

フェーズフィールド法を用いた凍結水滴の体積増加の予測

Prediction of an increase in volume of freezing droplet using a Phase-field method

- 藤井 聖明, 京工繊大, 京都府京都市左京区松ヶ崎御所海道町, E-mail:m7623029@edu.kit.ac.jp
 豊原 一将, 京工繊大, 京都府京都市左京区松ヶ崎御所海道町
 萩原 良道, 京工繊大, 京都府京都市左京区松ヶ崎御所海道町, E-mail:yoshi@kit.ac.jp
 Seia FUJII, Kyoto Institute of technology, Matsugasaki, Sakyo-ku, Kyoto 606-8585
 Kazumasa TOYOHARA, Kyoto Institute of technology, Matsugasaki, Sakyo-ku, Kyoto 606-8585
 Yoshimichi HAGIWARA, Kyoto Institute of technology, Matsugasaki, Sakyo-ku, Kyoto 606-8585

We have carried out two-dimensional numerical simulation for freezing of a sessile or impinging water droplet on a cooling surface to elucidate the mechanism of droplets freezing. A Phase-field method and an immersed boundary method have been used for capturing the interfaces of the droplet. We have revised the Phase-field method so as to predict an increase in the volume of the freezing droplets by considering the conservation of droplet mass. The computational results showed that the volume of the droplet increased as the droplet freezing progressed. In addition, the top of droplet became sharp when the droplet was frozen completely.

1. 緒言

過冷却水滴が物体に衝突する衝撃により凍結して、氷層を形成する着氷現象、および水滴が低温物体に衝突して凍結した結果氷層を形成する現象は、物体の形状変化や質量増加を引き起こす。そのため、物体が本来もつ機能を阻害する。例えば、航空機に氷が付着することにより質量が増加し、かつ翼の形状が変化するため飛行性能が低下する。また、剥がれた氷層がジェットエンジンのブレードやエアコンの室外機の損傷を引き起こす。さらに、自動車の窓や信号機は、氷層により視認性が低下する。したがって、水滴の凍結によって生じる氷層の抑制は非常に重要な課題である。

このような背景により、様々な実験的研究が行われてきた。Nauenberg⁽¹⁾やMarin⁽²⁾は、静置水滴の気液界面位置や形状の時間変化を測定した。Schiaffino⁽³⁾は、氷表面に広がった液滴の気液界面の振幅や振動減衰時間を測定した。このように多くの測定結果があるが、固気液三相の界面の運動と相変化が、液滴直径、衝突速度、温度などに依存する複雑な現象であり、詳細は明らかになっていない。

他方、数値シミュレーションによる着氷現象の予測が試みられてきた。Virozub⁽⁴⁾やHaferl⁽⁵⁾は、ガラーキン法を用いて衝突液滴や衝突液滴の凝固を予測した。Le Bot⁽⁶⁾やOsawa⁽⁷⁾は、VOF法を用いて衝突液滴を予測した。さらにNauenberg⁽¹⁾やZhang⁽⁸⁾は、対流や過冷却、体積膨張を無視したステファン問題から凍結前面形状の位置や形状の時間変化を予測した。最近、Hagiwara⁽⁹⁾は冷却面上の静置液滴および衝突する水滴の凍結挙動や熱流動を解明することを目的とし、Phase-Field法を用いて気液界面および固液界面の界面変動や流動を予測した。しかしながら、凍結による体積の変化を表現できなかった。

本研究では、文献(9)の計算過程を改良して、低温水平面上に静置した水滴の凍結、および低温水平面に衝突する水滴の凍結に関する2次元数値シミュレーションを行い、水滴の凍結による体積増加の予測を試みる。

2. 計算手法

2次元におけるPhase-Field変数の時間発展方程式は、気液界面には修正Allen-Cahn方程式である式(1)、固液界面にはAllen-Cahn方程式である式(2)を適用した。

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = M_{\phi} \left[a \nabla \cdot \left\{ \left(a - \sqrt{2W} \frac{\phi(1-\phi)}{|\nabla \phi|} \right) \nabla \phi \right\} \right] - \nabla(\phi \vec{u}) \quad (1)$$

