

令和 5 年 6 月 12 日現在

機関番号：12608

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2020～2022

課題番号：20K22388

研究課題名（和文）界面活性剤の吸着・脱離・粘弾性を考慮した液膜形成・崩壊のAMR法による数値解析

研究課題名（英文）Numerical Simulation of Liquid Film Formation and Collapse Considering Adsorption, Desorption, and Viscoelasticity of Surfactants by AMR Method

研究代表者

松下 真太郎 (Matsushita, Shintaro)

東京工業大学・工学院・助教

研究者番号：20883036

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,200,000円

研究成果の概要（和文）：液膜対して超高解像度計算により、液膜内部の流動まで解像した計算を実施した。界面上での界面活性剤輸送方程式に大幅な改良を加えることで、濃度保存性を担保しながら高精度な計算を実現した。界面活性剤濃度と濃度の不均一性を考慮可能な粘弾性モデルをあわせて解き、粘弾性がマランゴニ効果を抑制し液膜を不安定化させ得ること、気泡の変形を抑制することで機械的崩壊を防ぎつることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

界面活性剤濃度輸送と粘弾性の両者を考慮可能な計算手法が開発できたことで、数値計算で解明可能な気液二相流現象が広がり、流体力学における現象理解だけでなく、泡を使った洗浄などのいたるところで見られる現象に対する理解が大きく向上し、より流体力学的知見に基づいた設計が可能となる。例えばトランスミッションのギアボックス内の高回転時オイル攪拌ではほとんど泡沫状態となるが、オイルは潤滑・冷却の目的で用いられるため、泡沫の持つ断熱的性質が重要となる。液膜内流動を実験のみで計測・解明するには限界があり、数値計算によって液膜安定化・崩壊を伴う流動特性を解明できれば工学的に有用な知見を得ることができる。

研究成果の概要（英文）：High-resolution simulations were performed for the liquid film to resolve even the flow inside the liquid film. Significant modifications to the surfactant transport equation on the interface were made to achieve high accuracy while ensuring concentration conservation. A viscoelastic model that can account for surfactant concentration and concentration inhomogeneity was also solved, and it was found that viscoelasticity can destabilize the liquid film by suppressing the Marangoni effect and prevent mechanical collapse by suppressing bubble deformation.

研究分野：数値流体力学，計算力学

キーワード：液膜シミュレーション AMR 複数GPU 界面活性剤 粘弾性流体 弱圧縮性流体計算

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

本研究の解析対象とする表面が全て気液界面となる液膜は、活性剤濃度差を回復させようとする方向に流動が起こるマランゴニ効果や、界面吸着分子の立体反発力など複雑な物理要因によって準安定化し、重力による薄膜化、界面の大変形に伴う機械的要因等によって崩壊する。液膜を含む流れは工学分野でも見ることができ、例えばトランスミッションのギアボックス内の高回転時オイル攪拌ではほとんど泡沫状態となるが、オイルは潤滑・冷却の目的で用いられるため、泡沫の持つ断熱的性質が重要となる。液膜内流動を実験のみで計測・解明するには限界があり、数値計算によって液膜安定化・崩壊に伴う流動特性を解明できれば工学的に有用な知見を得ることができる。しかし、既往の気液二相流計算における液膜は、流体力学的要因ではなく格子解像度不足に伴う数値的要因によって崩壊しており、Navier-Stokes 方程式に基づいた液体自由膜・泡沫を含む気液二相流の高精度数値シミュレーションは未だ達成されていない。

これまでの液膜安定化・崩壊のダイナミクス解析は、実験や、粒子間の相互作用をファンデルワールス力と表面電荷に基づく斥力で表現する DLVO 理論に代表される解析的アプローチに限られており、液膜内部の流動が液膜形成崩壊に与える影響や、逆に液膜のマイクロな界面ダイナミクスがどのように流動に影響を与えて液膜崩壊・安定化に至るのかが明らかにされていない。一方で数値計算による解析においては、界面大変形を許容しながら薄膜内の非定常流を解析するための高解像度格子を十分割り当てることは容易ではなく、ほとんど解析対象とされてこなかった。加えて、液膜では界面における性質が支配的となり界面活性剤の吸着に伴う物性変化が非常に重要となるが、界面における界面活性剤吸着による表面張力低下効果および粘弾性変化を考慮した液膜計算は行われていない。

