冷冻浓缩过程冰晶夹带溶质浓度分布模拟

陈梅英^{①②*}, 卓艳云^②, 欧忠辉^③, 冯力^④, 林河通^②, 陈锦权^{②*}

① 福建农林大学管理学院旅游学院(合署), 福州 350002;

② 福建农林大学食品科学学院, 福州 350002;

③ 福建师范大学数学与计算机科学学院, 福州 350108;

④ 兰州理工大学材料科学与工程学院, 兰州 730050

* 联系人, E-mail: cmy2816@126.com; chenjq6613@163.com

2013-09-12 收稿, 2014-02-10 接受, 2014-04-02 网络版发表

国家自然科学基金(31101327)、高等学校博士学科点专项科研基金博导类资助课题(20123515110016)和福建省自然科学基金(2011J01002)资助

摘要 针对冷冻浓缩过程冰晶夹带造成该技术推广使用受限制的问题, 采用国内外描述相变微观结构的相场模型, 将体系视为水和溶质二元系统, 建立冷冻浓缩过程冰晶生长的数学模型, 耦合溶质场, 从微观上模拟冰晶形貌演变, 分析冰晶夹带溶质浓度分布规律. 探讨模拟结晶时间、过冷度及模拟初始温度对冰晶夹带浓度分布的影响. 结果表明: 模拟结果与实验相符合. 随着模拟结晶时间的延长, 冰晶固液界面的溶质浓度增大, 造成溶质夹带增加; 过冷度小, 溶质扩散率大, 冰晶中溶质浓度小, 过冷度越大, 溶质向液相中扩散越不充分, 冰晶中溶质浓度越大; 模拟初始温度高, 冰晶浓度分布小, 模拟初始温度低时, 其溶质浓度增大. 适当控制这 3 种因素将减少冰晶的夹带率, 降低冷冻浓缩过程的可溶性固形物损失.

关键词

冷冻浓缩
相场法
冰晶夹带
溶质浓度分布
数值模拟

冷冻浓缩在果汁、葡萄酒、咖啡提取物、牛奶等的浓缩及废水处理、中药提取液浓缩, 海水淡化等方面应用已有研究^[1-5]. 该技术在低温下操作, 气液界面小, 对微生物增殖、溶质的劣化、挥发性芳香成分的损失方面及对环境的污染和能耗可控制在极低的水平^[6-8]. 但由于冰晶夹带且难以分离, 造成可溶性固形物的大量损失, 是无法推广其工业化的一大瓶颈. 结晶是固体物质以晶体状态从蒸气、溶液或熔融物中析出的过程. 冷冻浓缩的冰晶是水以晶体状态从溶液中析出的过程. 生成的冰晶是一种典型的凝固组织, 也是非平衡组织结构, 涉及热量、质量和动量传输以及界面动力学和毛细作用效应相耦合的自由边界问题, 是相变和多物理场相互作用的复杂过程. 目前对冰晶的认识很大程度上以试验为主, 观察

冰晶成核和生长过程及在非平衡热力学条件下的动力学规律^[9-14].

相场法是建立在统计物理学基础上的一种用于描述在非平衡状态中复杂相界面演变强有力的工具. 相场方程的解可描述系统中固液界面的形态曲率和界面的移动, 目前该方法已成为微观组织模拟中的研究热点, 属于材料科学的前沿研究领域^[15-18]. 本文基于 Kim 等人^[19]提出的 KKS 相场模型, 采用相场和溶质场耦合的方法, 首次对冷冻浓缩过程的冰晶夹带溶质分布规律进行模拟, 以期分析冰晶夹带的因素, 为改进冷冻浓缩工艺提供基础理论和技术支持. 为了简化模型, 将成分视为水和溶质二元结构, 并近似地认为是在等温度条件下进行, 忽略结晶潜热的释放所造成的影响.