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = M_{\phi} \left[\frac{a^2}{2} \nabla \cdot \frac{\partial(|\nabla \phi|^2)}{\partial(\nabla \phi)} + 4W\phi(1-\phi)(\phi - 0.5 + \beta) \right] \quad (2)$$

ここで t は時間、 M_{ϕ} はモビリティ、 a は勾配係数、 W はエネルギー障壁、 β は温度差による駆動力、 u は速度を表す。モビリティ M_{ϕ} は次式により表される。

$$M_{\phi} = \frac{bT_m k}{3\delta L} \quad (3)$$

ここで δ は界面幅、 L は潜熱、 b は界面までの相変数、 T_m は融点、 k は界面カインティック係数を表す。 k はMichaels⁽¹⁰⁾の測定結果をもとに1.0 mm/(s·K)とした。

液滴の体積補正は、次式の化学ポテンシャルエネルギーによって与えた。

$$V_{liq} \frac{dp}{d\phi} = V_{liq} \times 30\phi^2(1-\phi)^2 \quad (4)$$

ここで V_{liq} は液相の体積補正量を表し、次式から得られる。

$$V_{liq} = M_0 - M \quad (5)$$

ここで M はある時刻の液滴の質量、 M_0 は初期の液滴の質量を表す。 M は次式より得られる。

$$M = \int_V (\phi_{liq} \cdot \rho_{liq} + \phi_{sol} \cdot \rho_{sol}) dV \quad (6)$$

ここで ρ は密度を表す。式(1)に式(4)を追加することにより、体積増加を考慮した修正Allen-Cahn方程式は次の式(7)で表される。

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = M_{\phi} \left[a \nabla \cdot \left\{ \left(a - \sqrt{2W} \frac{\phi(1-\phi)}{|\nabla \phi|} \right) \nabla \phi \right\} \right] - \nabla(\phi \vec{u}) + 30V_{liq}\phi^2(1-\phi)^2 \quad (7)$$

流れの支配方程式には、Phase-field法における表面張力を考慮したNavier-Stokes方程式である式(8)と連続の式を用いた。

$$\rho \left\{ \frac{\partial \vec{u}}{\partial t} + (\vec{u} \cdot \nabla) \vec{u} \right\} = -\nabla P + \mu \nabla^2 \vec{u} + \vec{e} + \phi a \nabla^2 \phi \quad (8)$$

ここで P は圧力, μ は粘性係数, e は外力を表す.

温度場の計算には, 潜熱の発生を考慮したエネルギー方程式を用いた.

$$\frac{\partial T}{\partial t} + (\vec{u} \cdot \nabla)T = \nabla(\alpha \nabla T) + 30\phi^2(1-\phi)^2 \frac{L}{\rho c} \frac{\partial \phi}{\partial t} \quad (9)$$

ここで T は温度, α は熱拡散率, c は比熱を表す.

式(2)(7)(8)(9)の時間発展には, 3次精度 Adams-Bashforth 法を用いた. また, 式(8)の移流項の離散化には, コンシステントスキーム⁽¹¹⁾を用いた. 式(7)(9)の移流項の離散化には, 河村・桑原スキーム⁽¹²⁾を用いた.

3. 計算条件

計算領域の概略図を Figs. 1-2 に示す. また, 計算条件を Table 1 に示す. 気相, 液相, 固相の物性値は, それぞれ局所温度の空気, 局所温度の水(あるいは 0 °C の過冷却水), 局所温度の水の値とした.

境界条件は, 以下のように定めた. 冷却面である下面には, 速度の滑りなし条件, および温度一定条件(-20 °C)を与えた. 上面と右面には, すべての量にノイマン条件を与えた. 左面には, すべての量に対称条件を与えた. 冷却面の濡れ性の境界条件には次式を適用した.

$$\vec{n} \cdot \kappa_\phi \nabla \phi \Big|_i = -1/2 = -\gamma_s \quad (6)$$

ここで, \vec{n} は表面の法線方向, κ_ϕ は比例係数, γ_s は Wetting potential と呼ばれるパラメータである. γ_s に 0 を代入して, 濡れ角 θ_w を 90°とした.

