

Entwicklung einer Multiskalenmethode für die Simulation von Schmierprozessen

Zur Erlangung des akademischen Grades eines
Doktors der Ingenieurwissenschaften (Dr.-Ing.)

von der KIT-Fakultät für Maschinenbau des
Karlsruher Instituts für Technologie (KIT)

angenommene

DISSERTATION

von

M.Sc. Hannes Holey

Tag der mündlichen Prüfung: 21. Februar 2023

Hauptreferent: Prof. Dr. Peter Gumbsch

Korreferent: Prof. Dr. Lars Pastewka



Dieses Werk ist lizenziert unter einer Creative Commons Namensnennung -
Weitergabe unter gleichen Bedingungen 4.0 International Lizenz (CC BY-SA 4.0):
<https://creativecommons.org/licenses/by-sa/4.0/deed.de>

Vorwort

Die vorliegende Dissertation entstand während meiner Zeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Angewandte Materialien des Karlsruher Instituts für Technologie in enger Zusammenarbeit mit dem Lehrstuhl für Simulation am Institut für Mikrosystemtechnik der Universität Freiburg.

Mein besonderer Dank gilt Prof. Dr. Peter Gumbsch und Prof. Dr. Lars Pastewka für das entgegengebrachte Vertrauen und die exzellente wissenschaftliche Betreuung der Arbeit. Aus den gemeinsamen Besprechungen ging ich meist mit vielen neuen Fragen, aber stets motiviert heraus, wobei mir großer Freiraum bei der Umsetzung eigener Ideen eingeräumt wurde.

Die Arbeit wurde finanziert durch das Graduiertenkolleg 2450 – *Tailored Scale-Bridging Approaches to Computational Nanoscience*. Allen an der Organisation des Kollegs beteiligten Personen danke ich für ihren Beitrag zum Gelingen des Projekts, insbesondere Prof. Dr. Marcus Elstner, Sabine Holthoff und den Mitgliedern des Doktorandenkomitees.

Außerdem möchte ich mich bei allen Kolleginnen und Kollegen in Karlsruhe und Freiburg für die angenehme Zusammenarbeit bedanken, insbesondere bei meinem Projektpartner Mohamed Tarek Elewa und den Simulationskollegen Dominik Horny, Balduin Katzer, Daren Liu, Dr. Taymour El-Achkar, Dr. Patrick Ziemke und Dr. Kolja Zoller für zahlreiche fachliche und nicht-fachliche Diskussionen. Ebenso bedanke ich mich bei Dr. Andrea Codrignani für die Einführung in die Welt der Schmierungsmodellierung zu Beginn meiner Promotionszeit und bei Johannes Hörmann für die Hilfe beim Aufsetzen des Testservers zur Interaktion mit unserer Forschungsdateninfrastruktur. Für Einblicke in die Modellierung biologischer Schmierungssysteme bedanke ich mich bei Saber Boushehri, Dr. Camilo Aponte-Santamaría und Prof. Dr. Frauke Gräter.

Bei Dr. Daniel Weygand, Dr. Johannes Schneider und Dr. Andreas Greiner möchte ich mich für ihre Hilfsbereitschaft in akademischen Angelegenheiten bedanken. Für Hilfe

in administrativen Fragen danke ich Andrea Doer, Stefanie Beysel und Anna Liolios-Zimmermann, sowie Yiyue Li und Sascha Frank für den IT-Support.

Abschließend möchte ich mich bei meinen Freunden und meiner Familie für ihr reges Interesse an meiner Arbeit sowie für jegliche willkommene Ablenkung bedanken, die maßgeblich zum Gelingen beigetragen haben.

Karlsruhe, März 2023

Hannes Holey

Abstract

Friction and lubrication are multiscale problems, i. e. processes on different time and length scales influence each other and determine the macroscopic response of a system. For lubrication processes, this is especially true in the boundary lubrication regime, where the thickness of the lubrication gap is on the order of molecular interaction lengths. Macroscopic lubrication modeling is based almost exclusively on the application of the Reynolds equation, while at the atomic scale molecular dynamics simulations become increasingly important. Multiscale methods for lubrication phenomena that go beyond sequential approaches have so far remained elusive. In this work, a multiscale approach is presented, which splits the solution of the macroscopic balance equations into a micro and macro problem. The macro problem arises from averaging the balance equations over the gap height, similar to the conventional Reynolds equation, and is solved using explicit finite volume discretization, while the micro problem contains the constitutive behavior of the lubricant film. The numerical implementation of the macro problem is validated using fixed-form constitutive laws, and concrete examples are used to show that these can be replaced by molecular dynamics simulations in the future. Analytical solutions of the linearized governing equations of the macro problem can also be derived, which are compared to autocorrelation functions of fluctuating state variables from molecular dynamics simulations. This results in a method for simultaneous determination of viscosity and slip length from equilibrium simulations, as well as a description of supercritical sound transport in confined fluids. For an efficient implementation of the presented multiscale approach, surrogate modeling is needed, which interpolates between individual molecular dynamics simulations. Simple examples are used to evaluate the application potential of Gaussian process regression as a possible surrogate model. The present work thus provides the theoretical basis for concurrent multiscale simulations of lubrication processes, which may contribute to a better understanding of dissipation mechanisms in the boundary lubrication regime.

Kurzfassung

Reibung und Schmierung sind Multiskalenprobleme, d. h. Prozesse auf unterschiedlichen Zeit- und Längenskalen beeinflussen einander und bestimmen die makroskopische Antwort eines Systems. Für Schmierungsprozesse trifft dies insbesondere im Grenzreibungsbereich zu, in dem die Dicke des Schmierfilms in der Größenordnung molekularer Interaktionslängen liegt. Makroskopische Schmierungsmodellierung basiert fast ausschließlich auf der Anwendung der Reynoldsgleichung, während auf atomarer Skala vermehrt Molekulardynamik-Simulationen in den Vordergrund treten. Multiskalenmethoden für Schmierungsphänomene, die über sequentielle Ansätze hinausgehen, sind bisher noch nicht etabliert. Im Rahmen dieser Arbeit wird ein Multiskalenansatz vorgestellt, welcher die Lösung der makroskopischen Bilanzgleichungen in ein Mikro- und Makroproblem aufteilt. Das Makroproblem entsteht durch Mittelung der Bilanzgleichungen über der Spalthöhe, ähnlich zur konventionellen Reynoldsgleichung, und wird mittels expliziter Finite-Volumen-Diskretisierung gelöst, während das Mikroproblem das konstitutive Verhalten des Schmierfilms enthält. Die numerische Implementierung des Makroproblems wird mithilfe gewöhnlicher Konstitutivgesetze validiert und anhand konkreter Beispiele wird gezeigt, dass diese in Zukunft durch Molekulardynamik-Simulationen ersetzt werden können. Außerdem lassen sich analytische Lösungen der linearisierten Grundgleichungen des Makroproblems herleiten, die mit Autokorrelationsfunktionen fluktuierender Zustandsvariablen aus Molekulardynamik-Simulationen verglichen werden. Daraus ergibt sich eine Methode zur simultanen Bestimmung von Viskosität und Schlupflänge aus Gleichgewichtssimulationen, sowie die Beschreibung des überkritischen Schalltransports in Fluidspalten. Für eine effiziente Umsetzung des vorgestellten Multiskalenansatzes wird eine Ersatzmodellierung benötigt, die zwischen einzelnen Mikrosimulationen interpoliert. Anhand von einfachen Beispielen wird das Anwendungspotential der Gaußprozess-Regression als mögliches Ersatzmodell evaluiert. Die vorliegende Arbeit liefert somit die theoretischen Grundlagen einer simultanen Multiskalensimulation von Schmierungsprozessen, welche in Zukunft zu einem besseren Verständnis der Dissipationsmechanismen im Grenzreibungsbereich beitragen kann.

Inhaltsverzeichnis

Abstract	iii
Kurzfassung	v
Abbildungsverzeichnis	xi
Tabellenverzeichnis	xiii
Abkürzungen	xv
Veröffentlichungen	xvii
1. Motivation	1
2. Theorie und Stand des Wissens	5
2.1. Notation	5
2.2. Fluidmechanische Grundlagen und Reynoldsgleichung	5
2.3. Molekulardynamik Simulationen eingeschlossener Fluide	9
2.4. Multiskalenmethoden	12
2.4.1. Allgemeine Klassifizierung	12
2.4.2. Sequentielle Multiskalenmethoden	13
2.4.3. Simultane Multiskalenmethoden	13
2.4.4. Adaptive Methoden mittels Gaußprozess-Regression	16
2.5. Zielsetzung der Arbeit	19
3. Methoden	21
3.1. Höhengemittelte Bilanzgleichungen	21
3.1.1. Das Makroproblem	22
3.1.2. Das Mikroproblem	25
3.2. Analytische Behandlung des Mikroproblems	26
3.2.1. Newton'sche Flüssigkeiten	27

3.2.2.	Wandschlupf	28
3.2.3.	Nicht-Newton'sche Fluide	29
3.2.4.	Kavitation	32
3.3.	Analytische Lösung des Makroproblems	35
3.3.1.	Flache Kanäle ohne Scherung	36
3.3.2.	Validierung mittels Molekulardynamiksimulationen	40
3.4.	Numerische Lösung des Makroproblems	44
3.4.1.	Finite Volumen Diskretisierung	44
3.4.2.	Mehrschrittverfahren und Behandlung des Quellterms	47
3.4.3.	Randbedingungen	48
3.4.4.	Parallelisierung	49
4.	Ergebnisse	51
4.1.	Molekulardynamik-Simulationen eingeschlossener Fluide im Gleichgewicht	51
4.1.1.	Autokorrelationsfunktionen	52
4.1.2.	Effektive Dämpfung von Scher- und Schallwellen	55
4.1.3.	Dispersionsrelation für Schallausbreitung	58
4.1.4.	Effektive Spalthöhe und Schlupflängenbestimmung	61
4.2.	Validierung der numerischen Implementierung	63
4.2.1.	Korrelationsfunktionen	63
4.2.2.	Schallausbreitung	66
4.2.3.	Parallele Skalierung	68
4.3.	Validierung mittels Schmierungssimulationen	69
4.3.1.	Einfluss von Kompressibilität und Trägheitseffekten	69
4.3.2.	Wandschlupf	72
4.3.3.	Nicht-Newton'sche Flüssigkeiten	73
4.3.4.	Kavitation	75
4.4.	Anwendungsbeispiele der Gaußprozess-Regression	76
4.4.1.	Scherverdünnung und Fehlerfortpflanzung	77
4.4.2.	Aktives Lernen von Zustandsgleichungen	79
5.	Diskussion	81
5.1.	Transportkoeffizienten eingeschlossener Fluide	81
5.2.	Diffusive Schallausbreitung	83
5.3.	Bestimmung der Schlupflänge	85
5.4.	Skizzierung einer Multiskalenmethode	87
5.4.1.	Ersatz des Mikroproblems	87

5.4.2. Simulationsablauf	89
6. Zusammenfassung und Ausblick	93
6.1. Zusammenfassung	93
6.2. Ausblick	94
A. Detaillierte Herleitungen	97
A.1. Höhengemittelte Bilanzgleichungen	97
A.2. Geschwindigkeitsprofile für Potenzgesetz-Fluide	98
A.3. Permeabilitätsfaktoren	99
A.4. Überkritische Dichterelaxation	100
A.5. MacCormack-Verfahren	101
A.6. TVD-Korrektur	102
B. Superkritische Lennard-Jones Fluide	105
B.1. Viskosität mittels Green-Kubo Simulationen	105
B.2. Zustandsgleichung	106
B.3. Dichteoszillationen	106
C. Autokorrelationsfunktionen	109
Literaturverzeichnis	113

Abbildungsverzeichnis

1.1.	Transport des Kolosses von Djehutihotep	1
1.2.	Schematische Darstellung der Stribeck-Kurve.	2
2.1.	Bayes'sche Inferenz mittels Gaußprozess-Regression.	17
3.1.	Schematische Darstellung des Schmierpalts und Visualisierung des Separationsanstzes.	24
3.2.	Geschwindigkeitsprofile für ein Potenzgesetz-Fluid unter Couette-Poiseuille-Strömung für drei verschiedene Strömungsindizes.	32
3.3.	Zustandsgleichungen der implementierten Kavitationsmodelle.	35
3.4.	Effektive Spalthöhe in einem flachen Kanal mit Wandschlupf.	37
3.5.	Wellenlängenabhängige Schallgeschwindigkeit in flachen Kanälen.	39
3.6.	Grafische Darstellung des Realteils der Lösungen für Poiseuille-Strömungen.	39
3.7.	Aufbau der Molekulardynamik-Simulationen des Fluidspalts.	42
3.8.	Finite-Volumen Diskretisierung mit Randbedingungen und Parallelisierungsschema.	46
4.1.	Autokorrelationsfunktionen von Gleichgewichtsfluktuationen.	54
4.2.	Wellenlängenabhängigkeit der Relaxationszeiten im schwach gedämpften Bereich.	57
4.3.	Wellenlängenabhängiges Oszillationsverhalten und Schallgeschwindigkeit im schwach gedämpften Bereich.	59
4.4.	Überkritisches Relaxationsverhalten von Dichte- und Impulsfluktuationen.	61
4.5.	Bestimmung der Schlupflänge mittels Scherrelaxationszeiten.	62
4.6.	Zeitliche Entwicklung sinusförmiger Impulsauslenkungen im Ortsraum.	64
4.7.	Normierte zeitliche Entwicklung der Fourier-Koeffizienten randomisierter Anfangsbedingungen.	65
4.8.	Räumliches Konvergenzverhalten der numerischen Lösung.	66

4.9. Zeitliche Entwicklung einer kleinen, gaußförmigen Dichtestörung in einer Spaltgeometrie.	67
4.10. Starke Skalierung der parallelen Implementierung.	69
4.11. Validierung am linearen Gleitlager und Einfluss der Trägheitseffekte.	71
4.12. Druckgradienten in einem flachen Kanal mit heterogenen Schlupfrandbedingungen.	73
4.13. Numerischer Test für Potenzgesetz-Fluide.	74
4.14. Validierung am parabolischen Gleitlager und Kavitationsmodellierung.	76
4.15. Schematische Darstellung der Fehlerpropagation am Beispiel der Scherverdünnung.	78
4.16. Bestimmung der Lennard-Jones Zustandsgleichung durch aktives Lernen.	80
5.1. Flussdiagramm zur Skizzierung des Ablaufs einer Multiskalensimulation	90
A.1. Überkritische Dichterelaxation und Vergleich mit Approximation.	101
B.1. Konvergenz des Green-Kubo Integrals zur Viskositätsbestimmung.	106
B.2. Isotherme Zustandsgleichung des superkritischen LJ-Fluids.	107
B.3. Charakterisierung des eingeschlossenen LJ-Fluids.	107
C.1. Autokorrelationsfunktionen von Gleichgewichtsfluktuationen.	109
C.2. Autokorrelationsfunktionen von Gleichgewichtsfluktuationen.	110
C.3. Autokorrelationsfunktionen von Gleichgewichtsfluktuationen.	111

Tabellenverzeichnis

4.1. Theoretische Ausdrücke für die charakteristischen Zeitskalen für Wellenausbreitung und -relaxation in unbegrenzten und eingeschlossenen Systemen. . .	52
4.2. Transportkoeffizienten des unbegrenzten Fluids.	55
4.3. Parameter für die Zustandsgleichung und die Viskosität der flüssigen und dampfförmigen Phase nach Ref. [113].	75

Abkürzungen

BWR Benedict-Webb-Rubin

DDM Gebietszerlegungs-Methoden (engl. *domain decomposition methods*)

EHL Elastohydrodynamische Schmierung (engl. *elastohydrodynamic lubrication*)

FVM Finite-Volumen-Methoden

GK Green-Kubo

HMM heterogene Multiskalenmethoden (engl. *heterogeneous multiscale methods*)

IMM *internal-flow multiscale method*

LJ Lennard-Jones

MD Molekulardynamik

MPI *message passing interface*

TVD *total variation diminishing*

WCA Weeks-Chandler-Anderson

Veröffentlichungen

Die vorliegende Arbeit entstand im Zeitraum vom 01.10.2019 – 31.12.2022 am Institut für Angewandte Materialien des Karlsruher Instituts für Technologie. Teile der Arbeit, die als solche durch eine Zitation kenntlich gemacht sind, wurden bereits veröffentlicht oder wurden zur Veröffentlichung eingereicht.

- [P1] H. Holey, A. Codrignani, P. Gumbsch und L. Pastewka, „Height-averaged Navier–Stokes solver for hydrodynamic lubrication“, *Tribology Letters* **70**, 36 (2022).
- [P2] H. Holey, P. Gumbsch und L. Pastewka, „Confinement-induced diffusive sound transport in nanoscale fluidic channels“, *Physical Review Letters*, in Begutachtung.
- [P3] H. Holey, P. Gumbsch und L. Pastewka, „Critical damping of sound waves in nanoconfined compressible fluids“, *Physical Review Fluids*, zur Veröffentlichung eingereicht.

Open-Source Software

Im Rahmen der Arbeit entwickelte Software ist unter den Bedingungen der MIT-Lizenz öffentlich verfügbar.

- [S1] H. Holey, *HANS – Height-averaged Navier–Stokes solver*, Github Repository, <https://github.com/hannes-hole/hans>.

1. Motivation

Sei es durch die grundlegenden Mechanismen der Fortbewegung, die Naturgewalt von Erdbeben, oder das Entfachen eines Feuers durch Feuerbohren – die Entwicklung des Lebens auf der Erde hätte ohne Reibung sicherlich einen anderen Verlauf genommen. Dennoch versuchen Menschen seit jeher Reibungskräfte zu minimieren. Ägyptische Wandmalereien aus der Grabstätte des Djehutihotep aus dem Jahre 1880 v. Chr. zeigen den Transport einer Statue auf einem Schlitten, wobei eine Person zu erkennen ist, die Wasser auf den Sand vor dem Schlitten schüttet (siehe Abb. 1.1) [1]. Diese Person, die manchmal auch scherzhaft als „erster Tribologe“¹ bezeichnet wird, beschäftigte sich gleich mit einer nichttrivialen Fragestellung – die Reibungseigenschaften von nassem Sand sind auch noch etwas weniger als 4000 Jahre später Gegenstand aktueller Forschung [2].

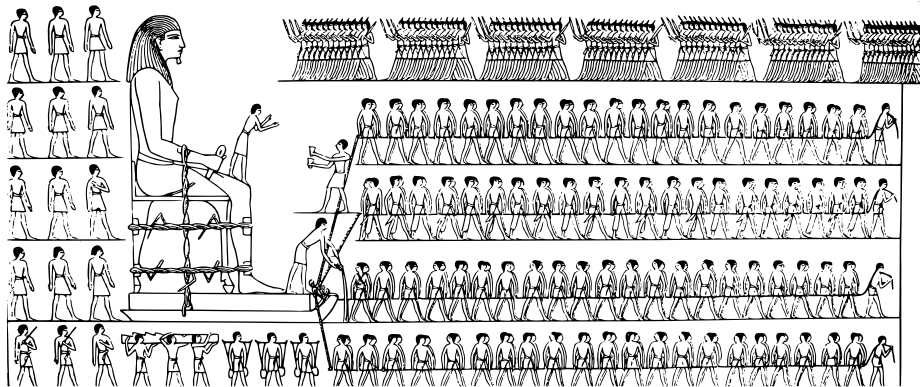


Abbildung 1.1.: Transport des Kolosses von Djehutihotep. Ägyptische Wandmalerei aus der Grabstätte des Gaufürsten Djehutihotep zeigt den Transport einer gigantischen Statue desselben. Eine Person schüttet eine Flüssigkeit vor den Schlitten. Überarbeitete Darstellung nach Ref. [3].

Große Namen der Wissenschaftsgeschichte haben sich seither mit Tribologie befasst, darunter z. B. Leonardo da Vinci, dem die Unabhängigkeit des Reibungskoeffizienten von der scheinbaren Kontaktfläche bereits 200 Jahre vor dem Namensgeber der Amontons'schen Gesetze bekannt war. Eine systematische Untersuchung von Schmierungsphänomenen

¹ Die Tribologie (von altgriechisch: τριβειν *tribein*, deutsch: „reiben, abnutzen“ und λόγος *lógos*, „Lehre“) ist die Wissenschaft von Reibung, Verschleiß und Schmierung.

wurde maßgeblich durch den technologischen Fortschritt der industriellen Revolution vorangetrieben, die, mit Erhöhung der Lastspielzahlen, Minimierung von Verschleiß sowie Vorhersage von Bauteilversagen in den ingenieurwissenschaftlichen Fokus rückte. Ein Meilenstein stellt dabei die Arbeit von Osborne Reynolds [4] dar, der die zuvor von Beauchamp Tower [5] durchgeführten Schmierungsexperimente durch eine vereinfachte hydrodynamischen Theorie beschrieb. Die daraus hervorgegangene Reynoldsgleichung ist bis heute der *de facto*-Standard der Schmierungsmodellierung in Industrie und Forschung.

Stribeck [6] untersuchte Reibungskoeffizienten geschmierter Systeme unter verschiedenen Belastungsbedingungen und für verschiedene Schmiermittel. Wie in Abb. 1.2 dargestellt, lassen sich mithilfe der Stribeck-Kurve drei charakteristische Bereiche nach der Fluidfilmdicke unterscheiden: Vollfilm- oder (Elasto-)hydrodynamische Schmierung, Mischreibung und Grenzreibung. Die niedrigsten Reibungskoeffizienten werden demnach durch eine vollständige Trennung der kontaktierenden Körper erzielt. Der Einsatz niedrigviskoser Schmiermittel, langsame Einlaufgeschwindigkeiten oder erhöhte Belastungsbedingungen führen jedoch zu einer Verringerung der Filmdicke im Mischreibungsbereich bis hin zum Kontakt einzelner Rauheitsasperitäten im Grenzreibungsbereich, was hohe Reibungskoeffizienten zur Folge hat.

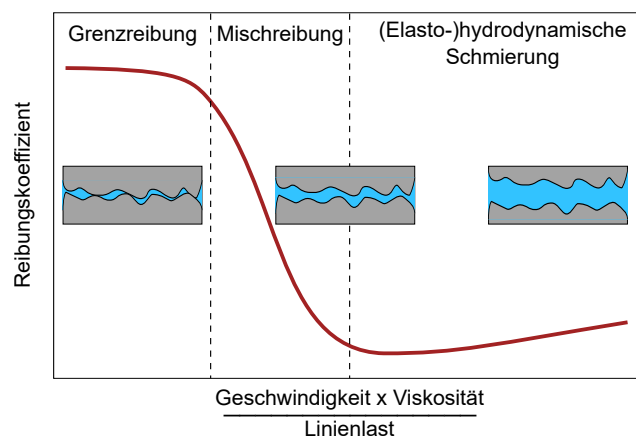


Abbildung 1.2.: Schematische Darstellung der Stribeck-Kurve. Der Reibungskoeffizient – also das Verhältnis aus Reibungs- und Normalkraft – lässt sich qualitativ in drei Bereiche einteilen: (Elasto-)hydrodynamische Schmierung, Misch- und Grenzreibung. Den charakteristischen Verlauf erhält man durch Auftragung über der dimensionslosen Hersey-Zahl $He = \eta v / N$, wobei η die Viskosität, v eine Belastungsgeschwindigkeit und N eine Normalkraft pro Linienlänge des Kontakts beschreibt.

Nach Holmberg und Erdemir [7] werden 23% des globalen Energieverbrauchs zur Überwindung von Reibungskräften und für den Ersatz von Verschleißteilen aufgebracht, was bei direkter Umrechnung CO₂-Emissionen von 8 120 Mt/Jahr entspricht. Um die Folgen des menschengemachten Klimawandels [8] einzugrenzen, gewinnen, neben dem großen

Einsparungspotential von Reibungsverlusten im Mobilitäts- und Energiesektor durch Elektrifizierung des Antriebsstrangs bzw. den Umstieg auf erneuerbare Energieressourcen, auch Innovationen bei Reibungs- und Schmierungskonzepten an Bedeutung. Der technologische Trend hin zu niedrigviskosen Schmiermitteln führt u. a. dazu, dass technische Systeme vermehrt im Misch- und Grenzreibungsbereich operieren [9–11]. Extreme Belastungsbedingungen und Filmdicken von wenigen Nanometern sind die Folge, sodass die Gültigkeit kontinuumsmechanischer Modellierungsansätze überprüft werden muss. Atomistische Simulationsmethoden bieten die Möglichkeit, das mikroskopische Verhalten komplexer Fluide im Reibkontakt aufzulösen, sind jedoch auf sehr kurze Zeit- und Längenskalen limitiert. Daher ergibt sich der Bedarf an Multiskalenmethoden für die Simulation von Schmierungsprozessen im Misch- und Grenzreibungsbereich, welche atomistische Modellierung mit kontinuumsmechanischen Berechnungen auf makroskopischen Längen- und Zeitskalen kombinieren.

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit der Methodenentwicklung für die Multiskalensimulation von Schmierprozessen mithilfe kontinuumsmechanischer und atomistischer Ansätze. Das folgende Kapitel gibt einen Überblick über die notwendigen theoretischen Grundlagen und den aktuellen Forschungsstand, welcher das Ziel dieser Arbeit eingrenzt. Die weiteren Kapitel befassen sich mit der Methodenentwicklung, Validierung und Anwendung im Schmierungskontext aus kontinuumsmechanischer Sicht, sowie der Beschreibung und Diskussion möglicher Schnittstellen zu Molekulardynamik-Simulationen.

2. Theorie und Stand des Wissens

2.1. Notation

Im Rahmen dieser Arbeit werden Tensoren erster Stufe beliebiger Dimension n durch lateinische oder griechische Kleinbuchstaben in Fettdruck dargestellt, z. B. $\mathbf{q} \in \mathbb{R}^n$, mit Ausnahme kartesischer 3-Vektoren, die durch Pfeile gekennzeichnet sind, z. B. für den Ortsvektor \vec{r} . Tensoren zweiter Stufe werden durch Großbuchstaben in Fettdruck gekennzeichnet, z. B. $\mathbf{F} \in \mathbb{R}^{n \times m}$. In der kartesischen Basis werden Unterstriche verwendet, also z. B. $\underline{1} = \delta_{ij}$ für die Einheitsmatrix, wobei δ_{ij} das Kronecker-Symbol ist. Gradient und Divergenz werden mit dem ∇ -Operator dargestellt, z. B. gilt $(\nabla \mathbf{a})_{ij} = \partial_j a_i$ und der Divergenzoperator wirkt auf den Spaltenindex, d. h. $(\nabla \cdot \mathbf{A})_i = \partial_j A_{ij}$. Bei Verwendung der Indexnotation gilt hier und im Folgenden die Einstein'sche Summenkonvention. Das äußere Produkt zwischen zwei Vektoren wird definiert als $(\vec{a} \otimes \vec{b})_{ij} = a_i b_j$ und innere Produkte werden mit einem Punkt gekennzeichnet, also z. B. das Matrix-Vektor-Produkt $(\underline{B} \cdot \vec{c})_i = B_{ij} c_j$.

Des Weiteren werden normalverteilte Zufallsvariablen mit $\mathbf{x} \sim \mathcal{N}(\boldsymbol{\mu}, C)$ bezeichnet, wobei $\boldsymbol{\mu}$ den Erwartungswert und C die Kovarianz-Matrix beschreibt. Dies bedeutet, dass ihre Wahrscheinlichkeitsdichte $P : \mathbb{R}^D \rightarrow \mathbb{R}$ gegeben ist durch

$$P(\mathbf{x}) = \frac{1}{(2\pi)^{D/2} |C|^{1/2}} \exp \left[-\frac{1}{2} (\mathbf{x} - \boldsymbol{\mu})^\top C^{-1} (\mathbf{x} - \boldsymbol{\mu}) \right], \quad (2.1)$$

wobei D die Dimension der Zufallsvariablen bezeichnet und Betragsstriche $|\cdot|$ kennzeichnen die Determinante der Kovarianz-Matrix.

2.2. Fluidmechanische Grundlagen und Reynoldsgleichung

Das mechanische Verhalten eines dünnen Flüssigkeitsfilms stellt ein klassisches strömungsmechanisches Problem dar. Im Folgenden soll ein kurzer Überblick über die grundlegenden

Gleichungen und deren Vereinfachungen gegeben werden, welcher für ein Verständnis der betrachteten Fragestellung essentiell ist. Die Kinematik eines materiellen Punktes $\vec{r}(t)$ zum Zeitpunkt t ist durch die Bewegungsfunktion

$$\vec{r} = \vec{\chi}(\vec{R}, t), \quad (2.2)$$

gegeben, wobei $\vec{R} \equiv \vec{r}(t = 0)$ eine Referenzkonfiguration beschreibt. Aufgrund der Bijektivität und der damit einhergehenden Invertierbarkeit der Bewegungsfunktion $\vec{\chi}$, bieten sich grundsätzlich zwei Möglichkeiten an, die zeitliche Entwicklung des Punktes zu beschreiben. In der Lagrange'schen Betrachtungsweise wird ein materieller Punkt und dessen Trajektorie durch den Raum betrachtet, wohingegen in der Euler'schen Betrachtungsweise ein fester Punkt im Raum betrachtet wird, während materielle Punkte durch diesen „hindurchfließen“. In der Fluidmechanik bietet sich die Euler'sche Darstellung an, während die Molekulardynamik *per se* eine Lagrange'sche Methode darstellt¹. Bei Zeitableitungen in der Euler'schen Beschreibung ist zu beachten, dass eine beliebige Größe $\psi(\vec{r}, t)$ sowohl eine explizite als auch eine implizite Funktion der Zeit ist. Die materielle Zeitableitung

$$\frac{d\psi}{dt} = \frac{\partial\psi}{\partial t} + \vec{v} \cdot \nabla\psi \quad (2.3)$$

enthält somit einen lokalen Anteil und einen konvektiven Anteil [12].

Mechanische Bilanzgleichungen lassen sich für ein zeitlich veränderliches Kontrollvolumen $\mathcal{V} \equiv \mathcal{V}(t)$ durch den Reynolds'schen Transportsatz

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \int_{\mathcal{V}} \psi(\vec{r}, t) d^3r &= \int_{\mathcal{V}} \left(\frac{d\psi(\vec{r}, t)}{dt} + \psi(\vec{r}, t) \nabla \cdot \vec{v}(\vec{r}, t) \right) d^3r \\ &= \int_{\mathcal{V}} \left(\frac{\partial\psi(\vec{r}, t)}{\partial t} + \nabla \cdot [\psi(\vec{r}, t) \vec{v}(\vec{r}, t)] \right) d^3r \end{aligned} \quad (2.4)$$

beschreiben. Ersetzt man beispielsweise ψ durch die Massendichte ρ in Gl. (2.4) erhält man die Kontinuitätsgleichung in integraler Form. Da das betrachtete Kontrollvolumen beliebig ist und daher auch infinitesimal klein werden kann, lassen sich Bilanzgleichungen auch in lokaler Formulierung aufschreiben, z. B. für die Masse

$$\frac{\partial\rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho\vec{v}) = 0. \quad (2.5)$$

¹ Dies bedeutet nicht, dass sich die Molekulardynamik nicht für Strömungsprobleme eignet. In Kap. 3.3.2 werden z. B. molekulare Freiheitsgrade in eine Euler'sche Beschreibung überführt.

Für eine inkompressible Flüssigkeit mit $\rho = \text{const.}$ erhält man $\nabla \cdot \vec{v} = 0$. Für die Massenbilanz wurden keine Quellen oder Senken betrachtet, d. h. die rechte Seite von Gl. (2.5) ist null. In der Impulsbilanz sind Kräfte, die im Inneren oder von außen auf den Körper wirken, Quellen oder Senken des Systems. In integraler Formulierung kann das zweite Newton'sche Gesetz geschrieben werden als

$$\frac{d}{dt} \int_{\mathcal{V}} \rho \vec{v} d^3r = \int_{\mathcal{V}} \vec{f} \rho d^3r + \int_{\partial \mathcal{V}} \vec{t} d^2r, \quad (2.6)$$

wobei \vec{f} eine Kraftdichte und \vec{t} einen auf die Oberfläche $\partial \mathcal{V}$ wirkenden Spannungsvektor bezeichnet. Der Spannungsvektor $\vec{t} = \underline{\sigma} \cdot \vec{n}$ ist der Anteil des Cauchy'schen Spannungstensors $\underline{\sigma}$, der in Richtung der Oberflächennormalen \vec{n} zeigt. Durch Anwendung des Gauß'schen Integralsatzes ergibt sich die lokale Form der Impulsbilanz zu

$$\rho \frac{d\vec{v}}{dt} = \rho \vec{f} + \nabla \cdot \underline{\sigma}. \quad (2.7)$$

Der Spannungstensor $\underline{\sigma}$ wird durch ein Konstitutivgesetz bestimmt, welches das betrachtete Fluid beschreibt und somit zu einer geschlossenen Form von Gl. (2.7) führt. Da der Spannungszustand invariant unter einer Starrkörperrotation ist, wird er als Funktion des symmetrischen Anteils des Geschwindigkeitsgradienten $\underline{D} = \frac{1}{2}(\nabla \vec{v} + (\nabla \vec{v})^\top)$ beschrieben. Unter den weiteren Annahmen der Kontinuität, Homogenität, Isotropie und Linearität ist der Spannungstensor eines Newton'schen Fluids durch

$$\underline{\sigma} = -p \underline{1} + \underline{\tau} = (-p + \lambda \text{ sp } \underline{D}) \underline{1} + 2\eta \underline{D} \quad (2.8)$$

gegeben, wobei p den hydrostatischen Druck und $\underline{\tau}$ den viskosen Anteil beschreibt. η ist die dynamische Scherviskosität und der Parameter λ hängt mit der Volumenviskosität $\zeta = \lambda + \frac{2}{3}\eta$ zusammen, welche den viskosen Widerstand gegen Dilatation beschreibt². Die Navier-Stokes-Gleichung ergibt sich durch Einsetzen der Konstitutivgleichung (2.8) in Gl. (2.7) [12]

$$\rho \frac{d\vec{v}}{dt} = \nabla(-p + \lambda \text{ sp } \underline{D}) + \nabla \cdot (2\eta \underline{D}) + \rho \vec{f}. \quad (2.9)$$

² Die häufig in der Festkörpermechanik verwendete Definition des mechanischen Drucks $\tilde{p} = -\text{sp } \underline{\sigma}/3$ stimmt nur im Falle inkompressibler Flüssigkeiten mit dem hydrostatischen Druck überein. Für kompressible Medien ist der Druck durch eine Zustandsgleichung $p = p(\rho, T)$ gegeben und die Differenz zum mechanischen Druck ist $p - \tilde{p} = (\lambda + \frac{2}{3}\eta) \nabla \cdot \vec{v}$. Die Volumenviskosität $\lambda + \frac{2}{3}\eta$ ist nur im Spezialfall einatomiger Gase näherungsweise null (Stokes-Annahme). Siehe auch Ref. [13].