引用格式: 陈梅英, 卓艳云, 欧忠辉, 等. 冷冻浓缩过程冰晶夹带溶质浓度分布模拟. 科学通报, 2014, 59: 1776–1783

Chen M Y, Zhuo Y Y, Ou Z H, et al. Numerical simulation of solute concentration distribution of entrained ice crystals in freeze concentration process (in Chinese). Chin Sci Bull (Chin Ver), 2014, 59: 1776–1783, doi: 10.1360/972013-1040

1 冰晶生长相场模型的建立

1.1 相场法

相场法以金兹堡-朗道(Ginzburg-Landau)相变理论为基础. 该理论通过微分方程反映扩散、有序化势与热力学驱动力的综合作用, 引入相场变量作为序参量来区分过冷熔体中的固相和液相, 通常称相场变量 $\phi(r,t)$ 为相场. 在相场中 $\phi(r,t)$ 的值表征了某时刻系统中各点的物理状态: $\phi(r,t)=1$ 时表示固相; $\phi(r,t)=-1$ 或 0 时表示液相; $\phi(r,t)$ 在 $-1\sim 1$ 或 $0\sim 1$ 范围的扩散层定义为界面. 在固-液界面上 $\phi(r,t)$ 的值在 $0\sim 1$ 或 $-1\sim 1$ 是连续变化, 从而避免了跟踪复杂固液界面的困难. 国内外学者将相场法通过相场与温度场、溶质场、流场及其他外部场的耦合, 模拟金属凝固过程固相和液相中的溶质偏析、枝晶分枝的形成、熟化和重熔等复杂的现象, 并定量地研究固液界面曲率效应、动力学效应、扰动、噪声、各向异性等对凝固微观组织形成的影响^[20~23]及对铁电畴形成和极化反转的相场法模拟方面开展了工作^[24,25]. 现有研究中把相场法用于食品领域, 模拟冰晶演变的过程, 尚处在初步探索阶段^[26~28].

1.2 数值模拟方程

(i) 相场控制方程. 应用稀溶液近似时的基础方程, 采用 Kim 等人^[19]提出的 KKS 相场模型, 建立冰晶生长的相场模型. 利用自由能密度形式的相场法导出相场方程. 自由能密度定义为固相和液相的自由能密度分别乘以固相和液相的分数, 再加上剩余自由能的和, 表示为

$$f(C, \phi) = h(\phi)f^S(C_S) + [1 - h(\phi)]f^L(C_L) + Wg(\phi), \quad (1)$$

式中, f 为自由能密度, f^S 为固相的自由能密度, f^L 为液相的自由能密度, 且其固相分数为 $h(\phi)$, $h(\phi) = \phi^3(6\phi^2 - 15\phi + 10)$, 液相分数为 $1 - h(\phi)$; C 为溶质的摩尔分数, ϕ 为相场变量, $\phi=1$ 时表示固相, $\phi=-1$ 或 0 时表示液相, 在固-液界面上 ϕ 的值在 $0\sim 1$ 或 $-1\sim 1$ 连续变化; $Wg(\phi)$ 为剩余自由能, 其中 W 为相场参数, $g(\phi)$ 为剩余自由能函数, $g(\phi) = \phi^2(1 - \phi)^2$. 则相场方程可表示为

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = M(\varepsilon^2 \nabla^2 \phi - f_\phi), \quad (2)$$

式中, M 为相场迁移率参数; ε 为与界面能有关的相

场参数; $f(\phi)$ 是自由能密度对相场 ϕ 的一阶导数. 当利用稀溶液近似时, 其表达式为

$$f(\phi) = \frac{RT}{V_m} h'(\phi) \ln \frac{(1 - C_S^e)(1 - C_L)}{(1 - C_L^e)(1 - C_S)} + Wg'(\phi), \quad (3)$$

式中, R 为气体常数; T 为温度; V_m 为摩尔体积; C^e 为平衡浓度; 上下标 S 和 L 分别表示固相和液相; $h'(\phi)$ 为 $h(\phi)$ 的导函数, $h'(\phi) = 30\phi^2(1 - \phi)^2$; $g'(\phi)$ 为 $g(\phi)$ 的导函数, $g'(\phi) = 2\phi(1 - \phi)(1 - 2\phi)$.

