

# 移動や変形を伴う透過膜に対する 流体と膜の連成解析法

宮内 優・竹内 伸太郎・梶島 岳夫

## 1. はじめに

熱や物質の輸送を伴う流れの数値解析技術は、1980年代以降の計算法や計算機の進展、2000年代以降の汎用ソフトウェアの充実と普及により、成熟段階に達しているとの見方もできる<sup>1-3)</sup>。一方、多相の乱流現象、反応や相変化に関する物理モデルは今なお未完成であり、適切な形で数値計算ソフトウェアに反映されているとは言い難い。これらに共通する特徴として、小スケールの現象が大スケールの振る舞いに決定的な影響因子となる場合が多いことがある。そのため、スケール幅の大きな熱および物質の移動現象を捉えるには、数値計算アルゴリズムに対する親和性が高い形で、小スケールの現象のモデル化をおこなう必要がある。以上の観点から、本稿では、小スケール現象の代表として、透過膜やそれ近傍の濃度境界層での物質輸送あるいは狭隘部での流れの数値計算上の取り扱いと、それらの外側領域における大スケールの流動現象に対する解析手法への組み込みに関して、これまでにおこなわれた研究や著者らの最近の取り組みを紹介し、展望を試みたい。

膜の透過性を利用する膜分離技術は化学工学分野における主要な技術の1つであり、圧力差や濃度差、電位差などを駆動力として、流体中のある特定の物質を除去もしくは抽出する<sup>4,5)</sup>。膜分離技術による二酸化炭素の分離・回収や海水からの高純度の水の生成は、昨今注目されている持続可能な社会の実現のために盛んに研究されている。他方、我々人間の体内においても膜による物質のろ過や輸送は生命維持活動に対して重要な役割を果たしている。腎臓

の糸球体基底膜はナノオーダーの細孔を持っており、血液をろ過することで血漿を精製する。赤血球はその膜内部に酸素と二酸化炭素と結合しやすいヘモグロビン含有し、血流に乗って体中に張り巡らされた血管を循環することで全身の細胞に酸素を届ける。将来的な医療応用として、脂質膜ベシクルによる薬剤輸送技術の確立が期待されている。膜分離プロセスの性能予測、生体膜に関する生命現象の解明や医療機器の開発のため、物質の膜透過現象に対して様々な数学モデルやコンピュータによる数値解析技術が考案されている。

## 2. 透過膜に対する数値解析法

膜透過における物質輸送のメカニズムは、膜の材料や分離対象物質の大きさ、透過流体の種類(気体か液体か)によって大きく異なる。そのため、膜分離における物質透過現象に対する研究は非常に多種多様で、それら研究全体を概説することは著者らの力量を超えているために、本稿では、主として血管内を流れる赤血球のように、移動や変形を伴う膜による物質輸送現象の数値シミュレーション技術を解説する。

膜の細孔のサイズはナノメートルからミリメートルのオーダーであるのに対して、その外部の流れのスケールはそれよりも大きいことが多い。解析対象とする流れのスケールに対して膜の厚みが非常に小さい場合、膜を厚みゼロの境界面とし、その境界において物質の膜透過現象を表す方程式(以後、膜透過方程式と呼ぶ)を満たすように、流体運



Fluid-Membrane Coupling Analysis Method for Permeable Membranes With Movement and Deformation  
Suguru MIYAUCHI  
2015年 大阪大学大学院工学研究科機械工学専攻博士後期課程 博士(工学)  
現在 宮崎大学工学教育研究部 准教授  
連絡先: 〒889-2192 宮崎県宮崎市学園木花台西1-1  
E-mail [suguru.miyauchi@cc.miyazaki-u.ac.jp](mailto:suguru.miyauchi@cc.miyazaki-u.ac.jp)

2021年11月30日受理

Shintaro TAKEUCHI  
2001年 大阪大学大学院工学研究科機械物理工学専攻 博士(工学)  
現在 大阪大学大学院工学研究科 准教授  
連絡先: 〒565-0871 大阪府吹田市山田丘2-1  
E-mail [shintaro.takeuchi@mech.eng.osaka-u.ac.jp](mailto:shintaro.takeuchi@mech.eng.osaka-u.ac.jp)

Takeo KAJISHIMA  
1986年 大阪大学大学院工学研究科機械工学専攻 工学博士  
現在 大阪大学大学院工学研究科 教授  
連絡先: 〒565-0871 大阪府吹田市山田丘2-1  
E-mail [kajisima@mech.eng.osaka-u.ac.jp](mailto:kajisima@mech.eng.osaka-u.ac.jp)

