

数値シミュレーションによる高温高压容器内の熱対流の解析

お茶の水女子大学・大学院人間文化創成科学研究科 桑名 杏奈 (Anna KUWANA)*
大島 裕子 (Yuko OSHIMA)
河村 哲也 (Tetuya KAWAMURA)

Graduate School of Humanities and Sciences, Ochanomizu University

概要：人工水晶育成に用いられる鉛直円筒型の高温高压容器(オートクレーブ) 内の熱対流について数値シミュレーションを行った。本稿では特に流速・温度分布に次ぐ指標とすべく、溶解度の計算を試み、流れ場の可視化と値の解析を行った。ブシネスク近似の下で連続の式・非圧縮性 Navier-Stokes 方程式・エネルギー方程式を基礎方程式として用い、フラクショナル・ステップ法で解く。非線形項の近似には三次精度の上流差分を用いた。そうして得られた各格子点における温度と圧力の値を元に、 SiO_2 の溶解度を計算した。

1. はじめに

本研究では人工水晶生成のためのオートクレーブ (鉛直円筒型の高温高压容器: Fig. 1) 内部の流体について数値シミュレーションを行う。パッフル (対流制御盤) を境にして、オートクレーブ下部にラスカ (原料水晶, SiO_2 : Fig. 2), 種子水晶を上部に設置する。触媒 (希アルカリ溶液) でオートクレーブ内部を満たし、密閉して加圧すると共にヒーターにより周囲から加熱する。下部のヒーター温度を上部より高くすることで、上下の温度差により内部溶液の中に自然対流が生じる。下部高温域ではラスカが触媒に溶解, 対流により上部に移動した溶液は冷えて過飽和となり, SiO_2 が種子水晶上に析出する。その後, 溶液は下降し下部で再びラスカを溶解して, 対流により上昇を開始する。この繰り返しにより種子水晶が成長する。これは人工水晶育成法の一つで, 水熱温度差法といわれるものである。実際に育成された人工水晶の写真を Fig.3 に示す。水晶製品は「産業の塩」と呼ばれ, 「産業の米」といわれる半導体製品と共に, 我々の生活に必要不可欠なものである。水晶振動子・水晶発振器・水晶フィルタ・SAW デバイス・光デバイスなどとして電子機器・通信機器・光学機器の部品に広く使用されている。かつては天然水晶が使われていたが, 需要の増加と良質の天然水晶の枯渇により, 1960 年頃から人工水晶育成の工業化が始まった。以来, 世界の人工水晶生産量は年間約 2,000 トンまで増加し, その半分以上が日本で生産されている。

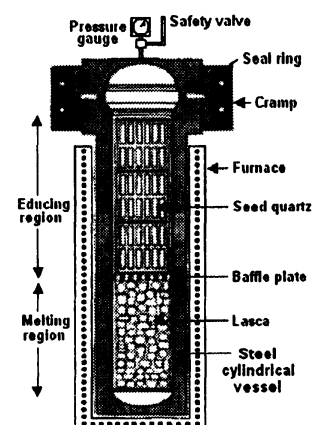


Fig. 1 A schematic diagram of an autoclave.



Fig. 2 Lasca (SiO_2).

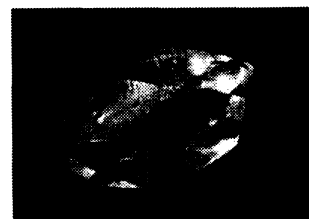


Fig. 3 Synthetic quartz crystal.

* E-mail: kuwana.anna@ocha.ac.jp

オートクレーブ内部の対流の様子や結晶の状態がわかれば、より効率的な結晶育成につながる可能性があるが、実際に育成中のオートクレーブの内部を観察することは高温高压のため不可能に近く、数値シミュレーションが有用な手段の一つとなる。著者らは今まで、バッフルがあることとそれ自体の効果の解析、バッフル形状が対流・温度分布に与える影響の解析、対流の時間変化の様子の可視化、種子・ラスカが対流に与える影響の解析、不均一に溶け残ったラスカとそれが崩れるときに対流に与える影響の解析などを、数値計算および実験により行ってきた[1]-[5]。本稿では流速・温度分布に次ぐ内部流体解析の指標として、溶解度の計算を行う。