一般而言, 液态食品是多元成分, 且冰晶的物理性质是各向异性的, 本文简化为水和溶质二元结构, 通过与界面能有关的参数 ε , 引入各向异性, 其表达式为

$$\varepsilon(\theta) = \varepsilon_0[1 + \nu \cos(k\theta)], \quad (4)$$

式中, k 为各向异性的模数(各向异性方向的个数), 表示 k 次对称性; ν 为各向异性的强度系数(表示各向异性强度的大小); θ 为界面与优先生长方向的夹角, 表示为

$$\tan \theta = \phi_x / \phi_y. \quad (5)$$

对(2)式引入各向异性, 将其离散求解.

(ii) 溶质场扩散方程. 同样利用自由能密度形式的相场法导出溶质场方程^[19]. 把溶质场扩散方程改写成下面的形式:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \nabla \cdot \left(\frac{D(\phi)}{f_{CC}} \nabla f_c \right) + \frac{D(\phi)}{f_{CC}} \nabla \cdot \nabla f, \quad (6)$$

式中, $D(\phi)$ 为溶质扩散率, $D(\phi) = D_S d + D_L(1 - d)$, $d = h(\phi)$; f_c 为自由能对浓度一阶导数, $f_c = \frac{RT}{V_m} \ln \frac{C_L}{1 - C_L}$; f_{CC} 为自由能对浓度二阶导数,

$$f_{CC} = \frac{f_{C_L C_L} f_{C_S C_S}}{[1 - h(\phi)] f_{C_S C_S} + h(\phi) f_{C_L C_L}}, \quad (7)$$

$$f_{C_L C_L} = \frac{RT}{V_m C_L (1 - C_L)}, \quad (8)$$

$$f_{C_S C_S} = \frac{RT}{V_m C_S (1 - C_S)}. \quad (9)$$

界面区域的溶质浓度 C 等于固相的摩尔分数加上液相的摩尔分数, 并且在两相平衡时, 界面区域中任意点的固相和液相的化学势相等, 即 C 和 C_S , C_L 的关系是

$$C = h(\phi)C_S + [1 - h(\phi)]C_L, \quad (10)$$

$$\frac{C_L^e (1 - C_S^e)}{C_S^e (1 - C_L^e)} = \frac{C_L (1 - C_S)}{C_S (1 - C_L)}. \quad (11)$$

2 相场参数的确定及模拟计算

2.1 参数的确定

相场迁移率参数 M 的表达式为

$$M^{-1} = \frac{\varepsilon^2}{\sigma} \frac{RT}{V_m} \frac{1-k^e}{\mu^k m^e}, \quad (12)$$

式中, σ 为界面能; R 为气体常数; T 为温度; V_m 为摩尔体积; k^e 为平衡常数; μ^k 为动力系数; m^e 为液相线斜率.

$$\varepsilon = \sqrt{\frac{6\lambda}{2.2}} \sigma, \quad (13)$$

$$W = \frac{6.6\sigma}{\lambda}, \quad (14)$$

式中, λ 为界面厚度.

2.2 物性参数的取值

选用 9.6% 的糖水溶液作为研究对象. 计算中使用的物性参数如表 1 所示.

2.3 数值计算

(i) 边界条件和初始条件. 在计算区域边界, 相场和溶质场边界条件都采用绝热边界条件, 即 Zero-Neumann 边界条件. 假设初始晶核半径为 r , 则

$$\begin{cases} x^2 + y^2 \leq r^2, \phi = 1, T = T_m - \Delta T, \\ x^2 + y^2 > r^2, \phi = 0, T = T_m - \Delta T, \end{cases} \quad (15)$$

式中, x 和 y 分别是模拟中的横坐标和纵坐标; T 是有量纲温度, T_m 为模拟的初始温度, ΔT 为过冷度.