Für dünne Fluidfilme zwischen zwei sich relativ zueinander bewegenden Oberflächen vereinfacht sich Gl. (2.9) unter Annahme einer kleinen Reynoldszahl $Re = \rho H |\vec{v}| / \eta$, die das Verhältnis von Trägheits- zu viskosen Kräften quantifiziert, wobei H eine Referenzhöhe beschreibt, und Skalierungsargumenten aufgrund des kleinen Aspektverhältnisses $H/L \ll 1$, wobei L eine Referenzlänge beschreibt, zu

$$\frac{\partial p}{\partial x} = \frac{\partial}{\partial z} \left(\eta \frac{\partial u}{\partial z} \right) \quad (2.10a)$$

$$\frac{\partial p}{\partial y} = \frac{\partial}{\partial z} \left(\eta \frac{\partial v}{\partial z} \right) \quad (2.10b)$$

$$\frac{\partial p}{\partial z} = 0. \quad (2.10c)$$

Nach Gl. (2.10c) ist der Druck über der Spalthöhenkoordinate z konstant. Unter der Annahme konstanter Viskosität, lassen sich Gl. (2.10a) und (2.10b) leicht integrieren, sodass die Geschwindigkeitskomponenten in lateraler Richtung gegeben sind durch

$$u = \frac{z}{2\eta} \frac{\partial p}{\partial x} (z - h) + \frac{U}{h} z, \quad (2.11a)$$

$$v = \frac{z}{2\eta} \frac{\partial p}{\partial y} (z - h) + \frac{V}{h} z, \quad (2.11b)$$

wobei $h \equiv h(x, y)$ das Höhenprofil des Schmierspalt darstellt. Hierbei wurden als Randbedingungen eine konstante Geschwindigkeit der oberen Wand $\vec{v}|_{z=h} = (U, V, 0)^\top$ und $\vec{v}|_{z=0} = \vec{0}$ an der unteren Wand verwendet. Die Geschwindigkeitsprofile sind eine Superposition eines linearen Anteils, aufgrund der Scherung des Fluidfilms, der sogenannte *Couette*-Anteil, und eines quadratischen Anteils aufgrund des Druckgradienten, der sogenannte *Poiseuille*-Anteil. Durch Einsetzen der Geschwindigkeitskomponenten in die Kontinuitätsgleichung (für inkompressible Fluide) und erneute Integration über die Spalthöhe erhält man die Reynoldsgleichung [14]

$$\frac{\partial(\rho h)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(\frac{h^3 \rho}{12\eta} \frac{\partial p}{\partial x} - \frac{U}{2} h \rho \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(\frac{h^3 \rho}{12\eta} \frac{\partial p}{\partial y} - \frac{V}{2} h \rho \right). \quad (2.12)$$

Auch wenn die hier skizzierte Herleitung, wie auch die der Originalquelle [4] von 1886, für inkompressible, isoviskose Newton'sche Fluide gilt, werden in der Praxis oft erst nachträglich lösungsabhängige Materialparameter eingeführt, was die Gültigkeit von Gl. (2.12) infrage stellt. Zahlreiche Modifikationen der Reynoldsgleichung, die beispielsweise Piezoviskosität [15–17] oder Kompressibilität [18] *a priori* einbeziehen, sind Gegenstand

aktueller Forschung. Im Falle der Piezoviskosität, die häufig für Fragestellungen der Elasto-hydrodynamische Schmierung (engl. *elastohydrodynamic lubrication*, EHL) berücksichtigt werden muss, ist der Fehler durch eine Verwendung von Gl. (2.12) mit druckabhängiger Viskosität $\eta(p)$ in den meisten Fällen klein [19]. Die Scherratenabhängigkeit der Viskosität über der Spalthöhe kann ebenfalls durch eine verallgemeinerte Reynoldsgleichung beschrieben werden [20], die allerdings eine Integration über die Spalthöhe enthält und daher numerisch aufwendiger ist.

2.3. Molekulardynamik Simulationen eingeschlossener Fluide

Die Methode der Molekulardynamik (MD) beschäftigt sich mit der Lösung der Newton'schen Bewegungsgleichung für diskrete Partikel, genauer Atome oder Moleküle. Dabei wird der Ort des Partikels i mit dem Vektor \vec{r}_i angegeben und dessen zeitliche Entwicklung wird bekanntermaßen durch

$$\frac{\partial^2 \vec{r}_i}{\partial t^2} = \frac{\vec{f}_i}{m_i} \quad (2.13)$$

beschrieben, wobei m_i die Masse des Partikels ist und \vec{f}_i beschreibt die auf ihn wirkende Kraft. In konservativen Kraftfeldern lässt sich die Kraft aus dem negativen Gradienten des zugehörigen Potentials bezüglich der Koordinaten des Partikels ableiten

$$\vec{f}_i = -\nabla E_{\text{pot}}(\{\vec{r}_i\}) = -\frac{\partial E_{\text{pot}}}{\partial \vec{r}_i}. \quad (2.14)$$

Für die Beschreibung eines atomistischen Systems mittels MD ist demnach eine möglichst repräsentative Beschreibung der potentiellen Energie vonnöten [21]. Im Rahmen dieser Arbeit werden nur interatomare Wechselwirkungen betrachtet, die sich durch Addition paarweiser Interaktionen ergeben. Die potentielle Energie lässt sich dann schreiben als

$$E_{\text{pot}}(\{\vec{r}_i\}) = \sum_{i=1}^N \sum_{j=i+1}^N V(r_{ij}), \quad (2.15)$$

wobei $r_{ij} = |\vec{r}_i - \vec{r}_j|$ der Abstand zwischen zwei Teilchen i und j ist und $V(r_{ij})$ bezeichnet die paarweise Interaktionsenergie als Funktion dieses Abstands. Das am weitesten verbreitete Paarpotential ist das Lennard-Jones (LJ)-Potential

$$V_{\text{LJ}}(r_{ij}) = 4\epsilon \left[\left(\frac{\sigma}{r_{ij}} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r_{ij}} \right)^6 \right], \quad (2.16)$$

welches durch einen repulsiven Anteil ($\propto r_{ij}^{-12}$) zur Modellierung der Pauli-Abstoßung und einen attraktiven Anteil ($\propto -r_{ij}^{-6}$) zur Modellierung von Dispersionskräften gekennzeichnet ist. Dabei ist ϵ die paarweise Bindungsenergie und $\sigma = r_0/\sqrt[4]{2}$ beschreibt die atomare Ausdehnung, wobei r_0 der Gleichgewichtsabstand zweier Teilchen ist. Im Rahmen dieser Arbeit wurde ausschließlich das LJ-Potential berücksichtigt, welches für die Modellierung monoatomarer Fluide zu Validierungszwecken gut geeignet ist. Die Lösung von Gl. (2.13) erfolgt numerisch mittels des *Velocity-Verlet*-Algorithmus [22].

Die Geburtsstunde der MD geht zurück auf die Arbeit von Alder und Wainwright [23], die Phasenübergänge in Partikelsystemen mit rein elastischen Stößen untersuchten. Zwar wurden in der Anfangszeit der Partikelsimulationen hauptsächlich Gleichgewichtssysteme untersucht, z. B. für die Berechnung von Transportkoeffizienten in LJ-Fluiden [24], aber mit stetig steigender Rechenleistung wurden auch Nichtgleichgewichtssysteme zugänglich. Die ersten MD-Simulationen eingeschlossener Fluide in Systemen ähnlich zu heute wurden von Bitsanis et al. [25] durchgeführt, wobei gezeigt wurde, dass die bereits in Monte Carlo-Simulationen [26], MD-Simulationen [27] und *Surface force apparatus*-Experimenten [28] beobachteten Dichteoszillationen auch unter Couette-Strömung bei hohen Scherraten stabil bleiben. In eingeschlossenen Fluiden muss zwischen der Viskosität des Fluids und der – experimentell zugänglichen – effektiven Viskosität des eingeschlossenen Fluids unterschieden werden. Mithilfe eines Modells, welches die Viskosität als Funktion der lokal gemittelten Dichte im Spalt beschreibt, konnten die gemessenen Geschwindigkeitsprofile reproduziert werden und Vorhersagen über die effektive Viskosität gemacht werden [25]. Extreme Viskositätssteigerungen [29] in ultradünnen Filmen mit Dicken von weniger als vier Moleküldurchmessern konnten damit allerdings nicht beschrieben werden [30]. Stattdessen vermutete man einen Flüssig-Fest-Phasenübergang³ [32], der auch in MD-Simulationen beobachtet wurde [33, 34]. Des Weiteren konnten Travis et al. [35] zei-

³ Experimentelle Studien aus dieser Zeit waren sich einig hinsichtlich der Beobachtung eines abrupten Viskositätsanstiegs über mehrere Größenordnungen. Lediglich die Frage, ob es sich dabei um einen Übergang von einer ungeordneten in eine geordnete Phase oder einen glasartigen Übergang handelt, wurde kontrovers diskutiert. Siehe auch Ref. [31].

gen, dass die Gültigkeit klassischer kontinuumsmechanischer Beschreibungen in dünnen Fluidfilmen etwa unter fünf molekularen Durchmessern verloren geht.

Neben der Betrachtung der Viskosität bei der Scherdeformation dünner Fluidfilme spielt auch Wandschlupf eine Rolle. Die Annahme von Haftbedingungen an der Fluid-Wand-Grenzfläche, die üblicherweise in Kontinuumsmodellen angenommen wird, muss in nanoskaligen Systemen erneut validiert werden, da charakteristische Längenskalen des Systems in der Größenordnung der Schlupflänge sind [36–38]. Eine systematische Untersuchung der Fluid-Wand-Grenzfläche in LJ-Fluiden wurde von Thompson und Robbins [39] vorgenommen, welche die Schlupflänge mit der von der Wand induzierten Ordnung in der ersten Fluidschicht korrelierten. Mit zunehmender Ordnung in der Grenzschicht, z. B. durch Erhöhung der Fluid-Wand Interaktionsstärke, nimmt die Schlupflänge ab. Zahlreiche weitere Untersuchungen des Wandschlupfes folgten, u. a. unter Berücksichtigung der Scherratenabhängigkeit [40] und der Wandrauheit [41]. Die Messung der Schlupflänge in Nichtgleichgewichts-MD-Simulationen durch lineare Extrapolation des Geschwindigkeitsprofils hängt von der exakten Position der Fluid-Grenzfläche ab, welche insbesondere bei ausgeprägten Dichteoszillationen zu einem gewissen Grad beliebig ist. Bocquet und Barrat [42, 43] schlugen daher eine Messung von Schlupflänge und Position der Randbedingung vor, welche auf Fluktuationen im Gleichgewicht beruht, analog zu den Green-Kubo Relationen für Transportkoeffizienten [44, 45]. Auch wenn die praktische Anwendbarkeit der Methode limitiert ist, legte sie den Grundstein für die Charakterisierung der Grenzflächenreibung mittels Gleichgewichtsfluktuationen [46].

Die simulative Pionierarbeit am Ende des letzten Jahrhunderts wurde überwiegend mit LJ-Fluiden und atomar glatten Oberflächen vorgenommen. Im Verlauf der letzten 20 Jahre traten vermehrt Systeme in den Vordergrund, die der chemischen Komplexität realer Schmierstoffe und Additive näher kommen [47]. Alle MD-Studien haben gemeinsam, dass ihr Erkenntnisgewinn aufgrund der großen Skalenseparation zu Experimenten und realen Anwendungen ausschließlich qualitativer Natur ist. Nichtsdestoweniger können aus MD-Simulationen eingeschlossener Fluide Erkenntnisse über das konstitutive Verhalten im Bereich der Grenzschmierung gewonnen werden, welche in konventionellen makroskopischen Modellen Einzug erhalten können. Im folgenden Kapitel wird eine Übersicht über Multiskalensimulationen fluidischer Systeme gegeben.

2.4. Multiskalenmethoden

2.4.1. Allgemeine Klassifizierung

In den vorangehenden Kapiteln wurden die theoretischen Grundlagen für Computersimulationen von Schmierungsphänomenen sowohl aus Sicht der Kontinuumsmechanik als auch aus der Perspektive partikelbasierter Methoden dargestellt. Wie schon zu Beginn motiviert, sind Reibung und Schmierung, so wie viele andere Fragestellungen der Materialwissenschaft auch, Multiskalenprobleme. Das bedeutet, dass die für die Beschreibung eines zu untersuchenden Systems relevanten physikalischen Prozesse auf unterschiedlichen Skalen stattfinden, die mehrere Größenordnungen auseinander liegen. In der Multiskalenmodellierung gibt es verschiedene Ansätze, wie Modelle und Methoden unterschiedlicher Längen- und Zeitskalen miteinander kombiniert werden. Man unterscheidet grob zwischen sequentiellen und simultanen Multiskalenmethoden [48], was im Folgenden kurz erläutert wird, bevor konkrete Beispiele aus dem Bereich dünner Flüssigkeitsfilme und Schmierung betrachtet werden.

In sequentiellen Multiskalensimulationen werden Modelle unterschiedlicher Skalen hintereinander ausgeführt, z. B. indem auf der kleinen Skala Parameter mit einer genaueren Methode bestimmt werden, die dann an ein Modell auf einer größeren Skala übergeben werden. Beispiele sind die Entwicklung (semi-)empirischer Potentiale für die Molekulardynamik [21], die mithilfe quantenmechanischer Berechnungen parametrisiert werden, oder die Entwicklung von *coarse-grained* Potentialen für die Simulation von Makromolekülen [49].

In simultanen Multiskalensimulationen werden die Methoden der kleinen und großen Skala gleichzeitig ausgeführt. Dabei wird weiterhin unterschieden, ob die einzelnen Methoden das Simulationsgebiet untereinander aufteilen oder gemeinsam auf dem gesamten Gebiet operieren. Erstere sind sogenannte Gebietszerlegungs-Methoden (engl. *domain decomposition methods*, DDM), welche beispielsweise zur Kopplung quantenmechanischer (QM) und klassischer Berechnungen (engl. *molecular mechanics*, MM) mit der QM/MM-Methode [50] eingesetzt werden, oder atomistische und kontinuumsmechanische Modelle verbinden [51].

Ein Vorteil der sequentiellen Methoden ist die Unabhängigkeit des Modells der größeren Skala hinsichtlich Limitierungen der kleineren Skala, z. B. aufgrund eines sehr kleinen Zeitschrittes. Demgegenüber steht die Adaptivität simultaner Methoden, bei denen i. d. R.

der Systemzustand auf der großen Skala Randbedingungen auf der kleinen Skala definiert. Das Einbauen von *Feedback*-Schleifen in sequentielle Multiskalenmethoden erlaubt eine Reparametrisierung auf der kleinen Skala immer dann, wenn auf der groben Skala zuvor unbekannte Systemzustände auftreten, wie z. B. bei sogenannten *on-the-fly* interatomaren Potentialen mithilfe von maschinellem Lernen [52].

2.4.2. Sequentielle Multiskalenmethoden

Die Modellierung dünner Flüssigkeitsfilme mithilfe der Molekulardynamik und die damit einhergehende Charakterisierung von Wandschlupf und effektiver Viskosität führte zur Anwendung erster sequentieller Multiskalenansätze in der Tribologie. Martini et al. [53] charakterisierten die Viskosität von n-Dekan bei verschiedenen Spalthöhen und Scherraten mittels MD. Oszillationen in der Viskosität mit der Spalthöhe und das scherverdünnende Verhalten wurden durch ein effektives Viskositätsmodell für EHL-Berechnungen genutzt. Ein ähnlicher sequentieller Ansatz wurde für Wandschlupf in EHL-Berechnungen von n-Oktan zwischen CuO-Oberflächen [54] bzw. zwischen Si₃N₄- und α -Fe-Oberflächen [55] angewendet. Ein häufig untersuchtes System ist der Fluss von Wasser durch Kohlenstoffnanoröhrchen [56–58], bei dem experimentell eine um einige Größenordnungen höhere Durchflussrate gemessen wurde als theoretisch vorhergesagt [59]. Extensive MD-Simulationen von Poiseuille-Strömungen in dünnen Kanälen zur Parametrisierung von Zustandsgleichung, Piezoviskosität und Wandschlupf des Kohlenstoff-Wasser Systems können kontinuumsmechanische Berechnungen verbessern [57].

2.4.3. Simultane Multiskalenmethoden

Gebietszerlegungs-Methoden (DDM)

Abweichungen von klassischen Kontinuumstheorien treten in eingeschlossenen Fluiden häufig in der Nähe der Wand auf. Ein simultaner DDM-Ansatz, bei dem nur der Bereich um die Wand-Fluid-Grenzfläche mit atomistischen Methoden aufgelöst wird, während der Fluidfilm fern der Wand als Kontinuum modelliert wird, ist daher naheliegend. Etablierte Kopplungsmethoden zwischen zwei Lagrange'schen Methoden, wie beispielsweise aus der Bruchmechanik [60], sind für Fluide eher ungeeignet, wobei insbesondere der Übergang vom Kontinuum (Euler) zur Atomistik (Lagrange) eine Herausforderung darstellt [61]. Für

Fluide werden im Wesentlichen zwei Ansätze verfolgt: Kopplung von MD- und Kontinuumsdomäne über das Angleichen von Zustandsvariablen, oder über das Angleichen von Flussgrößen. Ersteres wurde von O’Connell und Thompson [62] vorgeschlagen, die in einer hybriden Couette-Strömungssimulation Geschwindigkeitsfreiheitsgrade der MD in einer Überlappungszone an die Geschwindigkeit der Kontinuumsrechnung angleichen. Weiterentwicklungen und Modifikationen dieser Methode wurden u. a. von Hadjiconstantinou und Patera [63] und Werder et al. [64] eingeführt, was beispielsweise zu einer Entkopplung von MD- und Kontinuumszeitschritt, oder zu einer verbesserten Repräsentation der nicht-periodischen Randbedingungen der MD-Region führte. Die Kopplung über den Austausch von Flussgrößen hat den Vorteil, dass Erhaltungsgleichungen automatisch erfüllt sind. Zunächst von Flekkøy et al. [65] für stationäre Probleme und Massen- und Impulskopplung vorgeschlagen, wurde die Methode von Delgado-Buscalioni und Coveney [66] für instationäre Probleme unter Einbezug der Energieerhaltungsgleichung erweitert. Des Weiteren wurden die Methoden der Fluss-Kopplung durch die Berücksichtigung von Fluktuationen auf der Kontinuumsskala mittels fluktuierender Hydrodynamik modifiziert [67, 68]. Nie et al. [69, 70] wendeten einen DDM-Ansatz auf das klassische Hohlraumströmungsproblem an und konnten somit die von Kontinuumstheorien vorhergesagte Spannungssingularität an der instationären Wand bis hin zu atomistischen Längenskalen auflösen, was eine Quantifizierung des mikroskopischen Anteils der makroskopischen Kraft ermöglichte. Im Hinblick auf Schmierungszenarien müsste jedoch der atomistisch aufgelöste Bereich (d. h. die Fluid-Wand-Grenzfläche) in DDM einen großen räumlichen Bereich abdecken, statt nur der Ecken des Systems wie in Ref. [70], was einem großen Rechenaufwand gleichkommt.

Heterogene Multiskalenmethoden (HMM)

Eine weitere Klasse simultaner Multiskalenmethoden sind heterogene Multiskalenmethoden (engl. *heterogeneous multiscale methods*, HMM) [71, 72], wobei keine räumliche Aufteilung des Simulationsgebiets vorgenommen wird. Stattdessen greift ein makroskopischer Löser lokal auf Ergebnisse eines mikroskopischen Löser zurück, falls auf der Makroskala keine oder nur inakkurate Ergebnisse vorhanden sind. Dabei ist entscheidend, dass das mikroskopische System den Zustand des makroskopischen Systems lokal korrekt repräsentiert. HMM sind verwandt mit der *equation-free*-Methode [73, 74], die für die

Lösung des Makro-Systems kein physikalisches Modell zugrunde legt⁴, sondern ausschließlich aus den Mikrozuständen auf die zeitliche Entwicklung der makroskopischen Variablen schließt. HMM wurden in zahlreiche Anwendungsbeispiele eingesetzt [76], wobei hier nur auf die für diese Arbeit relevanten Beispiele eingegangen werden soll. Ren und E [77] betrachteten fluidmechanische Problemstellungen, bei denen entweder das Konstitutivgesetz oder Randbedingungen der Kontinuumskala aus MD-Simulationen gewonnen wurden. So wurde der viskose Anteil des Spannungstensors mithilfe des Irving-Kirkwood Formalismus [78] in deformierten, periodischen MD-Boxen berechnet, welcher dann zur Lösung der fluidmechanischen Gleichungen z. B. für inkompressible Poiseuille-Strömung verwendet wurden. Dabei wurde sowohl in diesem konkreten Beispiel als auch in einer modifizierten Variante [79] je eine MD-Berechnung pro finite Volumen-Zelle und Kontinuumszeitschritt benötigt. Um Redundanz zu vermeiden, setzten Asproulis und Drikakis [80] künstliche neuronale Netze als Ersatzmodell ein, sodass die Anzahl zeitaufwendiger MD-Simulationen ohne Verlust an Genauigkeit minimiert werden konnte.

Internal-flow multiscale method (IMM)

Neben dem bereits zuvor erwähnten Nachteil des HMM-Ansatzes bezüglich der großen Anzahl benötigter MD-Simulationen ist eine große räumliche Skalenseparation für eine sinnvolle Anwendung vonnöten. Die minimale Größe der MD-Simulationsbox limitiert dabei die Auflösung der Makroskala. So können große Gradienten der Makrolösung für Fluide mit langreichweitigen Interaktionen, wie z. B. Wasser, nur schwer modelliert werden. Dies stellt insbesondere für dünne Fluidfilme auf der Nanometerskala ein Problem dar, da charakteristische Dimensionen des Systems in der Größenordnung der molekularen Wechselwirkung liegen.

Eine Entkopplung der MD-Systeme von Quadraturpunkten der Kontinuumslösung wurde von Borg et al. für inkompressible Poiseuille-Strömungen vorgeschlagen, bei denen nur wenige MD-Simulationen entweder entlang der Spaltkoordinate [81] oder in Strömungsrichtung [82] benötigt wurden. In beiden Varianten wird jeweils ein stationäres Strömungsproblem gelöst, indem die Lösungen der MD-Simulationen iterativ die Scherspannung bzw. den makroskopischen Massenfluss korrigieren. Außerdem sind beide Varianten auf Interpolationsschemata angewiesen, um von den dünn verteilten MD-Systemen auf makroskopisches Verhalten im restlichen Gebiet zu schließen. Zweitgenannte Methode wurde

⁴ Daher der Name *equation-free*, also „ohne Gleichung“. Siehe auch Ref. [75] für einen Überblick und einige Anwendungsbeispiele.

internal-flow multiscale method (IMM) genannt und mehrfach erweitert bzw. modifiziert für kompressible und nicht-isotherme Gasströmungen [83, 84], wobei die Mikroskala hier mittels *direct simulation Monte Carlo* (DSMC) aufgelöst wurde, sowie für instationäre, kompressible Strömungen dichter Fluide [85].

2.4.4. Adaptive Methoden mittels Gaußprozess-Regression

Sowohl sequentielle als auch simultane Multiskalenansätze weisen Nachteile hinsichtlich einer möglichst effizienten Nutzung der i. d. R. „teuren“ Mikrosimulationen auf. In sequentiellen Multiskalensimulationen wird vorab der erwartete Parameterraum abgetastet und die erhaltenen Informationen tabelliert. Während der Makrosimulation können dann jedoch Zustände auftreten, die durch die *pre*-Simulationen nicht abgedeckt wurden (Extrapolation), oder die zuvor gewählten Parameter liegen zu weit auseinander für eine geeignete Interpolation. In simultanen Multiskalensimulationen tritt dieses Problem nicht auf, jedoch werden häufig ähnliche Mikrosimulationen wiederholt und die erhaltenen Informationen werden direkt nach der Verwendung wieder verworfen. Adaptive Methoden verbinden die besten Eigenschaften beider Ansätze, indem eine stetig wachsende Datenbank an Mikrosimulationen *on-the-fly*, also während des Simulationsablaufs, aktualisiert wird. Als Ersatzmodell für ein datenbasiertes Konstitutivgesetz bietet sich die Gaußprozess-Regression an [86]. Solch ein adaptives Schema wurde bereits mit IMM für Poiseuille-Strömungen [87] kombiniert oder für den Fluss einer Polymerschmelze um ein Hindernis mittels dissipativer Partikeldynamik (DPD) [88] angewendet.

Im Folgenden sollen kurz die Grundlagen der Gaußprozess-Regression veranschaulicht werden. Für eine ausführliche und mathematisch rigorose Darstellung sei auf das Lehrbuch von Rasmussen und Williams [89] verwiesen. Ein Gaußprozess ist eine Verallgemeinerung der multivariaten Gauß-Normalverteilung auf Funktionenräume. Für das Regressionsverfahren nutzt man die Eigenschaft der Geschlossenheit unter Marginalisierung und Konditionierung aus. Um dies zu veranschaulichen, betrachtet man eine normalverteilte D -dimensionale Zufallsvariable, $\mathbf{y} \sim \mathcal{N}(\boldsymbol{\mu}, \mathbf{C})$ mit Erwartungswert $\boldsymbol{\mu} \in \mathbb{R}^D$ und Kovarianzmatrix $\mathbf{C} \in \mathbb{R}^{D \times D}$. Insbesondere sei \mathbf{y} eine aus \mathbf{y}_1 und \mathbf{y}_2 zusammengesetzte Zufallsvariable, d. h.

$$\mathbf{y} = \begin{pmatrix} \mathbf{y}_1 \\ \mathbf{y}_2 \end{pmatrix} \sim \mathcal{N} \left[\begin{pmatrix} \boldsymbol{\mu}_1 \\ \boldsymbol{\mu}_2 \end{pmatrix}, \begin{pmatrix} \mathbf{C}_{11} & \mathbf{C}_{12} \\ \mathbf{C}_{21} & \mathbf{C}_{22} \end{pmatrix} \right], \quad (2.17)$$

mit $\boldsymbol{\mu}_1 \in \mathbb{R}^M$, $\boldsymbol{\mu}_2 \in \mathbb{R}^N$, $\mathbf{C}_{11} \in \mathbb{R}^{M \times M}$, $\mathbf{C}_{22} \in \mathbb{R}^{N \times N}$ und $\mathbf{C}_{12} = \mathbf{C}_{21}^\top \in \mathbb{R}^{M \times N}$, wobei $M+N = D$. Unter der Eigenschaft der Geschlossenheit unter Marginalisierung versteht man, dass

$\mathbf{y}_1 \sim \mathcal{N}(\boldsymbol{\mu}_1, \mathbf{C}_{11})$ ebenfalls normalverteilt ist – die übrigen Freiheitsgrade werden sozusagen „herausintegriert“⁵. Durch Konditionierung auf eine Teilmenge der Zufallsvariablen erhält man ebenfalls eine Normalverteilung

$$\mathbf{y}_1 | \mathbf{y}_2 \sim \mathcal{N}(\boldsymbol{\mu}_1 + \mathbf{C}_{12} \mathbf{C}_{22}^{-1} (\mathbf{y}_2 - \boldsymbol{\mu}_2), \mathbf{C}_{11} - \mathbf{C}_{12} \mathbf{C}_{22}^{-1} \mathbf{C}_{21}), \quad (2.18)$$

wobei der veränderte Erwartungswert sowie die veränderte Kovarianz-Matrix in geschlossener Form vorliegen. Für die Berechnung muss eine Matrix invertiert werden, die der Dimension der Konditionierungsvariable \mathbf{y}_2 entspricht – die numerische Komplexität ist demnach $\mathcal{O}(N^3)$.

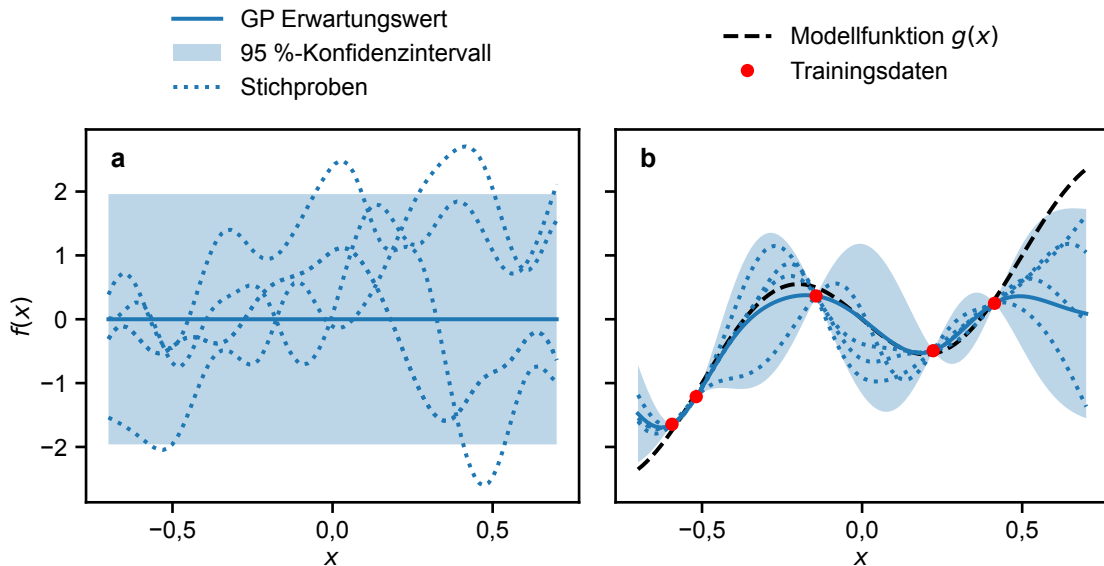


Abbildung 2.1.: Bayes'sche Inferenz mittels Gaußprozess-Regression. (a) Erwartungswert, Konfidenzintervall, sowie vier Stichproben eines Gaußprozesses mit radialer Basisfunktion als Kernel, mit $\sigma = 1$, $l = 0.1$ und *a priori*-Mittelwert $m(x) = 0$. Die Stichproben wurden vor der Konditionierung und Optimierung genommen. (b) Genau wie (a) nur nach der Konditionierung mit fünf zufällig gewählten Trainingsdatenpunkten mit Messungenauigkeit $\sigma_n = 0.1$. Nach der Optimierung ist $\sigma \approx 0.72$ und $l \approx 1.49$.

Wie bereits erwähnt ist ein Gaußprozess eine Erweiterung der multivariaten Gaußverteilung auf kontinuierliche Zufallsvariablen, man schreibt

$$f(x) \sim \mathcal{GP} [(m(x), k(x, x'))]. \quad (2.19)$$

⁵ In der Tat ist die marginale Verteilungsfunktion durch das Integral $p(\mathbf{y}_1) = \int p(\mathbf{y}) d\mathbf{y}_2$ gegeben. Im Falle normalverteilter Zufallsvariablen ist das Ergebnis wiederum normalverteilt.

Statt endlich-dimensionaler Vektoren und Matrizen zur Beschreibung des Erwartungswerts und der Kovarianz, werden diese nun durch eine Mittelwert-Funktion $m(x)$ und eine Kovarianz-Funktion (auch Kernel) $k(x, x')$ ersetzt. Der Gaußprozess beschreibt also eine Wahrscheinlichkeitsverteilung über Funktionen. Mithilfe der oben beschriebenen Konditionierung können Gaußprozesse als Regressionschema verwendet werden. Abbildung 2.1a zeigt vier Stichproben eines Gaußprozesses mit $m(x) = 0$ und einer radialen Basisfunktion als Kovarianz-Funktion

$$k(x, x') = \sigma^2 \exp\left(-\frac{(x - x')^2}{2l^2}\right), \quad (2.20)$$

wobei l eine Korrelationslänge und σ^2 die Varianz des Kernels beschreibt. Basierend auf diskreten Trainingsdaten \mathbf{g}^* soll nun eine unbekannte Funktion $g(x)$ „gelernt“ werden, wobei die Trainingsdaten mit einem normalverteilten Messfehler $\epsilon \sim \mathcal{N}(0, \sigma_n^2)$ behaftet sind. Durch Konditionierung auf die Trainingsdaten analog zu Gl. (2.18) kann nun auf wahrscheinliche Funktionen geschlossen werden, wie in Abb. 2.1b dargestellt⁶. Obwohl die Gaußprozess-Regression eine parameterfreie Regressionsmethode ist, existieren sogenannte Hyperparameter, z. B. die Korrelationslänge l oder die Varianz des Kernels σ^2 , welche die Eigenschaften der Vorhersage beeinflussen. Für eine möglichst gute Vorhersage werden diese Hyperparameter durch Optimierungsalgorithmen zur *Maximum-Likelihood*-Abschätzung bestimmt. Wie schon in Gl. 2.18 gesehen, wächst der Aufwand der Vorhersage kubisch mit der Anzahl an Trainingsdaten. Es existieren jedoch zahlreiche Methoden die Komplexität des Trainings zu verringern, z. B. durch sogenannte *sparse*, also etwa „dünnbesetzte“, Gaußprozesse. Bei dünnbesetzten Gaußprozessen wird angenommen, dass die Modellfunktion durch $M \ll N$ Trainingdaten gut genug beschrieben wird, sodass sich die Komplexität reduziert zu $\mathcal{O}(NM^2)$. Die Lage der reduzierten Trainingsdaten ist dann auch Teil der Optimierung, siehe z. B. Ref. [90].

