこの場合温度が安定に、濃度が不安定に成層しており、先ほどとは逆である。このような場合にはソルトフ

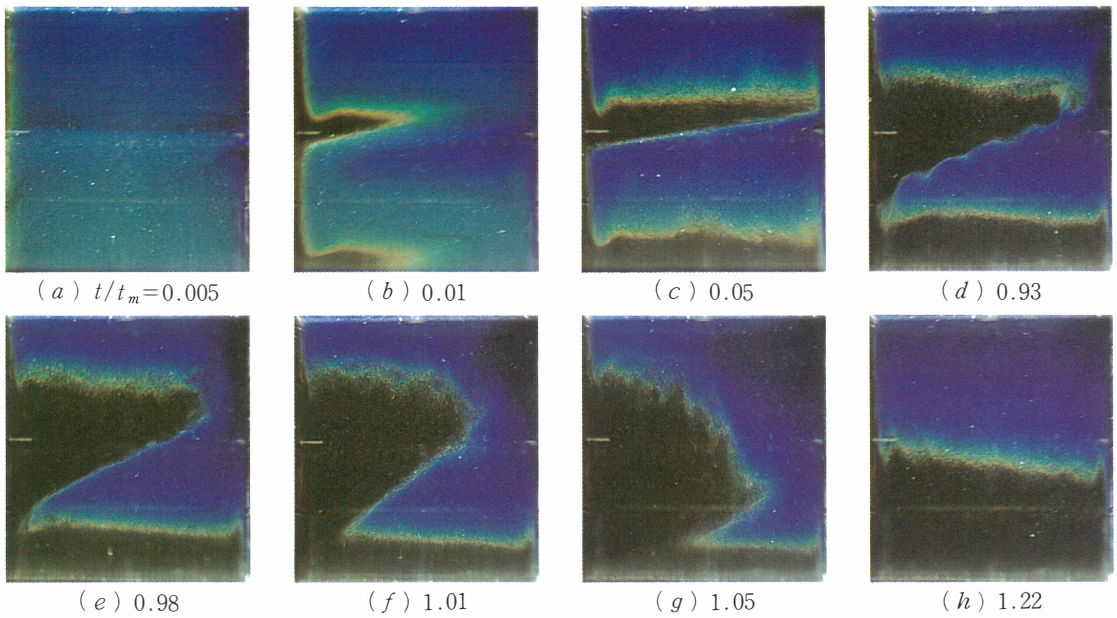


Fig. 2 温度場の可視化写真
 ($A=1.1$, $\Delta C=0.4\text{wt}\%$, $\Delta T=15^\circ\text{C}$, 初期温度: 30°C , 平衡濃度: $3.8\text{wt}\%$)