(ii) 数值计算方法. 计算的时间步长 Δt 受溶质场计算的限制, 即 $\Delta t < (\Delta x)^2 / 4D_L$, 式中 D_L 为液相中的溶质扩散系数, 取 $\Delta t = 1.5 \times 10^{-8}$ s. 晶体轴生长主轴对应于直角坐标系的 x 和 y 轴, 相场和溶质场的计算网格数为 1400×1400 , 网格数指将研究范围

表 1 蔗糖水溶液的物性参数

物性参数	蔗糖水溶液
界面能 σ (J m ⁻²)	0.0765
熔点温度 T_m (K)	273.15
凝固潜热 L_m (kJ kg ⁻¹)	334.4
液相溶质扩散系数 D_L (m ² s ⁻¹)	0.56×10^{-9}
固相溶质扩散系数 D_s (m ² s ⁻¹)	2.5×10^{-11}
平衡常数 k^e	0.075
液相线斜率 m^e	1808 ^{a)}

a) 参照文献[29]公式计算所得

分成大小均匀的格网的数目, 其尺寸为 1×10^{-7} m, 初始晶核设为半径 $r=10$ 个网格数的球. 相场方程采用显示有限差分求解. 求解溶质场方程时, 应先计算(6)式括号内的溶质通量, 然后利用其和求出单元内的浓度变化. 若对(6)式进行硬性差分求解方程, 其工作量大且易出错.

2.4 加入扰动

为了模拟实际结晶过程中界面处的波动, 计算时加入随机的扰动, 在相场方程中加入人为的随机扰动:

$$f\left(\frac{\partial \phi}{\partial t}\right) = \frac{\partial \phi}{\partial t} + 16g(\phi)\chi\varpi, \quad (16)$$

式中, χ 为 $-1 \sim 1$ 的随机数; ϖ 为与时间有关的相扰动强度因子. $16g(\phi)$ 用来强制扰动在固液界面中出现, $\phi=0.5$ 处可能出现最大扰动, 远离界面迅速减小.

本文选取模拟时间、过冷度和初始温度 3 个因素进行控制变量法模拟计算.

3 模拟结果与分析

3.1 冰晶形貌

比较图 1 和 2 可以看出, 采用相场法进行模拟得到的冰晶形貌与实验结果符合得较好.

3.2 不同模拟结晶时间的溶质浓度分布

图 3 分别为模拟结晶时间不同的溶质浓度场, 右边的衬度条表示各对应浓度的摩尔分数值. 可以看出溶质浓度场与相场表示的冰晶生长形貌轮廓(见图 1)相符合, 反映了结晶过程中的晶核在过冷液相中逐渐长大的过程. 以冰晶中心为原点, 溶质梯度在各个方向上相似, 即各个方向的溶质浓度在同一半径上相近. 图 3(a)表示, 在结晶初期 $t=5$ ms, 液相中有一个接近正六边形的固相冰晶, 侧向固液界面的溶质浓度的摩尔分数约为 0.002, 其冰晶固相的约为 0.001. 图 3(b)表示, 模拟时间 $t=10$ ms, 冰晶优先沿着其 6 个角方向生长出一次臂, 依稀可见一次臂上的二次凸起, 一次臂与一次臂之间的夹角中, 溶质浓度升高到 0.045 左右, 这是由于夹角与夹角之间容易捕获溶质, 导致其溶质浓度迅速升高. 其侧向及尖端固液界面溶质浓度约为 0.01, 不过尖端的浓度厚度薄于侧向, 这是由于在冰晶生长过程中, 其尖端的生长

图1 不同模拟结晶时间的冰晶形貌
(a) $t=5$ ms; (b) $t=10$ ms; (c) $t=15$ ms; (d) $t=20$ ms

图2 低温显微镜下树枝状冰晶的形成过程^[30]

速度优先生长于侧向,造成尖端前沿结晶部分的溶质浓度较侧向低.冰晶固相基本保持在 0.001. 到模拟结晶时间为 $t=10, 15$ ms (图 3(c)和(d))时,冰晶进一步生长,分枝更加发达,两晶臂的夹角溶质浓度高达 0.12 及以上,其枝晶尖端及侧向的固液界面周围的溶质浓度接近 0.006,固相溶质浓度基本保持不变.从图 3 可知,随着模拟结晶时间的增长,溶质浓度分布随之变化.在枝晶臂之间,由于二次分枝之间夹角捕获溶质,浓度最高.枝晶侧向部位,生长速度慢,

溶质不容易扩散到冰晶外部的液相,故浓度富集程度较高.在枝晶尖端部位,枝晶的生长速度最快,这部分结晶的溶质浓度较低.