Bezüglich der Anwendung in adaptiven Multiskalensimulationen ist die Gaußprozess-Regression als Bayes'sche, parameterfreie Methode sehr gut geeignet, da sie neben einem Erwartungswert auch dessen Unsicherheit angibt. Stößt man im Laufe einer Simulation auf Makrozustände, die weit entfernt von bereits durchgeführten Mikrosimulationen liegen, ist die Vorhersageunsicherheit i. d. R. groß. Mithilfe einer Unsicherheitstoleranz kann somit entschieden werden, ob eine neue Mikrosimulation notwendig ist, die dann einer stetig

⁶ Die Marginalisierungseigenschaft wird implizit immer dann verwendet, wenn bei der numerischen Behandlung auf diskreten Teilmengen des reellen Zahlenraums operiert wird. Z. B. wurden für die grafischen Darstellungen in Abb. 2.1 je 100 äquidistante Punkte entlang $x \in \mathbb{R}$ gewählt.

wachsenden Trainingsdatenbank hinzugefügt wird. Eine derartige Bestimmung neuer Trainingsdaten ist ein Beispiel für aktives Lernen, das wiederum einen Spezialfall Bayes'scher Optimierungsverfahren darstellt. Während bei Bayes'schen Optimierungsverfahren meist *Exploitation* – die möglichst genaue Auflösung eines kritischen Punktes (z. B. eines Maximums) – das Ziel ist, steht beim aktiven Lernen die *Exploration* – die möglichst genaue Vorhersage einer Funktion überall in einem vorgegebenen Intervall – im Vordergrund [91]. Die Akquisitionsfunktion wählt dabei den Punkt der nächsten Trainingsdatenerfassung, welcher beim aktiven Lernen durch die maximale Vorhersageunsicherheit $\operatorname{argmax}[\operatorname{var}(f)]$ gegeben ist.⁷

2.5. Zielsetzung der Arbeit

Die Grundgleichung der Schmierungsmodellierung ist seit über 130 Jahren bekannt und wird in Industrie und Forschung erfolgreich angewendet. Beim Übergang zu extrem dünnen Schmierespalten und den damit einhergehenden extremen Bedingungen stellt sich jedoch die Frage nach der Gültigkeit der Reynoldsgleichung. MD-Simulationen einfacher Fluide haben gezeigt, dass kontinuumsmechanische Beschreibungen des Fluidfilms bis zur Größenordnung weniger molekularer Durchmesser, wo ein Übergang zu festkörperartigen Eigenschaften sowohl experimentell als auch simulativ beobachtet wurde, gültig bleiben. Unbestreitbar ist jedoch, dass das konstitutive Verhalten eines Schmierfilms eine komplexe Funktion der chemischen Struktur, der Umgebungs- und Belastungsbedingungen (z. B. Druck, Temperatur, Scherrate), sowie der Fluid-Wand Grenzfläche ist.

Verschiedene Ansätze zur Integration partikelbasierter Beschreibungen des Konstitutivverhaltens fluidischer Systeme in makroskopische Kontinuumsberechnungen existieren, doch effiziente, simultane Multiskalenmethoden für die Simulation von Schmierprozessen sind bisher noch nicht etabliert. Mit Methoden des maschinellen Lernens können Ersatzmodelle entwickelt werden, welche die besten Eigenschaften simultaner und sequentieller Schemata kombinieren.

Im Rahmen dieser Arbeit soll eine Multiskalenmethode für Schmierungsprobleme entwickelt werden. Der Fokus soll dabei auf der Entwicklung eines kontinuumsmechanischen

⁷ Aktives Lernen wird im Kontext des überwachten maschinellen Lernens i. A. als die interaktive Abfrage neuer Trainingsdaten durch einen Lernalgorithmus bezeichnet und umfasst ein Vielzahl an Strategien. Hier wird nur auf den Spezialfall des aktiven Lernens anhand von Gaußprozessen eingegangen.

Lösers liegen, der sowohl konventionelle Konstitutivgesetze als auch Spannungskomponenten, die direkt aus MD-Simulationen kommen und keiner expliziten funktionalen Form unterliegen, handhaben kann. Ziel der Arbeit ist weniger die Realisierung eines vollständigen Multiskalen-Lösers, sondern vielmehr die grundlegende Konzeption, numerische und analytische Validierung, sowie eine Analyse von Anwendungspotentialen, auch im Hinblick auf die Ersatzmodellierung mithilfe der Methoden des maschinellen Lernens.

3. Methoden

Der Inhalt des folgenden Kapitels beschreibt die wesentlichen Methoden für Multiskalensimulationen von Schmierprozessen, die im Rahmen dieser Arbeit entwickelt wurden. Wesentliche Teile dieses Kapitels wurden bereits veröffentlicht. Die Abschnitte 3.1, 3.2 und 3.4 basieren auf Ref. [P1], während der Abschnitt 3.3 in Ref. [P2, P3] veröffentlicht wurde.

3.1. Höhengemittelte Bilanzgleichungen

Die lokale Form der Massen- und Impulsbilanz ist durch die partielle Differentialgleichung

$$\partial_t \mathbf{q} = -\nabla \cdot \mathbf{F}(\mathbf{q}) \quad (3.1)$$

gegeben, wobei \mathbf{q} den Dichtevektor der Erhaltungsgrößen (Masse und Impuls) und $\mathbf{F}(\mathbf{q})$ die dazugehörige Flussfunktion bezeichnet, die durch eine 4×3 -Matrix dargestellt werden kann

$$\mathbf{q} = \begin{pmatrix} \rho \\ \vec{j} \end{pmatrix}, \quad \mathbf{F}(\mathbf{q}) = \begin{pmatrix} \vec{j} \\ \frac{1}{\rho}(\vec{j} \otimes \vec{j}) + p\mathbf{1} - \underline{\tau}(\mathbf{q}) \end{pmatrix}, \quad (3.2)$$

wobei ρ die Massendichte und \vec{j} die Impulsdichte ist. Die erste Zeile von \mathbf{F} enthält die Komponenten von \vec{j} , der auch als Massenflussvektor bezeichnet werden kann. Der Impulstransport enthält einen konvektiven Beschleunigungsterm $(\vec{j} \otimes \vec{j})/\rho$, sowie den Druckterm $p\mathbf{1}$, wobei $\mathbf{1}$ die 3×3 -Einheitsmatrix bezeichnet. In einer kompressiblen Flüssigkeit wird der Druck durch die Zustandsgleichung definiert. Im Rahmen dieser Arbeit werden nur isotherme Bedingungen betrachtet, sodass auf eine Betrachtung der Energiebilanz verzichtet werden kann¹ und die Zustandsgleichung durch den Zusammenhang von Druck und

¹ Das hier vorgestellte Prinzip ist i. A. für Erhaltungsgleichungen gültig, also auch für die Energiebilanz. Lediglich die explizite Behandlung des Mikroproblems für nicht-isotherme Probleme wurde im Rahmen dieser Arbeit nicht vorgenommen bzw. nicht implementiert.

Massendichte $p = p(\rho)$ gegeben ist. Schließlich ist der viskose Spannungstensor $\underline{\tau}$ hier als Funktion der Erhaltungsgrößen definiert, der an dieser Stelle nicht weiter spezifiziert werden soll und erst in der analytischen Betrachtung des Mikroproblems in Kap. 3.2 explizit eingesetzt wird.

Die Annahme, dass eine allgemeine Lösung von Gl. (3.1) in eine zeitabhängige Makrolösung $\bar{\mathbf{q}}$, die man durch Mittelung über die Spalthöhe erhält, und eine stationäre Mikrolösung $\delta\mathbf{q}$, welche die Erhaltungsgrößen in der Spalthöhenkoordinate lokal auflöst, aufgespalten werden kann, führt auf

$$\mathbf{q}(x,y,z,t) = \bar{\mathbf{q}}(x,y,t) + \delta\mathbf{q}(z). \quad (3.3)$$

Die Gültigkeit und Implikationen dieses Ansatzes werden bei der Behandlung des Mikroproblems diskutiert. Im Folgenden soll die Lösung des Makro- und des Mikroproblems getrennt behandelt werden, eine Situation, die mit Multiskalensimulationen vergleichbar ist, bei denen eine genauere Methode verwendet wird, um eine „Mikrolösung“ zu erhalten, deren Information auf einer größeren Skala genutzt wird. Gleichzeitig definiert das Makroproblem die Randbedingungen des Mikroproblems.

3.1.1. Das Makroproblem

Eine zweidimensionale Beschreibung erhält man durch Mittelung von Gl. (3.1) in z -Richtung

$$\frac{1}{h} \int_{h_1}^{h_2} \partial_t \mathbf{q} dz = -\frac{1}{h} \int_{h_1}^{h_2} (\partial_x f_x + \partial_y f_y + \partial_z f_z) dz, \quad (3.4)$$

wobei f_i die i -te Spalte der Flussfunktionsmatrix F (d. h. den Fluss in Richtung i) bezeichnet, $h_1(x_1, y_1)$ und $h_2(x_2, y_2)$ sind die Höhenprofile der unteren bzw. oberen Oberfläche und ihre Differenz wird mit h bezeichnet, wie in Abb. 3.1a gezeigt. Man beachte, dass die Höhenprofile in wandfesten Koordinatensystemen ausgedrückt werden, welche sich relativ zum globalen Bezugssystem mit konstanten Geschwindigkeitsvektoren $\vec{U}_1 = (U_1, V_1, 0)^\top$ und $\vec{U}_2 = (U_2, V_2, 0)^\top$ bewegen.

Wendet man die Leibnizregel für Parameterintegrale sowie die Produktregel an, so lautet die linke Seite von Gl. (3.4)

$$\begin{aligned} \int_{h_1}^{h_2} \partial_t \mathbf{q} dz &= \partial_t \int_{h_1}^{h_2} \mathbf{q} dz - \mathbf{q}|_{z=h_2} \frac{dh_2}{dt} + \mathbf{q}|_{z=h_1} \frac{dh_1}{dt} \\ &= h \partial_t \bar{\mathbf{q}} + (\bar{\mathbf{q}} - \mathbf{q}|_{z=h_2}) \frac{dh_2}{dt} - (\bar{\mathbf{q}} - \mathbf{q}|_{z=h_1}) \frac{dh_1}{dt}, \end{aligned} \quad (3.5)$$

und in ähnlicher Weise erhält man für den ersten Term auf der rechten Seite von Gl. (3.4)

$$\begin{aligned} \int_{h_1}^{h_2} \partial_x f_x dz &= \partial_x \int_{h_1}^{h_2} f_x dz - f_x|_{z=h_2} \frac{\partial h_2}{\partial x} + f_x|_{z=h_1} \frac{\partial h_1}{\partial x} \\ &= h \partial_x \bar{f}_x + (\bar{f}_x - f_x|_{z=h_2}) \frac{\partial h_2}{\partial x} - (\bar{f}_x - f_x|_{z=h_1}) \frac{\partial h_1}{\partial x}, \end{aligned} \quad (3.6)$$

wobei Höhenmittelwerte durch Überstriche bezeichnet werden, $\bar{\phi} = \frac{1}{h} \int_{h_1}^{h_2} \phi dz$ (siehe Anhang A.1 für eine detaillierte Herleitung). Der zweite Term unter dem Integral auf der rechten Seite von Gl. (3.4) ist identisch, lediglich x wird durch y ersetzt. Der dritte Term kann direkt an den Rändern, also an der oberen und unteren Wand, ausgewertet werden

$$\frac{1}{h} \int_{h_1}^{h_2} \partial_z f_z dz = \frac{1}{h} (f_z|_{z=h_2} - f_z|_{z=h_1}). \quad (3.7)$$

Damit lautet das gemittelte Schema

$$\partial_t \bar{q} = -\partial_x \bar{f}_x - \partial_y \bar{f}_y - \mathbf{s}, \quad (3.8)$$

mit

$$\begin{aligned} \mathbf{s} = \frac{1}{h} \left[\frac{\partial h_2}{\partial x} (\bar{f}_x - f_x|_{z=h_2}) - \frac{\partial h_1}{\partial x} (\bar{f}_x - f_x|_{z=h_1}) \right. \\ \left. + \frac{\partial h_2}{\partial y} (\bar{f}_y - f_y|_{z=h_2}) - \frac{\partial h_1}{\partial y} (\bar{f}_y - f_y|_{z=h_1}) \right. \\ \left. - \frac{dh_2}{dt} (\bar{q} - q|_{z=h_2}) + \frac{dh_1}{dt} (\bar{q} - q|_{z=h_1}) + f_z|_{z=h_2} - f_z|_{z=h_1} \right]. \end{aligned} \quad (3.9)$$

Gleichung (3.8) besteht also aus einem zweidimensionalen Divergenzoperator, der auf höhengemittelte Flussfunktionen wirkt, und aus weiteren Termen, die sowohl gemittelte als auch ungemittelte Flussfunktionen enthalten, wobei letztere an der oberen und unteren Wand ausgewertet werden. Die Terme außerhalb des Divergenzoperators können aufgrund der Dimensionsreduktion als geometrische Quellterme betrachtet werden und sind in Gl. (3.9) zusammengefasst. Die materiellen Zeitableitungen für die obere ($i = 2$) und untere Wand ($i = 1$) können mithilfe der Wandgeschwindigkeit als

$$\frac{dh_i}{dt} = \frac{\partial h_i}{\partial x} U_i + \frac{\partial h_i}{\partial y} V_i \quad (3.10)$$

geschrieben werden. Ohne Verlust der Allgemeinheit kann angenommen werden, dass die untere Wand flach ($h_1 = \text{const.}$) und die obere Wand stationär ist ($\vec{U}_2 = \vec{0}$). Damit vereinfacht sich der Ausdruck für den Quellterm erheblich zu

$$s = \frac{1}{h} \left[\frac{\partial h}{\partial x} (\bar{f}_x - f_x|_{z=h_2}) + \frac{\partial h}{\partial y} (\bar{f}_y - f_y|_{z=h_2}) + f_z|_{z=h_2} - f_z|_{z=h_1} \right]. \quad (3.11)$$

Die in Kap. 4.2 und 4.3 vorgestellten numerischen Tests wurden ausschließlich unter Verwendung des vereinfachten Quellterms durchgeführt, aber eine Implementierung für Probleme mit zwei rauen Wänden ist prinzipiell möglich. Für flache Kanäle, bei denen die Gradienten der unteren Wand verschwinden, besteht der Quellterm daher nur aus Impulsflussbeiträgen in z -Richtung, die an der oberen bzw. unteren Wand ausgewertet werden.

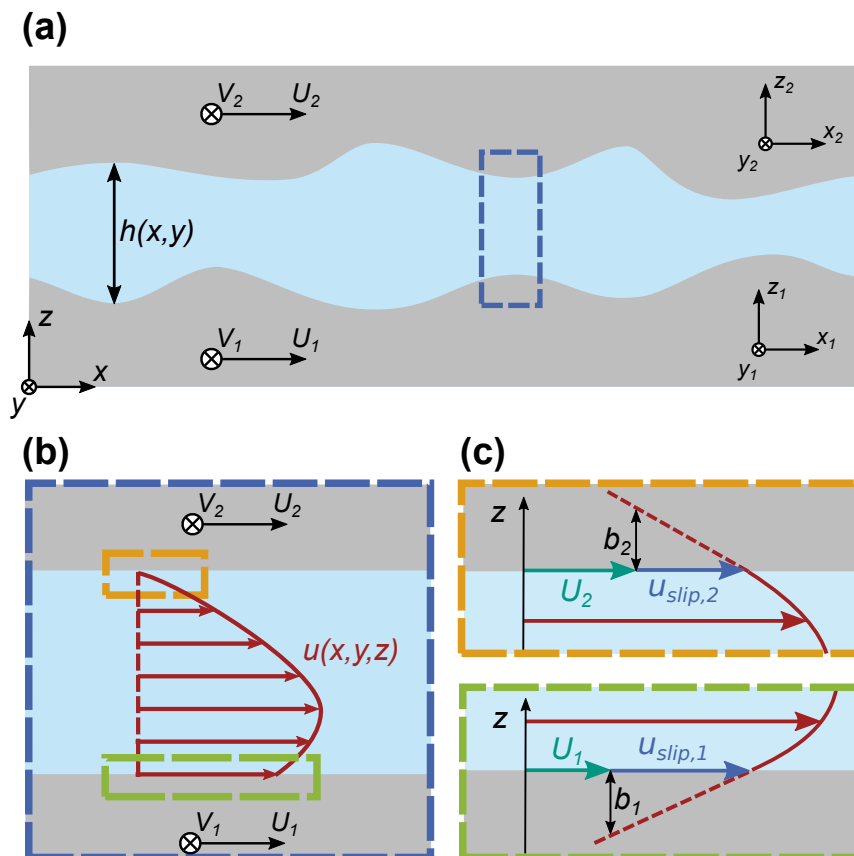


Abbildung 3.1.: Schematische Darstellung des Schmierspalts und Visualisierung des Separationsansatzes. (a) Zweidimensionaler Schnitt durch den Schmierspalt mit Höhenprofilen der oberen und unteren Wand in den lokalen Koordinatensystemen (x_i, y_i, z_i) , welche sich mit konstanten Geschwindigkeiten $\vec{U}_i = (U_i, V_i, 0)^T$, $i \in [1, 2]$ bewegen. Das Mikroproblem ist als Ausschnitt des Makroproblems als blaue Box gekennzeichnet. (b) Die Lösung des Mikroproblems hängt nicht mehr von den Höhengradienten der Oberfläche ab. (c) Die Abweichung von Haftbedingungen wird durch die Navier-Schlupflänge an der oberen und unteren Wand berücksichtigt. Abbildung übernommen aus Ref. [P1] (CC BY 4.0).

Das höhengemittelte Schema, welches das Makroproblem löst, ist explizit als Funktion der Erhaltungsgrößen (bzw. deren Dichten) formuliert und enthält keine *a priori* Annahmen über das Konstitutivgesetz des Schmiermittels, das in der Flussfunktion durch die Zustandsgleichung $p(\rho)$ und den viskosen Spannungstensor $\underline{\tau}(\mathbf{q})$ enthalten ist. Die funktionale Form des Flusses ergibt sich aus der Formulierung des im folgenden Abschnitt diskutierten Mikroproblems.

3.1.2. Das Mikroproblem

Die für das Mikroproblem maßgebliche Gleichung ergibt sich durch Einsetzen des Separationsansatzes, Gl. (3.3), in Gl. (3.1)

$$\frac{\partial \bar{q}}{\partial t} = -\frac{\partial \bar{f}_x}{\partial x} - \frac{\partial \bar{f}_y}{\partial y} - \frac{\partial \bar{f}_z}{\partial z} \cdot \frac{\partial \delta \mathbf{q}}{\partial z}. \quad (3.12)$$

Unter Verwendung von Gl. (3.8), der Bestimmungsgleichung des Makroproblems, erhalten wir

$$\frac{\partial \bar{f}_z}{\partial z} \cdot \frac{\partial \delta \mathbf{q}}{\partial z} = \mathbf{s}_0 = \text{const.}, \quad (3.13)$$

wobei $\mathbf{s}_0 \equiv \mathbf{s}|_{x_0, y_0, t_0}$ ein konstanter Quellterm des Mikroproblems an der Stelle (x_0, y_0) zum Zeitpunkt t_0 ist und die Jacobi-Matrix lautet

$$\frac{\partial \bar{f}_z}{\partial \delta \mathbf{q}} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 1 \\ -\frac{j_x j_z}{\rho^2} + \frac{\partial \tau_{xz}}{\partial \rho} & \frac{j_z}{\rho} + \frac{\partial \tau_{xz}}{\partial j_x} & \frac{\partial \tau_{xz}}{\partial j_y} & \frac{j_x}{\rho} + \frac{\partial \tau_{xz}}{\partial j_z} \\ -\frac{j_y j_z}{\rho^2} + \frac{\partial \tau_{yz}}{\partial \rho} & \frac{\partial \tau_{yz}}{\partial j_x} & \frac{j_z}{\rho} + \frac{\partial \tau_{yz}}{\partial j_y} & \frac{j_y}{\rho} + \frac{\partial \tau_{yz}}{\partial j_z} \\ -\frac{j_z^2}{\rho^2} + \frac{\partial(\tau_{zz} + p)}{\partial \rho} & \frac{\partial \tau_{zz}}{\partial j_x} & \frac{\partial \tau_{zz}}{\partial j_y} & \frac{2j_z}{\rho} + \frac{\partial \tau_{zz}}{\partial j_z} \end{pmatrix}. \quad (3.14)$$

Aus der ersten Zeile von Gl. (3.13) geht hervor, dass $\partial_z \delta q_4 = \text{const.}$ Da es keinen Massenfluss durch die Wände geben kann, verschwindet der Massenfluss in z -Richtung über der gesamten Spalthöhe, d. h. $q_4 = j_z = 0$. Der Separationsansatz, also die Trennung der Erhaltungsgrößen in einen zeitabhängigen, lateralen und einen zeitunabhängigen, lokalen Anteil impliziert somit die Annahme einer laminaren Strömung. Die Gültigkeit dieser Annahme kann mithilfe der Reynoldszahl begründet werden, die für dünne Filme i. d. R. klein

ist, d. h. dass viskose Kräfte die Trägheitskräfte dominieren [14]. Das Randwertproblem (3.13) kann daher vereinfacht werden zu

$$\begin{pmatrix} \frac{\partial \tau_{xz}}{\partial \rho} & \frac{\partial \tau_{xz}}{\partial j_x} & \frac{\partial \tau_{xz}}{\partial j_y} \\ \frac{\partial \tau_{yz}}{\partial \rho} & \frac{\partial \tau_{yz}}{\partial j_x} & \frac{\partial \tau_{yz}}{\partial j_y} \\ \frac{\partial(\tau_{zz}+p)}{\partial \rho} & \frac{\partial \tau_{zz}}{\partial j_x} & \frac{\partial \tau_{zz}}{\partial j_y} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \frac{\partial \delta \rho}{\partial z} \\ \frac{\partial \delta j_x}{\partial z} \\ \frac{\partial \delta j_y}{\partial z} \end{pmatrix} = \frac{\partial}{\partial z} \begin{pmatrix} \tau_{xz} \\ \tau_{yz} \\ p + \tau_{zz} \end{pmatrix} = \text{const.} \quad (3.15)$$

Gleichung (3.15) bestimmt den Verlauf der übrigen Erhaltungsgrößen über der Spalthöhe und veranschaulicht die Beziehung zwischen Mikro- und Makroproblem. Einerseits werden die lokalen Spannungen durch die makroskopischen Strömungsbedingungen bestimmt, während andererseits diese Spannungen die zeitliche Entwicklung der makroskopischen Variablen bestimmen. Außerdem wird hier deutlich, dass die Spaltgeometrie auf der Mikroskala keine Rolle mehr spielt, wie Abb. 3.1b verdeutlicht. Bei einer Multiskalensimulation kann das Mikroproblem dann durch eine genauere Simulationsmethode, wie z. B. die Molekulardynamik (MD), ersetzt werden, welche die Gradienten in der Spalthöhe nicht auflösen muss, was insbesondere bei der Verwendung von periodischen Randbedingungen von Vorteil ist. Bevor ein solcher Multiskalenansatz diskutiert wird, sollen zunächst geläufige Konstitutivgesetze eingesetzt werden, die zu den bekannten Ergebnissen der Schmierungsmodellierung führen.

3.2. Analytische Behandlung des Mikroproblems

Bisher wurde die Struktur des Mikroproblems in Kap. 3.1.2 nur formal hergeleitet, ohne explizite Verwendung von Konstitutivgesetzen. Im folgenden Abschnitt werden allgemeine konstitutive Beziehungen, sowohl für die viskosen Spannungen als auch für die Kompressibilität des Fluids, eingeführt. Damit erhält man eine geschlossene Form des Mikroproblems, dessen Lösungen in das Makroproblem eingesetzt werden können, welches dann mit den in Kap. 3.4 vorgestellten numerischen Methoden gelöst werden kann. Dabei werden zahlreiche Aspekte der Schmierungsmodellierung, einschließlich Wandschlupf, nicht-Newton'sche Flüssigkeiten und Kavitation behandelt.

3.2.1. Newton'sche Flüssigkeiten

Wie bereits in Kap. 2.2 eingeführt ist der viskose Anteil des Spannungstensors für Newton'sche Flüssigkeiten eine lineare Funktion des Geschwindigkeitsgradienten $\nabla \vec{v}$

$$\underline{\tau} = \eta (\nabla \vec{v} + (\nabla \vec{v})^\top) + \left(\zeta - \frac{2}{3}\eta\right) (\nabla \cdot \vec{v}) \underline{1}, \quad (3.16)$$

wobei η und ζ die Scher- bzw. Volumenviskosität beschreiben. Um die Komponenten des viskosen Spannungstensors $\underline{\tau}$ in Form von \bar{q} auszudrücken, soll die vereinfachte Form des Randwertproblems für $\underline{\tau}$ in Gl. (3.15) verwendet werden. Aus den ersten beiden Zeilen entnimmt man

$$\frac{\partial \tau_{xz}}{\partial z} \propto \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} = \text{const.}, \quad (3.17a)$$

$$\frac{\partial \tau_{yz}}{\partial z} \propto \frac{\partial^2 v}{\partial z^2} = \text{const.}, \quad (3.17b)$$

wobei $u(z)$ und $v(z)$ die lateralen Komponenten des lokalen Geschwindigkeitsfeldes $\vec{v}(x_0, y_0, z) = (u, v, w)^T$ sind, welche durch Polynome zweiten Grades beschrieben werden können,

$$u(z) = \alpha_1 z^2 + \beta_1 z + \gamma_1, \quad (3.18a)$$

$$v(z) = \alpha_2 z^2 + \beta_2 z + \gamma_2. \quad (3.18b)$$

Dieses Ergebnis ist analog zu Gl. (2.10a) und (2.10b) bzw. (2.11) aus der Herleitungsskizze der Reynoldsgleichung in Kap. 2.2. Die Geschwindigkeitskomponente senkrecht zur Wand $w(z)$ verschwindet, wie bereits in Abschnitt 3.1.2 gezeigt. Die Parameter β_i und γ_i , $i = 1, 2$ werden aus den Randbedingungen an der unteren und oberen Wand bestimmt, nämlich

$$u(h_1) = U_1 + u_{\text{slip},1}, \quad (3.19a)$$

$$u(h_2) = U_2 + u_{\text{slip},2}, \quad (3.19b)$$

$$v(h_1) = V_1 + v_{\text{slip},1}, \quad (3.19c)$$

$$v(h_2) = V_2 + v_{\text{slip},2}, \quad (3.19d)$$

wobei $u_{\text{slip},i}$ und $v_{\text{slip},i}$ Schlupfgeschwindigkeiten sind, auf die in Kap. 3.2.2 genauer eingegangen wird.

Aus der dritten Zeile von Gl. (3.15) erhält man $\partial_z p = \text{const.}$ Unter Vernachlässigung von Volumenkräften in z -Richtung muss der Druck an der oberen und unteren Wand gleich sein, und daher findet man das Ergebnis $p(z) = \text{const.}$, welches aus der Herleitung der Reynoldsgleichung (Gl. (2.10c)) bekannt ist. Damit ist auch die Massendichte über der Spalthöhe konstant und mit der Definition des gemittelten Massenflussvektors

$$\vec{j} = \frac{\rho}{h} \int_{h_1}^{h_2} \vec{v} \, dz, \quad (3.20)$$

erhält man die restlichen Parameter α_i , die den Poiseuille-Beitrag zur Strömung beschreiben. Dies ermöglicht es, den viskosen Spannungstensor gemäß Gl. (3.16) als Funktion der höhengemittelten Erhaltungsgrößen zu beschreiben, d. h. alle Einträge der Flussmatrix sind gegeben, $F \equiv F(\vec{q})$. Die Berechnung des Quellterms erfordert auch ungemittelte Flusswerte an der oberen und unteren Wand, die automatisch durch die Wahl der Geschwindigkeits- und Dichteprofile definiert sind.

3.2.2. Wandschlupf

In vielen fluidmechanischen Problemstellungen wird davon ausgegangen, dass die Relativgeschwindigkeit zwischen einem Fluid und einer Wand an dieser verschwindet. In sehr dünnen Schmierespalten, wie z. B. bei der Grenzflächenschmierung, ist diese Annahme nicht mehr gültig, da die mit der Schlupfgeschwindigkeit assoziierte Längenskala in der Größenordnung der Spalthöhe liegt und somit nicht mehr vernachlässigt werden kann. Wandschlupf wird üblicherweise durch die Navier-Schlupflänge b quantifiziert [92]. Das Konzept der Schlupflänge ergibt sich aus der Annahme, dass die Grenzflächen-Schubspannung proportional zur Schlupfgeschwindigkeit ist, wobei die Proportionalitätskonstante die Reibung zwischen Fluid und Festkörper quantifiziert. Unter Verwendung der Konstitutivgleichung für Newton'sche Fluide, Gl. (3.16), kann die Schlupflänge daher als Kombination einer reinen Volumeneigenschaft (Scherviskosität) mit einer reinen Grenzflächeneigenschaft (Reibung) beschrieben werden [93]. Eine geometrische Interpretation der Schlupflänge ist gegeben durch den Abstand zwischen der Wand und dem Punkt, bei dem die Relativgeschwindigkeit zwischen Wand und Fluid bei linearer Extrapolation des

Geschwindigkeitsprofils verschwindet, wie in Abb. 3.1c gezeigt. Daraus ergibt sich der folgende Ausdruck für die Schlupfgeschwindigkeiten

$$u_{\text{slip},i} = \pm b_i \left(\frac{\partial u}{\partial z} \right)_{z=h_i}, \quad (3.21a)$$

$$v_{\text{slip},i} = \pm b_i \left(\frac{\partial v}{\partial z} \right)_{z=h_i}, \quad (3.21b)$$

wobei das positive Vorzeichen für die untere ($i = 1$) und das negative Vorzeichen für die obere Wand ($i = 2$) gilt. Viele Oberflächen haben eine heterogene Oberflächenchemie, oder die Oberflächeneigenschaften können auf bestimmte Stick-Slip-Muster zugeschnitten werden, sodass die Schlupflänge i. A. eine Funktion der lateralen Koordinaten $b_i \equiv b_i(x, y)$ ist.

3.2.3. Nicht-Newton'sche Fluide

Komplexe Schmierstoffe weichen häufig vom Newton'schen Verhalten ab, insbesondere wenn sie hohen Drücken und/oder hohen Scherraten ausgesetzt sind. Nicht-Newton'sche Effekte können durch eine verallgemeinerte Newton'sche Fluidbeschreibung modelliert werden, bei der eine effektive Viskosität $\eta_{\text{eff}} = \eta(\dot{\gamma}, p)$ die konstante Viskosität in der Formulierung des viskosen Spannungstensors, Gl. (3.16), ersetzt. Beispielsweise werden dann scherverdünnendes oder piezoviskoses Verhalten als nichtlineare Funktion der Scherrate $\dot{\gamma}$ bzw. des Drucks p beschrieben. Effekte, die von der Verformungsgeschichte abhängen, werden von dem verallgemeinerten Newton'schen Flüssigkeitsmodell nicht erfasst.

Die Berücksichtigung von Druckabhängigkeit stellt sich als einfach heraus, da der Druck über der Spalthöhe als Ergebnis des Separationsansatzes konstant ist. Ein typisches Modell für die Druckabhängigkeit der Viskosität ist die Barus-Gleichung [94]

$$\eta(p) = \eta_0 \exp(\alpha p), \quad (3.22)$$

wobei α der Druckviskositätskoeffizient ist, der üblicherweise zwischen 10 und 20 GPa⁻¹ liegt. Obwohl bekannt ist, dass Gl. (3.22) die Viskosität für höhere Drücke überschätzt und genauere empirische Modifikationen existieren [95, 96], wird sie immer noch häufig verwendet.

Die Modellierung der Scherratenabhängigkeit gestaltet sich schwieriger, da der Geschwindigkeitsgradient über der Spalthöhe i. A. nicht konstant ist. Daher weichen die Geschwin-

digkeitsprofile von dem Newton'schen quadratischen Verlauf ab und ein effektives Viskositätsgesetz, das von einer höhengemittelten Scherrate abhängt, würde keine gute Vorhersage der Spannungen liefern. Dennoch wird dieser Ansatz für Couette-dominierte Strömungen häufig verfolgt.

Um zu zeigen, dass beliebige Konstitutivbeziehungen in die Lösung des Makroproblems integriert werden können, soll hier das Mikroproblem für ein Potenzgesetz-Fluid (auch Ostwald–de Waele-Fluid [97]) gelöst werden. Wie der Name vermuten lässt, hängen Schubspannungskomponenten von der Scherrate durch ein Potenzgesetz ab

$$\tau = \phi \dot{\gamma}^n, \quad (3.23)$$

wobei n der Fließindex ist, der das scherverdünnende (auch: strukturviskos, $n < 0$) oder scherverdickende (auch: dilatant, $n > 0$) Verhalten beschreibt. ϕ wird als Fließkonsistenzindex bezeichnet und hat die Einheit Pa s^n . Für $n = 1$ erhält man das bekannte Newton'sche Fluid.