動に関する方程式、膜の変形に関する方程式、流体中の物質濃度の輸送方程式を解くのが一般的な数値シミュレーション方法である。膜透過方程式としては、(I) 物質の透過機構において何らかの物理法則を仮定するモデルと、(II) 不可逆過程の熱力学に基づくモデルが代表的である。(I)のモデルでは、例えば、溶媒の移動はDarcy則に従い、溶質の輸送は物質拡散のみによって生じると仮定し、それぞれの流束と駆動力の関係式を膜厚方向に積分することで、流体の透過流束と圧力差の関係式、溶質の物質流束と濃度差の線形関係式が導かれる。一方で、(II)のモデルは、膜内部における物質の透過機構を一切考慮せず、系が平衡状態からそれほど大きく離れていない状態の条件下で成り立つ、透過流束とその駆動力の線形関係を仮定する現象論モデルである。流体のせん断応力とひずみ速度に関するNewton則や熱・物質移動に関するFourierの法則、Fickの法則などの良く知られた関係式も現象論モデルであり、その適用範囲は比較的広いことが経験的に確かめられている。両モデルに共通な点は、透過流束が膜の表裏における圧力や濃度などのジャンプ量と関連づけられることである。

上述のような現象を解析する上での要点は、時々刻々と位置や形状を変化させる膜において、如何に膜透過方程式を解析に組み込むかである。血液の流れのように赤血球膜が多く含まれる流動現象に対しては、Peskinによって提案されたimmersed boundary method<sup>6)</sup>に代表される、流体解析と膜の固体解析に別々の格子を使用する手法が有効である。すなわち、複数の膜の運動に合わせて流体の格子を動かし、格子のひずみ状態に応じてリメッシング(格子の再生成)をおこなうことは計算負荷の観点より現実的ではなく、流体に対しては空間に固定した直交格子を用いて速度や圧力を求め、膜に対しては膜の変形や移動に追従する格子を用いて変位、内力を求める。Immersed boundary methodでは、Navier-Stokes方程式の外力項に膜からの相互作用力を導入することによって流体と膜の力学的平衡条件(流体と膜の作用反作用の法則)を近似的に満たすようにする。膜からの相互作用力は膜の格子点からその周囲の流体の格子点へ平滑化デルタ関数と呼ばれる、流体セル数個を跨ぐ比較的滑らかな関数を用いて分散させる。その結果、膜表裏の圧力ジャンプも流体セル数個分の滑らかな分布として再現される。Immersed boundary methodを透過膜の流体膜連成解析法に発展させた代表的な研究として、Kimらの研究<sup>7)</sup>とWangらの研究<sup>8)</sup>があり、それらについて紹介する。

Kimらの研究内容<sup>7)</sup>は、流体力を受けるパラシュート挙動のシミュレーションであり、キャノピーの細孔がパラシュートの安定性に与える影響を調べたものである。キャノピーを多孔質媒体と仮定し、流体の透過流束は膜(キャノピー)表裏の圧力差に比例するとしている。膜の内力と流

体力の釣り合い式より、膜表裏の圧力差は膜に作用する力の膜表面に対する法線方向成分と等価となるために、膜表裏の圧力差を周囲の流体セルからの補間によって求める必要はなく、膜の変形形状から直接算出できる。膜での透過流束(透過速度)は、膜の格子点を移動させる際に、透過速度に対する周囲流体の相対流速で移流させることによって表現する。つまり、膜が不透過であれば滑りなし条件により周囲流体の速度と膜の移動速度は同じになるわけであるが、透過膜で流体と相対速度を持つ場合には相対速度による膜の運動によって、膜での流体の透過を表現していることになる。

Wangらの研究<sup>8)</sup>は、赤血球による酸素輸送を対象としたもので、酸素のみでなく溶媒の透過も考慮したシミュレーションである。溶媒の透過の取り扱いに関しては前述のKimらの方法と同様である。膜を含む解析領域全体の酸素濃度場は、膜における拡散流束を考慮した酸素濃度の移流拡散方程式と、拡散流束の輸送方程式を連成して解くことによって得られる。膜を透過する拡散流束と濃度ジャンプの関係式は、膜の細孔に沿った1次元の移流拡散方程式より導出され、immersed boundary methodと同様に平滑化デルタ関数を用いて、移流拡散方程式のソース項に組み込まれる。拡散流束の輸送方程式は濃度の移流拡散方程式に対して空間微分をおこない、Fickの法則を適用することによって導出される。Wangらの提案手法に対する検証では、格子数を多くすることによって、界面における濃度ジャンプが精度よく再現できることが示されている。