3.3 不同过冷度的溶质浓度分布

结晶过程枝晶尖端曲率效应引起过冷.图 4 是模拟时间为 15 ms,各向异性强度系数为 0.023 条件下,过冷度 ΔT 不同时冰晶生长过程其夹带溶质浓度分布模拟结果,其中图 4(a)过冷度 $\Delta T=15$ K;图 4(b)过

图 3 不同模拟结晶时间的冰晶溶质浓度分布

(a) $t=5$ ms; (b) $t=10$ ms; (c) $t=15$ ms; (d) $t=20$ ms

冷度 $\Delta T=20$ K; 图 4(c) 过冷度 $\Delta T=25$ K. 可以看出溶质的分布随过冷度的变化而发生明显改变. 在过冷度小的情况下, 冰晶的生长速率小, 溶质扩散相应充分, 形成的溶质扩散层厚度就更大, 所以冰晶中溶质的夹带率低. 随着过冷度的增大, 类似六角形的冰晶逐渐转变为枝晶状, 冰晶的最低溶质浓度增大, 最高溶质浓度也随之增大, 两者之间的差值也在增大, 溶质梯度和溶质层厚度则相应地发生变化, 即相对于其他方向, 冰晶尖端处随过冷度的增大, 溶质梯度增加导致溶质层厚度减小^[29]; 液相中溶质的扩散速度也远小于枝晶生长速度, 溶质来不及扩散, 结晶时析出的溶质不能充分扩散到液相中, 从而富集在枝晶前沿, 另外在被二次晶臂包围的界面区域, 溶质不易向液相中扩散, 因此整个区域的溶质浓度比较高, 造成冰晶中溶质的夹带率升高. 特别是如图 4(c), 当过冷度达到一定值时, 冰晶的枝状密集, 二次分枝乃至多次分枝交叉, 造成冰晶中夹带溶质大大增加, 所以

过冷度是影响溶质夹带率的重要因素, 应控制其取值.

3.4 不同模拟初始温度的溶质浓度分布

图 5 是不同模拟初始温度下冰晶固相及尖端固液界面处的浓度分布情况的曲线图, 其纵坐标代表的是溶质浓度的摩尔分数, 横坐标代表的是网格数. 可以发现溶质浓度的分布存在波峰与波谷, 且同一模拟温度下浓度呈指数分布, 这是由凝固时的溶质再分配决定的, 凝固时固相向固液界面析出溶质, 所以固相中溶质浓度低, 固液界面上溶质浓度高^[29]. 3 种不同模拟初始温度所获得的溶质浓度分布不一样, 模拟初温高, 所获得的冰晶固液界面的最高溶质浓度比模拟初温低的最高溶质浓度小, 这是因为当模拟初温低导致过冷度大, 冰晶的生长速率快, 溶质再分配时析出的溶质相对较多, 造成析出的溶质扩散不充分, 从而夹带在冰晶中, 并在固液界面上富集更多的溶质; 且模拟初温低, 二次分枝发达, 致使富

图 4 不同过冷度的冰晶溶质浓度分布

(a) $\Delta T=15$ K; (b) $\Delta T=20$ K; (c) $\Delta T=25$ K

图 5 不同模拟初始温度的冰晶固相及其尖端固液界面处的浓度分布曲线

集的溶质被枝晶包围而不容易扩散, 造成其溶质浓度比固相中溶质浓度大得多. 所以模拟初温太低导致冰晶中的溶质夹带率高. 以模拟初始温度 258 K 为

例, 波峰波谷对应着两种明显不同的浓度取值范围, 冰晶固相为波谷, 其浓度摩尔分数在 0.0005 左右, 冰晶尖端界面浓度为最高峰, 约 0.003.

4 结论与讨论

(1) 利用相场法模拟冷冻浓缩过程冰晶夹带溶质的浓度分布. 探讨模拟结晶时间对溶质浓度分布的影响, 模拟结晶时间变化引起溶质浓度分布变化, 特别是在枝晶臂之间夹角的部位, 溶质被夹角包围, 造成冰晶中的溶质夹带增加.