Man beachte, dass das Potenzgesetz das Verhalten in den Grenzfällen von verschwindender oder unendlicher Scherrate nicht korrekt beschreibt. Typischerweise konvergiert die effektive Viskosität in diesen Grenzfällen zu endlichen Werten (η_0, η_∞), was zum Beispiel in den Scherverdünnungsmodellen nach Carreau [98] oder Eyring [99, 100] berücksichtigt wird. Die Anwendbarkeit des einen oder des anderen Scherverdünnungsmodells kann auch von Druck und/oder Temperatur abhängen. So haben Jadhao und Robbins [101] in einer kürzlich durchgeführten MD-Studie zu Modellflüssigkeiten unter EHL-Bedingungen gezeigt, dass es einen allgemeinen Übergang vom Potenzgesetz-Verhalten bei niedrigem Druck und daher niedriger Viskosität zum Eyring-Verhalten bei hohem Druck gibt. Dennoch soll hier das einfache Potenzgesetzmodell angewendet werden, da es analytisch behandelt werden kann, es sei jedoch darauf hingewiesen, dass grundsätzlich auch komplexere Modelle in das Mikroproblem integriert werden könnten.

Ähnlich wie im Newton'schen Fall in Kap. 3.2.1 wird Gl. (3.15) des Mikroproblems integriert, um die Geschwindigkeitsprofile zu erhalten. Davaa et al. [102] zeigten, dass für die ebene Couette-Poiseuille-Strömung von Potenzgesetz-Fluiden zwei Fälle zu unterscheiden sind:

1. Das Geschwindigkeitsprofil hat ein Maximum innerhalb des Spalts
2. Das Geschwindigkeitsprofil hat entweder ein Minimum innerhalb des Spalts, oder es hat überhaupt kein Extremum innerhalb des Spalts.

Fall 1 erfordert eine abschnittsweise Integration von der unteren Wand $z = 0$ bis zum kritischen Punkt $z = h_1^*$ und vom Ort des Geschwindigkeitsmaximums $z = h_1^*$ bis zur oberen Wand $z = h$, während das Geschwindigkeitsprofil von Fall 2 als ein einziger Ausdruck geschrieben werden kann, der ebenfalls vom Ort des kritischen Punktes h_2^* abhängt, welches nicht notwendigerweise innerhalb des Spalts liegt. Die Geschwindigkeitsprofile haben die Form

$$u^{(1)}(z) = \begin{cases} -\frac{n}{n+1}\alpha_1^{\frac{1}{n}}(h_1^* - z)^{\frac{n+1}{n}} + \beta_1, & 0 \leq z \leq h_1^* \\ -\frac{n}{n+1}\alpha_1^{\frac{1}{n}}(z - h_1^*)^{\frac{n+1}{n}} + \gamma_1, & h_1^* < z \leq h \end{cases} \quad (3.24a)$$

$$u^{(2)}(z) = -\frac{n}{n+1}\alpha_2^{\frac{1}{n}}(h_2^* - z)^{\frac{n+1}{n}} + \beta_2. \quad (3.24b)$$

Ein Spezialfall ist für den Fließindex $n = 1/2$ und Fall 2 zu beachten, falls der kritische Punkt h_2^* innerhalb des Spalts liegt. Dieser stellt dann einen Sattelpunkt dar, und das Geschwindigkeitsprofil muss wie in Fall 1 abschnittsweise berechnet werden.

Eine genauere Beschreibung des Integrationsverfahrens für die Geschwindigkeitsprofile findet sich im Anhang A.2 sowie in Ref. [102]. Die Parameter β_1 , γ_1 und β_2 werden in ähnlicher Weise wie im Newton'schen Fall unter Verwendung von Randbedingungen der Form von Gl. (3.19) ermittelt. Schließlich erhält man α_1 und α_2 aus der Definition der mittleren Impulsdichte, Gl. (3.20). In beiden Fällen müssen jedoch die unbekannt Parameter h_1^* und h_2^* noch bestimmt werden. Im Fall 1 verwendet man die Kontinuität des Geschwindigkeitsprofils bei $z = h_1^*$ als zusätzliche Bedingung für α_1 und im Fall 2 kann die verbleibende Randbedingung an der oberen Wand verwendet werden, um α_2 zu erhalten. Durch Gleichsetzen dieser beiden Ausdrücke für α_i in beiden Fällen erhält man zwei nichtlineare Gleichungen, die h_1^* und h_2^* bestimmen

$$\left[\frac{(1+n)U}{(h - h_1^*)^{\frac{n+1}{n}} - h_1^{*\frac{n+1}{n}}} \right]^n = \left[\frac{(1+2n)(\bar{u}h - U h_1^*)}{h_1^{*\frac{2n+1}{n}} + (h - h_1^*)^{\frac{2n+1}{n}}} \right]^n, \quad (3.25a)$$

$$U = \frac{\bar{u}h \left[h_2^{*\frac{n+1}{n}} - (h_2^* - h)^{\frac{n+1}{n}} \right]}{\frac{n}{2n+1} \left[h_2^{*\frac{2n+1}{n}} - (h_2^* - h)^{\frac{2n+1}{n}} \right] - h(h_2^* - h)^{\frac{n+1}{n}}}, \quad (3.25b)$$

wobei \bar{u} die höhengemittelte Geschwindigkeit bezeichnet. Setzt man $h_1^* = 0$ in Gl. (3.25a), so ergibt sich die kritische Bedingung $U/\bar{u} = (1+2n)/(1+n)$, die den Übergang zwischen den beiden Fällen markiert. Daraus ergeben sich die in Abb. 3.2 gezeigten Geschwindigkeitspro-

file, welche dann verwendet werden, um die Komponenten des viskosen Spannungstensors für das Potenzgesetz-Fluid zu berechnen.

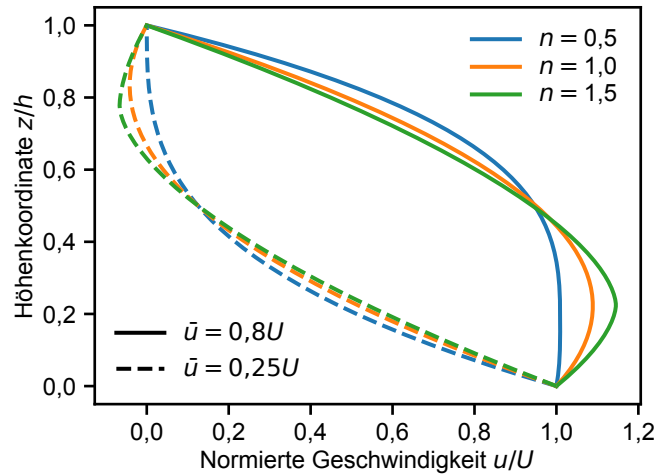


Abbildung 3.2.: Geschwindigkeitsprofile für ein Potenzgesetz-Fluid unter Couette-Poiseuille-Strömung für drei verschiedene Strömungsindizes. Die durchgezogenen Linien stellen den Fall 1 ($\bar{u}/U > (1+n)/(1+2n)$) mit signifikantem Poiseuille-Beitrag dar und die gestrichelten Linien den Fall 2 ($\bar{u}/U < (1+n)/(1+2n)$). Die Strömungsindizes reichen von scherverdünnend ($n = 0.5$) über den Newton'schen Fall ($n = 1$) bis zu scherverdickendem Verhalten ($n = 1.5$). In Anlehnung an Ref. [P1] (CC BY 4.0).

3.2.4. Kavitation

In inkompressiblen Fluiden ist der Druck durch die Spur des Spannungstensors gegeben und kann als Lagrange-Multiplikator für die Lösung der Stokes-Gleichung unter der Inkompressibilitäts-Nebenbedingung $\text{div}(\vec{v}) = 0$ betrachtet werden [103]. Bei kompressiblen Fluiden hingegen ist neben dem viskosen Spannungstensor mit der thermodynamischen Zustandsgleichung eine weitere konstitutive Beziehung Bestandteil der Flussfunktion. Die Auswahl der Zustandsgleichung hängt natürlich vom betrachteten Problem ab und reicht von einfachen linearen Beziehungen, wie dem idealen Gasgesetz, welches für ein Beispielproblem der Luftschmierung in Kap. 4.3.1 verwendet werden soll, zu semi-empirischen Modellen, die häufig für mineralölbasierte Schmiermittel verwendet werden. Ein solches ist z. B. durch die Zustandsgleichung nach Dowson und Higginson [104, 105] gegeben, die im isothermen Fall wie folgt lautet

$$p(\rho) = p_0 + C_1 \frac{\rho - \rho_0}{C_2 \rho_0 - \rho}. \quad (3.26)$$

Die Parameter C_1 und C_2 müssen für die jeweiligen Flüssigkeiten experimentell bestimmt werden.

In vielen Schmierungsanwendungen kann der Druck lokal unter den Sättigungsdampfdruck fallen, was zur Bildung von Dampfblasen führen kann. Die Lebensdauer dieser Bläschen ist sehr kurz, da sie durch die üblicherweise sehr hohen Strömungsgeschwindigkeiten in Bereiche höheren Druckes transportiert werden und dort implodieren. Die damit einhergehenden Spannungsspitzen können zu mechanischen Schäden an Bauteilen, wie z. B. an Schiffspropellern, führen [106]. Für Schmierungsanwendungen spielt die Kavitation eine wichtige Rolle, da somit überhaupt lasttragende hydrodynamische Lagerungen in Spaltgeometrien mit symmetrischen Höhenprofilen möglich sind.

Modelle wie Gl. (3.26) sind nur in einem begrenzten Dichtebereich gültig und können die durch Kavitation auftretenden Phasenübergänge nicht beschreiben. Daher wurden schon sehr früh Methoden zur Behandlung von Kavitation in der Reynoldsgleichung berücksichtigt, wobei die ersten Ansätze die Massenerhaltung verletzen. Heute basieren die geläufigsten Kavitationsmodelle auf den Arbeiten von Jakobsson, Floberg und Olsson (JFO) [107–110], die Randbedingungen für den „Bruch“ und die Neubildung eines Flüssigkeitsfilms unter der Annahme konstanten Drucks im Bereich der Gasphase formulierten. Der Kavitationsalgorithmus von Elrods und Adams (EA) [111, 112] baut auf dem JFO-Ansatz auf und enthält einen Term, der den Poiseuille-Anteil in der Gasphase unterdrückt, sodass eine einzige modifizierte Reynoldsgleichung für das gesamte Simulationsgebiet verwendet werden kann.

Im Rahmen dieser Arbeit werden zwei Ansätze zur Kavitationsmodellierung verwendet, die beide direkt über die Zustandsgleichung implementiert werden können. Im ersten Fall wird die Zustandsgleichung einfach unterhalb des Sättigungsdampfdrucks auf einen konstanten Wert p_{cav} gesetzt, was konzeptionell dem EA-Algorithmus ähnelt. Die zweite Variante ist der Homogenisierungsansatz von Bayada und Chupin [113], bei dem eine einzige Zustandsgleichung gesucht wird, die zwischen der reinen Dampfphase, dem Dampf-Flüssigkeitsgemisch sowie der reinen Flüssigkeit interpoliert, welcher im Folgenden kurz skizziert werden soll.

Für die reine Dampf- bzw. Flüssigkeitsphase wird von einer konstanten Kompressibilität ausgegangen, welche durch die Schallgeschwindigkeiten c_v bzw. c_l definiert sind. Die Annahme, dass beide Phasen des Dampf-Flüssigkeits-Gemischs die gleiche Strömungsgeschwindigkeit haben, ermöglicht eine Homogenisierung, sodass das Schmierungsproblem

überall durch eine Einphasenströmung beschrieben werden kann. Die Interpolation zwischen Dampf und Flüssigkeit geschieht mittels des Volumenanteils der Dampfphase am Gemisch $\alpha = (\rho - \rho_l)/(\rho_v - \rho_l)$, wobei ρ_v und ρ_l die Dichten des Dampfes bzw. der Flüssigkeit an den jeweiligen Übergangspunkten sind. Bayada und Chupin [113] verwenden eine von Van Wijngaarden [114] vorgeschlagene Beziehung

$$\frac{1}{c_f^2} = \rho \left(\frac{\alpha}{c_v^2 \rho_v} + \frac{1 - \alpha}{c_l^2 \rho_l} \right), \quad (3.27)$$

welche die Schallgeschwindigkeit des Gemisches c_f mit dem Dampfanteil verknüpft. Integriert man die Gleichung $dp/d\rho = c_f^2$ in den jeweiligen Bereichen mit der Anfangsbedingung $p(0) = 0$ und setzt die Kontinuität des Drucks beim Übergang vom Dampf zum Gemisch ($\alpha = 1$) sowie vom Gemisch zur Flüssigkeit ($\alpha = 0$) voraus, so erhält man

$$p(\rho) = \begin{cases} c_v^2 \rho, & \alpha \geq 1, \\ p_{\text{cav}} + (\rho - \rho_l) c_l^2, & \alpha \leq 0, \\ p_{\text{vm}} + N \ln \left(\frac{\rho_v c_v^2 \rho}{\rho_l (\rho_v c_v^2 (1 - \alpha) + \rho_l c_l^2 \alpha)} \right), & 0 < \alpha < 1, \end{cases} \quad (3.28)$$

mit dem Druck an den Übergangspunkten vom Dampf zum Gemisch

$$p_{\text{vm}} = \rho_v c_v^2, \quad (3.29)$$

und vom Gemisch zur Flüssigkeit (d. h. der Sättigungsdampfdruck oder Kavitationsdruck)

$$p_{\text{cav}} = \rho_v c_v^2 - N \ln \left(\frac{\rho_v^2 c_v^2}{\rho_l^2 c_l^2} \right), \quad \text{mit } N = \frac{\rho_v c_v^2 \rho_l c_l^2 (\rho_v - \rho_l)}{\rho_v^2 c_v^2 - \rho_l^2 c_l^2}. \quad (3.30)$$

Man beachte, dass die Definition von α in Gl. (3.28) auf Werte größer als eins oder kleiner als null ausgedehnt wird – die Interpretation als Volumenanteil des Dampfes ist offensichtlich in diesen Bereichen nicht mehr gültig. Abbildung. 3.3 zeigt ein Beispiel von Gl. (3.28) für Materialparameter, die zu einem Kavitationsdruck von 0,061 MPa führen. Zum Vergleich wird eine Zustandsgleichung angegeben, welche der Dowson-Higginson-Beziehung in der flüssigen Phase folgt und überall sonst einen konstanten Druck $p_{\text{cav}} = 0,061$ MPa aufweist, was dem erstgenannten Ansatz analog zum EA-Algorithmus entspricht. Hierbei ist zu beachten, dass in der Beschreibung nach Bayada und Chupin p_{cav} den Punkt der ersten Abweichung vom Verhalten der reinen Flüssigkeit beschreibt. Der Druck des Gemisches

liegt daher im gesamten Dichteintervall unterhalb des konstanten Kavitationsdrucks der EA-Formulierung.

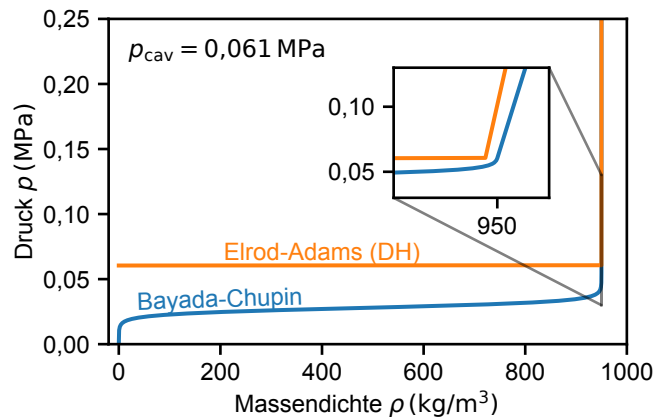


Abbildung 3.3.: Zustandsgleichungen der implementierten Kavitationsmodelle. Das Modell von Bayada und Chupin [113] führt zu einer stetig differenzierbaren Zustandsgleichung, die zwischen Dampf, Gemisch und Flüssigkeit interpoliert. Die Implementierung des Elrod-Adams-Algorithmus in Kombination mit Dowson-Higginson-Zustandsgleichung (DH, Parameter aus Ref. [115]) führt hingegen zu einer scharfen Kante am Kavitationsdruck. In Anlehnung an Ref. [P1] (CC BY 4.0).

Das Kavitationsmodell nach Bayada und Chupin [113] wird durch ein Viskositätsmodell ergänzt, welches z. B. linear zwischen den Viskositäten der Dampfphase η_v und der Flüssigphase η_l interpoliert

$$\eta(\alpha) = \eta_v \alpha + (1 - \alpha) \eta_l, \quad 0 \leq \alpha \leq 1. \quad (3.31)$$

3.3. Analytische Lösung des Makroproblems

Vor der numerischen Behandlung des Makroproblems in Kap. 3.4, soll hier zunächst ein Spezialfall betrachtet werden, der durch rein analytische Methoden zugänglich ist. Dabei werden einfache Konstitutivgesetze verwendet, wie jene aus dem vorherigen Kapitel. Die Lösung dieses vereinfachten Problems beleuchtet einige grundlegende Eigenschaften dünner Fluidfilme und kann mit Gleichgewichtskorrelationsfunktionen aus MD-Simulationen verglichen werden.

3.3.1. Flache Kanäle ohne Scherung

Der Quellterm des Makroproblems, Gl. (3.9), enthält die Flussrandbedingungen an den Wänden, sowie Terme, die von der Topografie und der Relativbewegung der Wände abhängen. Wenn man hingegen nur flache Kanäle ohne Relativbewegung betrachtet, vereinfacht sich der Quellterm zu

$$\mathbf{s} = \frac{\mathbf{f}_z|_{z=h_2} - \mathbf{f}_z|_{z=h_1}}{h}. \quad (3.32)$$

Zur Lösung von Gl. (3.8) benötigt man explizite Ausdrücke für die Flussfunktion in Abhängigkeit von den Erhaltungsgrößen, d. h. $\mathbf{f}_z(\mathbf{q})$ (oder deren Mittelwerte). Dafür werden lediglich Ausdrücke für den Impulsfluss benötigt, welche für ein Newton'sches Fluid durch den viskosen Spannungstensor, Gl. (3.16), gegeben sind. Der Druck in Abhängigkeit von der Dichte soll hier durch eine lineare Zustandsgleichung $p(\rho) = c_T^2 \rho$ angegeben werden, wobei c_T die Schallgeschwindigkeit bei konstanter Temperatur beschreibt. Unter Vernachlässigung konvektiver Beschleunigungsterme erhält man somit ein lineares Problem, welches durch die lateralen, gemittelten Flussfunktionen

$$\bar{\mathbf{f}}_x = \begin{pmatrix} \bar{j}_x \\ \bar{p} \\ 0 \end{pmatrix}, \quad \bar{\mathbf{f}}_y = \begin{pmatrix} \bar{j}_y \\ 0 \\ \bar{p} \end{pmatrix}, \quad (3.33)$$

und den Quellterm

$$\mathbf{s} = \frac{12\nu}{h^2\kappa} \begin{pmatrix} 0 \\ \bar{j}_x \\ \bar{j}_y \end{pmatrix}, \quad (3.34)$$

beschrieben wird. Hierbei ist zu beachten, dass der Einfachheit halber die in Kap. 2.1 eingeführte Vektornotation beibehalten wird, aber alle Dimensionen im 2D-System um eins reduziert sind. Der Parameter κ renormiert die tatsächliche Spalthöhe h eines Systems mit endlicher Schlupflänge b zu einer effektiven Spalthöhe $h_{\text{eff}} = h\sqrt{\kappa}$ eines äquivalenten Systems mit Haftbedingungen. Der Ausdruck für κ lässt sich durch Verschieben eines parabolischen Poiseuille-Geschwindigkeitsprofils $u(z)$ mit Schlupfrandbedingungen zu einem Profil mit Haftbedingung unter Erhaltung des mittleren Flusses berechnen, d. h.

$$\frac{1}{h} \int_0^h u(z) dz = \frac{1}{h_{\text{eff}}} \int_0^{h_{\text{eff}}} u^*(z) dz, \quad (3.35)$$

wobei $u^*(z)$ das verschobene Profil bezeichnet. Für einen 2D-Kanal mit identischer Schlupflänge an der oberen und unteren Wand, wie in Abb. 3.4 dargestellt, erhält man (siehe Anhang A.3)

$$\kappa = 1 + 6b/h. \quad (3.36)$$

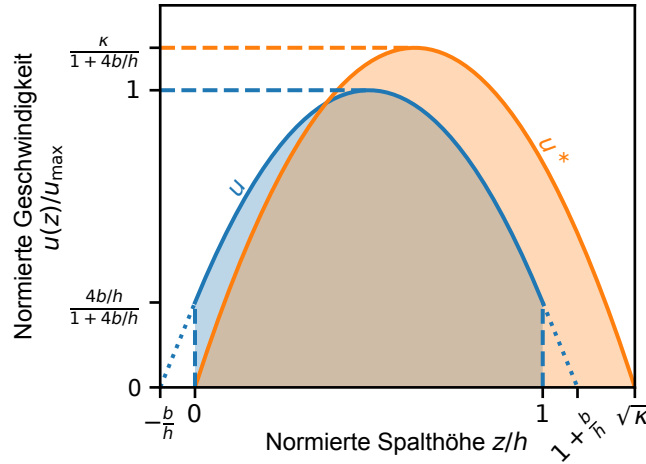


Abbildung 3.4.: Effektive Spalthöhe in einem flachen Kanal mit Wandschlupf. Die effektive Spalthöhe $h_{\text{eff}} = h\sqrt{\kappa}$ erhält man durch Gleichsetzen der z -Mittelwerte der Geschwindigkeitsprofile $u(z)$ und $u^*(z)$, wobei Letzteres durch Verschieben von u zu Haftbedingungen entsteht. In Anlehnung an Ref. [P3].

Eine Lösung von Gl. (3.8) erhält man durch Fouriertransformation, indem die Dichte der Erhaltungsgrößen als Reihe von Normalmoden $\mathbf{q}(\vec{r}, t) = \tilde{\mathbf{q}}(\vec{k}, t)e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}}$ ausgedrückt wird, wobei \vec{k} dem zweidimensionalen Wellenvektor entspricht. Somit erhält man eine gewöhnliche Differentialgleichung für die Fourier-Koeffizienten

$$\frac{d\tilde{\mathbf{q}}(k, t)}{dt} = \mathbf{H} \cdot \tilde{\mathbf{q}}(k, t), \quad (3.37)$$

mit der Matrix

$$\mathbf{H} = - \begin{bmatrix} 0 & ik & 0 \\ ic_T^2 k & 12\nu/(h^2\kappa) & 0 \\ 0 & 0 & 12\nu/(h^2\kappa) \end{bmatrix}. \quad (3.38)$$

Die Matrix \mathbf{H} ist diagonalisierbar mit den Eigenwerten

$$\mu_{\perp} = -\frac{12\nu}{h^2\kappa}, \quad (3.39)$$

welcher transversale Moden beschreibt und

$$\mu_{\parallel} = -\frac{6\nu}{h^2\kappa} \pm i s_{\text{T}} k \quad (3.40)$$

entsprechen den longitudinalen Moden. Dabei ist s_{T} eine wellenlängenabhängige Schallgeschwindigkeit, die der Dispersionsrelation

$$s_{\text{T}} = \sqrt{c_{\text{T}}^2 - \frac{36\nu^2}{h^4\kappa^2 k^2}} \quad (3.41)$$

folgt. Für große Spalthöhen und/oder kleine Wellenlängen kann der zweite Term in der Diskriminanten vernachlässigt werden und die effektive Schallgeschwindigkeit entspricht c_{T} . Solange s_{T} eine reelle Zahl ist, zeigen die longitudinalen Moden schwach gedämpfte Schwingungen. Der aperiodische Grenzfall tritt bei einer kritischen Wellenlänge

$$\lambda_{\text{crit}} = \pi h^2 \kappa c_{\text{T}} / 3\nu \quad (3.42)$$

auf, welche den Übergang zu überkritisch gedämpften Schwingungen, bzw. dem Kriechfall, markiert. Die Matrix \mathbf{H} hat in diesem Fall nur reelle Eigenwerte, da s_{T} imaginär wird. Infolgedessen können sich Moden mit Wellenlängen, die größer als die kritische Wellenlänge λ_{crit} sind, nicht durch den Kanal ausbreiten und werden innerhalb einer endlichen Relaxationszeit dissipiert. Die Wellenlängenabhängigkeit der effektiven Schallgeschwindigkeit ist in Abb. 3.5 dargestellt, wobei hier der normierte Betrag der Schallgeschwindigkeit in Abhängigkeit von der normierten Wellenlänge (auf λ_{crit}) aufgetragen ist.

Für beliebige Anfangsbedingungen $\tilde{\mathbf{q}}(k, 0) = (\tilde{\rho}(\vec{k}, 0), \tilde{j}_{\parallel}(k, 0), \tilde{j}_{\perp}(k, 0))^{\text{T}}$ kann Gl. (3.37) mit herkömmlichen Methoden gelöst werden, sodass die Lösung durch

$$\tilde{\rho}(k, t) = e^{-\frac{6\nu}{h^2\kappa} t} \left\{ \left[\cos(s_{\text{T}} k t) + \frac{6\nu}{h^2\kappa s_{\text{T}} k} \sin(s_{\text{T}} k t) \right] \tilde{\rho}(k, 0) - \frac{i}{s_{\text{T}}} \sin(s_{\text{T}} k t) \tilde{j}_{\parallel}(k, 0) \right\}, \quad (3.43a)$$

$$\begin{aligned} \tilde{j}_{\parallel}(k, t) = e^{-\frac{6\nu}{h^2\kappa} t} \left\{ \left[\cos(s_{\text{T}} k t) - \frac{6\nu}{h^2\kappa s_{\text{T}} k} \sin(s_{\text{T}} k t) \right] \tilde{j}_{\parallel}(k, 0) \right. \\ \left. - i \left[s_{\text{T}} - \frac{(6\nu)^2}{h^4\kappa^2 k^2 s_{\text{T}}} \right] \sin(s_{\text{T}} k t) \tilde{\rho}(k, 0) \right\}, \quad (3.43b) \end{aligned}$$

$$\tilde{j}_{\perp}(k, t) = \tilde{j}_{\perp}(k, 0) e^{-\frac{12\nu}{h^2\kappa} t}, \quad (3.43c)$$

gegeben ist.

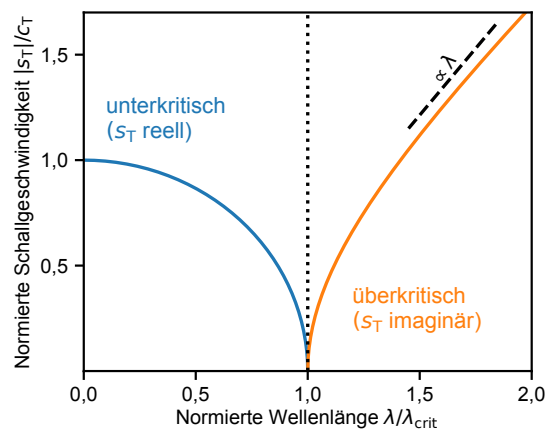


Abbildung 3.5.: Wellenlängenabhängige Schallgeschwindigkeit in flachen Kanälen. Für kleine Wellenlängen konvergiert die effektive Schallgeschwindigkeit s_T gegen die isotherme Schallgeschwindigkeit c_T , welche durch die Kompressibilität des Fluids bestimmt wird. Der aperiodische Grenzfall tritt bei $\lambda_{\text{crit}} = \pi h^2 \kappa c_T / 3\nu$ ein. Im überkritischen Bereich wird s_T imaginär, wobei der Betrag linear mit der Wellenlänge skaliert. In Anlehnung an Ref. [P3].

Im Folgenden soll nur der Realteil der Lösung betrachtet werden, welcher in Abb. 3.6a-b für die Dichte und den Longitudinalimpuls in Abhängigkeit von der Wellenlänge im Fall von schwach gedämpften Schwingungen ($\lambda < \lambda_{\text{crit}}$) dargestellt ist. Im überkritischen Fall ($\lambda > \lambda_{\text{crit}}$) ist s_T eine imaginäre Zahl, und daher ändert sich das Verhalten der Dichte- und Longitudinalimpulsmoden grundlegend, wie in Abb. 3.6c-d dargestellt.

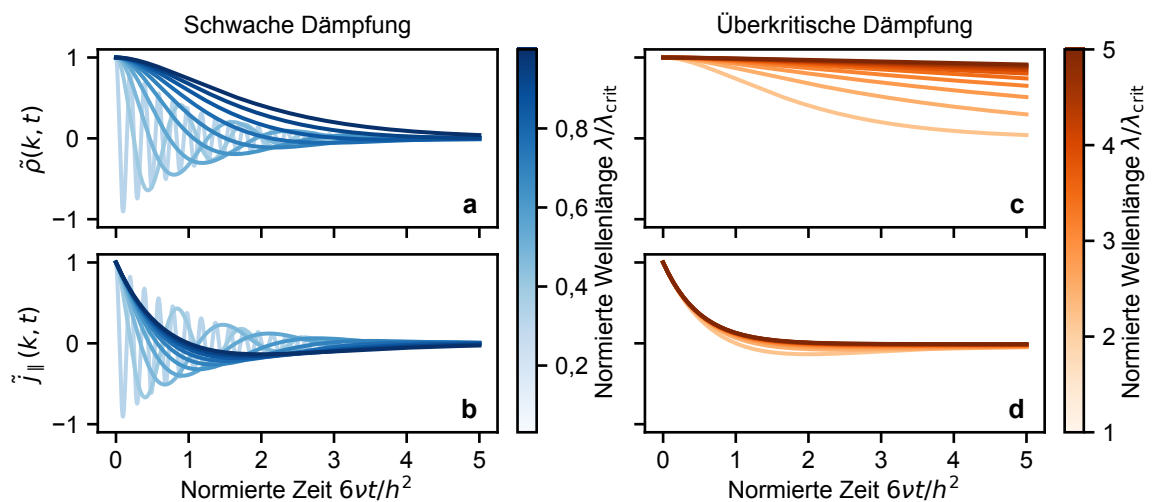


Abbildung 3.6.: Grafische Darstellung des Realteils der Lösungen für Poiseuille-Strömungen. (a) Zeitlicher Verlauf der Fourier-Koeffizienten der Massendichte im schwach gedämpften Bereich, Gl. (3.43a). (b) Zeitlicher Verlauf der Fourier-Koeffizienten der Longitudinalimpulsdichte im schwach gedämpften Bereich, Gl. (3.43b). (c) Wie (a) nur im überkritisch gedämpften Bereich. (d) Wie (b) nur im überkritisch gedämpften Bereich. In Anlehnung an Ref. [P3].

Dichtestörungen im überkritischen Fall klingen sehr langsam ab, und die Relaxationszeit divergiert mit zunehmender Wellenlänge. In Anhang A.4 findet sich eine genauere Betrachtung der überkritischen Dichterelaxation, die zeigt, dass die effektive Relaxationszeit vom Quadrat der Wellenlänge abhängt. Die Relaxationszeit der Impulsdichte in longitudinaler Richtung hingegen konvergiert gegen einen endlichen Wert, der identisch zum Zerfall transversaler Moden ist ($\tau_{\perp} = h^2\kappa/12\nu$).

Analog lassen sich ähnliche Ausdrücke für eine achsensymmetrische Strömung durch Kanäle mit kreisförmigem Querschnitt herleiten. Dabei ergeben sich für einen Kanal mit Radius R die beiden Eigenwerte

$$\mu_{\parallel}^{1D} = -\frac{4\nu}{R^2\kappa} \pm i\sqrt{c_T^2 - \frac{16\nu^2}{R^4\kappa^2k^2}}k, \quad (3.44)$$

welche den zeitlichen Verlauf von Dichte- und longitudinalen Impulsstörungen beschreiben. Die Definition von κ (siehe Anhang A.3) und abgeleiteten Größen (z. B. λ_{crit}) ändert sich dementsprechend.

3.3.2. Validierung mittels Molekulardynamiksimulationen

Die Vorhersagen von Gl. (3.43) sollen mithilfe von MD-Simulationen eines einfachen Fluids, welches zwischen zwei flachen Wänden eingeschlossen ist, überprüft werden. Alle MD-Simulationen wurden mit der Software LAMMPS [116] durchgeführt. Dabei wurde ein einfaches monoatomares Modellfluid ausgewählt, in dem ausschließlich van-der-Waals Wechselwirkungen auftreten, welche durch das Lennard-Jones (LJ)-Potential, Gl. (2.16), beschrieben werden. Die Zeitintegration der Trajektorie basiert auf paarweisen Kräften, die bis zu einem Abschneideradius von $r_c = 2,5\sigma$ berechnet werden. Um Sprünge in der Potential-Abstandskurve zu vermeiden, wurde das Potential um die Energie am Abschneideradius auf null verschoben.

Um das hydrodynamische Verhalten der Fluide für große Wellenlängen explizit zu untersuchen, wurden Simulationsboxen mit sehr großem Aspektverhältnis gewählt. Als Referenz dienen Systeme mit periodischen Randbedingungen in allen drei Raumrichtungen, wobei $\vec{k} = (k_n, 0, 0)^T$ in Richtung der längsten Ausdehnung der Box gewählt wurde. Damit stehen diskrete Wellenlängen $\lambda_n = 2\pi/k_n = L_x/n$, ($n = 1, 2, 3, \dots$) zur Verfügung. Alle Simulationen wurden mit einem Zeitschritt $\Delta t = 0,0025\sqrt{m\sigma^2/\epsilon}$ durchgeführt. Nach

der Equilibrierung des Systems, wurde eine einzelne Trajektorie im mikrokanonischen Ensemble für $2 \cdot 10^7$ Zeitschritte berechnet.