2. 研究の目的

粘弾性流体解析手法と界面活性剤の吸着・脱離を考慮した濃度輸送方程式を複合させることで、気液界面における界面活性剤の吸着脱離に伴う表面張力低下・粘弾性特性を考慮した界面活性剤溶液中の液膜計算を行う。薄膜に高解像度格子を割り当てるために、申請者が開発してきた気液界面に高解像度格子を割り当てる AMR(Adaptive Mesh Refinement)法に対して、動的負荷分散を用いた複数 GPU 実装を行う。上記の二つによって、マクロな流動中における粘弾性流体の表面吸着による粘弾性と界面活性剤の表面張力低下効果・マランゴニ効果が液膜内流動とどのように相互作用しながら液膜を安定化・崩壊させるのかが明らかにする。

界面活性剤の吸着脱離を考慮した気液二相流計算は、解適合格子を用いた小変形のみを許容した計算例が存在するのみで液膜の安定化・崩壊過程を数値的に解析した研究は存在しない。液膜の形成・崩壊過程を数値計算上で解析するためには液膜内流動を解析するための高解像度格子、任意の界面変形・合体・分裂を許容可能なことが要求され、申請者の開発してきた計算手法に界面活性剤の吸着脱離を考慮したモデルと粘弾性流体モデルを複合させた上で、大規模計算を実行することで初めて可能となる解析対象である。本研究課題によって、これまで全くできていなかった気液界面での吸着・脱離による粘弾性変化を考慮した液膜の含む非定常流中の界面挙動の高精度数値計算が可能となり、液膜形成・崩壊のダイナミクスに表面の粘弾性的性質と界面活性剤の効果がどのように働くかを明らかにすることができる。

3. 研究の方法

界面活性剤水溶液のバルク粘弾性をモデル化し、界面への吸着・脱離を考慮した非イオン性界面活性剤輸送方程式を解くことで、界面におけるマランゴニ効果と表面粘弾性の両方を考慮した気液二相流計算を行う。界面に適合する AMR 法を用いた気液二相流計算コードに動的負荷分散を導入した複数 GPU 実装を導入し、GPU スパコン TSUBAME3.0 上で大規模計算を実行する。加えて、計算手法の改善も行う。運動量保存性を担保した気液二相流計算手法を AMR コードに実装し、界面捕獲法の一つである VOF 法で問題となる界面の過剰な拡散に対して逆拡散効果を持つ保存形 Allen-Cahn 方程式の適用と STAA 法の適用を試みる。さらに、界面に適合する AMR 法に対して、動的領域分割法を用いて効率的な複数 GPU 実装を行うことで、超大規模計算が可能なソルバーを開発する。c-FENE-P モデル(Dimitropoulos, 2006)(Sugiura, 2019)を弱圧縮性解法に導入し、界面活性剤の界面上での吸着濃度と粘弾性流体モデルの濃度パラメータをカップリングさせることで表面粘弾性を変化させ、界面活性剤溶液を用いた実験結果と比較することでモデルの妥当性を検証する。検証後、マクロスケールの非定常流中で液膜が形成される計算を行い、モデルパラメータが液膜安定化・崩壊に与える影響を調べる。

4. 研究成果

■ 超高解像度気液二相流シミュレーション技術の開発

スパコンなどの大規模並列環境に適合した数値手法およびコード開発を行うことで、超高解像度気液二相流計算が可能となる AMR 法によるシミュレーションを実現した。時空間的に変化する気液界面に対して、細い格子を動的かつ効率的に適合させるためには、格子数に応じた動的負荷分

【1 研究目的、研究方法など(つづき)】

散法が必須である。研究開始当初は Watanabe らが提案した MPF(Multi Phase Field)法に基づく動的領域分割法(Watanabe, 2019)の適用を検討していたが、モートンカーブを用いた空間充填曲線による動的分割で並列性能を計測した結果、本ソルバーにおいてはプロセス間通信量の隔たりによる性能