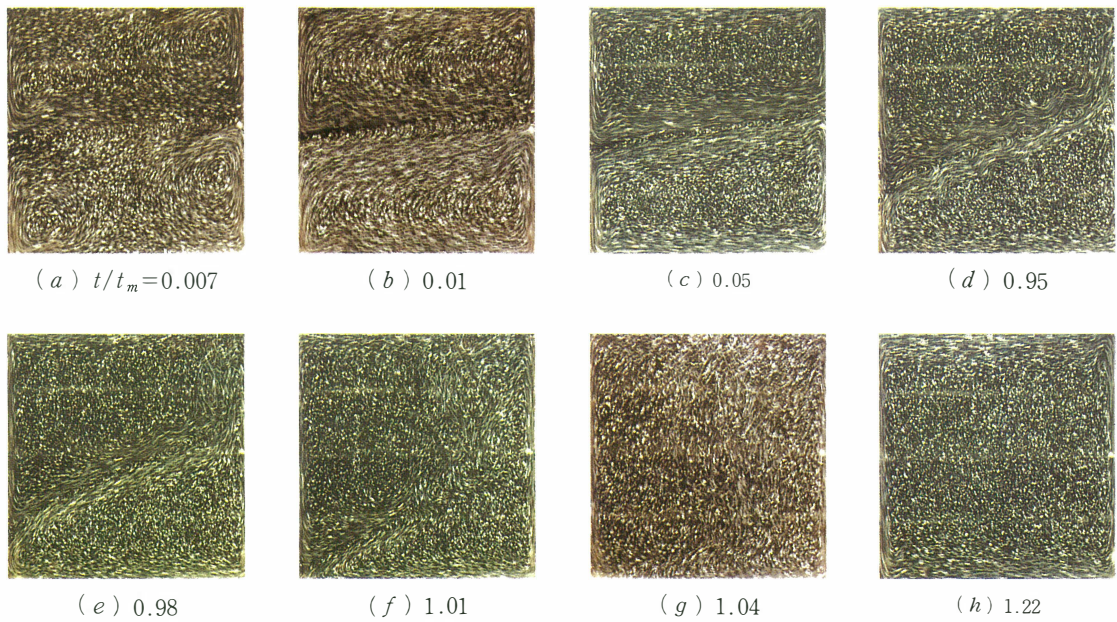


Fig. 3 流れ場の可視化写真
 ($A=1.1$, $\Delta C=0.4\text{wt}\%$, $\Delta T=15^\circ\text{C}$, 初期温度: 30°C , 平衡濃度: $3.8\text{wt}\%$)

ィンガー現象が起こる。これも二重拡散現象のひとつであり、このとき不安定成分である溶質は垂直方向に効率よく輸送される。

界面の波打ち Fig. 4は界面の波打ちの様子を模式図にしたものである。

界面を通して溶質の拡散が進行し、上下2層の流体の濃度差が小さくなると、安定に存在していた界面も徐々に不安定となる。そのため界面は熱浮力の影響を強く受けるようになり、条件によっては界面近傍の等温線が波打ちを始めようになる。このとき界面間には複数の小さな渦（二次流れ）が数珠状に存在しており、その回転は系内の2つのセル対流と逆向きである。本来、層間の界面はその上下で流れが対向するため、強い剪断応力がはたらく場所である。それが濃度差の減少により界面の安定性が乏しくなることで、その剪断応力のために界面間に二次流れが生じるものと考えられる。この二次流れは界面の中央付近で発生した後、左右に分かれてセル対流に引きずられる様に界面間を両壁面へ向かって移動する。そして壁面に到達した二次流れは消失する。これは連続的に起こり、さらに二次流れの移動に伴って界面付近の等温線が乱れるため、あたかも界面が波を打っている様に観察される。この現象により溶質の拡散は促進されるものと思われる。

Fig. 5は $A=1.1$ において界面の波打ちが発生する条件を調べたものである。これより界面の波打ちの発生は初期浮力比ではなく、熱レイリー数に大きく依存していることが分かる。そして本研究で用いた $A=1.1$ の容器におけるその臨界値はおおよそ 1.0×10^7 であった。

また、これは界面の波打ちは初期の濃度差に依存しないことを意味しており、その発生は界面に働く剪断応力と界面を維持する力との比により支配されることが推測できる。そして熱レイリー数が小さい（剪断応力が小さい）実験では、剪断応力と界面を維持する力との比が波打ち発生臨界値を越える前に、界面が崩壊してしまうために波打ちが発生しないと考えられる。

現象の非対称性 実験条件によらず加熱壁側の垂直境界層が顕著に発達し、界面は加熱壁側から崩壊した。そしてこれは実験装置の特性によるものでないことを確認している。このように現象に非対称性が現れる原因は、炭酸ナトリウム水溶液の熱膨張率の温度依存性にあるものと考えられる。