Für die Simulation eingeschlossener Fluide wurden die periodischen Randbedingungen in z -Richtung aufgehoben und stattdessen durch starre Wände ersetzt, die hier durch explizite Atome in einem kubisch-flächenzentrierten (kfz)-Gitter modelliert werden. Dabei zeigen die $[1\ 1\ \bar{2}]$ - und $[\bar{1}\ 1\ 0]$ -Kristallrichtungen in x - bzw. y -Richtung, sodass die dichtestgepackte $\{111\}$ -Ebene in Kontakt mit dem Fluid ist und die laterale Ausdehnung der Box immer einem ganzzahligen Vielfachen der jeweiligen periodischen Gitterlänge entspricht. Die Gitterkonstante wurde zu $a = 1,2\sigma_f = 1,2\sigma$ gewählt, was einer Dichte von $\rho_w = 2,31\sigma^{-3}$ entspricht und damit im Bereich vergleichbarer Studien liegt [39, 117, 118]. Kräfte zwischen Fluid- und Wandatomen werden ebenfalls durch ein Lennard-Jones Potential modelliert. Dazu wird die Lorentz'sche Mittelungsregel [119] für die Atomradien $\sigma_{wf} = (\sigma_w + \sigma_f)/2$ verwendet, wobei $\sigma_w = 0,75\sigma$. Die Wechselwirkung zwischen Fluid und Wand kann durch den Parameter α bestimmt werden, der die paarweise Bindungsenergie reskaliert, d. h. $\epsilon_{wf} = \alpha\epsilon_f$. Durch den Skalierungsparameter, welcher mit experimentellen Größen wie dem Kontaktwinkel in Relation gesetzt werden kann [120], wird u. a. die Haft- bzw. Schlupfrandbedingung an der Grenzfläche modelliert. Während der gesamten Simulationszeit wird die Spalthöhe konstant gehalten, was in Nichtgleichgewichts-MD-Simulationen zu unphysikalischem Verhalten führen kann [121], für den Gleichgewichtsfall aber unproblematisch ist. Die Anzahl der Atome wird basierend auf dem verfügbaren Volumen zwischen den beiden Wänden berechnet, die unter Berücksichtigung einer Verarmungszone im Abstand $h + \sigma$ zueinander platziert wurden. Je nach Ausprägung der Dichteoszillationen für verschiedene Wand-Fluid-Interaktionen können leicht unterschiedliche Zieldichten auftreten, wobei der Fehler in den betrachteten Systemen vernachlässigbar klein ist. Der hier beschriebene Simulationsaufbau ist in Abb. 3.7 illustriert.

Die Autokorrelationsfunktionen der Fourier-Koeffizienten von Massen- und Impulsdichte werden sowohl für das periodische als auch das eingeschlossene Fluid berechnet. Die normierte Autokorrelationsfunktion einer dynamischen Variable $A(t)$ ist gegeben durch

$$C_{AA}(t) = \frac{\langle A^*(\tau)A(t - \tau) \rangle}{\langle A(\tau)^*A(\tau) \rangle}, \quad (3.45)$$

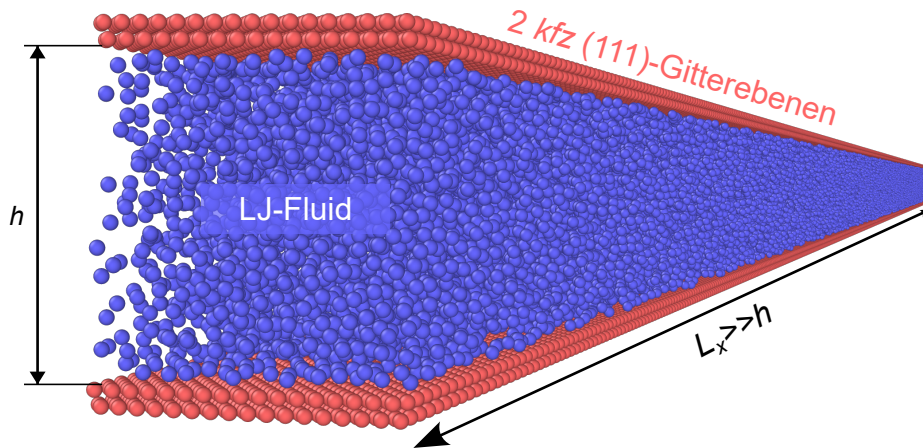


Abbildung 3.7.: Aufbau der Molekulardynamik-Simulationen des Fluidspalts. Erstellt mit Ovito [122].

wobei A^* die komplex konjugierte Variable bezeichnet und spitze Klammern einen Mittelwert über verschiedene Startpunkte τ darstellt. Zunächst werden aus den mikroskopischen Freiheitsgraden $\{\vec{r}_i(t), \vec{v}_i(t)\}$ Feldgrößen berechnet, z. B. für die Massendichte

$$\rho(\vec{r}, t) = m \sum_{i=1}^N \delta[\vec{r} - \vec{r}_i(t)], \quad (3.46)$$

und die entsprechende Fourier-Transformation ist gegeben durch

$$\tilde{\rho}(\vec{k}, t) = \frac{1}{V} \int_V d\vec{r} \rho(\vec{r}, t) \exp(-i\vec{k} \cdot \vec{r}) = \frac{m}{V} \sum_{i=1}^N \exp(-i\vec{k} \cdot \vec{r}_i(t)). \quad (3.47)$$

Analog erhält man für die Fourier-Koeffizienten der Impulsdichte

$$\vec{j}(\vec{k}, t) = \frac{m}{V} \sum_{i=1}^N \vec{v}_i(t) \exp(-i\vec{k} \cdot \vec{r}_i(t)). \quad (3.48)$$

Für kleine Abweichungen aus dem Gleichgewicht $\delta\tilde{\rho}(\vec{k}, t) = \tilde{\rho}(\vec{k}, t) - \langle \tilde{\rho}(\vec{k}, t) \rangle$ können die linearisierten hydrodynamischen Gleichungen gelöst werden, wobei der Übersichtlichkeit halber die δ -Notation verworfen wird. Auf eine detaillierte Herleitung der Korrelationsfunktionen soll hier verzichtet werden und stattdessen sei auf einschlägige Lehrbücher verwiesen [123, 124]. Stattdessen werden hier nur die Ergebnisse für ein periodisches System für einen quantitativen Vergleich mit Referenzsimulationen eines Systems ohne

Wände und einen qualitativen Vergleich mit eingeschlossenen Fluiden dargestellt. Die Lösungen für die Impuls- und Massendichtekorrelationen lauten

$$C_{\perp}(k,t) \equiv \frac{\langle \tilde{j}_{\perp}^*(k,0) \tilde{j}_{\perp}(k,t) \rangle}{\langle \tilde{j}_{\perp}^*(k,0) \tilde{j}_{\perp}(k,0) \rangle} = \exp(-\nu k^2 t), \quad (3.49a)$$

$$C_{\parallel}(k,t) \equiv \frac{\langle \tilde{j}_{\parallel}^*(k,0) \tilde{j}_{\parallel}(k,t) \rangle}{\langle \tilde{j}_{\parallel}^*(k,0) \tilde{j}_{\parallel}(k,0) \rangle} = \exp(-\Gamma k^2 t) \cos(c_s k t), \quad (3.49b)$$

$$C_{\rho}(k,t) \equiv \frac{\langle \tilde{\rho}^*(k,0) \tilde{\rho}(k,t) \rangle}{\langle \tilde{\rho}^*(k,0) \tilde{\rho}(k,0) \rangle} = \frac{\gamma - 1}{\gamma} \exp(-D_T k^2 t) + \frac{1}{\gamma} \exp(-\Gamma k^2 t) \cos(c_s k t), \quad (3.49c)$$

wobei $\vec{j}_{\perp} = \vec{j} - \tilde{j}_{\parallel} \hat{k}$ und $\tilde{j}_{\parallel} = \vec{j} \cdot \hat{k}$ mit $\hat{k} = \vec{k}/|\vec{k}|$ die Impulsdichten senkrecht bzw. parallel zum Wellenvektor \vec{k} sind. Impulsfluktuationen in Transversalrichtung klingen exponentiell ab, Gl.(3.49a), wobei die Rate proportional zur kinematischen Viskosität $\nu = \eta/\rho$ ist. Die kinematische Viskosität hat die Einheit einer Diffusionskonstanten und kann als solche für die Impulsdiffusion betrachtet werden. In Longitudinalrichtung beobachtet man die Ausbreitung von Schallwellen mit der adiabatischen Schallgeschwindigkeit c_s , deren Amplitude ebenfalls exponentiell abnimmt (vgl. Gl.(3.49b)). Hierbei wird angenommen, dass Dichtefluktuationen auf Zeitskalen zerfallen, die keinen Wärmeaustausch zulassen, sodass die adiabatische Kompressibilität die Schallgeschwindigkeit dominiert ($D_T k \ll c_s$) [123]. Die Abklingrate wird sowohl durch Viskosität als auch thermische Dissipation bestimmt, was durch den Schallabsorptionskoeffizienten $\Gamma = (\gamma - 1)D_T/2 + \nu_L/2$ beschrieben wird. Dabei bezeichnet $\gamma = c_p/c_v$ das Verhältnis der isobaren und isochoren Wärmekapazitäten, $D_T = \kappa_T/c_p$ ist die thermische Diffusivität mit Wärmeleitfähigkeit κ_T und $\nu_L = (4\eta/3 + \zeta)/\rho$ ist die longitudinale kinematische Viskosität. Die Autokorrelationsfunktion der Dichtefluktuationen, Gl (3.49c), hat in der Literatur vermutlich am meisten Aufmerksamkeit erhalten, da ihre spektrale Leistungsdichte – der dynamische Strukturfaktor $S(k, \omega)$ – eine experimentell zugängliche Größe ist [125].

Hier soll die Autokorrelationsfunktionen aus einer einzelnen Trajektorie berechnet werden, sodass die Mittelwerte in Gl. (3.49a)–(3.49c) einer Faltung der dynamischen Variable mit sich selbst entsprechen. Jeder 2000. Zeitschritt wird für die Berechnung mittels des Wiener-Khinchin-Theorems [126] und des *fast Fourier transform* (FFT)-Algorithmus zugrunde gelegt.

3.4. Numerische Lösung des Makroproblems

Im Folgenden wird die numerische Lösung des Makroproblems behandelt. Dabei spielt die funktionale Form der Flüsse und Quellterme auf der rechten Seite von Gl. (3.8) zunächst keine Rolle. Die Annahme, dass die funktionale Form der rechten Seite i. A. unbekannt ist, soll bei der Auswahl der numerischen Lösungsmethoden berücksichtigt werden. Nichtsdestoweniger wurden für die Tests der numerischen Implementierung die in Kap. 3.2 vorgestellten Konstitutivgesetze verwendet. Die in diesem Kapitel beschriebenen Methoden wurden in *Python* implementiert und sind unter den Bedingungen der MIT-Lizenz öffentlich verfügbar [S1].

3.4.1. Finite Volumen Diskretisierung

In Kap. 3.1 wurden die höhengemittelten Bilanzgleichungen in der lokalen Form betrachtet. Im Allgemeinen ist eine Lösung von Gl. (3.1) auf einem beliebigen Gebiet $\Omega \subset \mathbb{R}^3$ von Interesse. Die zeitliche Veränderung der Erhaltungsgrößen ohne Quellen und Senken ist dann durch die Bilanz aller Flüsse durch die abschnittsweise glatte Oberfläche $\partial\Omega$ gegeben

$$\frac{d}{dt} \iiint_{\Omega} \mathbf{q}(\vec{r}, t) d^3r = - \iint_{\partial\Omega} \mathbf{F}(\mathbf{q}(\vec{r}, t)) \cdot \vec{n} d^2r. \quad (3.50)$$

Hierbei bezeichnet \vec{n} den nach außen orientierte Normaleneinheitsvektor der Oberfläche. Für stetig differenzierbare Flüsse \mathbf{F} folgt durch Anwendung des Gauß'schen Integralsatzes

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \iiint_{\Omega} \mathbf{q}(\vec{r}, t) d^3r &= - \iiint_{\Omega} \operatorname{div}[\mathbf{F}(\mathbf{q}(\vec{r}, t))] d^3r \\ &= - \iiint_{\Omega} [\partial_x f_x(\mathbf{q}(\vec{r}, t)) + \partial_y f_y(\mathbf{q}(\vec{r}, t)) + \partial_z f_z(\mathbf{q}(\vec{r}, t))] d^3r. \end{aligned} \quad (3.51)$$

Da die Wahl von Ω beliebig ist, folgt im Grenzfall unendlich kleiner Kontrollvolumina die lokale Form.

Im Folgenden soll der Spezialfall betrachtet werden, in dem Ω eine rechtwinklige Gitterzelle $C_{ij} = [x_{i-1/2}, x_{i+1/2}] \times [y_{j-1/2}, y_{j+1/2}]$ mit Kantenlängen $\Delta x = x_{i+1/2} - x_{i-1/2}$ und

$\Delta y = y_{j+1/2} - y_{j-1/2}$ ist. Für eine Erhaltungsgleichung in zwei Raumdimensionen, wie sie durch Gl. (3.8) gegeben ist, erhält man dann

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \iint_{C_{ij}} \mathbf{q}(x,y,t) dx dy = & - \int_{y_{j-1/2}}^{y_{j+1/2}} \{ \mathbf{f}_x[\mathbf{q}(x_{i+1/2},y,t)] - \mathbf{f}_x[\mathbf{q}(x_{i-1/2},y,t)] \} dy \\ & - \int_{x_{i-1/2}}^{x_{i+1/2}} \{ \mathbf{f}_y[\mathbf{q}(x,y_{j+1/2},t)] - \mathbf{f}_y[\mathbf{q}(x,y_{j-1/2},t)] \} dx, \end{aligned} \quad (3.52)$$

wobei der Übersichtlichkeit halber der Quellterm vernachlässigt wurde. Streng genommen handelt es sich bei Gl. 3.52 nur dann um eine Erhaltungsgleichung, wenn die Flussfunktionen keine dissipativen Anteile enthalten, d. h. wenn nur rein hyperbolische Flüsse auftreten.² Andernfalls ist der Begriff Bilanzgleichung zutreffender. Im Fall von Gl. (3.8) wurden die dominanten dissipativen Flussanteile (die viskosen Scherspannungskomponenten) in den Quellterm ausgelagert, sodass \mathbf{f}_x und \mathbf{f}_y näherungsweise als rein hyperbolisch angenommen werden können.

Durch Integration über das Zeitintervall $\Delta t = t_{n+1} - t_n$ und Teilen durch die Fläche $\Delta x \Delta y$ erhält man

$$\mathbf{Q}_{ij}^{n+1} = \mathbf{Q}_{ij}^n - \frac{\Delta t}{\Delta x} \left[\mathcal{F}_{x;i+1/2,j}^n - \mathcal{F}_{x;i-1/2,j}^n \right] - \frac{\Delta t}{\Delta y} \left[\mathcal{F}_{y;i,j+1/2}^n - \mathcal{F}_{y;i,j-1/2}^n \right], \quad (3.53)$$

wobei \mathbf{Q}_{ij}^n dem Zellmittelwert zum Zeitpunkt t_n entspricht

$$\mathbf{Q}_{ij}^n = \frac{1}{\Delta x \Delta y} \iint_{C_{ij}} \mathbf{q}(x,y,t_n) dx dy, \quad (3.54)$$

und

$$\mathcal{F}_{x;i\pm 1/2,j}^n \approx \frac{1}{\Delta t \Delta y} \int_{t_n}^{t_{n+1}} \int_{y_{j-1/2}}^{y_{j+1/2}} \mathbf{f}_x[\mathbf{q}(x_{i\pm 1/2},y,t)] dy dt, \quad (3.55a)$$

$$\mathcal{F}_{y;i,j\pm 1/2}^n \approx \frac{1}{\Delta t \Delta x} \int_{t_n}^{t_{n+1}} \int_{x_{i-1/2}}^{x_{i+1/2}} \mathbf{f}_y[\mathbf{q}(x,y_{j\pm 1/2},t)] dx dt, \quad (3.55b)$$

bezeichnen die sogenannten numerischen Flüsse [127]. Durch Gl. (3.53) ist ein explizites Zeitintegrationsverfahren für die Zellmittelwerte der finiten Volumina gegeben.

Die Schwierigkeit in expliziten Finite-Volumen-Methoden (FVM) besteht häufig darin, geeignete Approximationen für die numerischen Flüsse zu finden. Die Erhaltungsgrößen

² Dies ist der Fall, wenn die Jacobi-Matrix $\partial \mathbf{f}_i / \partial \mathbf{q}$ nur reelle Eigenwerte hat.

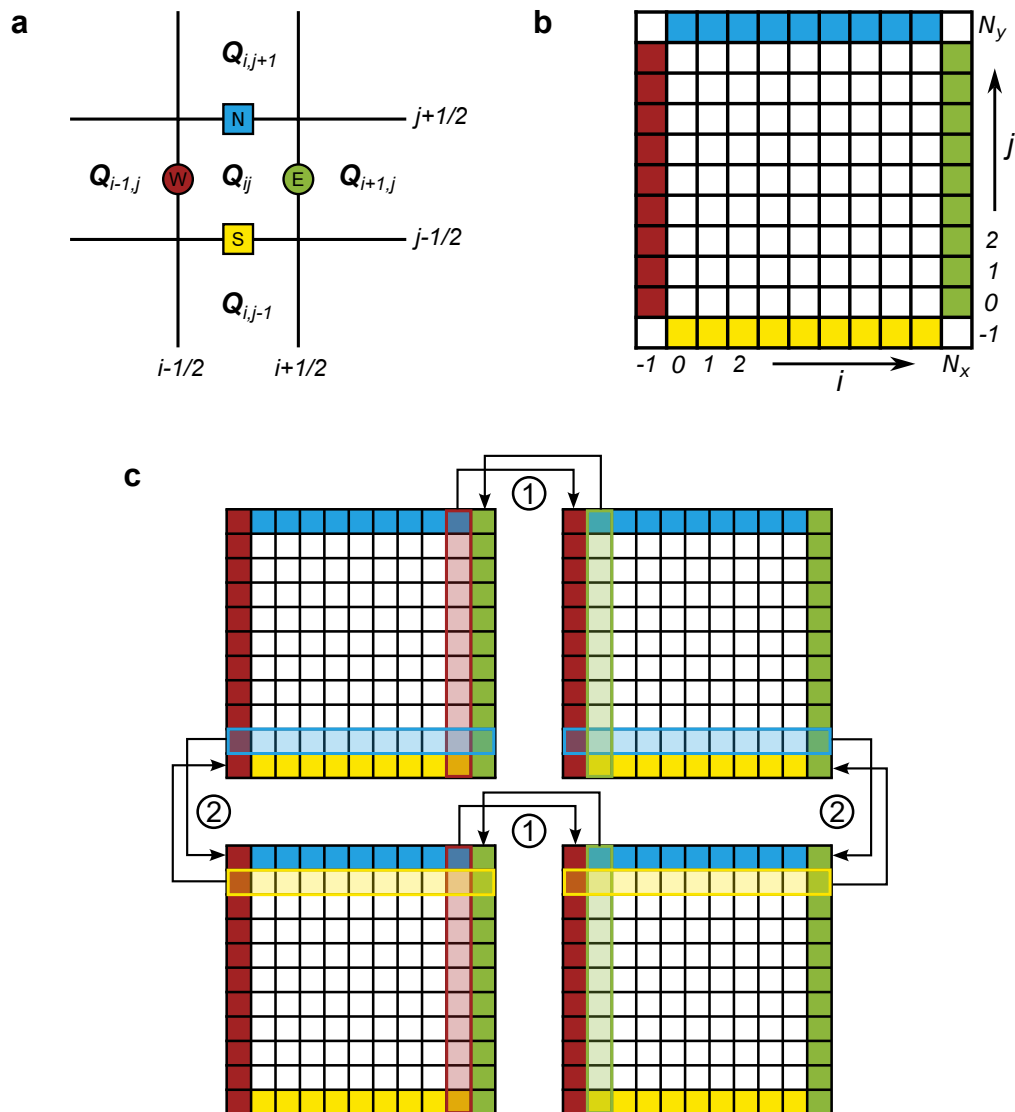


Abbildung 3.8.: Finite-Volumen Diskretisierung mit Randbedingungen und Parallelisierungsschema. (a) Ausschnitt einer FVM-Gitterzelle mit Notation für Zellmittelwerte und -ränder. (b) Geisterzellen zur Implementierung der Randbedingungen. (c) Gebietszerlegung in der parallelen Implementierung mit Kommunikationsschema.

liegen nur als Zellmittelwerte zu diskreten Zeitpunkten vor, aber für die Berechnung der numerischen Flüsse muss die Flussfunktion an den Zellrändern, die in Abb. 3.8a nach ihrer „Himmelsrichtung“ benannt sind, ausgewertet werden. Außerdem, muss die Flussfunktion über den diskreten Zeitschritt integriert werden. Daher sucht man nach geeigneten Approximationen des numerischen Flusses als Funktion der Zellmittelwerte. Eine solche Näherung ist z. B. durch das Lax-Wendroff-Verfahren [128] gegeben, bei dem in jedem Zeitschritt und an jedem Zellrand die Jacobi-Matrix $\partial f_i / \partial q$ ausgewertet

werden muss. Da diese aber nicht zwingend bekannt ist – insbesondere wenn von unbekanntem Konstitutivverhalten ausgegangen wird – sollen hier Verfahren zum Einsatz kommen, die ohne die Berechnung der Jacobi-Matrix auskommen. Geeignete Kandidaten sind Mehrschrittverfahren, die im folgenden Kapitel kurz beleuchtet werden.

3.4.2. Mehrschrittverfahren und Behandlung des Quellterms

Wie im vorherigen Abschnitt beschrieben, sollen geeignete Approximationen des numerischen Flusses ohne Kenntnis der Jacobi-Matrix gefunden werden. Des Weiteren wurde in Kap. 3.4.1 der Quellterm bewusst ignoriert, welcher für die Lösung des Makroproblems von großer Bedeutung ist. Das Prädiktor-Korrektor-Verfahren von MacCormack [129] ist ein Kandidat für die o. g. Anforderungen. Das Verfahren ist von zweiter Ordnung sowohl in der Raum- als auch der Zeitdiskretisierung und behält diese Eigenschaft auch dann, wenn es für die Behandlung von Quelltermen modifiziert wird [130].

Die numerischen Flüsse sind gegeben durch

$$\mathcal{F}_{x;i+1/2,j}^n = \frac{1}{2} [f_x(Q_{i+1,j}^n) + f_x(Q_{ij}^*)], \quad (3.56a)$$

$$\mathcal{F}_{x;i-1/2,j}^n = \frac{1}{2} [f_x(Q_{ij}^n) + f_x(Q_{i-1,j}^*)], \quad (3.56b)$$

$$\mathcal{F}_{y;i,j+1/2}^n = \frac{1}{2} [f_y(Q_{i,j+1}^n) + f_y(Q_{ij}^*)], \quad (3.56c)$$

$$\mathcal{F}_{y;i,j-1/2}^n = \frac{1}{2} [f_y(Q_{ij}^n) + f_y(Q_{i,j-1}^*)], \quad (3.56d)$$

wobei Q_{ij}^* eine Zwischenlösung ist, die durch einfache Vorwärtsdifferenz berechnet wird. Der darauf folgende Korrektor-Schritt erfolgt durch Rückwärtsdifferenz basierend auf der Zwischenlösung. Das vollständige Prädiktor-Korrektor-Schema inklusive Quellterm lautet

$$Q_{i,j}^* = Q_{i,j}^n - \frac{\Delta t}{\Delta x} [f_x(Q_{i+1,j}^n) - f_x(Q_{ij}^n)] - \frac{\Delta t}{\Delta y} [f_y(Q_{i,j+1}^n) - f_x(Q_{ij}^n)] - \Delta t s(Q_{ij}^n), \quad (3.57a)$$

$$Q_{i,j}^{**} = Q_{i,j}^* - \frac{\Delta t}{\Delta x} [f_x(Q_{ij}^*) - f_x(Q_{i-1,j}^*)] - \frac{\Delta t}{\Delta y} [f_y(Q_{ij}^*) - f_x(Q_{i,j-1}^*)] - \Delta t s(Q_{ij}^*), \quad (3.57b)$$

$$Q_{i,j}^{n+1} = \frac{1}{2} (Q_{i,j}^{**} + Q_{i,j}^n). \quad (3.57c)$$

Eine Vertauschen von Vorwärts- und Rückwärtsdifferenz wäre ebenso möglich, und es ist gängige Praxis, die Reihenfolge zwischen den Zeitschritten zu alternieren, um ein

symmetrisches Lösungsschema zu erhalten [127]. Der Übergang von den numerischen Flüssen Gl. (3.56) zu (3.57) ist im Anhang A.5 genauer beschrieben.

Ein weiterer bekannter Vertreter ist das Richtmyer-Zweischritt-Verfahren [131], welches für lineare Systeme äquivalent zum Lax-Wendroff-Verfahren ist. Auch für das Richtmyer-Verfahren in zwei Raumdimensionen existieren Modifikationen für die Behandlung von Quelltermen [132]. Beide genannten Verfahren haben den Nachteil, dass Oszillationen in der Umgebung von Diskontinuitäten in der numerischen Lösung auftreten können. Für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Systeme, stellen diese jedoch selten ein Problem dar. Es existieren Methoden, die ungewollten Oszillationen durch Hinzufügen von „künstlicher Viskosität“ zu dämpfen. So kann beispielsweise das MacCormack-Verfahren so modifiziert werden, dass es *total variation diminishing* (TVD) ist, d. h. dass die Zeitintegration monotonieerhaltend ist. Der TVD-Korrekturterm für den MacCormack-Korrektorschritt nach Davis [133] ist im Anhang A.6 dargestellt und wurde ebenfalls implementiert.

3.4.3. Randbedingungen

Zu einer vollständigen Beschreibung des numerischen Verfahrens gehört selbstverständlich auch die Betrachtung der Randbedingungen. Wie in vielen Finite-Volumen Implementierungen geschieht dies auch hier über sogenannte Geisterzellen. Dabei wird das zweidimensionale Gitter in jeder Raumrichtung um eine Zellreihe erweitert, die außerhalb des eigentlichen Simulationsgebiets liegt. Numerische Verfahren, die mehr als die nächsten Nachbarzellen zur Berechnung des nächsten Zeitschrittes zugrundelegen, benötigen dementsprechend mehrere Geisterzellenreihen. Die Werte der Geisterzellen werden dann so gewählt, dass die gewünschten physikalischen Randbedingungen automatisch durch das verwendete numerische Verfahren realisiert werden. Zellen am Rand des Simulationsgebiets können daher genauso behandelt werden wie Zellen im Innern. Die Geisterzellen sind in Abb. 3.8b farbig markiert.

Für Dirichlet-Randbedingungen $\mathbf{q}(\vec{r}_D, t) = \mathbf{q}_D$ wird der Wert der Erhaltungsgröße in der Geisterzelle so gewählt, dass \mathbf{q}_D an der äußeren Zellgrenze durch lineare Interpolation erreicht wird, also z. B. $\mathbf{Q}_{-1,j} = 2\mathbf{q}_D - \mathbf{Q}_{0,j}$ am westlichen x -Rand. Neumann-Randbedingungen $\nabla \mathbf{q}(\vec{r}_N, t) = \mathbf{g}_N$ werden ebenfalls durch eine Approximation erster Ordnung erzwungen, z. B. durch Vorwärtsdifferenz am nördlichen y -Rand $\mathbf{Q}_{i,N_y} = \mathbf{Q}_{i,N_y-1} + \Delta y \mathbf{g}_N$. Periodische Randbedingungen werden erzielt, indem der Wert der Geisterzellen mit dem vorletzten Zellwert der jeweils gegenüberliegenden Grenze gleichgesetzt wird, also z. B. in x -Richtung

$Q_{-1,j} = Q_{N_x-1,j}$ bzw. $Q_{N_x,j} = Q_{0,j}$. Eindimensionale Beispiele in Kap. 4 wurden mit der Implementierung in zwei Raumdimensionen berechnet, wobei periodische Randbedingungen und eine einzelne Gitterzelle in die Richtung senkrecht zur Problemdimension gewählt wurde, sodass inklusive Geisterzellen ein $(N + 2) \times 3$ -Gitter entsteht. Das Konzept der Geisterzellen wird auch für die Parallelisierung des Codes verwendet, was im Folgenden kurz beschrieben wird.

3.4.4. Parallelisierung

Die oben beschriebenen numerischen Verfahren wurden in *Python* unter extensiver Verwendung der *numpy*-Bibliothek [134] implementiert. Da der Zeitschritt des expliziten Verfahrens durch die Courant-Friedrichs-Lewy (CFL)-Bedingung [135] limitiert ist, kann es je nach Problemstellung zu langen Simulationszeiten kommen, bis ein stationärer Zustand erreicht ist. Die Berechnungszeit für hochaufgelöste Probleme kann durch Parallelisierung verkürzt werden. Dabei wird das *single instruction multiple data* (SIMD) Prinzip angewandt, indem das gleiche Programm auf mehreren Prozessoren gleichzeitig ausgeführt wird, die jeweils auf Teilmengen der gesamten Datenstruktur operieren [136]. Das Finite-Volumen-Gitter wird dazu in Partitionen zerlegt, wobei Zellen, die am Rand einer solchen Partition liegen, Daten der benachbarten Partition für die Zeitintegration benötigen. Analog zu den Randbedingungen werden diese Daten in Geisterzellen gespeichert, welche in jedem Zeitschritt bzw. in jedem Schritt eines Mehrschrittverfahren aktualisiert werden müssen. Die Kommunikation zwischen den Partitionen und damit das notwendige Update der Geisterzellen ist durch den *message passing interface* (MPI)-Standard geregelt und in Abb. 3.8c schematisch dargestellt. Die parallele Implementierung bedient sich dabei an den *mpi4py*-*Bindings* für MPI in *Python* [137].

4. Ergebnisse

Im folgenden Kapitel werden die numerischen Simulationsergebnisse der im Rahmen dieser Arbeit erfolgten Methodenentwicklung dargestellt. Kapitel 4.1 beschreibt die Ergebnisse von Gleichgewichts-Molekulardynamik (MD) Simulationen eingeschlossener Fluide, welche dann in Bezug zu den analytischen Betrachtungen aus Kap. 3.3 gesetzt werden können. Dieser Teil basiert auf den eigenen Veröffentlichungen, Ref. [P2, P3]. Der von Grund auf neu programmierte Finite-Volumen Löser für Schmierungsprobleme [S1] wird daraufhin umfassend validiert. Dies umfasst Vergleiche mit der analytischen Lösung, sowie Tests der numerischen Konvergenz und des Skalierungsverhaltens der parallelen Implementierung in Kap. 4.2. In Kap. 4.3 werden dann Ergebnisse von Schmierungs-simulationen dargestellt, welche mit Literaturergebnissen und Referenzsimulationen eines klassischen Reynolds-Lösers verglichen werden und größtenteils bereits in Ref. [P1] veröffentlicht wurden. Zuletzt werden in Kap. 4.4 Voruntersuchungen zur Anwendbarkeit des beschriebenen FVM-Lösers in Kombination mit nicht-parametrischen Konstitutivgesetzen vorgestellt.

4.1. Molekulardynamik-Simulationen eingeschlossener Fluide im Gleichgewicht

Alle MD-Simulationen in diesem Kapitel wurden für ein superkritisches Lennard-Jones-Fluid am Zustandspunkt $T = 2,0 \epsilon/k_B$ und $\rho = 0,452 \sigma^{-3}$ (vgl. Ref. [138]) durchgeführt. Zusätzliche Ergebnisse der Charakterisierung des LJ-Fluids mittels MD sind in Anhang B zu finden.

4.1.1. Autokorrelationsfunktionen

In Kap. 3.3.1 wurden Lösungen für die zeitliche Entwicklung der Fourier-Koeffizienten von Massen- und Impulsdichte für ein über die Spalthöhe gemitteltes Fluid bestimmt. Diese lassen sich direkt mit den statistischen Autokorrelationsfunktionen vergleichen, die sich aus fluktuierenden Dichten von Erhaltungsgrößen, z. B. in MD-Simulationen, berechnen lassen. Dabei hat sich gezeigt, dass die Korrelationsfunktionen für ein unbegrenztes Fluid, Gl. (3.49), die in Kap. 3.3.2 ohne Herleitung gegeben sind, dieselbe funktionale Form haben, wie die des eingeschlossenen Fluids in höhengemittelter Form. Lediglich die darin enthaltenen Transportkoeffizienten, bzw. die mit den unterschiedlichen Transport- und Dissipationsprozessen verknüpften charakteristischen Zeitskalen, unterscheiden sich. Eine allgemeine Form der Korrelationsfunktionen ist daher durch

$$C_{\perp}^{\text{eff}}(k,t) = e^{-t/\tau_{\perp}^{\text{eff}}}, \quad (4.1a)$$

$$C_{\parallel}^{\text{eff}}(k,t) = e^{-t/\tau_{\parallel}^{\text{eff}}} [\cos(\omega^{\text{eff}} t) - \beta \sin(\omega^{\text{eff}} t)], \quad (4.1b)$$

$$C_{\rho}^{\text{eff}}(k,t) = \frac{\gamma - 1}{\gamma} e^{-D_{\Gamma} k^2 t} + \frac{1}{\gamma} e^{-t/\tau_{\parallel}^{\text{eff}}} [\cos(\omega^{\text{eff}} t) + \beta \sin(\omega^{\text{eff}} t)], \quad (4.1c)$$

gegeben, wobei $\beta = T^{\text{eff}}/\tau_{\parallel}^{\text{eff}}$ das Verhältnis von Schallperiodendauer und -relaxationszeit bezeichnet. In einschlägigen Lehrbüchern [123, 124] wird der Sinus-Term in Gl. (4.1b) und (4.1c) oft vernachlässigt, während andere Autoren [139–141] ihn ausdrücklich einbeziehen. Wie in Kap. 3.3.1 hervorgehoben, gilt die Herleitung des eingeschlossenen Fluids für nicht fluktuierende, isotherme Bedingungen mit $\gamma = 1$. Allerdings enthalten die numerischen Tests mit MD natürlich thermische Fluktuationen bei makroskopisch konstanter Temperatur, weshalb der erste Term in Gl. (4.1c) hier berücksichtigt wird. Eine Übersicht über charakteristische Zeiten der Grenzfälle eines unendlichen dreidimensionalen Mediums und eines effektiv zweidimensionalen Mediums findet sich in Tab. 4.1. Im Folgenden sollen nun Relaxationszeiten in MD-Simulationen gemessen werden und in Bezug zu den theoretischen Limits gesetzt werden.