Immersed boundary methodでは膜からの相互作用力をNavier-Stokes方程式の外力項に体積力として導入することで、流体解析における計算スキームを一般的なものから大きく変更することなしに利用できるプログラミングの容易さが長所として挙げられる一方で、平滑化デルタ関数を用いることによって厚みゼロとした膜を流体セル数個に跨ぐ界面として再現することになるので膜近傍に形成される境界層の解像に難点がある。さらに、血漿中の酸素のように希薄溶液の場合には、シュミット数は数百から千程度のオーダーとなり、速度境界層に比べて濃度境界層は非常に薄くなる。

界面がばやけることを避ける計算方法として、著者らが提案した方法を2つ紹介する。1つ目の方法は有限要素法によって構築された計算方法で、界面を含む流体セル内部において圧力、速度勾配、濃度の不連続をシャープに再現するために、有限要素法の離散式にこれらのジャンプ量が組み込まれている<sup>9,10)</sup>。有限要素法では、解析領域を必要な解像度に応じて小さな要素に分割し、各要素内において変数の基底関数を設定する。著者らの手法では界面を含む要素には膜形状に沿った不連続を表現できるようにジャン



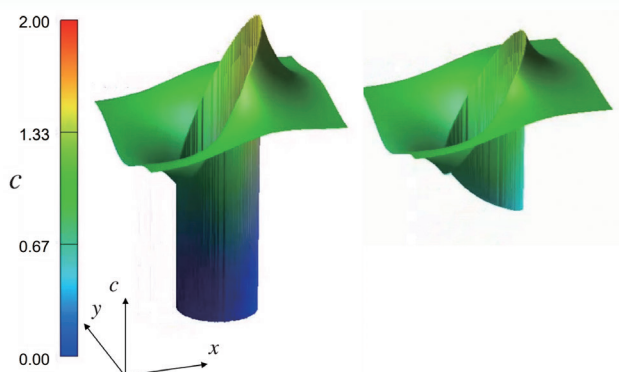


図1 不透壁(左)と透過壁(右)を有する円筒が運動する際の、円筒周囲および内部の濃度分布。左図では不透壁を有する円筒の内部で濃度がほぼゼロであるのに対して、右図では透過壁表面の濃度分布が確認できる

ブ量を含んだ基底関数に変更する。さらに、流体運動に関する方程式、膜の変形に関する方程式、膜透過方程式の3つをまとめて同時に解く強連成手法となっており、不連続量はこれらの方程式に対して未知変数として陰的に扱われている。そのために、時空間的な補間を必要とせず、透過流束の算出精度は高い。図1は、円筒膜がx方向へ移動しているときの濃度場を示している。初期時刻において膜内部は濃度ゼロとしており、不透膜の場合には膜内部への物質の移動はなく、透過膜の場合には内部への移動が確認できる。両方の計算において界面はシャープに再現されている。溶質に対する透過と不透の両方の膜の性質を同一計算アルゴリズムで解析できるのは従来手法にはない特長である。溶媒の透過に関して、図2は従来手法であるDLM/FD (immersed boundary methodと類似の手法)と提案手法の比較のためにおこなった計算で、流路に対して垂直に設置された弾性膜近傍の圧力分布を示している。従来手法では、膜近傍の圧力は滑らかな分布となっている一方で、提案手法では図1の濃度場と同様にシャープに再現されている。また、提案手法によって算出された透過流量の誤差は、従来手法に比べて大きく減少したことが確認された(図は省略)。詳細は文献<sup>10)</sup>を参照されたい。

著者らが提案するもう1つの方法として、direct forcing immersed boundary method<sup>11)</sup>に基づく透過膜の解析手法<sup>12-14)</sup>を紹介する。Direct forcing immersed boundary methodは有限差分法による流体解析方法で、複雑形状の剛体周りの流