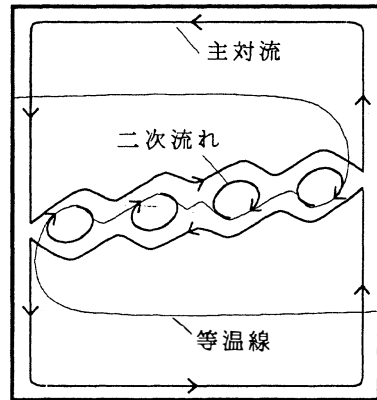


Fig. 4 流れの模式図

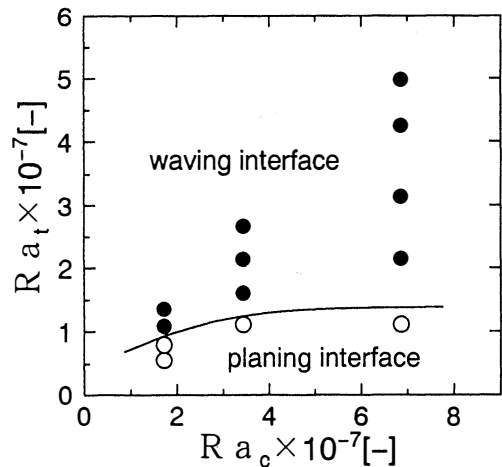


Fig. 5 波打ちの発生とレイリー数の関係

3. アスペクト比の影響

Figs. 6, 7に $A=2.2$, Figs. 8, 9に $A=0.55$ の容器における可視化実験結果を示す。アスペクト比以外の実験条件はFigs. 2, 3に示した $A=1.1$ の場合と同様である。ここではアスペクト比によって顕著な違いの見られた中間層厚さ, 界面の波打ち, 垂直境界層の発達について説明する。

中間層厚さ 中間層の初期厚さは $A=1.1$, $A=0.55$ に比べ, $A=2.2$ ではかなり厚いものであった。そして中間層は濃度差が大きい場合に形成され, 濃度差が大きいほど存在時間(ただし, 完全に消失するわけではない)は長くなるのが $A=2.2$ の実験により確認された。また, 形成される中間層は容器のアスペクト比が大きいほど厚くなると考えられ, 極端に厚い中間層は二重拡散対流の発達及び溶質の拡散を大幅に遅らせることが予測される。

界面の波打ち 前述したように $A=1.1$ では等温線の波打ちの発生を支配するものは熱レイリー数であった。しかし $A=2.2$, $A=0.55$ の場合は何の条件においても等温線の波打ち(二次流れの発生)が

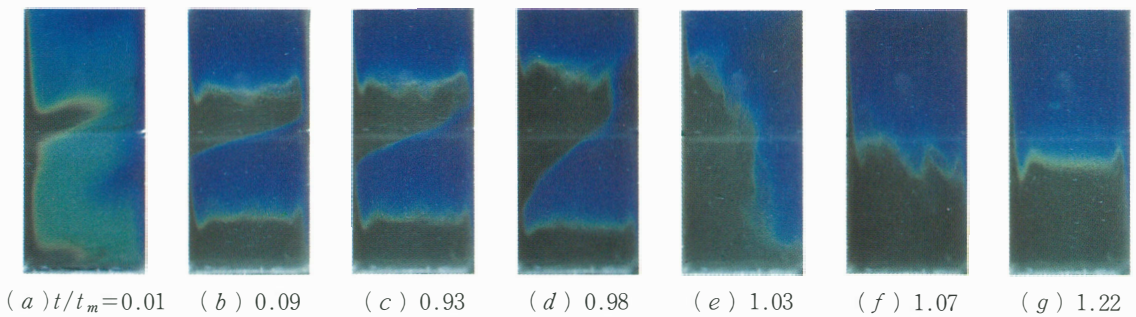


Fig. 6 温度場の可視化写真
($A=2.2$, $\Delta C=0.4\text{wt}\%$, $\Delta T=15^\circ\text{C}$, 初期温度: 30°C , 平衡濃度: $3.8\text{wt}\%$)