Tabelle 4.1.: Theoretische Ausdrücke für die charakteristischen Zeitskalen für Wellenausbreitung und -relaxation in unbegrenzten und eingeschlossenen Systemen.

	τ_{\perp}	τ_{\parallel}	$T = 2\pi/\omega$
unbegrenztes Fluid	$1/\nu k^2$	$1/\Gamma k^2$	$1/c_s k$
eingeschlossenes Fluid	$h^2 \kappa / 12\nu$	$h^2 \kappa / 6\nu$	$1/s_{\Gamma} k$

Zunächst wurden Autokorrelationsfunktionen aus einer Referenzsimulation ohne Wände berechnet. Die Simulationsbox hatte die Abmessungen $941,2 \times 14,7 \times 14,7 \sigma^3$, was 92 001 Atomen entspricht. Dabei diente das hohe Aspektverhältnis dazu, das langwellige Verhalten explizit zu testen. Um jedoch Größen- oder Formeffekte in dieser Anordnung auszuschließen, wurde zunächst auch das Seitenverhältnis der kurzen Seiten verändert (2:1). Durch die Ununterscheidbarkeit der transversale Autokorrelationsfunktionen der modifizierten Box mit einer um 90° um die Längsachse rotierten Box, konnten solche Effekte ausgeschlossen werden. Daher scheint die Berechnung von Transportkoeffizienten aus Korrelationsfunktionen kollektiver Variablen in Boxen mit hohem Seitenverhältnis im Gegensatz zur Berechnung von Selbstdiffusionskoeffizienten [142] kein Problem darzustellen.

Die Simulationen eingeschlossener Fluide wurden in einer ähnlich großen Box mit 90 189 Fluidatomen und jeweils 43 520 festen Atomen in den Wänden durchgeführt. Die folgenden Ergebnisse wurden mit einem Wand-Fluid-Wechselwirkungsparameter $\alpha = 0,75$ erzielt. Man beachte, dass typische Werte für σ im Bereich von wenigen Ångström liegen und der Spalt daher eine Höhe von wenigen Nanometern aufweist. Die charakteristischen Zeiten für das Abklingen und die Ausbreitung von Gleichgewichtsfluktuationen wurden durch Anpassung der allgemeinen Ausdrücke, Gl. (4.1), an die simulativ bestimmten Autokorrelationsfunktionen für diskrete Wellenzahlen ermittelt. Dazu wurden Autokorrelationsfunktionen in einem Zeitfenster von $250 \sqrt{m\sigma^2/\epsilon}$ verwendet, wobei alle betrachteten Wellenlängen im schwach gedämpften Bereich des eingeschlossenen Fluids liegen. In allen Fällen wurden Abklingraten (z. B. $1/\tau_\perp$) und Frequenzen (ω) als Anpassungsparameter verwendet, aber in den folgenden Abbildungen ist der jeweilige Kehrwert, d. h. die entsprechende charakteristische Zeit, dargestellt.

Transversale Impulsfluktuationen sind unabhängig von denen in longitudinaler Richtung und die kinematische Scherviskosität ν ist der korrespondierende Transportkoeffizient. Für jede Wellenlänge wurde die Abklingrate $1/\tau_\perp$ durch eine Anpassung an eine Exponentialfunktion mittels linearer Regression bestimmt, wobei τ_\perp eine Scherrelaxationszeit ist. Abbildung 4.1a-d zeigt die Autokorrelationsfunktionen des Realteils von $\tilde{j}_y(k, t)$ in einem unbeschränkten Fluid für vier Wellenlängen (blaue durchgezogene Linien) und die jeweils dazugehörigen angepassten Funktionen (gestrichelte Linien). Die Scherrelaxationszeit τ_\perp nimmt in unbegrenzten Fluiden quadratisch mit der Wellenlänge zu. Durch eine weitere Funktionsanpassung erhalten wir die Proportionalitätskonstante – die kinematische Viskosität – zu $\nu = 1,22\sigma\sqrt{\epsilon/m}$.

Im Vergleich zu den transversalen Impulsautokorrelationsfunktionen des eingeschlossenen Fluids, die in Abb. 4.1a-d dargestellt sind, wird ersichtlich, dass die Wellenlängenabhängigkeit der Zerfallsrate im Bereich der betrachteten Wellenlängen verloren geht. Dies stimmt qualitativ mit der Vorhersage aus Gl. (3.43) überein. Zudem sind die Relaxationszeiten im eingeschlossenen System deutlich kürzer als im System ohne Wände.

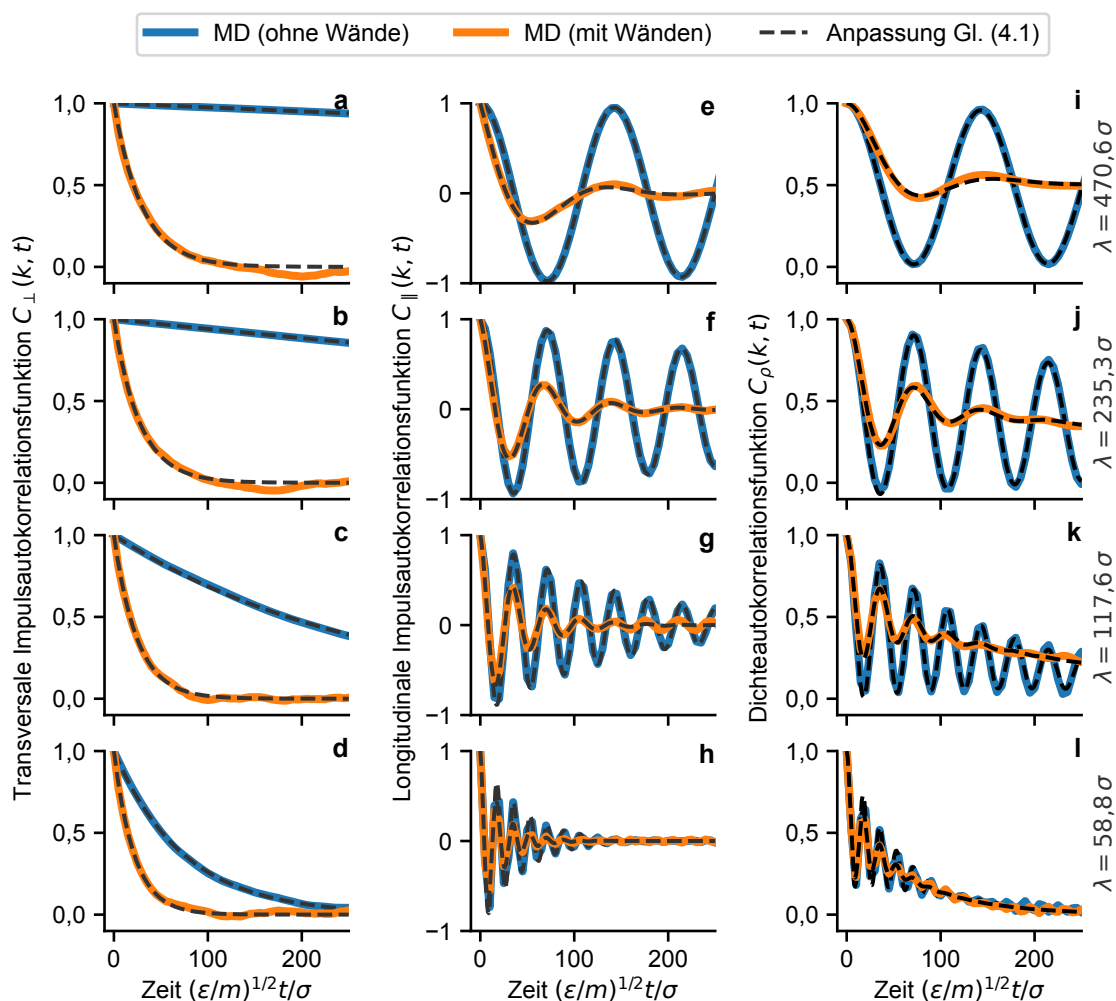


Abbildung 4.1.: Autokorrelationsfunktionen von Gleichgewichtsfuktuationen. (a-d) Transversale Impulsdichtefluktuationen. (e-h) Longitudinale Impulsdichtefluktuationen. (i-l) Massendichtefluktuationen. In allen Fällen sind die Berechnungsergebnisse als durchgezogene Linie (blau: unbegrenztes Fluid, orange: eingeschlossenes Fluid) dargestellt. Die dazugehörigen angepassten Funktionen, Gl. (4.1), sind durch schwarze gestrichelte Linien dargestellt. In Anlehnung an Ref. [P3].

Mit den Autokorrelationsfunktionen des Longitudinalimpulses wird analog verfahren. Die aus der MD-Trajektorie erhaltenen Autokorrelationsfunktionen sowie die dazugehörigen angepassten Funktionen, Gl. (4.1b), sind in Abb. 4.1e-h dargestellt. Auch hier wurden Transportkoeffizienten extrahiert – der Schallabsorptionskoeffizienten $\Gamma = 2,11\sigma\sqrt{\epsilon/m}$ aus

der Relaxationszeit und die Schallgeschwindigkeit $c_T = 3,30\sqrt{\epsilon/m}$ aus der Periodendauer $T = 2\pi/\omega$. Die kurze Lebensdauer der Impulsfluktuationen ist auch in Longitudinalrichtung sichtbar, wie in Abb. 4.1e-h dargestellt.

Die Dichte-Autokorrelationsfunktion Gl. (3.49c) enthält die Autokorrelationsfunktion des Longitudinalimpulses. Um die Anzahl der Anpassungsparameter zu reduzieren, werden daher die Schallabsorptionsrate und die Schallfrequenz festgehalten, sodass nur noch die Abklingrate der thermisch induzierten Dichtefluktuationen $1/D_T k^2$ und das Verhältnis der Wärmekapazitäten γ zu bestimmen sind. Die Ergebnisse sind in Abb. 4.1i-l dargestellt. Für das unbegrenzte Fluid erhält man wiederum durch Anpassung einer quadratischen Funktion an die thermischen Relaxationszeiten $D_T = 1,35\sigma\sqrt{\epsilon/m}$. Für das Verhältnis der Wärmekapazitäten ergibt sich $\gamma = 2,33$. Des Weiteren erhält man die abgeleiteten Größen kinematische longitudinale Viskosität ν_L und Volumenviskosität ζ durch die in Kap. 3.3.2 eingeführten Ausdrücke. Die somit empirische bestimmten Transportkoeffizienten für ein überkritisches LJ-Fluid bei $T = 2,0\epsilon/k_B$ und $\rho = 0,452\sigma^{-3}$ sind in Tab. 4.2 zusammengefasst. Schließlich zeigt Abb. 4.1i-l die Autokorrelationsfunktion der Massendichtefluktuationen für das eingeschlossene Fluid.

Tabelle 4.2.: Transportkoeffizienten des unbegrenzten Fluids. Der Fehler ist eine Standardabweichung aus der Methode der kleinsten Fehlerquadrate für die Relaxationszeiten der 24 größten Wellenlängen. Die kinematische Longitudinalviskosität ν_L und die Volumenviskosität ζ sind abgeleitete Größen und daher ohne Fehlerangabe.

Name	Symbol	Wert	Einheit
Kinematische Scherviskosität	ν	$1,22 \pm 0,009$	$\sigma\sqrt{\epsilon/m}$
Schallabsorptionskoeffizient	Γ	$2,11 \pm 0,014$	$\sigma\sqrt{\epsilon/m}$
Thermischer Diffusionskoeffizient	D_T	$1,35 \pm 0,018$	$\sigma\sqrt{\epsilon/m}$
Adiabatische Schallgeschwindigkeit	c_s	$3,30 \pm 0,004$	$\sqrt{\epsilon/m}$
Adiabatexponent	γ	$2,33 \pm 0,270$	-
Kinematische Longitudinalviskosität	ν_L	2,42	$\sigma\sqrt{\epsilon/m}$
Volumenviskosität	ζ	0,36	$\sqrt{m\epsilon}/\sigma^2$

4.1.2. Effektive Dämpfung von Scher- und Schallwellen

Im vorherigen Kapitel hat sich gezeigt, dass sich die Korrelationsfunktionen von unbegrenzten und eingeschlossenen Fluiden bei gleicher Wellenlänge deutlich unterscheiden. Insbesondere weisen die Relaxationszeiten keine deutliche Abhängigkeit von der Wellenlänge auf. Jedoch wurden in Abb. 4.1 nur vier Wellenlängen betrachtet. Im Folgenden soll nun die Wellenlängenabhängigkeit bei eingeschlossenen Fluiden für ein breiteres Spektrum

untersucht werden. Dazu wurden die berechneten Relaxationszeiten über der Wellenlänge aufgetragen, wie in Abb. 4.2a für die transversalen Impulsfluktuationen für das eingeschlossene und das unbegrenzte Fluid geschehen. Die dargestellten Scherrelaxationszeiten τ_{\perp} sind Mittelwerte aus den Anpassungen der verfügbaren Autokorrelationsfunktionen an Gl. (4.1a). Für das System ohne Wände ergeben sich vier Werte (aus $\tilde{j}_y(k, t)$ und $\tilde{j}_z(k, t)$, jeweils Real- bzw. Imaginärteil) und für das System mit Wänden zwei Werte (aus $\tilde{j}_y(k, t)$, jeweils Real- bzw. Imaginärteil). Im eingeschlossenen Fluid werden Impulsfluktuationen in der Richtung normal zur Wand nicht beachtet, da die z -Komponente des Geschwindigkeitsfelds aufgrund der Annahme laminaren Flusses vernachlässigt werden kann, was die ursprüngliche Legitimation der Mittelung über der Spalthöhe war.

In unbegrenzten Fluiden skaliert die Relaxationszeit mit dem Quadrat der Wellenlänge. Die gestrichelte Linie veranschaulicht das Ergebnis der im vorherigen Kapitel beschriebenen Anpassung, aus dem die kinematische Viskosität hervorgegangen ist (s. Tab. 4.2). Wie schon in Abb. 4.1 deutlich sichtbar, weicht die Scherrelaxationszeit eingeschlossener Fluide deutlich von der unbegrenzter Fluide ab und konvergiert für große Wellenlängen gegen einen konstanten Wert von etwa $30\sqrt{m\sigma^2/\epsilon}$. Ein qualitativ ähnliches Verhalten kann für die Relaxationszeiten τ_{\parallel} von Longitudinalwellen in Abb. 4.2b beobachtet werden. Hier repräsentieren Symbole den Mittelwert der Relaxationszeiten aus Real- und Imaginärteil der longitudinalen Impulsfluktuationen, sowohl für das unbegrenzte als auch das eingeschlossene Fluid. Ersteres zeigt erneut eine quadratische Abhängigkeit von der Wellenlänge und die gestrichelte Linie veranschaulicht die dazugehörige angepasste Funktion, welche auf den Schallabsorptionskoeffizienten Γ in Tab. 4.2 führt. Die Schallrelaxationszeiten des eingeschlossenen Fluids hingegen folgen zunächst einem ähnlichen Verlauf wie im System ohne Wände, konvergieren für große Wellenlängen jedoch ebenso gegen einen konstanten Wert von etwa $50\sqrt{m\sigma^2/\epsilon}$.

Sowohl im transversalen als auch im longitudinalen Fall stimmen die gemessenen Ergebnisse im langwelligen Bereich qualitativ mit den theoretischen Vorhersagen überein, da die Wellenlängenabhängigkeit verloren geht. Jedoch, ist in beiden Fällen zu beobachten, dass die Relaxationszeiten zunächst ähnlich wie im unbegrenzten Fluid skalieren und einen kontinuierlichen Übergang zum theoretischen Grenzwert aufzeigen. Die offensichtliche Frage lautet hier nun, wie sich der Übergang zwischen den beiden theoretischen Grenzfällen des unbegrenzten und des eingeschlossenen Fluids quantifizieren lässt.

In Anbetracht der Tatsache, dass die Zerfallsrate in unbegrenzten Fluiden mit dem Quadrat der Wellenlänge gegen null geht, ist eine naheliegende Möglichkeit eine effektive

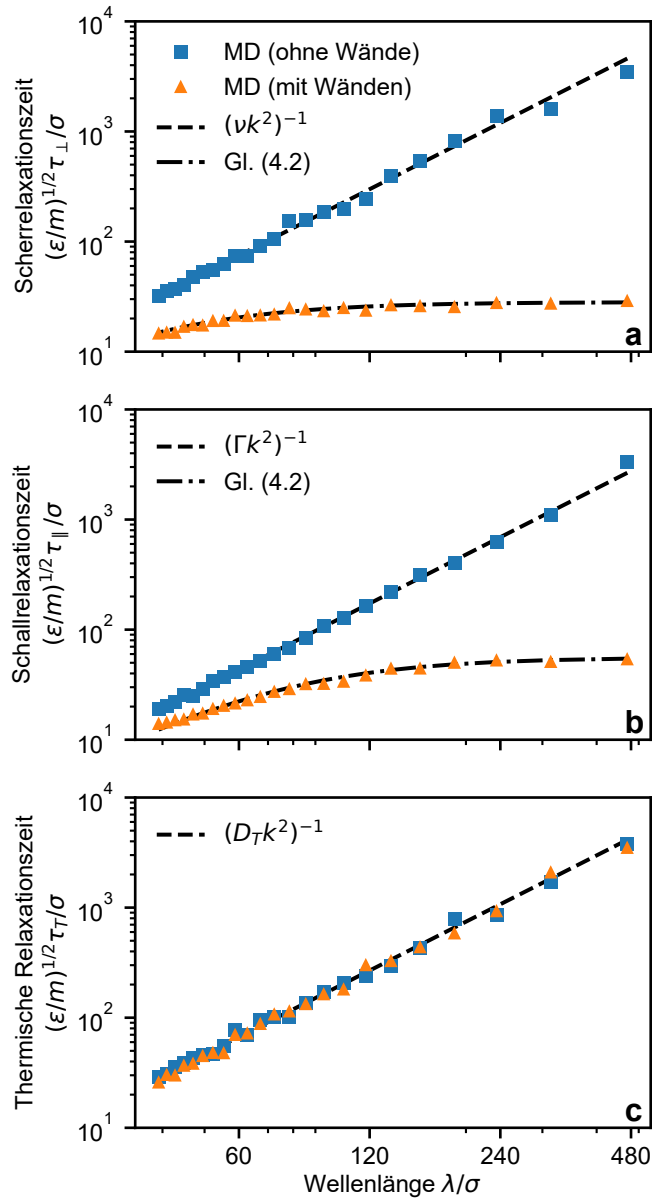


Abbildung 4.2.: Wellenlängenabhängigkeit der Relaxationszeiten im schwach gedämpften Bereich. (a) Scherrelaxationszeit aus transversaler Impulsautokorrelationsfunktion. (b) Schallrelaxationszeit aus longitudinaler Impulsautokorrelationsfunktion. (c) Thermische Relaxationszeit aus Dichteautokorrelationsfunktion. In Anlehnung an Ref. [P3].

Relaxationszeit durch Addition der Raten der beiden theoretischen Grenzfälle zu erhalten. Somit dominiert die theoretische Relaxationszeit des vollen Volumens $\tau^{(b)}$ (engl. *bulk*) für kleine Wellenlängen und die Relaxationszeit des eingeschlossenen Fluids $\tau^{(s)}$ (engl. *slab*)

dominiert im langwelligen Bereich. Dazwischen findet ein kontinuierlicher Übergang statt, der durch

$$\tau^{\text{eff}}(\lambda) = \left(\frac{1}{\tau^{(b)}(\lambda)} + \frac{1}{\tau^{(s)}} \right)^{-1} \quad (4.2)$$

beschrieben wird. Sowohl für die Scher- als auch die Schallrelaxationszeiten konnte eine gute Übereinstimmung mit Gl. (4.2) gefunden werden. Das Ergebnis der angepassten wellenlängenabhängigen effektiven Relaxationszeit ist als Punkt-Strich-Linie in Abb. 4.2a-b dargestellt.

Im Gegensatz zu den Relaxationszeiten von Schall- und Schermoden, welche sich ausschließlich aus den Autokorrelationsfunktionen der Impulsfluktuationen bestimmen lassen, erfordert die Analyse thermischer Relaxationszeiten eine Betrachtung der Dichtefluktuationen. In Abb. 4.2c ist die thermische Relaxationszeit τ_D dargestellt, die aus der Autokorrelationsfunktion der Dichte sowohl für das begrenzte als auch das eingeschlossene Fluid bestimmt wurde. In beiden Fällen hängen die Abklingzeiten quadratisch von der Wellenlänge ab und die Systeme mit bzw. ohne Wände sind nicht unterscheidbar. Daher können im Prinzip beide Systeme verwendet werden, um die thermische Diffusivität D_T zu erhalten, wie hier durch die gestrichelte Linie für das periodische System veranschaulicht und durch den Wert in Tab. 4.2.

4.1.3. Dispersionsrelation für Schallausbreitung

Neben den Relaxationszeiten treten weitere charakteristische Zeitskalen auf, aufgrund der Oszillationen der longitudinalen Impuls- oder Dichtefluktuationen. Aus der Frequenz der Oszillationen und der Wellenzahl lässt sich die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Fluktuationen – die Schallgeschwindigkeit $c = \omega/k$ – bestimmen. Hier wurden wiederum die Impulskorrelationen verwendet, da die Ausgleichsrechnung aufgrund geringerer Anzahl zu bestimmender Parameter einfacher vonstattengeht. In Abb. 4.3a ist die aus der Impuls-Autokorrelationsfunktion gewonnene Periodendauer $T = 2\pi/\omega$ über der Wellenlänge aufgetragen. Für das unbegrenzte Fluid ergibt sich ein linearer Zusammenhang, der durch die gestrichelte Linie dargestellt ist. Aus der Proportionalitätskonstante ergibt sich die Schallgeschwindigkeit in Tab. 4.2.

Für kleine Wellenlängen folgt die Periodendauer des eingeschlossenen Fluids ebenfalls einer linearen Beziehung ähnlich der des unbegrenzten Fluids. Bei großen Wellenlängen lässt sich für Wand-Fluid-Interaktionen mit $\alpha = 1,5$ jedoch eine deutliche Abweichung zu größeren Perioden erkennen. Deutlicher wird diese Abweichung, wenn man direkt die

Schallgeschwindigkeit über der Wellenlänge aufrägt, wie in Abb. 4.3b dargestellt. Für das unbegrenzte Fluid ist die Schallgeschwindigkeit konstant. Die Schallgeschwindigkeit des eingeschlossenen Fluids hingegen ist nur im kurzwelligen Bereich annähernd konstant. Mit zunehmender Wellenlänge verringert sich die Schallgeschwindigkeit deutlich. Dies stimmt qualitativ mit der in Kap. 3.41 hergeleiteten Dispersionsrelation überein. Der Rückgang der Schallgeschwindigkeit lässt sich durch Gl. (3.41) beschreiben. Durch lineare Regression ergibt sich die Schallgeschwindigkeit $c_T = 3,1 \sqrt{\epsilon/m}$ und Extrapolation zu $c_T = 0 \sqrt{\epsilon/m}$ ermöglicht die Abschätzung der kritischen Wellenlänge, die in diesem Fall bei $\lambda_{\text{crit}} = 580\sigma$ liegt.

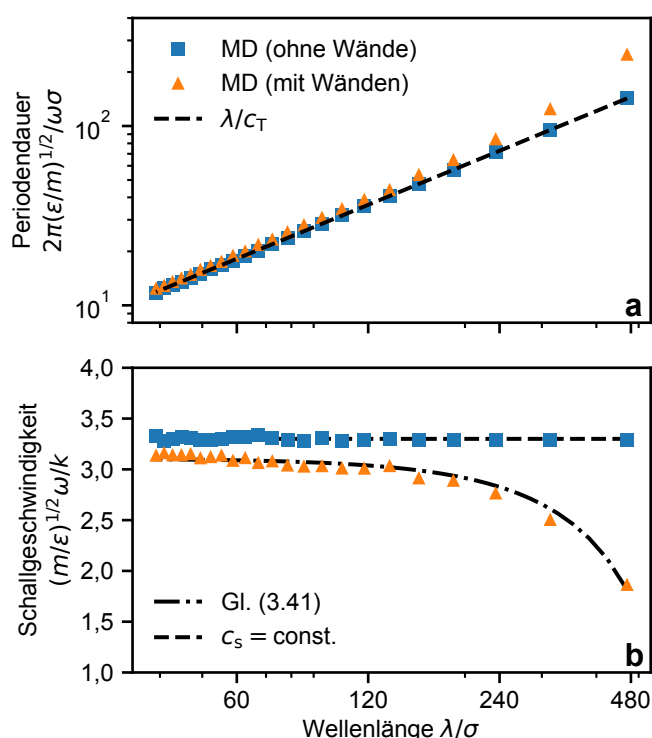


Abbildung 4.3.: Wellenlängenabhängiges Oszillationsverhalten im schwach gedämpften Bereich. (a) Periodendauer aus longitudinalen Impulsautokorrelationsfunktionen. (b) Aus (a) abgeleitete Schallgeschwindigkeit. In Anlehnung an Ref. [P3].

Wie schon in Kap. 3.3.1 beschrieben, ändert sich das Verhalten von Dichte und Impulsfluktuationen bei der kritischen Wellenlänge fundamental. Dabei bleibt die funktionale Form, Gl. (3.43), im Prinzip erhalten, jedoch wird s_T imaginär und die trigonometrischen Funktionen verwandeln sich in ihre hyperbolischen Gegenstücke. Die theoretischen Relaxationszeiten für eingeschlossene Fluide im langwelligen Bereich (siehe Tab. 4.1) bleiben jedoch vom Übergang zum überkritisch gedämpften Verhalten unberührt. Daher sollen Gl. (4.1b) und (4.1c) durch Näherungen beschrieben werden, wobei die darin enthaltenen

Zeitkonstanten das effektive Relaxationsverhalten im langwelligen, überkritisch gedämpften Bereich besser repräsentieren.

Sowohl Dichte- als auch longitudinale Impulskorrelationen können effektiv durch Exponentialfunktionen beschrieben werden, was im Anhang A.4 detailliert ausgeführt ist. Die thermische Relaxation geht bei Wellenlängen im überkritisch gedämpften Bereich sehr langsam vonstatten (vgl. Fig. 4.2c), sodass in den betrachteten Zeitintervallen $\exp(-D_T k^2 t) \approx 1$ angenommen werden kann. Die vereinfachten Korrelationsfunktionen sind gegeben durch

$$C_{\parallel}(k, t) = \exp(-t/\tau_{\parallel}^j), \quad (4.3a)$$

$$C_{\rho}(k, t) = A + B \exp(-t/\tau_{\parallel}^{\rho}), \quad (4.3b)$$

wobei τ_{\parallel}^j und τ_{\parallel}^{ρ} die effektiven Relaxationszeiten für Impuls- und Dichtefluktuationen sind, die im Vergleich zum schwach gedämpften Bereich nicht mehr identisch sind. Die Parameter A und B ersetzen die Vorfaktoren $1 - 1/\gamma$ bzw. $1/\gamma$ in Gl.(4.1c), die bereits im schwach gedämpften Bereich bestimmt wurden und deshalb verworfen werden.

Die kritische Wellenlänge lag für MD-Simulation eingeschlossener Fluide mit Spalthöhe $h = 14,7\sigma$ und $\alpha = 1,5$ bei etwa 580σ , also bei mehr als der Hälfte der Länge der Simulationsbox ($941,2\sigma$). Eine Analyse des überkritisch gedämpften Bereichs erfordert demnach noch größere Simulationsaufbauten. Durch eine weitere Simulation mit $L_x = 1\,411,8\sigma$ konnten mehr Korrelationsfunktionen im überkritisch gedämpften Bereich analysiert werden. Abb. 4.4a zeigt jeweils drei verschiedene Autokorrelationsfunktionen für Dichte und Longitudinalimpulsfluktuationen im überkritisch gedämpften Bereich. Bereits in dieser Ansicht wird deutlich, dass die Impulsfluktuationen nur schwach von der Wellenlänge abhängen, während für die Dichtefluktuationen eine deutliche Abhängigkeit erkennbar ist. Trägt man wie schon in Kap. 4.1.2 die effektiven Relaxationszeiten aus den Anpassungen an Gl. (4.3) über der Wellenlänge auf, wird die Aufspaltung deutlich. Man beachte, dass die gepunkteten Linien im überkritisch gedämpften Bereich in Abb. 4.4b im Unterschied zu vorherigen Abbildungen keine Anpassung an die vorhandenen Datenpunkte darstellen, sondern die theoretisch erwartbare Relaxationszeit basierend auf der Anpassung des schwach gedämpften Bereichs. Die effektiven Relaxationszeiten aus den Anpassungen an die vereinfachten Korrelationsfunktionen, Gl. (4.3), konvergieren gegen die Vorhersage.

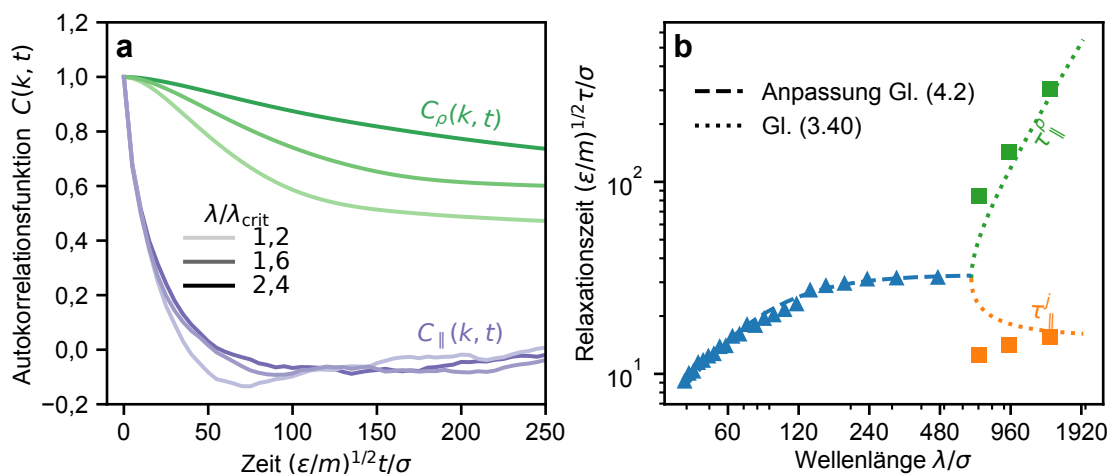


Abbildung 4.4.: Überkritisches Relaxationsverhalten von Dichte- und Impulsfluktuationen. (a) Dichte- und Impulsautokorrelationsfunktionen für drei Wellenlängen im überkritisch gedämpften Fall. (b) Im schwach gedämpften Bereich (blaue Dreiecke) sind wellenlängenabhängige Schallrelaxationszeiten der Dichte- und Impulsfluktuationen identisch. Im überkritischen Bereich spalten sie sich auf in einen konvergierenden Teil (orange Vierecke) für den Impuls und in einen divergierenden Teil (grüne Vierecke) für die Dichte. In Anlehnung an Ref. [P2].

4.1.4. Effektive Spalthöhe und Schlupflängenbestimmung

Der im vorherigen Kapitel beschriebene Übergang zu diffusivem Schalltransport hat keine Auswirkungen auf Fluktuationen in transversaler Richtung. Der Ausdruck für die effektive Scherrelaxationszeit τ_\perp^{eff} enthält zwei Parameter, die kinematische Viskosität ν und die effektive Spalthöhe $h\sqrt{\kappa}$. Mit den Daten der Scherrelaxationszeit für einen Wellenlängenbereich, der den Übergang von quadratischen zum konstanten Verlauf abbildet, lässt sich somit sowohl Viskosität als auch die effektive Spalthöhe bestimmen. Da die geometrische Spalthöhe im Allgemeinen bekannt, bzw. leicht messbar ist, kann aus der effektiven Spalthöhe die Schlupflänge bestimmt werden, sofern die Permeabilität κ für die betrachtete Geometrie bekannt ist.

In Abb. 4.5a findet man die höchste Scherrelaxationszeit im Plateau des langwelligeren Bereichs für ein Weeks-Chandler-Anderson (WCA)-Potential [143], welches ausschließlich Repulsionskräfte zwischen Fluid und Wand modelliert. Durch „Anschalten“ der attraktiven Wechselwirkungen nimmt die Relaxationszeit im Grenzbereich ab. Je größer der Wechselwirkungsparameter α , der das Verhältnis der Bindungsenergien zwischen Fluid- und Wandatomen und Fluidatomen untereinander angibt, desto kürzer die Relaxationszeit. Im kurzwelligen Bereich zeigt sich in allen Fällen eine Annäherung an die quadratische Beziehung des unbegrenzten Fluids. Die Relaxationszeiten der eingeschlossenen Fluide

sind jedoch im Vergleich zur vollperiodischen Referenz nach unten, bzw. zu einer leicht höheren Viskosität, verschoben.