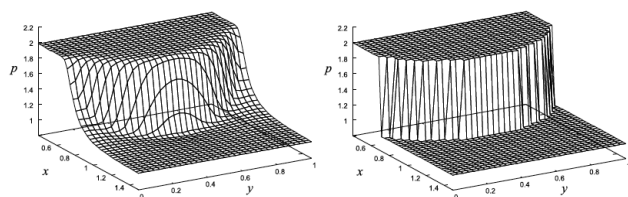


図2 従来手法(左)と提案手法(右)の比較<sup>10)</sup>。流体から力を受けて手前(+x方向)に変形した膜近傍の圧力場を示している

れに対する方法として提案された<sup>11)</sup>。著者らのdirect forcing immersed boundary methodでは、物体境界に最も近い格子点の近傍において検査体積を工夫することで(補間を用いず)質量保存と運動量保存を満たす速度と圧力を求める<sup>15, 16)</sup>。Peskinのimmersed boundary method<sup>6)</sup>とは異なり、平滑化デルタ関数を用いないために、界面をシャープに再現するので比較的高いレイノルズ数の流れ場にも適用が可能であることが報告されている。著者らは、透過膜に対するdirect forcing immersed boundary methodとして、界面を含む流体セルにおいて、圧力Poisson方程式やNavier-Stokes方程式、濃度の移流拡散方程式に膜透過方程式を組み込んだ離散性を提案した。膜における圧力と濃度の不連続量は膜近傍の格子点からの線形外挿によって与えられる。具体的な離散化法と、溶媒の透過および溶媒と溶質の両方の透過を考慮した単一膜への適用例は論文<sup>14, 17)</sup>に記述されている。

### 3. おわりに

透過膜に関連して、今後重要になると予想されるシミュレーション技術に関して、著者らの最近の研究を交えて述べる。1972年にimmersed boundary methodが提案されて以降、流体と膜の連成解析法は多く研究され、その結果、様々な実現象の解析に応用されてきた。透過膜に対する計算例はあまり多くないが、前節で述べたようにその計算方法の開発は進展しており、今後、より高精度且つ高効率な手法へ発展していくと思われる。

他方、赤血球のように血液中にヘマトクリット値(血液に対する赤血球の体積分率)がおおよそ45%となる高濃度な混相流に対して直交固定格子で移動境界を扱うには、狭隘部での解像度の低下だけでなく、接触がある場合も考慮すれば、局所的な細分化では精度を維持できない。この問題は今後予想されるスーパーコンピュータの演算速度の向上によって解決されるものではなく、新たなシミュレーション技術の開発を必要とする。特に透過膜に関する問題点としては、解像度が不足した解析では固体間の潤滑による圧力の上昇が正確に捉えられず、それにより透過流束も過小に算出されてしまう。著者らは、固体間の狭隘な流路の流れはReynoldsの潤滑方程式により記述されることに着目し、解析領域全体はNavier-Stokes方程式によって流れ場を解き、固体の接近等により格子点が十分でなくなった狭隘な流路での流れはReynoldsの潤滑方程式の解を埋め込む方法を提案している<sup>18)</sup>。加えて、これまでの研究によってReynoldsの潤滑方程式は、固体間のギャップに対して非常に適用範囲が狭いことが分かっており、Reynoldsの潤滑方程式の導出の際に設けられた仮定を緩和した、拡張Reynolds潤滑モデル<sup>19)</sup>を提案している。その独創的な点は、固体表面に対

して法線方向の圧力変動を考慮していることであり、この潤滑モデルで算出される圧力には従来のReynoldsの潤滑方程式に、Couette-Poiseuille流れの空間微分で表される項が加算される。

濃度に関しては、上述した通り、速度境界層よりも薄い濃度境界層を解像することが透過流束を算出する上で重要となる。膜分離技術の分野では、濃度分極と呼ばれる膜に対して供給側の濃度境界層内の急激な上昇が、その透過流束に大きな影響を与えることが知られている<sup>20)</sup>。粗いメッシュによる濃度境界層の捕獲に関しては、本稿の主旨である透過膜に対する数値解析とは対象が異なるが、例えば、足立らは高シュミット数における気液界面近傍の濃度境界層の濃度分布の解析に対して、境界層理論の解析解に基づいて濃度境界層内の気体成分の溶解量と拡散量を算出し、流体セルよりも薄い濃度境界層の解析に成功している<sup>21)</sup>。今後は膜における透過流束の高精度な算出方法のみでなく、十分にない格子点数によって固体間の潤滑や膜近傍に形成される境界層を再現する物理モデルとその計算アルゴリズムの開発が期待される。