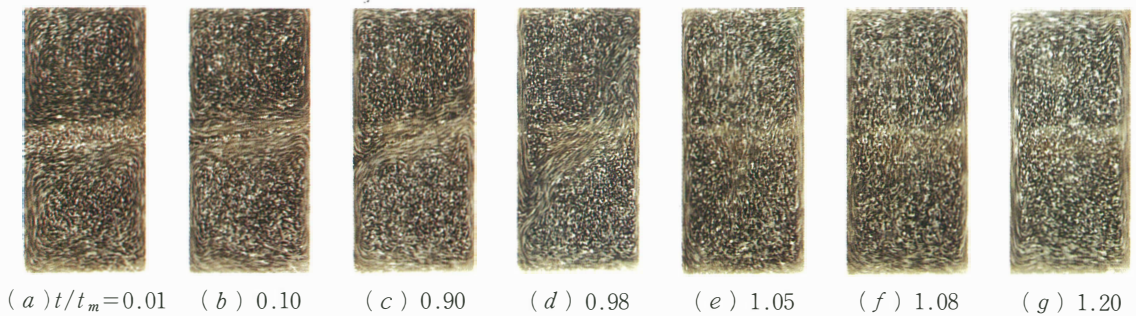


Fig. 7 流れ場の可視化写真
($A=2.2$, $\Delta C=0.4\text{wt}\%$, $\Delta T=15^\circ\text{C}$, 初期温度: 30°C , 平衡濃度: $3.8\text{wt}\%$)

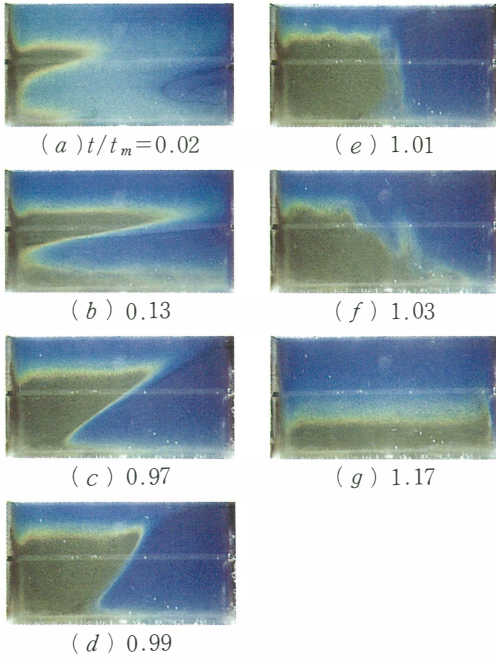


Fig. 8 温度場の可視化写真
 ($A=0.55$, $\Delta C=0.4\text{wt}\%$, $\Delta T=15^\circ\text{C}$,
 初期温度: 30°C , 平衡濃度: $3.8\text{wt}\%$)

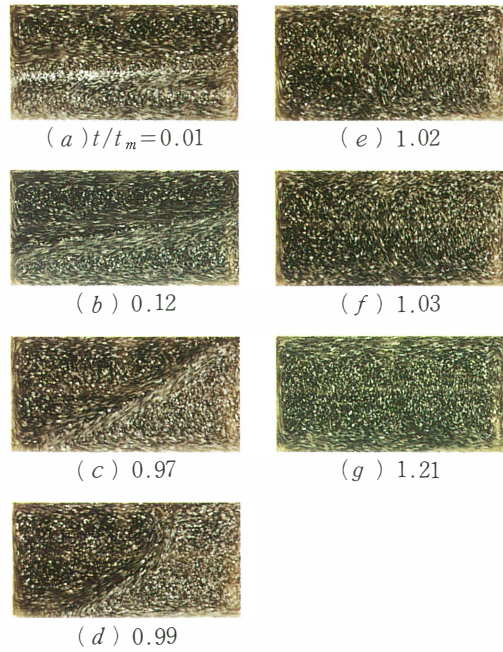


Fig. 9 流れ場の可視化写真
 ($A=0.55$, $\Delta C=0.1\text{wt}\%$, $\Delta T=15^\circ\text{C}$,
 初期温度: 30°C , 平衡濃度: $3.8\text{wt}\%$)