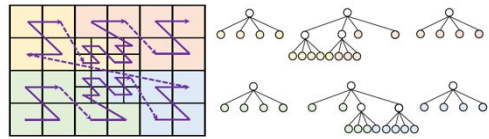


図1 複数 GPU における AMR と木構造

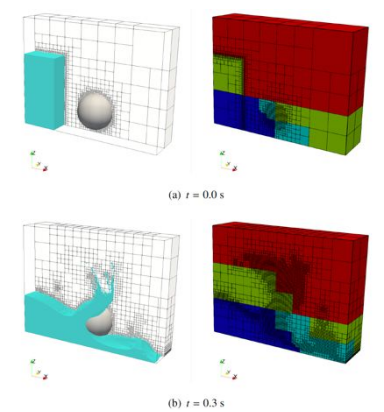


図2 ダム崩壊問題における AMR の動的領域分割(各々の GPU が各色の領域を計算する)

劣化がほとんど見られなかったため、モートンカーブによる負荷分散を採用している。GPU への適合性が高いブロック構造格子を単位領域として再帰的に分割する AMR 法を採用し、立方体以外の領域も計算できるように複数の木構造を管理する。図 1 ではそれぞれの色分けされた単位領域を各 GPU が担当することを示しているが、木構造においては実際に計算されるのは末端の葉(以降リーフと呼ぶ)であり、リーフを一次元配列にして当分割するように動的領域分割を行う。図 2 に静止した球を含むダム崩壊問題を例に、動的細分化の様子を示す。時々刻々変化する格子の構造に適合して担当する GPU が切り替わっている。1GPU に 730 万格子程度割り当てて TSUBAME 3.0 にて弱スケールングを計測した結果(図 3)によれば、16GPU では並列化効率 95% 程度を達成しているが、128GPU では 82% まで低下している。本実装では全体の木構造データのみ各プロセスで保有しているため、並列数の増加に伴って全領域木構造の処理時間が増加し、並列化効率を低下させている。本実装では木構造の更新処理が全体に占める割合が小さいためそれほど問題とはなっていないと考えられる。

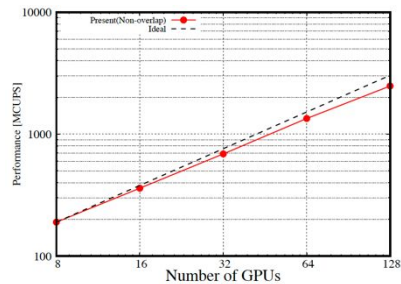


図3 AMR 法の複数 GPU 実装における弱スケールング

■ 運動量保存性を担保した気液二相流ソルバーの開発

運動量保存方程式に有限体積法を適用することで、高密度差を持つ気液界面をより高精度に計算可能となった。既往の非保存系方程式を解く場合に生じる数値的 Kelvin-Helmholtz 不安定性を抑制することができ、図 4 に示すような曲がり管から流出するオイルジェットを精度良く計算できた。レイノルズ数 $Re=1500$ で気液界面が乱れ始める実験の結果を非常によく再現することができ、実問題に対しても安定かつ高精度に計算が可能であることを示した。非保存系では差分方程式の勾配計算を速度のみで行うために気相の速度が液相に影響を与えやすくなる。液膜計算においても表面張力起因の速度が液膜に影響を与えやすくなる可能性が考えられるため、運動量保存性を担保した本手法を実装した意義は非常に大きい。

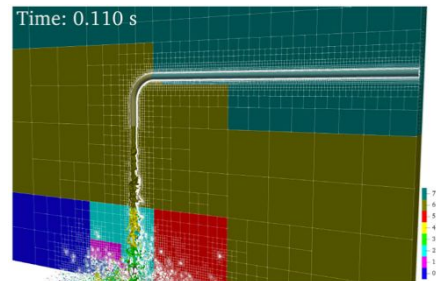


図4 運動量保存型ソルバーによるオイルジェット計算

■ 界面活性剤と粘弾性の濃度をカップリングさせた二相流計算

バルク中と界面上での界面活性剤濃度輸送は基本的に移流拡散方程式で表され、両者が吸着・脱離を示す Langmuir モデルの項で橋渡しされる。本研究ではこれまでに、有限差分法を用いてマランゴニ効果を考慮した液膜の安定化計算に成功していたが、本来保存すべき界面活性剤濃度が保存されていない問題があった。そこで、輸送方程式に有限体積法を適用することで、バルクと界面上の濃度の合計が保存する手法を開発した。保存性を保つことで、界面活性剤の濃度が非物理的に増え続けていくような現象を抑制することができ、対数を含む式で界面活性剤濃度に応じて決まる表面張力の評価が大きく改善されると考えられる。