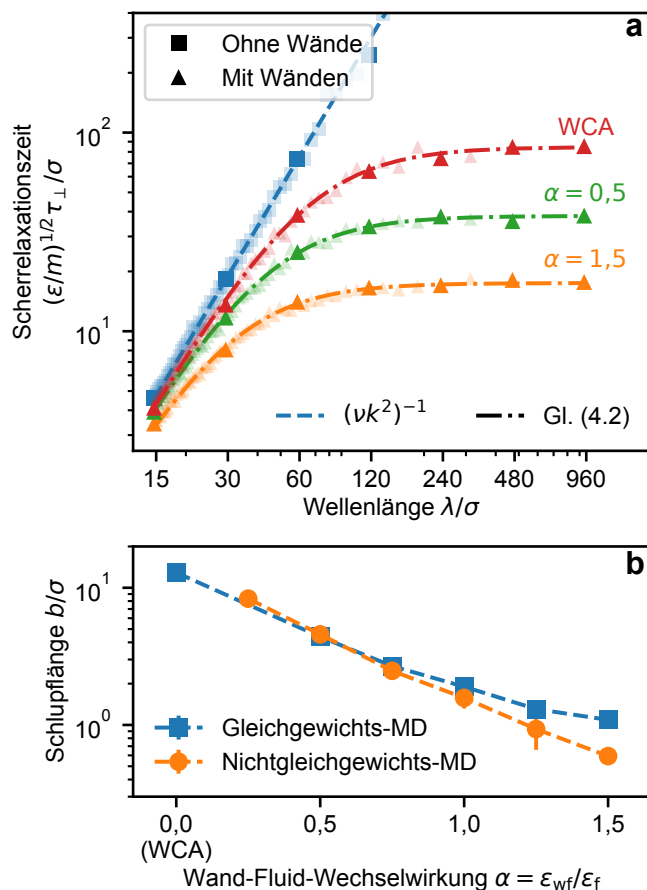


Abbildung 4.5.: Bestimmung der Schlupflänge mittels Scherrelaxationszeiten. (a) Scherrelaxationszeiten für ein System ohne Wände und drei Systeme mit Wänden und unterschiedlichen Wand-Fluid-Interaktionen von rein repulsiv, Weeks-Chandler-Anderson-Potential (WCA), zu Lennard-Jones-Interaktionen mit $\epsilon_{wf} = 1,5 \epsilon$. (b) Vergleich der aus (a) berechneten Schlupflänge mit Ergebnissen aus Nichtgleichgewichts-Simulationen (Couette-Strömung). In Anlehnung an Ref. [P3].

Um die Schlupflänge und Viskosität zu bestimmen, wird Gl. 4.2 an die Relaxationszeiten angepasst. Mit zunehmender Wand-Fluid-Wechselwirkung, von rein repulsiv bis $\alpha = 1,5$, stieg die kinematische Scherviskosität um etwa 8,5 % an, im Vergleich zum unbegrenzten Fluid um 13,7 %. Aus der effektiven Spalthöhe erhält man die Schlupflänge b aus Gl. (3.36) für verschiedene Wand-Fluid-Wechselwirkungen und die Ergebnisse sind in Abb. 4.5b dargestellt. Zum Vergleich wurden Nichtgleichgewichts-MD-Simulationen identischer (aber kürzerer) Systeme unter Scherung durchgeführt. Dazu wurde das LJ-Fluid durch Verschiebung der oberen und unteren Wand mit konstanter Geschwindigkeit $\pm U/2$ gesichert, wobei die Relativgeschwindigkeit U so gewählt wurde, dass die maximale Scherrate

unter $0,01 \sqrt{\epsilon/m\sigma^2}$ bleibt. Die Scherratenabhängigkeit der Schlupflänge ist unter diesen Bedingungen vernachlässigbar [144]. Aus den Geschwindigkeitsprofilen der Couette-Simulationen, gemittelt über ein Zeitintervall $100L_x/U$, wurde die Schlupflänge durch Extrapolation zur Wandgeschwindigkeit nach der klassischen Definition, Gl. (3.21), bestimmt. Die berechneten Schlupflängen in Abb. 4.5b sind arithmetische Mittelwerte aus Simulationen mit drei verschiedenen Scherraten und stimmen für einen weiten Interaktionsbereich mit den Ergebnissen der Gleichgewichts-Simulation überein. Im Falle starker Wechselwirkung für $\alpha \geq 1$ tendieren Ergebnisse der Gleichgewichtssimulation gegen einen konstanten Wert zu konvergieren, während die Couette-Simulationen weiter sinkende Schlupflängen vorhersagen.

4.2. Validierung der numerischen Implementierung

Im folgenden Kapitel wird die in Kap. 3.4 beschriebene numerische Implementierung validiert, wobei hier nur Systeme mit stationären Wänden betrachtet werden. Damit ist ein Vergleich mit den analytischen Betrachtungen aus Kap. 3.3 möglich.

4.2.1. Korrelationsfunktionen

Die in Kap. 3.3 hergeleitete analytische Lösung Gl. (3.43) beschreibt die zeitliche Entwicklung einer Anfangsbedingung $\tilde{\mathbf{q}}(k,0)$ unter der Voraussetzung, dass diese eine kleine Störung des Gleichgewichtszustands darstellt. Somit können z. B. sinusförmige Auslenkungen mit Wellenzahl $k = 2\pi n/L_x$, $n = 1, 2, 3, \dots$ betrachtet werden, wobei L_x die Länge eines eindimensionalen periodischen Simulationsgebietes bezeichnet. Die zeitliche Entwicklung für zwei verschiedene Anfangsbedingungen dieser Art ist in Abb. 4.6 dargestellt. Als Materialparameter wurden in dieser und den folgenden Betrachtungen Werte für superkritisches Argon (siehe Anhang B) angenommen. Der Zeitschritt wurde zu $\Delta t = 100$ fs gewählt und $N_x = 256$ Zellen wurden zur Diskretisierung der Longitudinalrichtung verwendet. Eine sinusförmige Auslenkung der Transversalkomponente des Impulsdichtevektors $j_y(x, 0) = \sin(2\pi x/L_x)$ wird in Abb. 4.6a betrachtet, wobei $L_x = 500$ nm und $h = 5$ nm. Innerhalb weniger als einer Nanosekunde nimmt die Amplitude der Impulsstörung um drei Viertel ab und das berechnete Impulsprofil stimmt mit der theoretischen Vorhersage zu den dargestellten Zeitpunkten überein. Eine äquivalente Auslenkung des Impulsdichtevektors in der Longitudinalkomponente führt zu oszillierendem Verhalten, wie in Abb. 4.6b gezeigt

wird. Die numerische Lösung zu denselben Zeitpunkten wie im vorherigen Beispiel stimmt ebenfalls mit der Theorie nach Gl. (3.43) überein.

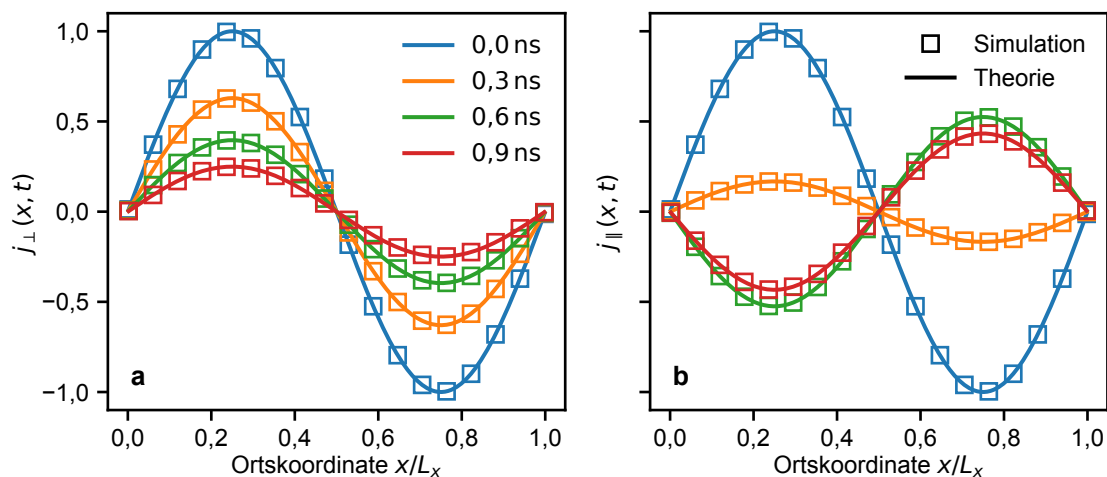


Abbildung 4.6.: Zeitliche Entwicklung sinusförmiger Impulsauslenkungen im Ortsraum. (a) Störungen der Transversalkomponente des Impulsdichtevektors zerfallen exponentiell. (b) Störungen der Longitudinalkomponente des Impulsdichtevektors führen zu Oszillationen, wobei die Amplitude der Auslenkung ebenfalls exponentiell abnimmt.

Eine Analyse wie die eben gezeigte kann prinzipiell für beliebige Wellenlängen jeweils einzeln vorgenommen werden. Eine einfache Möglichkeit verschiedene Wellenlängen gleichzeitig zu testen ergibt sich durch die Wahl zufälliger Anfangsbedingungen, welche als Überlagerung endlich vieler sinusförmiger Anfangsbedingungen gesehen werden kann. Durch diskrete Fouriertransformation der erhaltenen Lösung kann die zeitliche Entwicklung der unterschiedlichen Wellenlängenanteile aufgetrennt werden. Dazu werden zunächst zufällige, normalverteilte Auslenkungen der Massendichte um den Gleichgewichtszustand $\rho_0 = 762,86 \text{ kg/m}^3$ mit Standardabweichung $\sqrt{\langle(\rho - \rho_0)^2\rangle} = 1 \text{ kg/m}^3$ betrachtet. Abbildung 4.7a zeigt den normierten zeitlichen Verlauf der Amplituden der vier größten Wellenlängen im periodischen Simulationsgebiet der Länge $L_x = 320 \text{ nm}$. In diesem Fall kann die numerische Lösung direkt mit Gl. (3.43a) verglichen werden. Es sei zu beachten, dass nur jeder 250. Zeitschritt dargestellt ist, wobei als Zeitschritt wieder $\Delta t = 100 \text{ fs}$ gewählt wurde.

Die Analyse der wellenlängenabhängigen zeitlichen Autokorrelation des Longitudinalimpulses erfolgt nach demselben Prinzip. Wiederum wurden randomisierte Auslenkungen aus dem Gleichgewichtszustand ($\vec{j}_0 = \vec{0} \text{ kg/m}^2\text{s}$) als Anfangsbedingung gewählt und das zeitliche Verhalten der Fourier-Koeffizienten betrachtet. Das Ergebnis ist in Abb. 4.7b dargestellt und zeigt ebenfalls eine gute Übereinstimmung mit der theoretischen Vor-

hersage, Gl. (3.43b). Vergleicht man die Dichte- und Impulskorrelationsfunktionen, fällt auf, dass sich für die zwei kleineren Wellenlängen qualitativ ähnliche Verläufe ergeben, während sich das Verhalten zu großen Wellenlängen hin mehr und mehr unterscheidet. In diesem Beispiel wird erneut der bereits in Kap. 3.3 diskutierte Übergang von schwacher zu überkritischer Dämpfung sichtbar. Die kritische Wellenlänge liegt hier bei etwa 160 nm.

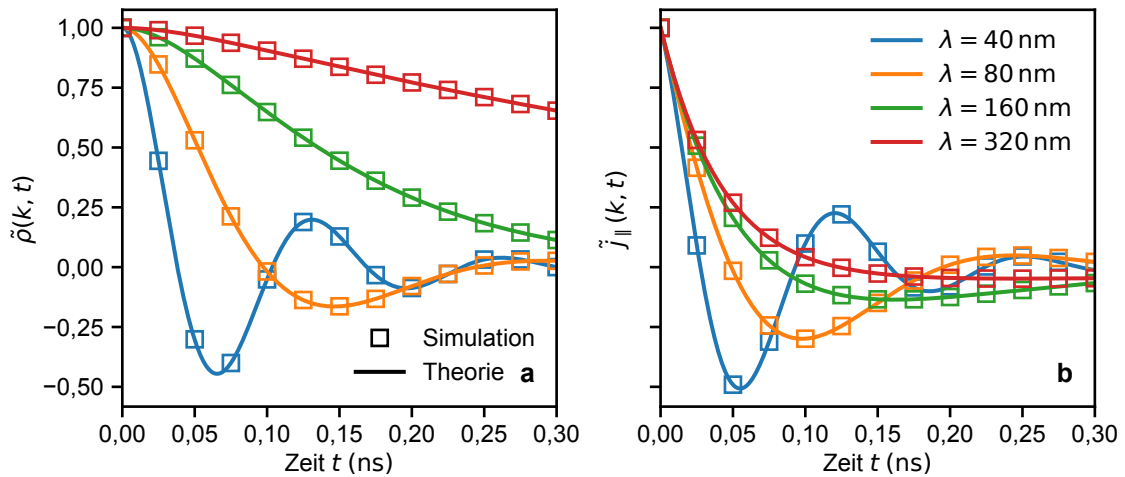


Abbildung 4.7.: Normierte zeitliche Entwicklung der Fourier-Koeffizienten randomisierter Anfangsbedingungen. (a) Massendichte und (b) Longitudinalimpulsdichte. Der Übergang zu überkritisch gedämpften Relaxationsverhalten ist deutlich erkennbar.

Das Vorhandensein analytischer Vergleichslösungen bietet die Möglichkeit, den numerischen Diskretisierungsfehler abzuschätzen. Durch Vergleich einer numerischen Lösung analog zum vorherigen Beispiel mit der analytischen Referenz für verschiedene Fourier-Koeffizienten erhält man einen wellenlängenabhängigen Fehler

$$\text{Err}[\tilde{j}_{\parallel}(k, t)] = \left| \frac{\tilde{j}_{\parallel}^{\text{num}}(k, t) - \tilde{j}_{\parallel}^{\text{ana}}(k, t)}{\tilde{j}_{\parallel}^{\text{ana}}(k, t)} \right|, \quad (4.4)$$

wobei jeder fünfte Zeitschritt bei einer Gesamtzeit von $t_{\text{max}} = 0,5$ ns und einem Zeitschritt $\Delta t = 100$ fs für die Berechnung zugrunde gelegt wurde. Das periodische Simulationsgebiet hat eine Länge von $L_x = 640$ nm und wird für vier verschiedene Diskretisierungen zwischen 128 und 1024 FVM-Zellen getestet. Multipliziert man das Fehlermaß mit dem Quadrat der Anzahl an Zellen N_x , erhält man eine einzelne Kurve, wie in Abb. 4.8 gezeigt. Dies bestätigt empirisch die räumliche Konvergenzordnung (2. Ordnung) des verwendeten MacCormack-Verfahrens. Des Weiteren wird deutlich, dass der numerische Diskretisierungsfehler kubisch mit der Wellenzahl skaliert. Dies unterstreicht die bereits erwähnte

unerwünschte Eigenschaft expliziter FVM-Verfahren, die sich häufig durch das Auftreten von Oszillationen an Diskontinuitäten der Lösung bemerkbar macht.

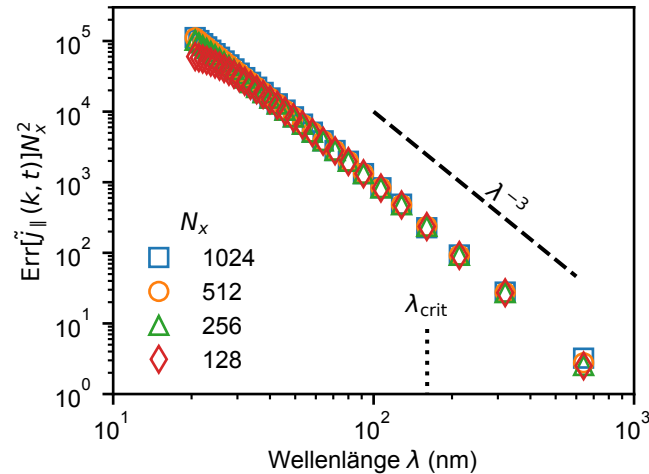


Abbildung 4.8.: Räumliches Konvergenzverhalten der numerischen Lösung. Der numerische Diskretisierungsfehler skaliert quadratisch mit dem Zellinkrement Δx und kubisch mit der Wellenzahl k .

4.2.2. Schallausbreitung

Bevor mit der Validierung anhand von Schmierungs-simulationen, dem eigentlichen Anwendungsgebiet des Lösers, fortgefahren wird, wird ein weiterer Test ohne Scherung des Fluidfilms vorgenommen, welcher den Übergang zu diffusivem Massentransport veranschaulicht. Dazu wurde ein eindimensionaler flacher Kanal der Länge $L_x = 1 \mu\text{m}$ mit variierender Spalthöhe zwischen 5 und 50 nm untersucht. Die Materialparameter sind wie in Kap. 4.2.1 an überkritisches Argon angelehnt. Der explizite Zeitschritt war $\Delta t = 500 \text{ fs}$ und das Simulationsgebiet wurde durch 1 024 Gitterzellen diskretisiert. Als Anfangsbedingungen dient jeweils eine Dichtestörung $\delta\rho(x)$ des Gleichgewichts, welche normalverteilt um den Mittelpunkt des Simulationsgebiets mit Standardabweichung $\sigma = L_x/40$ aufgebracht wurde. Die zeitliche Entwicklung dieser Anfangsbedingungen für zwei Spalthöhen ist in Abb. 4.9 dargestellt. Man beachte, dass der langreichweitige Teil der gaußförmigen Dichtestörung abgeschnitten wurde und nur kurze Simulationszeiten betrachtet wurden, sodass Effekte der periodischen Ränder durch den Wiedereintritt von Dichte vermieden wurden.

Abbildung 4.9 veranschaulicht die beiden begrenzenden Verhaltensweisen der Schallausbreitung im schwach gedämpften Zustand und der Diffusion im überkritisch gedämpften

Zustand. Die Spalthöhe in Abb. 4.9a-b ist zehnmal größer als in Abb. 4.9c-d, während alle anderen Parameter identisch sind. Im Unterschied zu den Beispielen des vorherigen Kapitels gibt es hier keine wohldefinierte Wellenlänge. Stattdessen sei angenommen, dass der dominierende Wellenlängenbeitrag in der Größenordnung der Breite des Gauß'schen Dichteprofils liegt, und somit zwischen schwacher und überkritischer Dämpfung unterschieden werden kann.

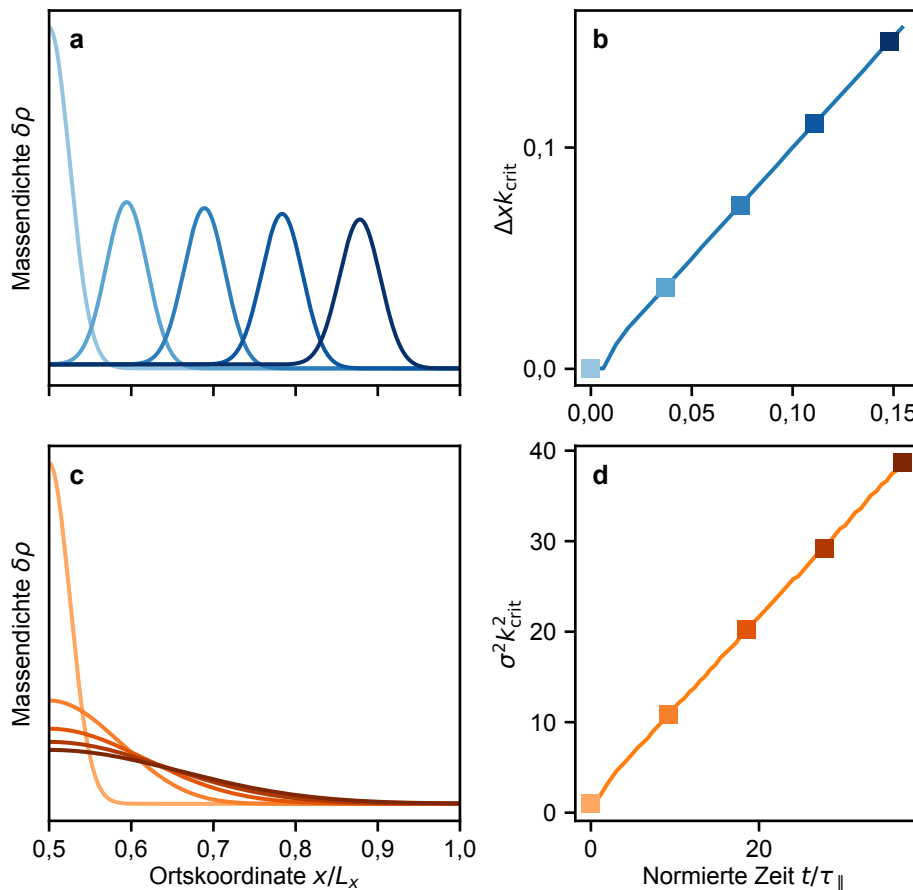


Abbildung 4.9.: Zeitliche Entwicklung einer kleinen, gaußförmigen Dichtestörung in einer Spaltgeometrie. (a) Zeitlicher Verlauf des Dichteprofils bei einer Spalthöhe $h = 50$ nm. (b) Ausbreitungsdistanz Δx über der Zeit t . Durch geeignete Skalierung mit der kritischen Wellenzahl k_{crit} bzw. der Schalldämpfungszeit τ_{\parallel} lässt sich die Schallgeschwindigkeit $c_T = 1/\tau_{\parallel} k_{\text{crit}}$ leicht ablesen. (c) Zeitlicher Verlauf des Dichteprofils bei einer Spalthöhe $h = 5$ nm. (d) Varianz σ^2 über der Zeit. Durch geeignete Skalierung mit k_{crit}^2 bzw. τ_{\parallel} lässt sich der Diffusionskoeffizient $D_\rho = h^2 c_T^2 / 12\nu$ direkt ablesen. In Anlehnung an Ref. [P3].

Im Fall schwacher Dämpfung teilt sich das Dichteprofil auf, wobei die jeweiligen Anteile sich nach links bzw. rechts ausbreiten. In Abb. 4.9a wird aus Symmetriegründen nur die rechte Hälfte des Simulationsgebiets gezeigt. Abbildung 4.9b zeigt die zurückgelegte Distanz Δx als Funktion der Zeit, sodass aus der Steigung die Schallgeschwindigkeit abgelesen werden kann. Aus der normierten Darstellung kann direkt die Schallgeschwin-

digkeit c_T abgelesen werden, welche implizit durch die Vorgabe der Zustandsgleichung vorgegeben ist.

Im überkritisch gedämpften Fall bleibt der Schwerpunkt der anfänglichen Dichtestörung konstant, stattdessen ist in Abb. 4.9c eine diffusive Ausbreitung der Massendichte zu beobachten. Daher wird in Abb. 4.9d statt der Verschiebung die Varianz σ^2 über der Zeit aufgetragen. Aus dem linearen Zusammenhang lässt sich somit eine Diffusionskonstante ablesen, welche in diesem Fall durch

$$D_\rho = \frac{1}{\tau k_{\text{crit}}^2} = \frac{h^2 c_T^2}{12\nu} \quad (4.5)$$

gegeben ist.

4.2.3. Parallele Skalierung

Im Folgenden wird das Skalierungsverhalten der MPI-parallelisierten Implementierung des Makroproblems untersucht. Zwar sind die meisten im Rahmen dieser Arbeit gezeigten Probleme eindimensionale Validierungsbeispiele, und im Kontext von Multiskalensimulationen stellen aufwendige MD-Simulationen den geschwindigkeitsbestimmenden Teilschritt dar. Dennoch ist eine hohe Performanz des Kontinuumslösers wünschenswert, insbesondere wenn große zweidimensionale Geometrien betrachtet werden, die eine hohe Auflösung erfordern. Die Anzahl der expliziten Zeitintegrationsschritte bis zum Erreichen eines stationären Zustands kann zudem je nach betrachtetem Problem stark variieren und reicht von wenigen hundert Schritten bis zu mehr als einer Million.

Erhöht man die verfügbaren Rechenressourcen bei gleichbleibender Problemgröße, spricht man von starker Skalierung [136]. Hier wurde als einfaches Beispielproblem die Schmierungs-simulation eines hydrodynamischen Gleitlagers betrachtet. Auf die Details des Simulationsmodells soll hier verzichtet werden und es sei auf die Validierungsbeispiele in Kap. 4.3 verwiesen. Es wurden zwei Diskretisierungen betrachtet, mit 400×400 bzw. $1\,000 \times 1\,000$ Finite-Volumen-Gitterzellen. Alle Simulationen wurden bis zum Erreichen eines stationären Zustands nach 4 955 Zeitschritten auf dem bwForCluster NEMO an der Universität Freiburg (2x Intel Xeon E5-2360v4 bei 2,2 GHz pro Rechenknoten mit einem 100 Gbit/s OmniPath Interconnect) durchgeführt. Aufgrund der unterschiedlichen Auflösung wird die Performanz normiert in Millionen Gitteraktualisierungen pro Sekunde (engl. *million lattice updates per second*, MLUPS) angegeben. Bei der kleineren Auflösung

erreicht die serielle Implementierung 1,6 MLUPS, was durch parallele Ausführung auf 220 MPI-Prozessen (11 NEMO-Rechenknoten) auf 54,4 MLUPS verbessert werden kann, wie in Abb. 4.10 dargestellt. In der größeren Auflösung erreicht die parallele Implementierung mit 520 MPI-Prozessen (26 NEMO-Rechenknoten) einen Spitzenwert von 223,7 MLUPS. In beiden Fällen fällt die Performanz ab einer bestimmten Anzahl an Prozessoren wieder ab, was in dem überproportionalen Mehraufwand durch Kommunikation zwischen den einzelnen MPI-Prozessen begründet ist.

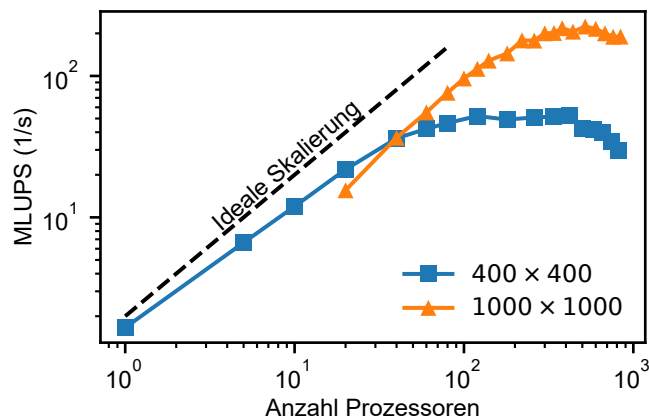


Abbildung 4.10.: Starke Skalierung der parallelen Implementierung. Die Performanz auf Intel Xeon E5-2360v4 Prozessoren wird normiert in *million lattice updates per second* (MLUPS) für zwei verschiedene Auflösungen dargestellt. Die ideale lineare Skalierung ist durch die gestrichelte Linie gekennzeichnet.

4.3. Validierung mittels Schmierungssimulationen

Die numerische Lösung des Makroproblems wurde bereits in Kap. 4.2 mithilfe analytischer Vergleichslösungen validiert. Allerdings wurden dabei ausschließlich Probleme mit stationären Wänden behandelt. Im Folgenden sollen nun Situationen betrachtet werden, bei denen die Relativgeschwindigkeit der Wände ungleich null ist. Dabei finden auch die für Schmierungsprobleme relevanten Konstitutivgesetze aus Kap. 3.2 Anwendung, die über isoviskoses Newton'sches Verhalten hinausgehen.

4.3.1. Einfluss von Kompressibilität und Trägheitseffekten

Zunächst wurde die Geometrie eines linearen Gleitlagers für verschiedene Zustandsgleichungen und Randbedingungen betrachtet. Die aus der stationären Lösung erhaltenen

Dichteprofile wurden mit der Zustandsgleichung in Druckprofile umgewandelt und mit Ergebnissen konventioneller Reynolds-Löser verglichen. Das Höhenprofil ist in diesem Fall gegeben durch

$$h(x) = h_{\max} - sx, \quad x \in [0, L_x], \quad (4.6)$$

wobei $s = (h_{\max} - h_{\min})/L_x$ die Neigung der oberen Wand bezüglich der Horizontalen beschreibt, wie in Abb. 4.11a gezeigt.

Zunächst wurde die isotherme Dowson-Higginson Zustandsgleichung (3.26) mit den Parametern aus Ref. [115] ($C_1 = 2,22$ GPa, $C_2 = 1,66$) gewählt. Eine konstante Dichte entsprechend dem Umgebungsdruck $p_0 = 101\,325$ Pa sowie verschwindende Massenflussgradienten wurden als Randbedingungen gewählt. Die maximale Spalthöhe am Einlass ist $h_{\max} = 1,5 \mu\text{m}$ und die Geschwindigkeit der unteren Wand ist $U = 0,1$ m/s. Abbildung 4.11 zeigt die resultierenden Druckprofile für drei verschiedene Neigungen s , welche mit den Ergebnissen eines konventionellen Reynolds-Lösers [145] verglichen wurden. In allen drei Fällen konnte eine gute Übereinstimmung der Profile beider Berechnungsmethoden gefunden werden.

Die Dowson-Higginson-Gleichung wird gewöhnlich für die Berechnung ölgeschmierter Lagerungen verwendet, wobei der Einfluss der Kompressibilität eher gering ist. Der Einfluss der Kompressibilität soll nun für ein aerodynamisches Gleitlager mit $L_x = 0,1$ m, $h_{\max} = 66 \mu\text{m}$ und $s = 5,6 \cdot 10^{-4}$ untersucht werden. Dazu wurde das ideale Gasgesetz

$$p(\rho) = \frac{p_0}{\rho_0} \rho \quad (4.7)$$

als Zustandsgleichung gewählt, mit Umgebungsdruck $p_0 = 101\,325$ Pa und Umgebungsdichte $\rho_0 = 1,1853$ kg/m³. Die Scherviskosität wurde als konstant angenommen mit $\eta = 18,46 \cdot 10^{-6}$ Pa s und die Volumenviskosität ζ auf null gesetzt. Die gewählten Materialparameter repräsentieren Luft bei Raumtemperatur und entsprechen ebenso wie die geometrischen Abmessungen den Werten in Ref. [18]. Die Druckprofile wurden für drei verschiedene Wandgeschwindigkeiten bei konstanter Neigung berechnet und mit den Ergebnissen eines kompressiblen Reynolds-Lösers von Almqvist et al. [18] verglichen, wie Abb. 4.11c zeigt.

Wie schon im vorherigen Beispiel ersichtlich, kann die Lasttragfähigkeit des Lagers durch Veränderung der Geometrie, bzw. Lastbedingungen beeinflusst werden und die Ergebnisse der hier vorgestellten numerischen Implementierung stimmen mit den Referenzlösungen überein. In beiden Fällen wurden Trägheitseffekte vernachlässigt, d. h. der konvektive

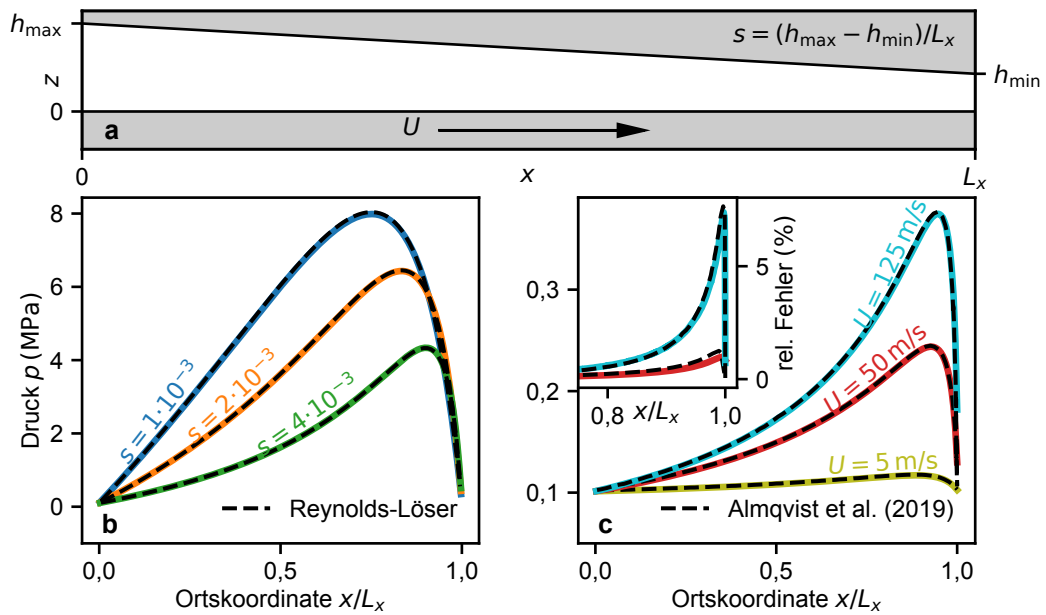


Abbildung 4.11.: Validierung am linearen Gleitlager und Einfluss der Trägheitseffekte. (a) Geometrie des linearen Gleitlagers. (b) Druckprofile für Simulationen mit Dowson-Higginson-Zustandsgleichung bei konstanter Wandgeschwindigkeit unter Variation der Neigung. (c) Druckprofile für Simulationen mit idealem Gasgesetz bei konstanter Neigung und unter Variation der Wandgeschwindigkeit. Das Nebenbild zeigt den relativen Fehler zwischen linearer und nichtlinearer Formulierung für 50 und 150 m/s. In Anlehnung an Ref. [P1] (CC BY 4.0).

Beschleunigungsanteil, welcher i. A. in die Flussfunktion, Gl. (3.2), eingeht, wurde hier nicht berücksichtigt. Im Vergleich zum ölgeschmierten Lager wurden im aerodynamischen Fall jedoch extrem hohe Relativgeschwindigkeiten betrachtet, da selbst für ein so kompressibles Medium wie Luft erst ab 50 m/s ein signifikanter Unterschied zwischen kompressibler und inkompressibler Reynoldslösung sichtbar wurde [18]. Almqvist et al. [18] zeigten außerdem, dass die Vernachlässigung von Trägheitstermen bei der Lösung der kompressiblen Reynoldsgleichung unter Verwendung des idealen Gasgesetzes und bei hohen Relativgeschwindigkeiten zu erheblichen Fehlern führen kann. Die numerische Behandlung des Makroproblems kann sehr leicht für eine Berücksichtigung der konvektiven Beschleunigungsanteile modifiziert werden. Daher wurden für die zwei höchsten Geschwindigkeiten Vergleichsrechnungen des nichtlinearen Problems durchgeführt und mit den Ergebnissen des linearen Problems verglichen. Das Nebenbild in Abb. 4.11c zeigt den relativen Fehler

$$E_p = \frac{|p_l(x) - p_{nl}(x)|}{\max(p_{nl}(x))} \quad (4.8)$$

zwischen linearer (p_l) und nichtlinearer (p_{nl}) Lösung für den Druck, der für $U = 125$ m/s bis zu 8 % beträgt. Ein Vergleich mit Literaturergebnissen zeigt auch für den Fehler eine gute Übereinstimmung. Dabei ist hervorzuheben, dass hier dieselbe numerische Implementierung sowohl für das lineare als auch das nichtlineare Problem verwendet wurde, während in Ref. [18] konventionelle CFD-Software für die Lösung des nichtlinearen Problems in 2D verwendet wurde.