最後に生体膜のモデリングに関して将来展望を述べる。生体膜の代謝エネルギーによって駆動される能動輸送は人工膜にはない特異な機能であり、その解明は医学的・工学的応用に関して重要である。この輸送では拡散と反応が同時に生じており、単純な場合を除いて、既存の膜透過方程式では表現できない。さらに、生体膜の変形や周囲環境による膜透過性の変化については未だ不明な点が多く残っている。実際に存在する膜の透過現象をモデリングするためには実験による計測および解析が必要不可欠であるが、得られる情報は数値シミュレーションに比べて限定的である。今後は、分子動力学解析や逆解析手法などの数値シミュレーションに、実験による計測データを上手く融合させる研究技法の開発が益々重要になってくる。

レーションに、実験による計測データを上手く融合させる研究技法の開発が益々重要になってくる。

流れの数値シミュレーションの利用が工学的にも工業的にも日常的になった現時点でも、多相・多層の連成を含む大規模な熱流動システムの解析はチャレンジングな課題である。その観点から、マクロな挙動を支配し得るミクロな要素の一例として、透過膜や狭隘部の流れの扱いについて、マクロ流動の解析への組み込みを考慮した物理モデル・数値モデルの構築に向けての事例として紹介した。

#### 参考文献

- 1) Wei, Y. : *IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng.*, **274**, 012012 (2017), <https://doi.org/10.1088/1757-899X/274/1/012012>
- 2) Versteeg, H. K. et al. : 数値流体力学 第2版, 森北出版(2011)
- 3) 梶島岳夫: 乱流の数値シミュレーション 改訂版, 養賢堂(2017)
- 4) 木村尚史ら: 分離の技術－膜分離を中心として, 大日本図書(1997)
- 5) 大矢晴彦: 逆浸透法・限外濾過法(1)理論, 幸書房(1976)
- 6) Peskin, C. S. : *Acta Numerica*, **11**, 479-517 (2002), <https://doi.org/10.1017/S0962492902000077>
- 7) Kim, Y. et al. : *SIAM J. Sci. Comput.*, **28** (6), 2294-2312 (2006), <https://doi.org/10.1137/S1064827501389060>
- 8) Wang, X. et al. : *J. Comput. Phys.*, **413**, 109444 (2020), <https://doi.org/10.1016/j.jcp.2020.109444>
- 9) Miyauchi, S. et al. : *J. Comput. Phys.*, **284**, 490-504(2015), <https://doi.org/10.1016/j.jcp.2014.12.048>
- 10) Miyauchi, S. et al. : *J. Comput. Phys.*, **345**, 33-57 (2017), <https://doi.org/10.1016/j.jcp.2017.05.006>
- 11) Fadlun, E. A. et al. : *J. Comput. Phys.*, **161**, 35-60 (2000), <https://doi.org/10.1006/jcph.2000.6484>
- 12) Tazaki, A. et al. : *J. Mech.*, **36**, 637-648 (2020), <https://doi.org/10.1017/jmech.2020.38>
- 13) Takeuchi, S. et al. : *Phys. Rev. Fluids*, **6**, 114101 (2021), <https://doi.org/10.1103/PhysRevFluids.6.114101>
- 14) Yamada, S. et al. : *Microfluid. Nanofluidics*, **25**, 1-17 (2021), <https://doi.org/10.1007/s10404-021-02480-5>
- 15) Sato, N. et al. : *J. Comput. Phys.*, **321**, 76-104 (2016), <https://doi.org/10.1016/j.jcp.2016.05.034>
- 16) Takeuchi, S. et al. : *J. Comput. Phys.*, **371**, 1018-1042 (2018), <https://doi.org/10.1016/j.jcp.2018.05.033>
- 17) Takeuchi, S. et al. : *J. Membr. Sci.*, **582**, 91-102 (2019), <https://doi.org/10.1016/j.memsci.2019.03.018>
- 18) Gu, J. et al. : *Powder Technol.*, **329** (15), 445-454 (2018), <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2018.01.040>
- 19) Takeuchi, S. et al. : *Phys. Rev. Fluids*, **4** (11), 114101 (2019), <https://doi.org/10.1103/PhysRevFluids.4.114101>
- 20) Miyauchi, S. et al. : *Transp. Porous Media* (Not Assigned) (2021), <https://doi.org/10.1007/s11242-021-01716-w>
- 21) 足立理人ら: 日本機械学会論文集, **82**, 16-00079 (2016), <https://doi.org/10.1299/transjsme.16-00079>