水の成長を予測するために, 微小な氷核を以下のように与えた. 静置水滴の場合には, 液滴の初期形状からの重力による変形が収束して気相および液滴の冷却が進んだ $t=0.5$ s に, 液滴底部の気液界面近傍に 1 個付与した. これは, 冷却面上に発生した霜が成長し, 水滴に接触してそこから凍結が進む場合を想定している. 衝突水滴の場合には, 安定した温度成層に液滴を配置し, 重力により自由落下させ, 液滴が冷却面に衝突した瞬間に液滴の底部中央に付与し, その後液滴が最初に扁平になるまで, 固気液境界が移動するにつれ, 境界近傍に 0.0375 mm 毎に氷核を付与した. このことは, 液滴の冷却面への衝突, および固気液界面が急速に移動する衝撃により過冷却が解消されて氷層が形成される場合を想定している. 氷核は, 直径 0.01875 mm の半円状とした.

本研究において, 格子間隔は空気の連続体近似が成り立つように決定した. もし格子間隔が空気の平均自由行程の 100 倍未満であると, 高クヌッセン数流れとなり, 酸素分子と窒素分子の運動を統計的に解く必要がある. 空気の平均自由行程は 68 nm⁽¹³⁾であるため, 格子間隔は 0.0068 mm より長くした. クーラン数は本計算では 0.025 以下であった. また, 式(3)のモビリティ M_ϕ は 0.0065, 界面幅は $6\Delta x = 0.05625$ mm とした.

Table 1 Computational Conditions.

Grid number	N_x, N_y	200, 200 (Sessile) 600, 800 (Impinging)
Grid spacing [mm]	$\Delta x, \Delta y$	0.009375, 0.009375
Time interval [s]	Δt	1.0×10^{-7}
Droplet diameter [mm]	D	1.1273 (Sessile) 1.7894 (Impinging)
Initial droplet temperature [°C]	T_w	5.0
Initial air temperature [°C]	T_g	5.0
Cooling surface temperature [°C]	T_s	-20.0

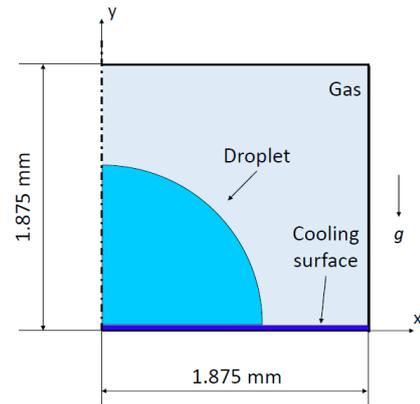


Fig. 1 Computational Domain (Sessile).

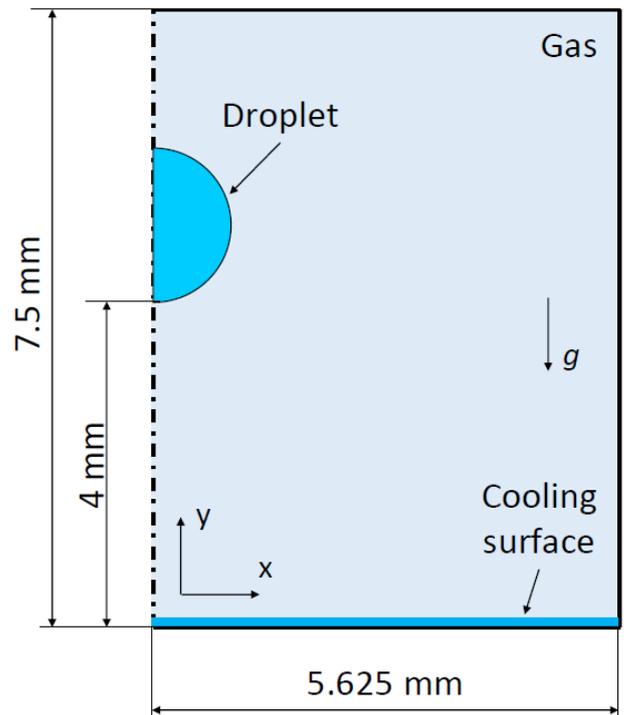


Fig. 2 Computational Domain (Impinging).