2. 計算方法

2.1 計算領域

実際のオートクレーブ形状に基づき、流体の入った円筒の大きさを 高さ: 半径 = 43: 1 とする。円柱座標系にて、半径方向一番内側の点は一つの点を表す。その点での物理量は、半径方向内側から 2 番目の各点での物理量の相加平均を境界条件として与える。すなわち、円筒各断面の中央部に芯はないものとする。格子数は鉛直方向: 周方向: 半径方向 = 712: 33: 33 (= 約 775,000) とし、特に詳しく解析したい円筒内壁付近およびバッフル付近の格子幅を細かくした不等間隔格子 (Fig. 4) を用いる。バッフルの目的は主に、対流を軸対称になるように制御することと、下部原料溶解域と上部結晶成長域の温度差を保つことである。Fig.1 の模式図ではバッフルは 1 枚であるが、計算ではよりバッフルの効果を高めるために 2 枚入っている。実際のバッフルには細かい孔がたくさん空いているが、計算では模式的に Fig. 5 の通りとする。バッフルと円筒壁面には隙間があり、隙間面積: 孔の総面積 = 8: 2 である (この比率は実際のバッフルに等しい)。Fig. 6 に種子水晶, Fig. 7 にラスカを示す。ラスカは不定形の小石のようなものであるが、ここでは鉛直方向・周方向・半径方向いずれも 1 格子おきに入っているものとした。流体中の障害物である種子水晶・バッフル・ラスカ部分の計算にはマスク法[6]を用いる。

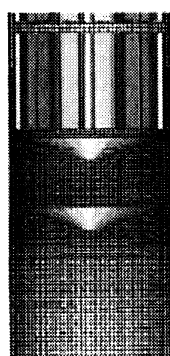


Fig. 4
Side view
of grid mesh.

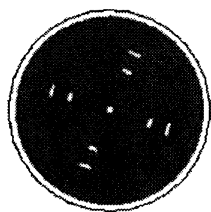
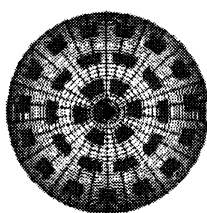
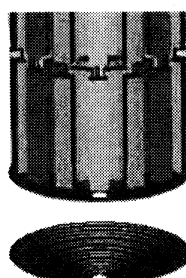


Fig. 5
Plane view
of a baffle.



(a) A cross section
with grid mesh.



(b) Bird's-eye
view near baffles.

Fig. 6 Seed quarts.

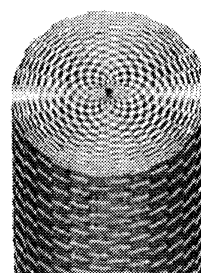


Fig. 7 Lasca.

2.2 基礎方程式

温度変化による浮力を通してのみ流体の運動に影響を与えると仮定し、ブシネスク近似を採用した。円筒内の流体を非圧縮性流体と考え、密度は一定とした。以上の仮定のもと、基礎方程式を (1)~(3) とする。

$$\text{連続の式: } \nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \quad (1)$$

$$\text{運動方程式: } \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} = -\nabla p + \frac{1}{\text{Re}} \nabla^2 \mathbf{u} + \frac{Gr}{\text{Re}^2} \mathbf{k} \quad (2)$$

$$\text{エネルギー方程式: } \frac{\partial T}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) T = \frac{1}{\text{Re Pr}} \nabla^2 T \quad (3)$$

[∇ : 勾配演算子, $\mathbf{u} = (u, v, w)$: 速度ベクトル, t : 時間, p : 圧力, Re : レイノルズ数 (=200), Gr : グラスホフ数 ($Gr/\text{Re}^2 = 0.8$), T : 温度, $\mathbf{k}$: 鉛直方向単位ベクトル, Pr : プラントル数 (=0.7)]

2.3 数値解法

流体に関する基礎方程式はフラクショナル・ステップ法[7] を用いて数値的に解く。計算時には方程式を円柱座標系に変換している。時間微分は一次精度前進差分を、非線形項以外の空間微分は二次精度中心差分を用いて近似した。非線形項の近似には、格子が十分に細くない場合でも安定に計算することが可能な三次精度上流差分[8] を用いた。

フラクショナル・ステップ法:

$$\mathbf{u}^* = \mathbf{u}^n + \delta t \left\{ -(\mathbf{u}^n \cdot \nabla) \mathbf{u}^n + \frac{1}{\text{Re}} \nabla^2 \mathbf{u}^n + \frac{Gr}{\text{Re}^2} \mathbf{k} \right\} \quad (4)$$

$$\nabla^2 p^{n+1} = \frac{1}{\delta t} (\nabla \cdot \mathbf{u}^*) \quad (5)$$

$$\mathbf{u}^{n+1} = \mathbf{u}^* - \delta t \nabla p^{n+1} \quad (6)$$

三次精度上流差分:

$$f \frac{\partial u}{\partial x} \Big|_{x=x_i} = f \frac{-u_{i+2} + 8(u_{i+1} - u_{i-1}) + u_{i-2}}{12 \delta x} + \frac{|f|}{12} \frac{u_{i+2} - 4u_{i+1} + 6u_i - 4u_{i-1} + u_{i-2}}{\delta x} \quad (7)$$