起こらなかった。従って、波打ちが発生するためには十分な対流の強さのみならず十分な上下層間の面積が必要であると考えられる。

垂直境界層の発達 界面の崩壊直前に加熱壁側では下層から上層へ、冷却壁側では上層から下層へと界面の浸透が起こり、垂直境界層が形成される。この現象は $A=1.1$ 、特に $A=2.2$ における熱レイリー数 Ra の大きな実験で顕著に発達した。界面の両端には上昇流及び下降流の衝突による大きな力がかかっており、壁面近傍の上昇流及び下降流の強さの影響が顕著に表れる。垂直境界層形成の原因は濃度差減少による界面の不安定化と、界面の傾斜に伴う下層の加熱面積と上層の冷却面積の増加による上昇流及び下降流の強さの増加であると考えられる。

4. 界面崩壊時間の浮力比との相関

界面崩壊時間と実験条件との関係を調べた結果、どのアスペクト比においても濃度差が同じ場合は温度差と界面崩壊時間は直線的な関係を示した。しかし濃度差に関する相関は見い出せない。ここで、以下に示すような無次元界面崩壊時間 τ_m を定義する。

$$\tau_m = Dt_m / LH$$

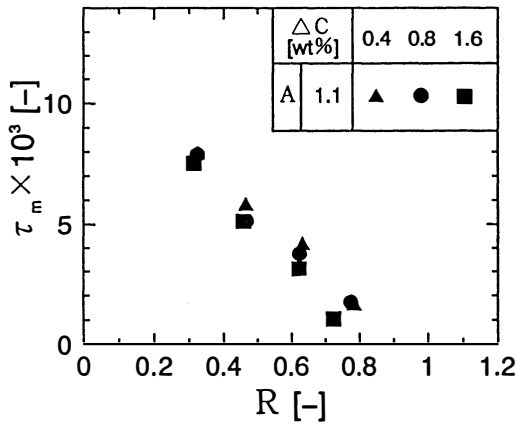


Fig. 10 界面崩壊時間と浮力比の関係
($A=1.1$)

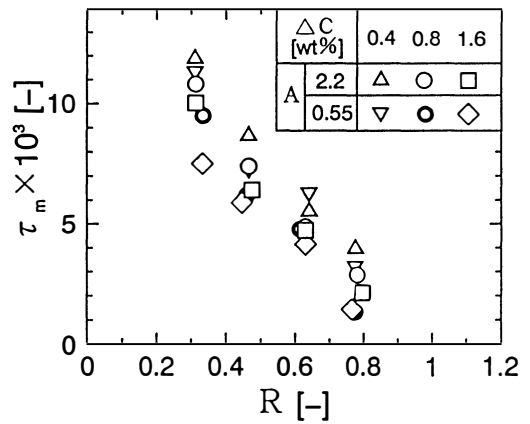


Fig. 11 界面崩壊時間と浮力比の関係
($A=2.2, 0.55$)

Fig. 10 に $A=1.1$ における無次元界面崩壊時間 τ_m と初期浮力比 R の関係を示す。 R が同じであれば濃度差が異なっても無次元界面崩壊時間はほぼ同じであり、本実験範囲において τ_m と R は線形関係にある。Fig. 11 に $A=2.2$, $A=0.55$ における無次元界面崩壊時間 τ_m と初期浮力比の関係を示す。 $A=2.2$, $A=0.55$ 共に初期浮力比が同じであっても熱レイリー数が大きい実験ほど早く二重拡散界面が崩壊する傾向があることが分かる。つまりアスペクト比と濃度差が一定のときに両者は線形関係にあるといえる。これより $A=1.1$ の場合は無次元界面崩壊時間と初期浮力比の関係は濃度レイリー数にはほとんど依存せずに一本の直線で相関できるが、アスペクト比が 1 から大きくずれる場合には濃度レイリー数の影響が無視できないといえる。

なお初期浮力比が 1 より大きい場合については、実験開始直後から界面は大きく傾き、密度的に安定な擬定常状態が形成されることなく直ちに界面の崩壊、層の混合が起こった。よって安定な二重拡散界面の形成限界は初期浮力比 $R=1$ 付近であると考えられる。

結 言

本研究では、最も単純な系である 2 層の濃度勾配に水平温度勾配を与えたときに発生する二重拡散対流を対象に、その発生と崩壊の詳細を調べ、矩形容器のアスペクト比の違いが現象におよぼす影響について実験的に検討した。実験では感温液晶あるいはポリスチレン粒子を用いて系内の可視化を行い、さらに二重拡散界面の崩壊時間を測定した。