Teigen らの既往研究で(Teigen, 2009)は半陰解法が適用されていたが、弱圧縮性手法による完全陽解法で時間刻み幅が小さくなるため、濃度輸送方程式を半陰解法で解くと計算コストが増大する。そこで本研究では空間的に有限体積法、時間的に陽解法で解き、Phase field 法による界面捕獲に基づいたシンプルかつ実装が容易な手法の開発を行った。図 5 に示す検証計算では、円形液滴をせん断流によって変形させた際の界面の時刻変化を先行研究の結果とともに示している。界面形状は先行研究と非常に良く一致して

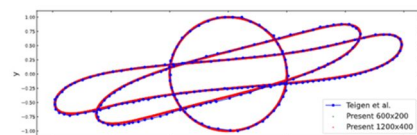


図5 界面活性剤を考慮した二相流検証計算

【1 研究目的、研究方法など(つづき)】

おり、界面活性剤輸送と流体計算中で界面活性剤濃度に応じた表面張力とその勾配に起因して生じるマランゴニ効果を適切に考慮できていることが確認できた。

粘弾性流体に対して、f-FENE-P モデルを採用する計画だったが、濃度の不均一性を直接考慮できる c-FENE-P モデルを採用した。このモデルは FENE-P モデル(Birt,1980)を、濃度を考慮できるように改良したもので、高分子鎖を非線形バネとビーズで構成されるダンベルでモデル化し、Confirmation テンソルの時間発展方程式を解く。得られたテンソルから計算できる粘弾性応力を流体計算で考慮することで、粘弾性気液二相流計算を実現する。界面活性剤分子を高分子みなし、c-FENE-P モデル中の無次元濃度に界面活性剤濃度を考慮することで界面活性剤濃度輸送と濃度不均一性を考慮できる粘弾性モデルをカップリングした液膜計算を初めて実現することができた。

図6に示すように単一気泡が液面に向かって上昇し、液膜を形成する計算系を設定した。気液には水と空気の20における物性値を用いた。界面活性剤の初期濃度を溶液中は 10^{-2} mol/m^3 とし、界面上へ吸着・脱離が十分進んだ状態とした。粘弾性を表す指標としてデボラ数 $De = \lambda U/d$ と粘弾性モデルにおける非線形バネの最大長さを無次元化したパラメータ L を変化させ、粘弾性の影響を調べた。ここで $U = \sqrt{gh} = 0.313 \text{ m/s}$, $d = 8 \text{ mm}$ である。 $L = 10$ とした場合はデボラ数を 5, 10, 25 と変化させても液膜崩壊のタイミングはほとんど変化せず、粘弾性を全く考慮しない場合より液膜は早く崩壊する。一方、 $L = 100$ の場合はデボラ数 10 のときのみ粘弾性を考慮しない場合より液膜が長持ちする結果となった。この原因を考察するために、図7に液膜における飽和濃度で無次元化した界面上の界面活性剤濃度と Confirmation テンソル C のトレース $\text{Tr}(C)$ を可視化したものを、図8にはマランゴニ効果による加速度ベクトルと粘弾性応力テンソルによる加速度ベクトルを可視化したものを示す。界面上の濃度勾配が大きい場所ではマランゴニ効果が液体を液膜内部に送り込むように作用している。同じ箇所でも $\text{Tr}(C)$ も大きくなっており、流体の変形に抗うために、粘弾性がマランゴニ効果を打ち消すように作用している。これが粘弾性によって液膜が不安定になるメカニズムである。一方粘弾性によって液膜が安定化した場合について、図9に示す気泡直径の時間変化を元に考察する。粘弾性を考慮しない場合、気泡が周期的に変形しているが、粘弾性を考慮すると周期的な変形が抑制されていることがわかる。重力による薄膜化とマランゴニ効果のバランスによる薄膜化の他にも気泡の大変形によって膜厚が急激に薄くなることで崩壊するパターンがあり、変形を抑制する粘弾性は、そのような機械的な液膜崩壊を防ぐ可能性があることが示唆された。