4. 結果及び考察

4-1 静置水滴における体積補正と凍結挙動

Figs. 3-4 に, 液滴の投影面積, および底面からの高さの時間変化をそれぞれ示す. Figs. 5-6 に, Phase-field 変数 ϕ の分布, 温度分布, および速度分布の時間変化をそれぞれ示す. 各図の(a)は氷核を付与した瞬間の結果, (d)は水滴が完全に凍結した瞬間の結果を示している. 図中の黒線は気液界面を表しており, Fig. 5 の黒い領域は氷を表している.

Figs. 3-6 より, 凍結が進むにつれて水滴の体積が増加する様子, および体積の増加により液滴高さが増加する様子が確認できる. 液滴の質量は, 初期には 1.01945 g, 凍結完了時には 1.01944 g と保存されたことから, 凍結による体積増加が予測できたといえる.

液滴は重力の影響によって扁平な形状のまま振動し, 約 0.12 s において振動が収束した (Fig. 5(a)参照). Fig. 5(b)に見られるように, 固気液界面近傍に与えた氷核から, 上方および左方に氷が成長した. 底面が凍結した後も, 氷の成長は中央よりも気液界面近傍の方が著しく, 凍結前面は下に凸の形状となった (Fig. 5(c)参照). この形状の原因としては, Fig. 6(a)よりわかるように, 液滴中央は潜

熱により比較的溫度が高いが、気液界面近傍は周囲の空気による冷却によって溫度が比較的低温に保たれたことが考えられる。

最終的に、凍結前面は下に凸の形状を維持したまま液滴頭部に向かって進み、Fig. 5(d)のような形状で完全に凍結した。凍結完了時に液滴の頂点に突起を形成する現象は、測定結果^(1,2,8,9)と定性的に一致している。

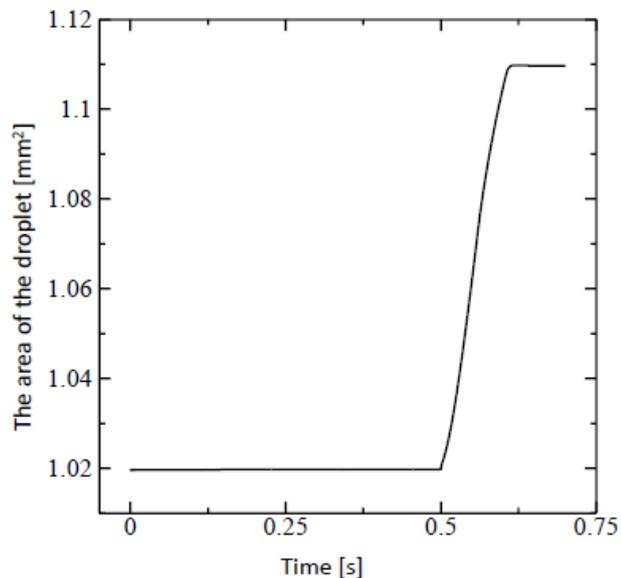


Fig. 3 The area of the sessile droplet.

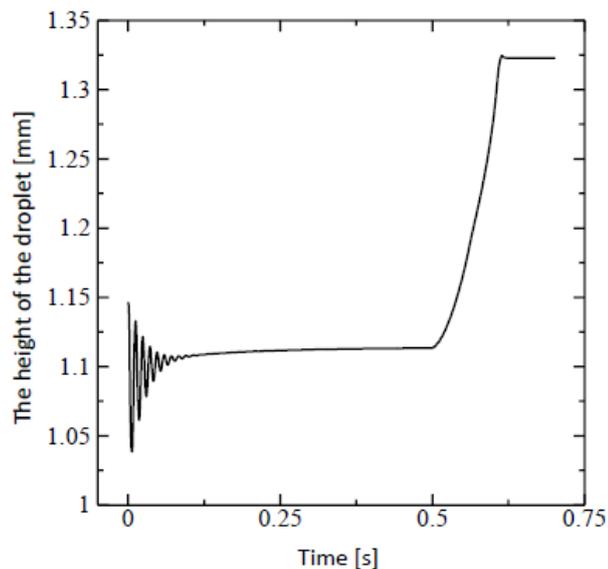


Fig. 4 The height of the sessile droplet.