(2) 过冷度对溶质浓度分布的影响. 溶质的分布随过冷度的变化而改变, 过冷度小, 冰晶的生长速率小, 溶质扩散相应充分; 过冷度大时, 液相中溶质的扩散速度小于枝晶生长速度, 从而溶质富集在枝晶

前沿, 二次晶臂所包围的溶质也不易向液相中扩散, 造成冰晶中溶质的夹带率升高.

(3) 模拟初始温度对溶质浓度分布的影响. 模拟初始温度低, 冰晶的生长速率快, 造成析出溶质的扩散不充分, 从而在固液界面上富集更多的溶质, 造成其溶质浓度比固相中溶质浓度要大得多.

(4) 本研究在模拟冷冻浓缩冰晶结晶时, 忽略潜热释放, 进行等温模拟, 并且视为水和溶质二元成分的模拟. 今后需进一步考虑多元结构, 进行多元结构模拟同时耦合温度场, 考虑潜热释放的影响, 进行非等温模拟.

参考文献

- 1 于真真, 林要辉, 方婷, 等. 西瓜汁冷冻浓缩工艺条件的优化. 食品与机械, 2001, 27: 121–123
- 2 余德洋, 刘宝林, 王伯春. 超声波对蔗糖溶液中树枝冰晶生长速度的影响. 食品与发酵业, 2011, 37: 92–94
- 3 江华, 余世袁. 低聚木糖溶液冷冻浓缩时溶质的分配行为研究. 食品科学, 2007, 28: 146–148
- 4 Hernandez E, Raventos M, Auleda J M, et al. Freeze concentration of must in a pilot plant falling film cryoconcentrator. *Innovat Food Sci Emerg Tech*, 2010, 11: 130–136
- 5 Petzold G, Niranjana K, Aguilera J M. Vacuum-assisted freeze concentration of sucrose solutions. *J Food Eng*, 2013, 115: 357–361
- 6 于涛, 马军, 崔崇威. 高浓度尿素废水冷冻浓缩极限. 化工学报, 2006, 57: 2943–2947
- 7 冯毅, 汤乐, 张雷, 等. 液态生物制品低温浓缩工艺综合节能降耗分析. 低温工程, 2008, 6: 51–54
- 8 文玲, 张旭, 杨德润. 冷冻浓缩污水处理的能耗模型建立及分析. 建筑节能, 2012, 10: 63–67
- 9 方婷, 陈锦权, 唐凌, 等. 橙汁冷冻浓缩动力学模型的研究. 农业工程学报, 2008, 24: 243–248
- 10 Fujioka R, Li P W, Dodbiba G, et al. Application of progressive freeze concentration for desalination. *Desalination*, 2013, 319: 33–37
- 11 Levent B. Mathematical analysis of freeze concentration of apple Juice. *J Food Eng*, 1993, 19: 95–107
- 12 Auleda J M, Raventós M, Hernández E. Calculation method for designing a multiplate freeze-concentrator for concentration of fruit juices. *J Food Eng*, 2011, 107: 27–35
- 13 Auleda J M, Raentos M, Sanchez J, et al. Estimation of the freezing point of concentrated fruit juices for application in freeze concentration. *J Food Eng*, 2011, 105: 289–294
- 14 Auleda J M, Raventos M, Hernandez E. Calculation method for designing a multiplate freeze-concentrator for concentration of fruit juices. *J Food Eng*, 2011, 107: 27–35
- 15 Abdollahi A, Arias I. Phase-field modeling of crack propagation in piezoelectric and ferroelectric materials with different electromechanical crack conditions. *J Mech Phys Solids*, 2012, 60: 2100–2126
- 16 Marín-Rubio P, Planas G. Global attractor and omega-limit sets structure for a phase-field model of thermal alloys. *Nonlinear Anal-Real World Appl*, 2012, 13: 1676–1691
- 17 Fan J L, Li X Z, Su Y Q, et al. Directional solidification of Ti-49 at.% Al alloy. *Appl Phys A*, 2011, 105: 239–248
- 18 Mullis A M. Quantification of mesh induced anisotropy effects in the phase-field method. *Comp Mater Sci*, 2006, 36: 345–353
- 19 Kim S G, Kim W T, Suzuki T. Phase-field model for binary alloys. *Phys Rev E*, 1999, 60: 71–86
- 20 Dustin I, Kurz W. Modeling of cooling curves and microstructures during equiaxed dendritic solidification. *Z Metallkd*, 1986, 77: 265–273
- 21 Brown S G R, Bruce N B T. Three-dimensional simulation cellular automaton model of microstructural evolution during solidification. *J Mater Sci*, 1995, 30: 1144–1150
- 22 Ggeger J, Roos Z A. Simulation of grain coarsening in two dimensions by cellular-automaton. *Acta Mater*, 2001, 49: 623–629
- 23 Ding H, Spelt P D M, Shu C. Diffuse interface model for incompressible two-phase flows with large density ratios. *J Comput Phys*, 2007, 226: 2078–2095
- 24 周广钊, 王永欣, 刘崇, 等. 外电场作用下铁电畴极化反转机制的相场法模拟. 中国科学: 技术科学, 2013, 43: 554–563