矩形容器のアスペクト比の変化によって界面の波打ち、中間層、垂直境界層といった界面近傍の流れが目撃された。そしてその各々の現象は熱レイリー数に依存するところが大きいことが分かった。また現象の進行を支配する主たる因子は浮力比であり、界面崩壊時間はアスペクト比と熱レイリー数が一定のとき、初期浮力比と線形関係にあることが分かった。

謝 辞

本論文の実験に際し、富山大学大学院生茨木源臣氏（現在、中越パルプ㈱）、同工学部学生石川茂樹氏（現在、日本海ガス㈱）の御協力を頂いた。ここに記して感謝の意を表する。

使用記号

A : アスペクト比	[—]	Sc : シュミット数 ($=\nu/D$)	[—]
D : 拡散係数	[m ² /s]	t : 経過時間	[s]
g : 重力加速度	[m/s ²]	t_m : 界面崩壊時間	[s]
H : 容器の高さ	[m]	W : 容器の奥行き	[m]
L : 容器の幅	[m]	α : 温度伝導度	[m ² /s]
Pr : プラントル数 ($=\nu/\alpha$)	[—]	β_c : 濃度体膨張係数	[m ³ /kg]
R : 浮力比 ($=Ra_t/Ra_c$)	[—]	β_t : 温度体膨張係数	[1/K]
Ra_c : 溶質レイリー数 ($=g\beta_c\Delta C(L^4/H)/(\alpha\nu)$)	[—]	ΔC : 上下層間の濃度差	[kg/m ³]
Ra_t : 熱レイリー数 ($=g\beta_t\Delta T(L^4/H)/(\alpha\nu)$)	[—]	ΔT : 温度差	[°C]
		τ_m : 無次元界面崩壊時間	[—]
		ν : 動粘度	[m ² /s]

参考文献

- 1) 吉田次郎, 長島秀樹: ながれ, **9**, 93 (1990)
- 2) T. Bergman and A. Ungan: *J. Fluid Mech.*, **194**, 175 (1988)
- 3) K. Kamakura and H. Ozoe: *J. Chem. Eng. Japan*, **24**, 622 (1991)
- 4) 西村龍夫, 藤原昌樹, 宮下 尚: 日本機械学会論文集B, **58**, 194 (1992)
- 5) T. Nishimura, T. Imoto and H. Miyashita: *Int. J. Heat Mass Transfer*, **37**, 1455 (1994)

化学工学会第58年会 (1993年3月), 化学工学会徳島大会 (1994年7月) にて発表。

Double-diffusive convection of an aqueous solution by lateral heating and cooling

T. Yamane, K. Toyama, A. Shiroishi,
M. Yoshida and H. Miyashita

Double-diffusive convection in a solutally stratified fluid of two-layer destabilized by lateral heating and cooling was studied experimentally. Three closed vessels with different aspect ratio ($A=2.2, 1.1, 0.55$) were used for this study. Details of double-diffusive phenomena were investigated by visualization of temperature and flow fields. Attention was focused on the waving of the interface, the thickness of the initial middle layer and the development of vertical boundary layers. It was found that the time when the mixing of the two layers starts is determined by the buoyancy ratio if the aspect ratio and the initial concentration difference are fixed.

〔英文和訳〕

水溶液の加熱冷却による二重拡散対流

山根 岳志, 外山 和宏, 城石 昭弘,
吉田 正道, 宮下 尚

側方から加熱冷却された2層の濃度成層流体における二重拡散対流が実験的に研究された。アスペクト比の異なった3種類の矩形容器 ($A=2.2, 1.1, 0.55$) が実験に用いられた。温度場と流れ場の可視化を行うことにより、二重拡散現象の詳細な観察がなされた。界面の波打ち現象、初期中間層の厚さ、垂直境界層の発達が目された。アスペクト比と初期濃度差が一定のとき2つの層が混合を開始する時間は浮力比により決定されることが分かった。