4-2 衝突液滴の凍結挙動

Table. 2 に、測定結果⁽⁹⁾と計算結果の衝突する瞬間の水滴の落下速度およびレイノルズ数、また、冷却面に接する液滴の直径、凍結後の底面からの高さを示す。Figs. 7-8 に、液滴の投影面積、および底面からの高さの時間変化をそれぞれ示す。また、Figs. 9-10 に、Phase-field 変数 ϕ の分布、温度分布、および速度分布の時間変化をそれぞれ示す。各図の(a)は液滴が冷却面に衝突した瞬間の結果、(b)はその直後に液滴が最も広がった瞬間の結果、(c)は気液界面振動の収束時の結果、(d)は水滴が完全に凍結した瞬間の結果を示している。図中の黒線は気液界面を表しており、Fig. 9 の黒い領域は氷を表している。

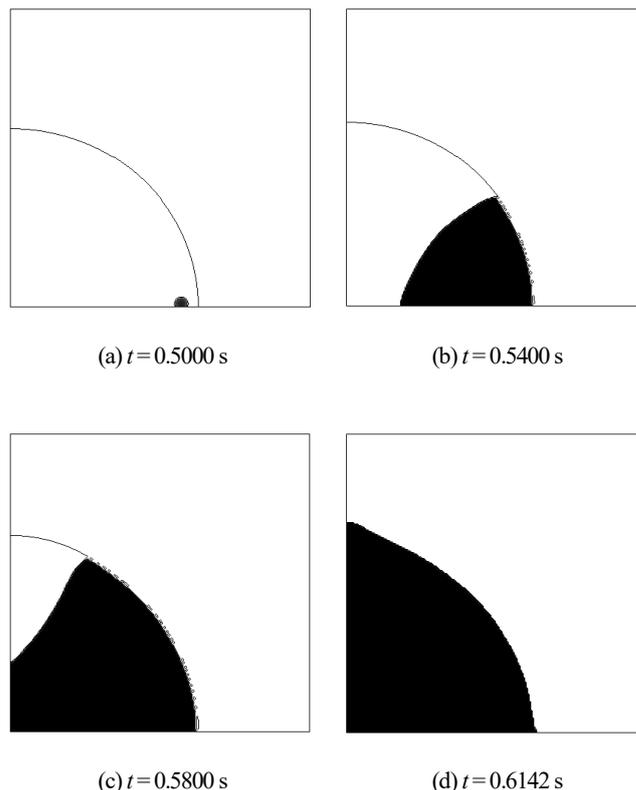


Fig. 5 The contour maps of the Phase-Field variable (Sessile droplet).

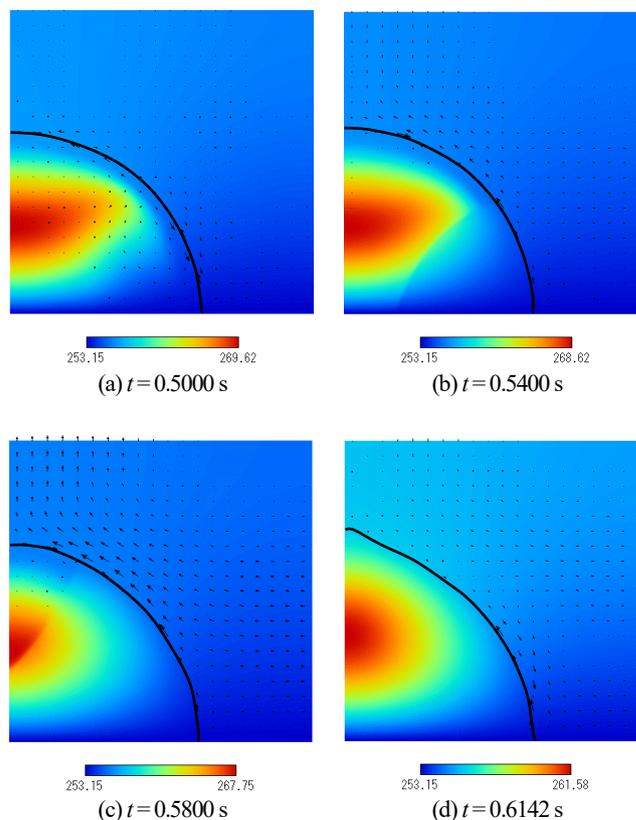


Fig. 6 The contour maps of temperature and velocity vectors (Sessile droplet).