2.4 計算条件

初期条件として流速を 0.0, 温度を 300°C, 境界条件として円筒壁面・上下面をすべりなし壁とする。Fig. 8 にオートクレープの模式図を再掲するが、実際に育成が行われる円筒部分の外側には厚さ 30cm ほどの防護壁があり、その外側にヒーターがある(更にその外側にも、厚さ 40cm ほどの防護壁がある)。ヒーターの設定温度を Fig.8 に示す通りとし、防護壁部分の熱伝導を別途計算、その結果を実際に育成が行われる円筒部分の壁面・上下面の温度の境界条件として与えた。なお計算の際、温度は 300°C を 0.0, 400°C を 1.0 で無次元化している。

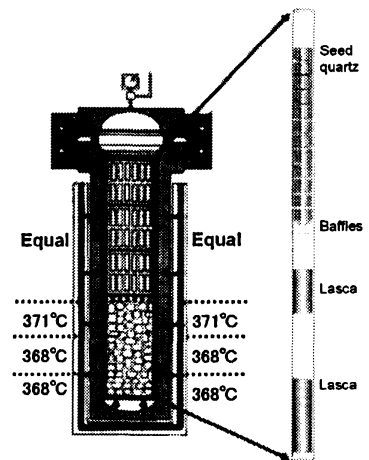


Fig. 8 Thermal conditions.

2.5 溶解度の計算

以上の計算により、各格子点における流速・圧力・温度が計算される。高温高压下における SiO_2 の水への溶解に関する実験的研究[9] では、圧力と温度に対応する溶解度が調べられている。そこで各格子点における圧力・温度の値を元に、溶解度の値を各格子点上にマッピングする（溶解度の値は離散値となる）。

3. 結果

溶解度の計算結果を可視化する。紙面の都合上水平状態に描いているが、実際のオートクレーブは図を反時計回りに 90 度回転した垂直の状態である（図の左側：下部原料溶解域，右側：上部結晶成長域）。人工水晶育成に関する範囲（温度：350℃前後，圧力：1,500bar 前後）では高温高压なほど溶解度も高い。流体が円筒壁面で加熱され上昇，バッフルで区切られたそれぞれの領域の天井に達し円筒中心部で下降することを受けて，溶解度の値も円筒壁面付近から徐々に大きくなる。また，種子・ラスカ上では温度の伝わり方が遅いことを受けて，種子・ラスカのない部分から溶解度の値が大きくなっていくが，最終的には(Timestep=18,000) 上部・下部それぞれの領域内での値はほぼ一定になる。また Timestep=18,000 において，バッフルなしの場合と比較して，バッフルが上部領域の広範囲にわたって溶解度の値を低く保つ様子が観察される。