- 25 杨坤, 陈铮, 董卫平, 等. 微观相场法研究镍基合金扩散通道取向效应与相间作用机制. 中国科学: 技术科学, 2011, 41: 725–730
- 26 李方方, 刘静, 乐凯, 等. 细胞尺度冰晶生长行为的相场数值模拟. 低温物理学报, 2008, 30: 172–175
- 27 陈梅英, 陈锦权, 陈永雪. 荔枝汁冷冻浓缩冰晶生长的动力学分析和相场模拟. 中国农业大学学报, 2011, 16: 153–157
- 28 陈梅英, 陈永雪, 王文成, 等. 冷冻浓缩过程冰晶生长的相场法模拟. 福建农林大学学报(自然科学版), 2010, 39: 548–551
- 29 李建国. 凝固原理. 第四版. 北京: 高等教育出版社, 2010. 171
- 30 陶乐仁. 低温保护剂溶液结晶过程的显微实验研究. 工程热物理学报, 2001, 22: 481–484

Numerical simulation of solute concentration distribution of entrained ice crystals in freeze concentration process

CHEN MeiYing^{1,2}, ZHUO YanYun², OU ZhongHui³, FENG Li⁴, LIN HeTong² & CHEN JinQuan²

¹ Management & Tourism College, Fujian Agriculture and Forestry University, Fuzhou 350002, China;

² College of Food Sciences, Fujian Agriculture and Forestry University, Fuzhou 350002, China;

³ School of Mathematics and Computer Science, Fujian Normal University, Fuzhou 350108, China;

⁴ College of Materials Science and Engineering, Lanzhou University of Technology, Lanzhou 730050, China

In order to investigate the loss of soluble solid by ice crystal entrainment during freezing concentration, the phase-field model theory which has been widely used in the phase transition of the microstructure, was employed to stimulate the ice growth. A mathematical model based this theory was established to simulate the growth of ice crystals in the process of freezing concentration. By coupling the solute field with the phasefield, the morphology evolution of ice crystals was simulated and the solute distribution of ice crystal entrainment was analyzed. The simulation results were consistent with experiments. With the extension of simulated crystallization time, the concentration in solid liquid interface increased significantly. With the increasing supercooling degree, the branches of ice crystals were developed, which caused the inadequate solute diffusion in liquid phase and the greater solute concentration in the solid-liquid interface. With the high initial simulation temperature, the solute content inside ice crystals was low and the concentration distribution of solid liquid interface was small. On the contrary, when initial simulation temperature is low, the solute concentration increased in ice crystals and caused greater loss of soluble solids. In conclusion, proper control of these factors may reduce the entrainment of ice crystals during juice freeze concentration.

freezing concentration, phase-field, ice crystals entrained, solute concentration distribution, numerical methods

doi: 10.1360/972013-1040