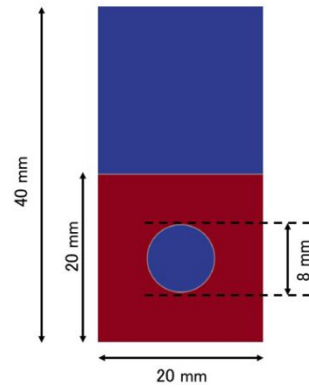


図6 液膜計算問題設定

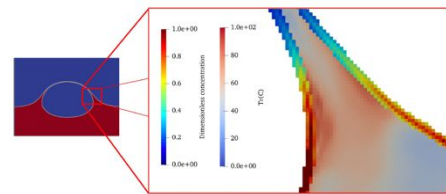


図7 界面上濃度と $\text{Tr}(C)$ 分布

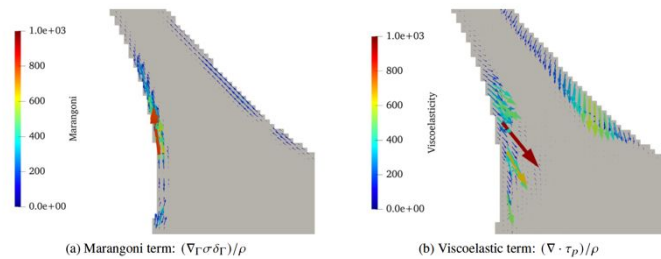


図8 マランゴニ効果と粘弾性による加速度ベクトルの可視化

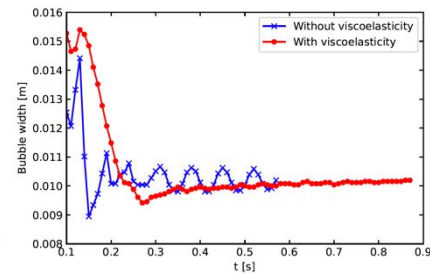


図9 粘弾性で液膜が安定化するケースの気泡直径の時刻歴

■ 平衡状態プロファイルに基づく新しい界面上濃度輸送方程式の開発

有限差分法を用いた場合、気相側への濃度の漏れ出しを防ぐために、法線方向に勾配がゼロとなるような濃度分布を作る方程式を解いていたが、人工的に分布を作ると保存性が担保されないため、有限体積法を適用する場合は別の手法を検討する必要が生じた。問題の解決のために界面上の濃度輸送方程式を抜本から見直し、関数で表される平衡状態プロファイルに自動で収束するようなモデル方程式を独自に考案した。Single vortex問題などの移流ベンチマーク問題、界面活性剤を考慮した気泡上昇問題等の二相流ベンチマーク問題を解くことで、提案手法が界面上の濃度輸送方程式を十分な精度で解けることを確認した。提案モデルでは気相側への濃度の漏れ出しを抑制できるだけでなく、界面活性剤の拡散係数が非常に小さい場合でも精度よく計算できる優位性を持つ。界面活性剤輸送の検証計算で用いられる拡散係数は 10^{-3} オーダーなどがよく用いられるが、実際の拡散係数は 10^{-10} オーダーとなることもしばしばである。拡散係数が非常に小さい場合、輸送方程式中の移流項で生じる数値粘性が実際の粘性より卓越してし

【1 研究目的、研究方法など(つづき)】

まい, 既存モデルでは計算不可能である. 提案モデルでは, 移流と拡散を分離して解き, 移流の数値粘性で生じる関数からの乖離を修復しながら, 拡散計算を逐次的に実行可能であり, これまで計算が非常に困難であった現実の拡散係数における界面上の界面活性剤濃度輸送計算が可能となった. 本研究成果は Journal of Computational Physics に投稿予定である.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