Table 2 Experimental and Computational results.

Case	Experiment	Simulation
Impinging velocity [m/s]	0.29	0.2415
Reynolds number	38	30.96
Diameter of contact area [mm]	2.8	3.831
Final height [mm]	1.45	1.04

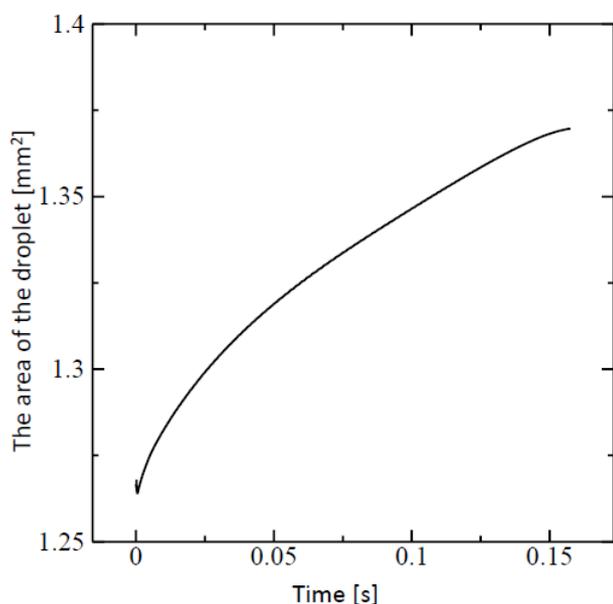


Fig. 7 The area of the impinging droplet.

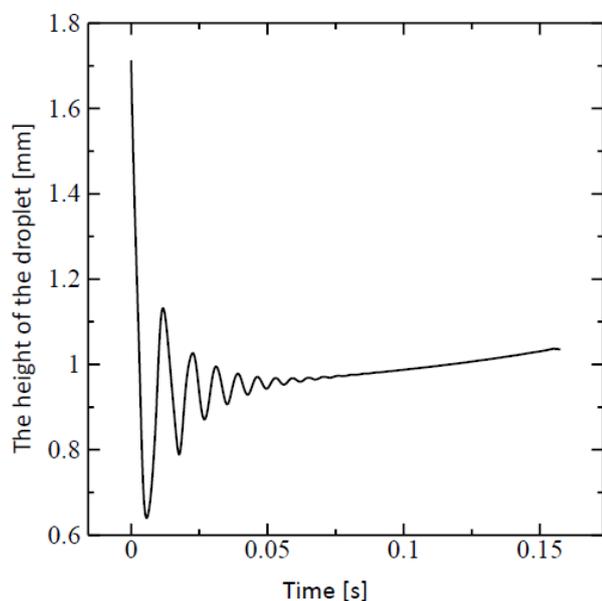


Fig. 8 The height of the impinging droplet.

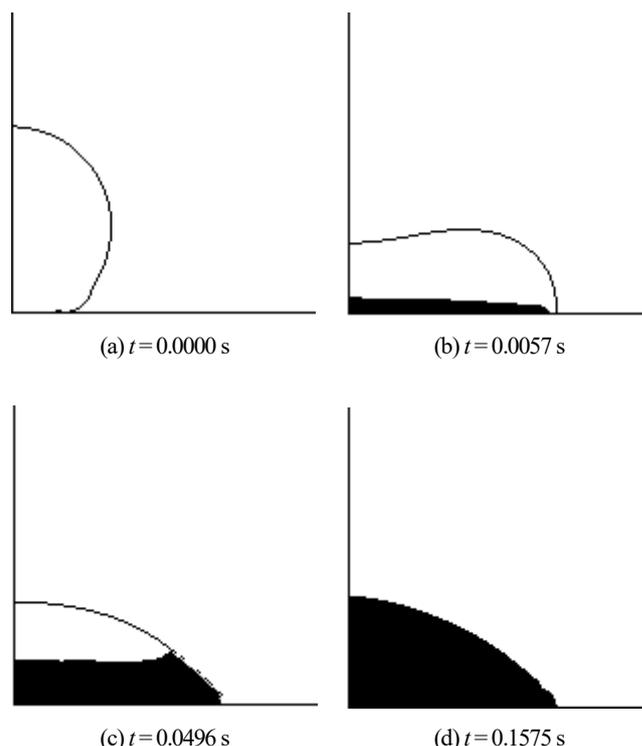


Fig. 9 The contour maps of the Phase-Field variable (Impinging droplet).