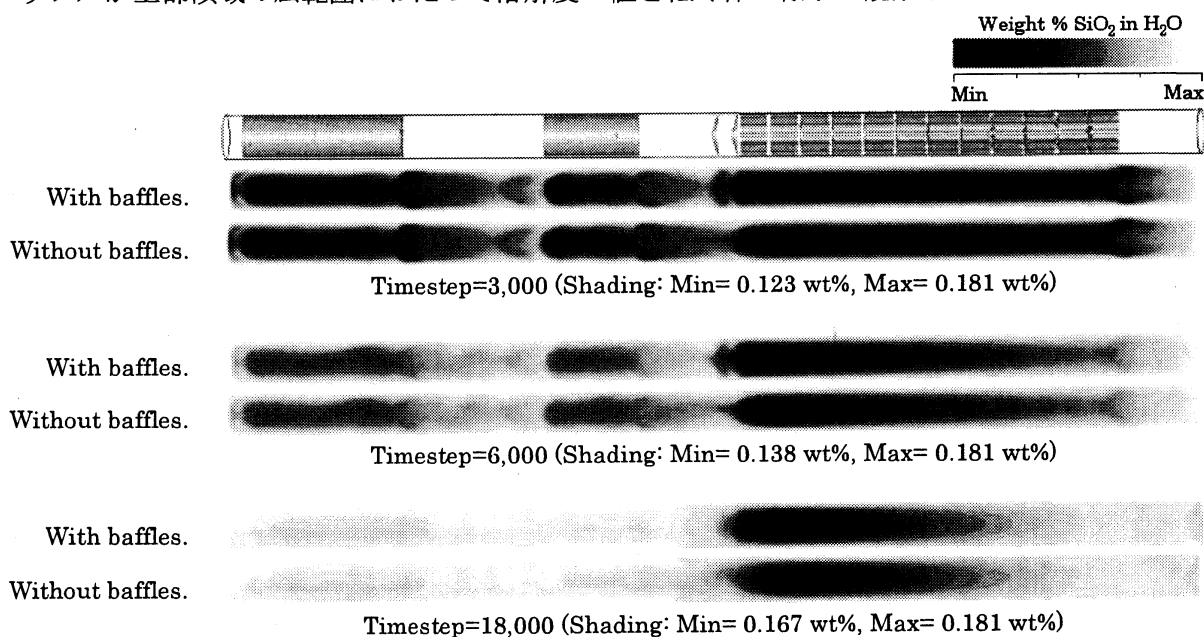


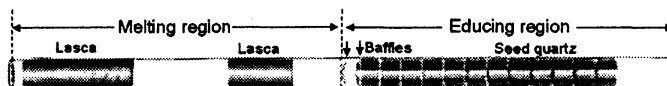
Fig. 9 Visualization of Weight% SiO_2 in H_2O .

下部原料溶解域(Melting region) と上部結晶成長域(Educing region), それぞれに含まれる全ての格子点における溶解度の値の平均値を, Table 1 に示す。下部・上部それぞれの領域の体積は等しい。いずれの場合も下部領域の溶解度が上部領域の溶解度より高くなっており，下部領域で飽和状態まで原料水晶が溶解すれば，溶液が上部領域に移動したとき過飽和となり， SiO_2 が種子水晶上に析出する。下部領域の溶解度の，上部領域の溶解度に対する比を共に示す。この値が大

きいほど、大量の SiO_2 を析出することができる。バッフルありの場合となしの場合を比較すると、(a)バッフルありの場合の方が値が大きく、効率的に水晶を育成することが可能になる。

Table 1 Comparison of mean value of wt% SiO_2 in H_2O

(a) With baffles.				(b) Without baffles.			
Timestep	Mean value of wt% SiO_2 in H_2O		Ratio of (A)/(B)	Timestep	Mean value of wt% SiO_2 in H_2O		Ratio of (A)/(B)
	in Melting region(A)	in Educing region(B)			in Melting region(A)	in Educing region(B)	
3,000	0.159	0.156	1.021	3,000	0.158	0.157	1.004
6,000	0.171	0.166	1.030	6,000	0.170	0.168	1.017
9,000	0.176	0.171	1.027	9,000	0.175	0.172	1.018
12,000	0.178	0.174	1.024	12,000	0.178	0.175	1.017
15,000	0.179	0.176	1.021	15,000	0.179	0.176	1.016
18,000	0.180	0.177	1.018	18,000	0.180	0.177	1.014



4. まとめ

人工水晶育成に用いられるオートクレーブについて溶解度の計算を試み、流れ場の可視化と値の解析を行った。結果、バッフルが上下領域間の溶解度の差を保ち、効率的に水晶を育成することができることが観察された。今後は更に実質的な指標として、濃度や核生成駆動力などの計算を行う予定である。

謝辞

オートクレーブ形状などのデータ提供および人工水晶育成現場での貴重な経験に基づきご助言を頂いた、日本電波工業株式会社の高橋純史氏・松元健氏・CADセンターの皆様へ深く感謝の意を表す。

参考文献

- [1] Yuko OSHIMA, Nozomi OKABAYASHI, Tetuya KAWAMURA, Junji TAKAHASHI, "Convective flow analysis in an autoclave", CFD Journal 15 (4) Selected Paper from 5AWCFD, (June 2007), pp.634-638
- [2] 桑名杏奈, 大島裕子, 河村哲也, 「鉛直円筒内の熱対流の数値シミュレーション」第22回数値流体力学シンポジウム, (2008), 講演要旨集 p.197
- [3] 桑名杏奈, 大島裕子, 河村哲也「数値シミュレーションによる鉛直円筒内熱対流の解析」流体力学会 年会 2009, (2009), 講演要旨集 p.48
- [4] 桑名杏奈, 大島裕子, 河村哲也, 「鉛直円筒型高温高压容器内の熱対流の数値シミュレーション」第23回数値流体力学シンポジウム, (2009), 講演要旨集 p.157
- [5] Anna Kuwana, Yuko Oshima, Tetuya Kawamura "Numerical Simulation of Heat Convection in an Autoclave" Sixth Asia Workshop on Computational Fluid Dynamics, (2010), Proceedings (Electronic data in USB Flash Drive) 5 pages.
- [6] 河村哲也 『流体解析 I』 朝倉書店, ISBN4-254-11402-8, (1996), pp.132-133.
- [7] Chorin. A. J., "Numerical Solution of the Navier-Stokes Equations", Math. Comput., (Oct. 1968), v. 22, pp. 745-762
- [8] T. Kawamura and K. Kuwahara, "Computation of high Reynolds number flow around a circular cylinder with surface roughness", AIAA Paper 84-0340 (1984).
- [9] George Clayton Kennedy, "A portion of the system silica-water" Economic Geology, (Nov. 1950), v. 45, no. 7, pp. 629-653.