| | |
|---|-------------------------------|
| 1. 著者名 Matsushita Shintaro, Aoki Takayuki | 4. 巻 445 |
| 2. 論文標題 Gas-liquid two-phase flows simulation based on weakly compressible scheme with interface-adapted AMR method | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Journal of Computational Physics | 6. 最初と最後の頁 110605 ~ 110605 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.jcp.2021.110605 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |
| 1. 著者名 Wang Weicen, Zhang Chunwei, Patmonoaji Anindityo, Hu Yingxue, Matsushita Shintaro, Suekane Tetsuya, Nagatsu Yuichiro | 4. 巻 33 |
| 2. 論文標題 Effect of gas generation by chemical reaction on viscous fingering in a Hele-Shaw cell | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Physics of Fluids | 6. 最初と最後の頁 093104 ~ 093104 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0062588 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |
| 1. 著者名 Mahardika Mohammad Azis, She Yun, Shori Fujiura, Patmonoaji Anindityo, Matsushita Shintaro, Suekane Tetsuya, Nagatsu Yuichiro | 4. 巻 35 |
| 2. 論文標題 Enhanced Heavy Oil Recovery by Calcium Hydroxide Flooding with the Production of Viscoelastic Materials: Study with 3-D X-Ray Tomography and 2-D Glass Micromodels | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Energy & Fuels | 6. 最初と最後の頁 11210 ~ 11222 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.energyfuels.1c00963 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |
| 1. 著者名 Hu Yingxue, Zhang Chunwei, Patmonoaji Anindityo, She Yun, Matsushita Shintaro, Suekane Tetsuya | 4. 巻 787 |
| 2. 論文標題 Pore-scale investigation of wettability impact on residual nonaqueous phase liquid dissolution in natural porous media | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Science of The Total Environment | 6. 最初と最後の頁 147406 ~ 147406 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.scitotenv.2021.147406 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

| | |
|--|-------------------------|
| 1. 著者名 青木 尊之、松下 真太郎 | 4. 巻 65 |
| 2. 論文標題 気液二相流のマルチスケール・マルチフィジックスシミュレーション | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 トライボロジスト | 6. 最初と最後の頁 678 ~ 683 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.18914/tribologist.65.11_678 | 査読の有無 無 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

〔学会発表〕 計9件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 4件)

| |
|---|
| 1. 発表者名 Shintaro Matsushita, Takayuki Aoki |
| 2. 発表標題 A SIMULATION OF THIN LIQUID FILM FORMING WITH SURFACTANTS BY FULLY EXPLICIT GAS-LIQUID TWO-PHASE FLOW SOLVER WITH INTERFACE-ADAPTED AMR METHOD |
| 3. 学会等名 25th International Congress of Theoretical and Applied Mechanics (国際学会) |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 松下真太郎, 青木尊之 |
| 2. 発表標題 界面に適合するAMR法を用いた弱圧縮性解法の複数GPUによるオイルジェット計算 |
| 3. 学会等名 第26回計算工学講演会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Shintaro Matsushita, Takayuki Aoki |
| 2. 発表標題 High Resolution Two-phase Flow Simulations based on Weakly Compressible scheme with Interface-adapted AMR Method |
| 3. 学会等名 SIAM Conference on Parallel Processing for Scientific Computing (PP22), (国際学会) |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Shintaro Matsushita |
| 2. 発表標題 A simulation of liquid film by using fully explicit two-phase flow solver with interface-adapted AMR method |
| 3. 学会等名 COMPSAFE2020 (国際学会) |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 松下真太郎 |
| 2. 発表標題 界面に適合するAMR法と弱圧縮性解法による濃度差マランゴニ効果を考慮した液膜形成シミュレーション |
| 3. 学会等名 第25回計算工学講演会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 松下真太郎 |
| 2. 発表標題 界面に適合するAMR法を用いた気液二相流計算手法による界面活性剤の濃度差マランゴニ効果を考慮した液膜形成シミュレーション |
| 3. 学会等名 混相流シンポジウム2020 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 松下真太郎 |
| 2. 発表標題 曲がり管から放出されるオイルジェットの気液二相流シミュレーション |
| 3. 学会等名 日本流体力学会年会2020 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Shintaro Matsushita |
| 2. 発表標題 A NUMERICAL SIMULATION OF TWO-PHASE OIL-JET INJECTED FROM A CIRCULAR BENT NOZZLE WITH INTERFACE-ADAPTED AMR METHOD |
| 3. 学会等名 14th World Congress in Computational Mechanics (国際学会) |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 松下真太郎 |
| 2. 発表標題 AMR法を導入した弱圧縮性気液二相流計算の動的領域分割による複数GPU化 |
| 3. 学会等名 第34回数值流体力学シンポジウム |
| 4. 発表年 2020年 |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

| 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
|---------------------------|-----------------------|----|
| | | |

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |
|---------|---------|
| | |