Figs. 7-10 より、静置液滴の場合と同様に、凍結が進むにつれて水滴の体積が増加する様子、および体積の増加により液滴高さが増加する様子が確認できる。なお、Fig. 7において、衝突直後に液滴の投影面積が若干変動したのは、液滴衝突時に生じた微小気泡を強制的に除去したためである。

Figs. 9(a), 9(b)より、氷核を付与したことにより、液滴の広がりにつれて氷層が冷却面に沿って薄く広がるように生成されたことがわかる。その後、氷層が気液界面に到達したことにより、氷層の接触面が定まった。液滴が広がった時に接触面が定まったため、気液界面はFig. 9(c)のように扁平である。

Fig. 9(b)においては、氷層は冷却面中央が最も厚いが、その後、気液界面近傍の氷層の成長が進んだ。界面の振動が収束したFig. 9(c)においては、下に凸の円弧状の凍結前面が形成された。この液滴の凍結挙動は、測定結果^(2, 8, 9)と定性的に一致する。最終的に、凍結前面は円弧状を維持したまま液滴の頭部に向かって進み、液滴の頂点が尖る現象が見られることなく、Fig. 9(d)のような形状で完全に凍結した。

Fig. 10(a), (b)より、液滴上部の空気の温度が同じ高さの液滴から離れた位置の温度よりも高いことが確認できる。液滴の上の空気の温度が高い原因として、液滴が落下することにより発生した循環流による対流熱伝達が考えられる。Fig. 10(c), (d)より、時間の経過につれて循環流の影響は小さくなったことが確認できる。

静置水滴の場合のみ凍結完了時に頂点に突起を形成した原因として、氷核の生成条件や液滴内部及び周囲の温度分布の違いなどから、気液界面近傍の氷成長が早く進み、液滴内部に未凍結の水を多く残した状態で氷殻を形成したことが考えられる。今後、衝突液滴の凍結のより正確な予測を行うために、氷核の付与条件および温度分布について詳細な検討を行う予定である。

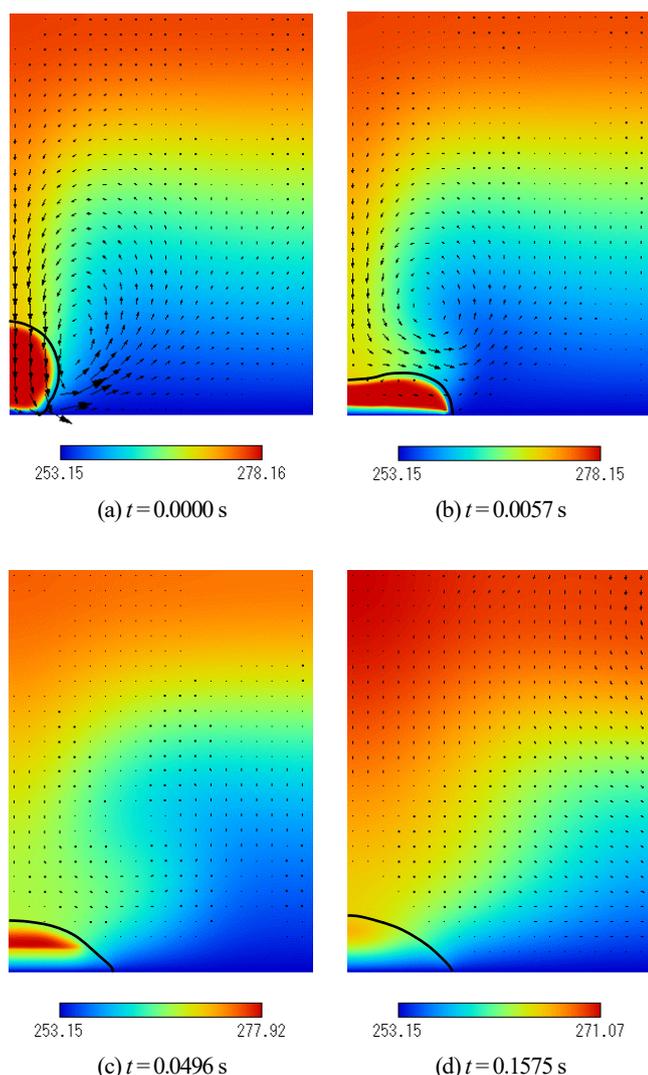


Fig. 10 The contour maps of temperature and velocity vectors (Impinging).

5. 結言

本論文では、前報の計算過程を改良して、低温水平面上に静置した水滴の凍結、および低温水平面に衝突する水滴の凍結に関する2次元数値シミュレーションを行い、以下の結果を得た。

- (1) 計算過程の改良の結果、凍結による密度の低下に伴う体積増加を予測できた。
- (2) 静置した水滴の凍結させた場合、液滴の頂点における突起の形成を予測できることが明らかとなった。

謝辞

本研究は、日本学術振興会 科研費基盤研究 (A) (15H02220)のもとで行われた。ここに記して謝意を示す。

参考文献

- (1) Nauenberg, M., "Theory and experiments on the ice-water front propagation in droplets freezing on a subzero surface," *Euro. J. Phys.*, 37 (2016), 045102.
- (2) Marin, A.G., Enriquez, O.R., Brunet, P., Colinet, P. and Snoeijer, J.H., "Universality of tip singularity formation in freezing water drops," *Phys. Rev. Lett.*, 113 (2014), 054301.
- (3) Schiaffino, S. and Sonin, A.A., "Molten droplet deposition and solidification at low Weber numbers," *Physics of Fluids*, 9 (1997),

pp. 3172-3187.

- (4) Virozub, A., Rasin, I.G. and Brandon, S., "Revisiting the constant growth angle: Estimation and verification via rigorous thermal modeling," *J. Crystal Growth*, 310 (2008), pp. 5416-5422.
- (5) Haferl, S., Butty, V., Poulidakos, D., Giannakouros, J., Boomsma, K., Megaridis, C.M. and Nayagam, V., "Freezing dynamics of molten solder droplets impacting onto flat substrates in reduced gravity," *Int. J. Heat and Mass Transfer* 44., (2001), pp. 3513-3528.
- (6) Le Bot, C., Vincent, S. and Arquis, E., "Impact and solidification of indium droplets on a cold substrate," *Int. J. Thermal Sciences*, 44 (2005), pp. 219-233.
- (7) Osawa, K. and Yamamoto, M., "Numerical investigation on freezing process of super-cooled droplet," *Proceedings of 11thWCCM, 5thECCM, 6thECFD.*, (2014), pp. 1-7.
- (8) Zhang, H., Zhao, Y., Lv, R. and Yang, C., "Freezing of sessile water droplet for various contact angles," *Int. J. of Thermal Sciences*, 101 (2016), pp. 59-67.
- (9) Hagiwara, Y., Ishikawa, S., Kimura, R. and Toyohara, K., "Ice growth and interface oscillation of water droplets impinged on a cooling surface," *Journal of Crystal Growth*, 468 (2017), pp. 46-53.
- (10) Michaels, A.S., Brain, P.L.T. and Sperry, P.R., "Impurity effects on the basal plane solidification kinetics of supercooled water," *J. Applied Physics*, 37 (1996), pp. 4649-4661.
- (11) Kawamura, H., "Direct numerical simulation of turbulence by finite difference scheme," *The Recent Development in Turbulence Research*, (1995), pp. 54-60.
- (12) Kawamura, T., Takami, H. and Kuwahara, K., "Computation of high Reynolds number flow around a circular cylinder with surface roughness," *Fluid Dynamics Research*, 1 (1986), pp. 145-162.
- (13) Jennings, S.G., "The mean free path in air," *J. Aerosol Science*, 19 (1988), pp. 159-166.