4.3.2. Wandschlupf

Im vorherigen Kapitel wurde durch das Höhenprofil und die Relativgeschwindigkeit der Wände ein Druckprofil innerhalb des Schmierfilms erzeugt. Die dadurch entstandene Möglichkeit einen lasttragenden Fluidfilm zu generieren ist das grundlegende Funktionsprinzip eines hydrodynamischen Lagers. Im folgenden Beispiel soll nun veranschaulicht werden, dass das Entstehen von Druckgradienten nicht an die Bedingung eines vorhandenen Höhenprofils gebunden ist. Gleichzeitig werden wiederum Referenzlösungen aus der Literatur verwendet, um die in Kap. 3.2.2 dargestellte Implementierung von Schlupfrandbedingungen zu validieren.

Es soll ein periodischer Ausschnitt eines flachen, zweidimensionalen Kanals betrachtet werden, mit den Aspektverhältnissen $h/L_x = h/L_y = 0,01$. Die untere Wand bewegt sich mit Geschwindigkeit $U = 1 \nu/L_x$ relativ zur oberen Wand und Haftbedingungen gelten an der unteren Wand. Die obere Wand hingegen hat heterogene Randbedingungen, wie in Abb. 4.12a und 4.12c dargestellt. Ein kreisförmiger Bereich mit Radius $R = L_x/4$ ist mit Schlupfrandbedingungen beaufschlagt, wobei die Schlupflänge durch $b = 2,34h$ gegeben ist. Das resultierende zweidimensionale Druckprofil ist in Abb. 4.12b dargestellt. Man beachte, dass der Druck normiert auf einen Referenzdruck $p_{ref} = (1 + 5b/2h)L_x\eta U/2h^2$ angegeben wird. Das Druckprofil entlang der gestrichelten Linie in Abb. 4.12b ist in Abb. 4.12d dargestellt und wird mit den Ergebnissen eines Reynolds-Lösers verglichen, welcher ebenfalls in Ref. [146] beschrieben ist.¹ Es zeigt sich eine sehr gute Übereinstimmung mit der Referenzlösung. Savio et al. [146] zeigten, dass Druckgradienten in flachen Kanälen mit heterogenen Schlupfrandbedingungen umgekehrt proportional zum Quadrat der Spalthöhe steigen, und dass bei Berücksichtigung realer Belastungsbedingungen des Grenzreibungsbereichs Kavitationseffekte zu erwarten sind. Die simulative Berücksichtigung von Kavitation wird an einem Beispiel in Kap. 4.3.4 dargestellt.

¹ Die hier gezeigte Referenzlösung befindet sich im Zusatzmaterial von Ref. [146].

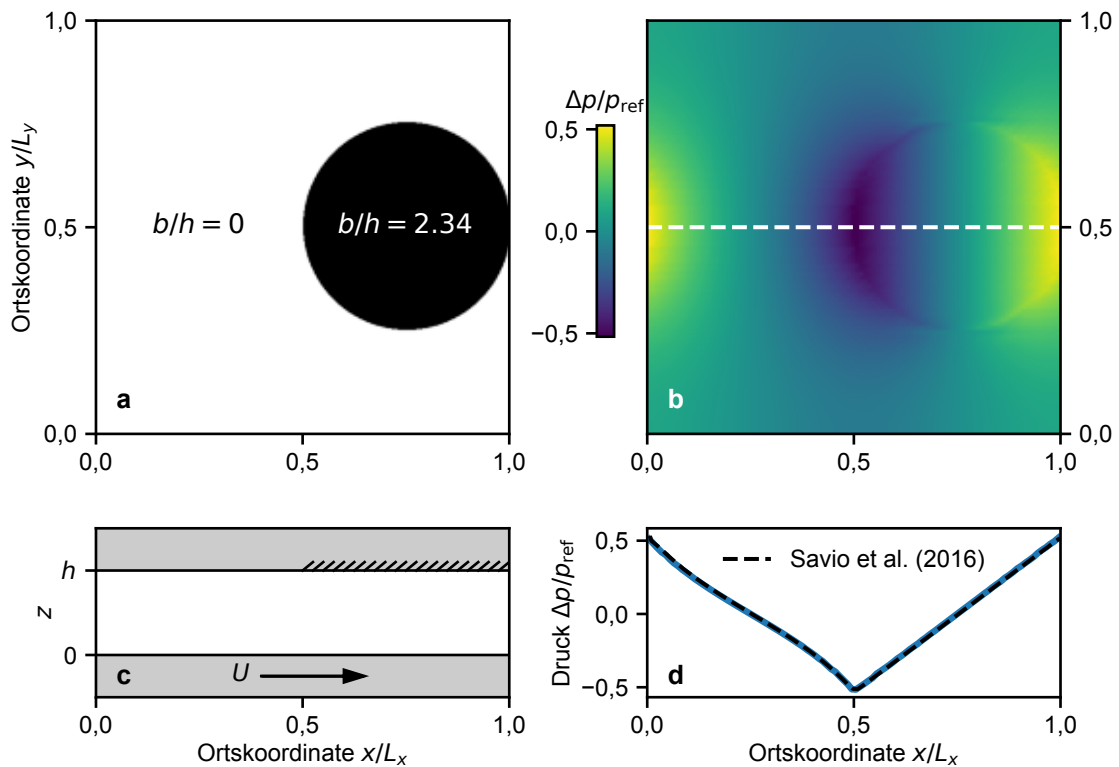


Abbildung 4.12.: Druckgradienten in einem flachen Kanal mit heterogenen Schlußfrandbedingungen. (a) Periodischer Ausschnitt der oberen Wand mit kreisförmigem Schlußbereich. (b) Zweidimensionales, normiertes Druckprofil. (c) Schnitt durch den Kontakt entlang der gestrichelten Linie in (b). Der schraffierte Bereich kennzeichnet den Schlußbereich. (d) Eindimensionales normiertes Druckprofil entlang der gestrichelten Linie in (b).

4.3.3. Nicht-Newton'sche Flüssigkeiten

In Kap. 3.2.3 wurden die Geschwindigkeitsprofile des Potenzgesetz-Fluids hergeleitet. Mithilfe dieser Geschwindigkeitsprofile kann somit eine semi-analytische Lösung des Mikroproblems gefunden werden, welche nun in der numerischen Implementierung des Makroproblems getestet werden soll. Die Verwendung dieser *a priori*-Berechnung der Geschwindigkeitsprofile vermeidet eine Integration in der Spalthöhenkoordinate während der Laufzeit, wie z. B. bei der Anwendung der verallgemeinerten Reynoldsgleichung [20] notwendig. Der numerische Test wird in einer radialen Gleitlagergeometrie vorgenommen, wobei das eindimensionale Höhenprofil durch

$$h(\theta) = c + e \cos(\theta/R_b), \quad \theta \in [0, 2\pi R_b), \quad (4.9)$$

gegeben ist. Dabei bezeichnet R_b den Radius der Lagerbuchse, e die Exzentrizität und c ist die mittlere Spalthöhe, die durch die Radiusdifferenz von Lagerbuchse und Welle $c = R_b - R_j$ gegeben ist. Abbildung 4.13a zeigt die Geometrie der Lagerung und alle darin auftretenden Größen.

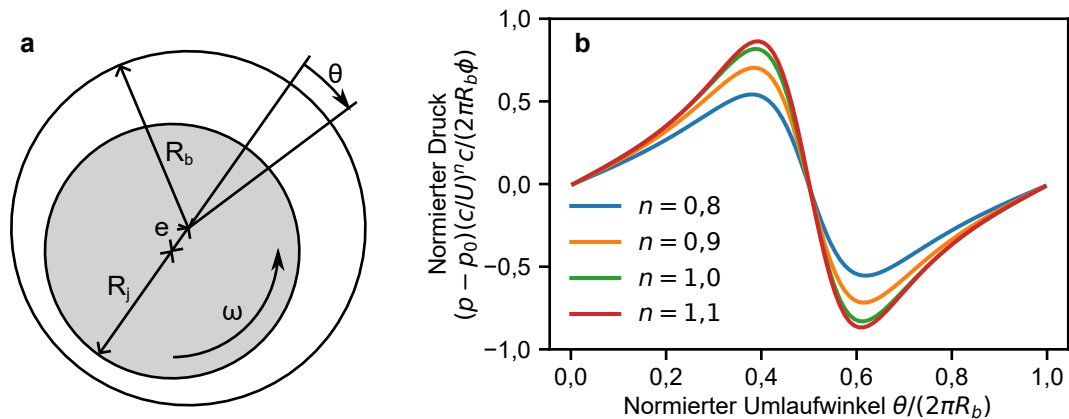


Abbildung 4.13.: Numerischer Test für Potenzgesetz-Fluide. (a) Geometrie des radialen Gleitlagers. (b) Normierte Druckprofile für vier verschiedene Fließindizes n . Für $n = 1$ erhält man das klassische Newton'sche Fluid. In Anlehnung an Ref. [P1] (CC BY 4.0).

Für alle hier gezeigten Ergebnisse wurde ein konstantes Exzentrizitätsverhältnis $e/c = 0,6$ mit $R_b = 1/2\pi$ mm und $c = 0,01 R_b$ gewählt. Die Relativgeschwindigkeit der Wände ergibt sich aus der Winkelgeschwindigkeit ω zu $U = \omega R_j = 5$ m/s. Der Fließkonsistenzindex $\phi = 0,0794$ Pa sⁿ ist in allen vier Fällen gleich und kann für $n = 1$ als Newton'sche Scherviskosität interpretiert werden. Die erhaltenen Druckprofile für vier verschiedene Fließindizes sind in Abb. 4.13b dargestellt. Für eine bessere Vergleichbarkeit der Ergebnisse, welche bei konstanten Belastungsbedingungen, aber unterschiedlichem Konstitutivverhalten gewonnen wurden, wurde eine Normierung auf einen Referenzdruck $p_{\text{ref}} \propto U^n$ gewählt. Die Wirkung von nicht-Newton'schen Schmierstoffen mit scherverdünnendem ($n < 1$) oder scherverdickendem ($n > 1$) Effekt ist direkt aus den normierten Druckprofilen ersichtlich. Dieses Beispiel kann jedoch nicht verwendet werden, um eine Zunahme oder Abnahme der Tragfähigkeit aufgrund des nicht-newtonschen Verhaltens des Schmierstoffs zu beschreiben, da Kavitation im divergierenden Teil der Geometrie nicht berücksichtigt wird. Die Implementierung von Kavitationsmodellen wird im folgenden Kapitel validiert.

4.3.4. Kavitation

Im vorherigen Kapitel tauchen nahezu symmetrische Druckprofile auf, die für einen großen Bereich einen negativen Druck vorhersagen. Da Fluide i. A. keine Zugspannungen aufnehmen, treten in Bereichen negativen Drucks bzw. unterhalb des Sättigungsdampfdrucks Kavitationsblasen auf, die lasttragende hydrodynamische Lagerungen in symmetrischen Geometrien ermöglichen. Hier soll nun als letzter Validierungsschritt die Implementierung des in Kap. 3.2.4 eingeführten Kavitationsmodells nach Bayada und Chupin [113] getestet werden. Dazu wurde dasselbe Benchmark-Problem wie in Ref. [113] gewählt. Das Höhenprofil des parabolischen Gleitlagers ist gegeben durch

$$h(x) = \frac{4(h_{\max} - h_{\min})}{L_x^2} \left(x - \frac{L_x}{2}\right)^2 + h_{\min}, \quad x \in [0, L_x], \quad (4.10)$$

mit maximaler Spalthöhe $h_{\max} = 50,8 \mu\text{m}$, minimaler Spalthöhe $h_{\min} = 25,4 \mu\text{m}$ und Länge $L_x = 76,2 \text{ mm}$ (siehe Abb. 4.14a). Die Parameter der Zustandsgleichung (3.28) sind in Tab. 4.3.4 angegeben.

Tabelle 4.3.: Parameter für die Zustandsgleichung und die Viskosität der flüssigen und dampfförmigen Phase nach Ref. [113].

η_l (Pa s)	η_v (Pa s)	c_l (m/s)	c_v (m/s)	ρ_l (kg/m ³)	ρ_v (kg/m ³)
0,039	$3,9 \cdot 10^{-5}$	1600	352	850	0,019

Abbildung 4.14b zeigt das Druckprofil für eine Wandgeschwindigkeit $U = 4,57 \text{ m/s}$. Im Gegensatz zum vorherigen Beispiel mit konvergierend-divergierendem Höhenprofil fällt der Druck im divergierenden Bereich nicht in den negativen Bereich. Es sei hervorgehoben, dass der Druck jedoch leicht unter den theoretischen Kavitationsdruck (vgl. Gl. (3.30)) fällt, was auch experimentell beobachtet werden kann. [147]. Eine Implementierung des Elrod-Adams-Algorithmus (EA) bildet solche Effekte nicht ab. Im konvergierenden Bereich der Geometrie, also dort wo ein vollständiger Flüssigkeitsfilm vorhanden ist, stimmt die Vorhersage des Druckes, allerdings mit Ergebnissen des EA-Algorithmus überein, sofern eine ähnliche Zustandsgleichung mit konstanter Kompressibilität verwendet wird [113]. Auch für das Dichteprofil, welches in Abb. 4.14c dargestellt ist, konnte eine sehr gute Übereinstimmung gefunden werden. Die Modellierung von Kavitationseffekten über die Zustandsgleichung ist demnach eine geeignete Methode für den vorgeschlagenen Kontinuumslöser.

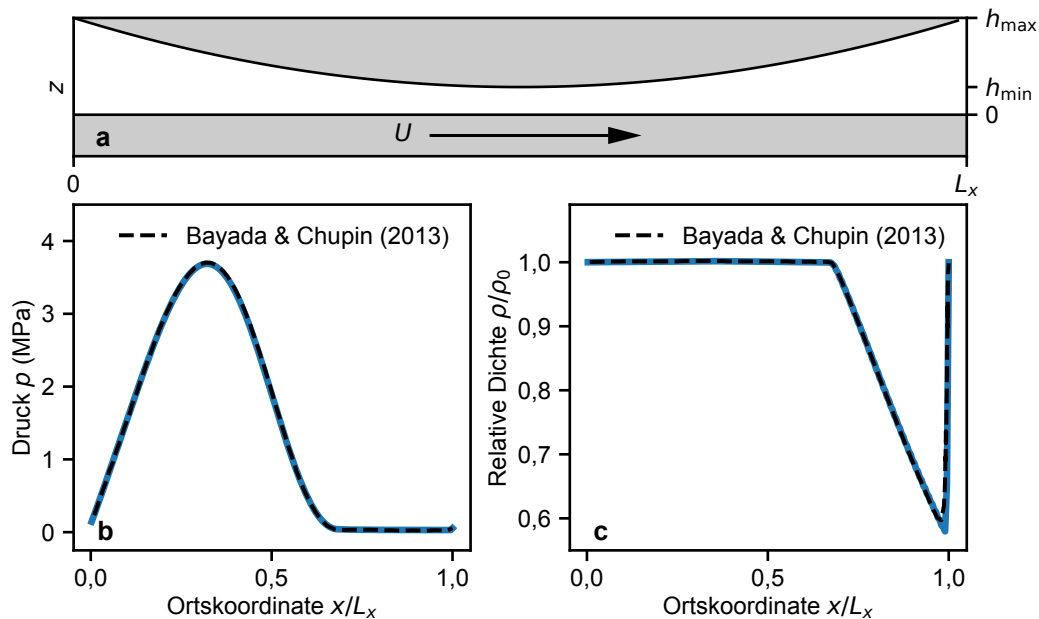


Abbildung 4.14.: Validierung am parabolischen Gleitlager und Kavitationsmodellierung. (a) Geometrie des parabolischen Gleitlagers. (b) Druckprofil für die Zustandsgleichung nach Bayada und Chupin [113] zur Modellierung von Kavitation. (c) Dichteprofil normiert auf die Dichte bei Umgebungsdruck ρ_0 . In Anlehnung an Ref. [P1] (CC BY 4.0).

4.4. Anwendungsbeispiele der Gaußprozess-Regression

Die Validierung des Kontinuumslösers in Kap. 4.2 und 4.3 hat gezeigt, dass dieser gut für eine Schmierungsmodellierung geeignet ist, wobei in allen Validierungsbeispielen ausschließlich Spannungsbeiträge aus konventionellen Konstitutivgesetzen berechnet wurden. Wie schon in Kap. 3.1.2 angedeutet, erlaubt die formale Trennung von Makro- und Mikroproblem den Ersatz der Konstitutivgesetze durch direkte Spannungsmessungen in MD-Simulationen. Wie bereits zu Beginn der Arbeit motiviert, kann durch ein geeignetes Ersatzmodell, welches zwischen einzelnen repräsentativen MD-Rechnungen interpoliert, ein effizientes, simultanes Multiskalenschema entstehen. Als Vorbild dient dazu die Implementierung der IMM-Methode nach Stephenson et al. [87] mittels Gaußprozess-Ersatzmodellierung. Im folgenden Kapitel sollen zwei konkrete Aspekte der Modellierung von Konstitutivgesetzen mittels Gaußprozess-Regression beleuchtet werden. Diese sind zwar nicht in ein vollständiges Multiskalenschema integriert und sind für sich selbst genommen sequentieller Natur, verdeutlichen aber das Anwendungspotential eines vollständig gekoppelten, simultanen Multiskalenansatzes.

4.4.1. Scherverdünnung und Fehlerfortpflanzung

Angenommen, man möchte das scherverdünnende Verhalten eines neu entwickelten Schmiermittels in einem Gleitlager simulativ untersuchen. Dazu liegen bereits Daten aus Viskositätsmessungen unter verschiedenen Scherraten vor. Daher stellt sich nun die Frage, wie aus den diskreten Testdaten – aus Experiment oder Simulation – ein kontinuierliches Modell für das Nicht-Newton'sche Verhalten abgeleitet werden kann. Zwar existieren Modelle, die sich für die Beschreibung der Scherverdünnung etabliert haben (siehe Kap. 3.2.3), aber selbst unter Experten herrscht oft Uneinigkeit bei der Modellauswahl [148–150]. Außerdem stellt sich die Frage, wie gut das Modell in der Anwendung außerhalb des Trainingsdatenbereichs funktioniert, was insbesondere bei MD-Simulationen mit extrem hohen Scherraten relevant ist. Zur Veranschaulichung wurden künstliche Daten generiert, indem fehlerbehaftete Stichproben eines Carreau-Modells [98] genommen wurden²

$$\bar{\eta} = (1 + \bar{\gamma}^2)^{\frac{n-1}{2}} + \bar{\epsilon}, \quad (4.11)$$

wobei alle überstrichenen Größen entdimensionalisiert sind. Der Fließexponent liegt bei $n = 0,3$ und der Messfehler ist normalverteilt $\bar{\epsilon} \sim \mathcal{N}(0, \bar{\sigma}_n^2)$ mit Standardabweichung $\bar{\sigma}_n$. Wie in Abb. 4.15a und b dargestellt sind die acht Datenpunkte äquidistant auf einer logarithmischen Skala verteilt und decken damit zwei Dekaden in der Scherrate ab. Mit diesen Daten wird nun eine Gaußprozess-Regression durchgeführt, wobei zu beachten ist, dass die Abstände der Punkte auf einer linearen Skala mit Erhöhung der Scherrate zunehmen. Man kann demnach eine größere Vorhersageunsicherheit für Punkte hoher Scherrate erwarten. In Abb. 4.15a ist der konstante Messfehler mit $\bar{\sigma}_n = 0.025$ klein, und die Messpunkte liegen nahe am Carreau-Modell. Dementsprechend liegt auch die Vorhersage, sprich die Erwartungswert-Funktion des Gaußprozess, nahe am ursprünglichen Carreau-Modell. Nichtsdestoweniger nimmt die Ungenauigkeit, dargestellt durch das 95%-Konfidenzintervall mit steigender Scherrate zu. Außerhalb des Trainingsdatenintervalls für $\bar{\gamma} > 10$ weicht der Erwartungswert deutlich vom Modell ab. Durch Erhöhung der Messungengenauigkeit in Abb. 4.15b mit $\bar{\sigma}_n = 0.1$ wird die mittlere Vorhersage deutlich schlechter und auch die Unsicherheit nimmt zu.

Die datenbasierten Ersatzmodelle werden nun zur Vorhersage der Druckprofile in einer linearen Gleitlager-Geometrie, ähnlich dem Testproblem aus Kap. 4.3.1, verwendet.

² Zugegebenermaßen ist dies ein sehr akademisches Beispiel zur Veranschaulichung. Wir nehmen zwar das Carreau-Modell zur Hilfe, vergessen aber sofort wieder, woher die Daten stammen.

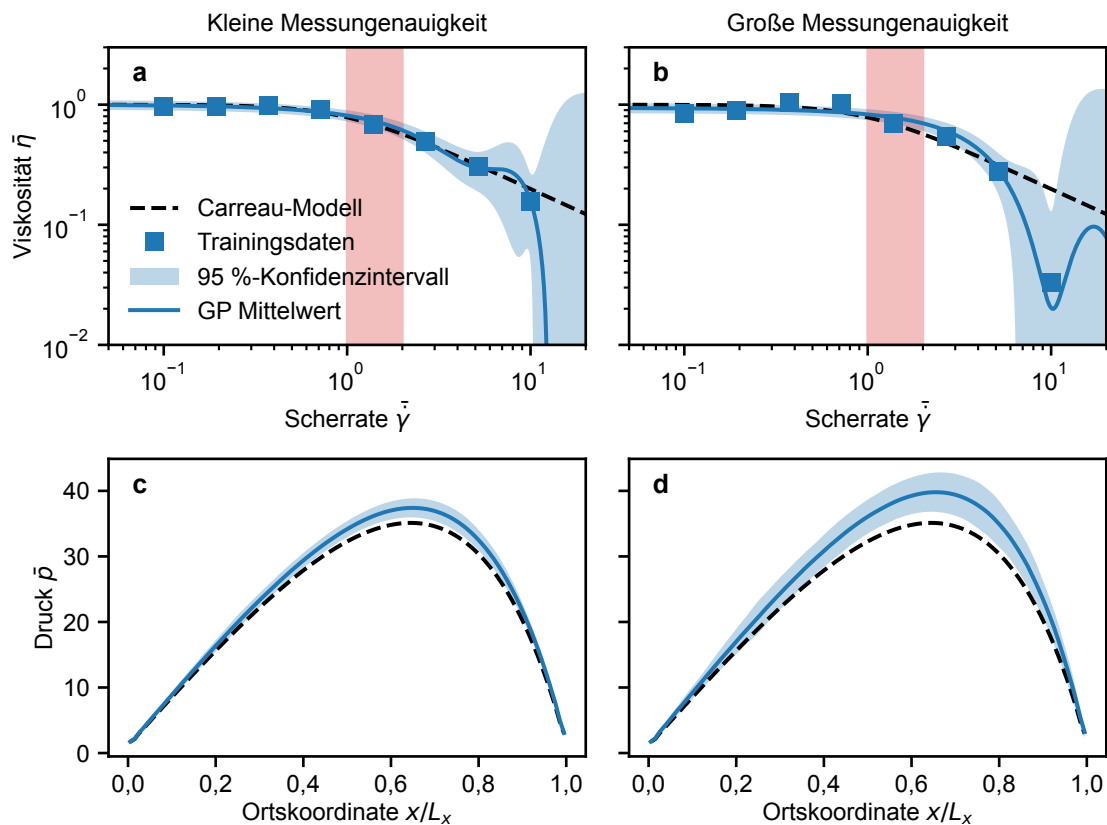


Abbildung 4.15.: Schematische Darstellung der Fehlerpropagation am Beispiel der Scherverdünnung. (a) Gaußprozess-Regression basierend auf Messdaten mit kleiner Vorhersageunsicherheit $\bar{\sigma}_n = 0.025$. (b) Gaußprozess-Regression basierend auf Messdaten mit großer Vorhersageunsicherheit $\bar{\sigma}_n = 0.1$. Der rote Bereich kennzeichnet die angewandte Scherrate. (c) Druckprofil mit Vorhersageunsicherheit basierend auf Gaußprozess-Ersatzmodell aus (a) für ein lineares Gleitlager mit $s = 10^{-2}$. (d) Wie (c), aber basierend auf Gaußprozess-Ersatzmodell aus (b).

Die durch die Wahl der Geometrie und Wandgeschwindigkeit angewendeten Scherraten sind in Abb. 4.15a und b jeweils durch den rot markierten Bereich dargestellt. Abbildungen 4.15c und d zeigen jeweils das mittlere Druckprofil, welches mithilfe des Gaußprozess-Erwartungswertes berechnet wurde und das 95%-Konfidenzintervall der Vorhersage, welches aus den Druckprofilen von je 50 Stichproben des Gaußprozess berechnet wurde. Dabei wurde sichergestellt, dass der empirische Druckmittelwert mit dem deterministischen übereinstimmt. In beiden Simulationsergebnissen zeigt sich eine Abweichung vom „exakten“ Druckverlauf, der sich direkt aus einer Berechnung mit Carreau-Modell ergibt, da die mittlere Viskosität im betrachteten Scherratenintervall jeweils über dem Carreau-Modell liegt. Außerdem lassen sich die Gaußprozess-Vorhersageunsicherheiten aufgrund unterschiedlicher Messungenauigkeiten in die Schmierungs-simulation fortpflanzen.

4.4.2. Aktives Lernen von Zustandsgleichungen

Im vorherigen Beispiel wurde die Parameterauswahl, also die Wahl der Scherraten, *a priori* vorgenommen und eine Gaußprozess-Regression erst nach Vorliegen aller Trainingsdaten durchgeführt. Im Hinblick auf ein adaptives Multiskalenschema soll im folgenden Beispiel die Vorhersageunsicherheit der Gaußprozess-Regression gezielt genutzt werden, um iterativ Eingabeparameter möglichst optimal zu bestimmen. Dadurch soll die Zustandsgleichung $p(\rho, T)$ eines einfachen Fluids mithilfe von MD-Simulationen und aktivem Lernen bestimmt werden.

Zur Veranschaulichung wurde ein eindimensionales Beispiel gewählt, indem eine konstante Temperatur $T = 2\epsilon/k_B$ gewählt wurde. Die Zustandsgleichung eines LJ-Fluids soll im Dichteintervall $\rho \in [0,2, 1,0] \sigma^{-3}$ vorhergesagt werden. Zunächst wurden drei MD-Simulationen an den Rändern und in der Mitte des Intervalls durchgeführt und basierend auf diesen initialen Trainingsdaten eine Gaußprozess-Regression durchgeführt. Dabei wurden bei der entsprechenden Temperatur und Dichte ein equilibriertes System mit 1000 Atomen für 20.000 Schritte mit Zeitschritt $\Delta t = 0,0025 \sqrt{m\sigma^2/\epsilon}$ und Abschneideradius $r_c = 4,0\sigma$ gerechnet. Jeder 100. Zeitschritt wurde für die Berechnung des mittleren Drucks sowie der Varianz zugrunde gelegt. Da sich die Varianz der Messung σ_n^2 direkt aus der MD-Simulation ergibt, muss diese hier nicht als zu optimierender Hyperparameter behandelt werden. Jedoch wurde σ_n bisher als konstant angenommen, was nicht zwangsläufig der Fall ist, insbesondere bei großen Dichteintervallen. Man spricht in diesem Fall von Heteroskedastizität, was bei der Gaußprozess-Regression berücksichtigt wurde. Das Ergebnis ist in Abb. 4.16a dargestellt, wobei die Vorhersage offensichtlich verbesserungswürdig ist.

Die nächste MD-Simulation wird nun am Punkt maximaler Unsicherheit bei $\rho = 0,91 \sigma^{-3}$ durchgeführt. In Abb. 4.16b zeigt sich eine deutliche Verbesserung der Vorhersage durch die Zunahme des vierten Trainingsdatenpunktes. Zum Vergleich ist die modifizierte Benedict-Webb-Rubin (BWR)-Gleichung dargestellt, eine analytische Zustandsgleichung für das LJ-Fluid [151] mit 33 Parametern.³ Die hier gezeigte Darstellung verwendet die durch extensive MD-Simulationen angepassten Parameter von Johnson et al. [152]. Durch Hinzufügen eines weiteren Trainingsdatenpunktes bei $\rho = 0,43 \sigma^{-3}$ ergibt sich eine sehr gute Übereinstimmung mit der BWR-Zustandsgleichung, wie Abb. 4.16c zeigt.

³ Hierbei ist zu beachten, dass nur ein isothermer Schnitt der BWR-Gleichung betrachtet wird. Die hohe Anzahl zu bestimmender Parameter folgt aus der Anpassung in einem großen Dichte- und Temperaturbereich.

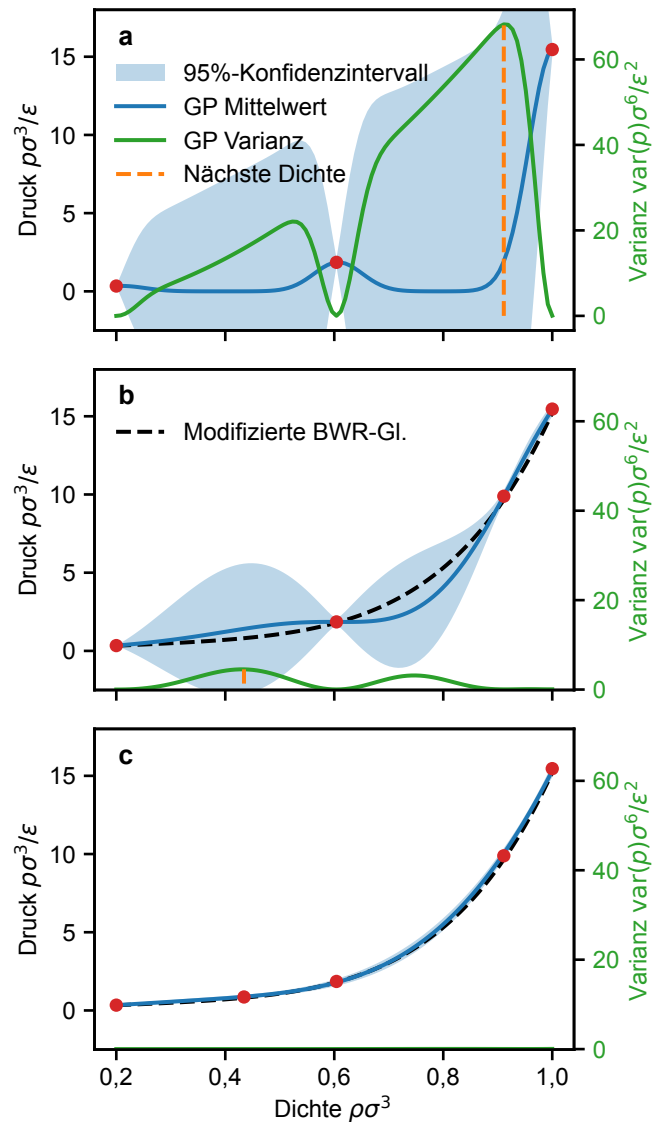


Abbildung 4.16.: Bestimmung der Lennard-Jones Zustandsgleichung durch aktives Lernen. (a) Ergebnis der Gaußprozess (Gaußprozess)-Regression basierend auf äquidistanten Trainingsdaten und Bestimmung der Dichte des nächsten Iterationsschrittes. (b) Wie (a) nach Durchführung einer weiteren MD-Simulation und Vergleich mit modifizierter BWR-Gleichung. (c) Wie (a) und (b) nach der fünften MD-Simulation.

5. Diskussion

Bei der Diskussion der Ergebnisse soll der Schwerpunkt weniger auf der numerischen Implementierung des vorgeschlagenen Kontinuumslösers liegen, als mehr auf den damit verbundenen Implikationen für Multiskalensimulationen von Schmierungsproblemen. Daher beschränkt sich der erste Teil dieses Kapitel auf die Diskussion der Ergebnisse aus Kap. 4.1, welche in Ref. [P3] enthalten sind und zur Veröffentlichung eingereicht wurden. Der zweite Teil dieses Kapitels umfasst die Skizzierung eines potentiellen Multiskalen-Lösers, wobei dabei insbesondere die Aspekte der Gaußprozess-Ersatzmodellierung mithilfe der Beispiele aus Kap. 4.4 betrachtet werden. Dabei wird auch auf mögliche Anpassungen des in Kap. 4.3 bzw. Ref. [P1] für explizite Konstitutivgesetze validierten Lösers eingegangen.

5.1. Transportkoeffizienten eingeschlossener Fluide

Methoden zur Bestimmung von Nichtgleichgewichts-Transportkoeffizienten aus Fluktuationen makroskopischer Variablen im Gleichgewicht basieren auf Onsagers Variationsprinzip für irreversible Prozesse [153]. Kleine Fluktuationen um einen Gleichgewichtszustand verhalten sich in Systemen mit linearer Antwort im Mittel analog zu den Transportgleichungen im Nichtgleichgewicht. Die wohl am weitesten verbreitete Anwendung findet sich in den Green-Kubo (GK)-Relationen [44, 45]. Der in Kap. 4.1.1 gewählte Ansatz entspricht der zunächst von Palmer [154] eingeführten Methode zur Berechnung der Scherviskosität aus Autokorrelationsfunktionen transversaler Impulsfluktuationen. Erst kürzlich wurde die Methode für die Berechnung der Wärmeleitfähigkeit aus Dichtefluktuationen von Cheng und Frenkel [155] angewendet. Für die Referenzsimulation eines unbegrenzten Fluides stimmen die erhaltenen Autokorrelationsfunktionen mit dem Ergebnis der linearen Hydrodynamik [123, 124] überein. Die Frage nach der Extrapolation zum Grenzwert $k \rightarrow 0$ wurde hier durch sehr lange Simulationsboxen vorgegriffen, sodass im betrachteten

Wellenlängenbereich von einer konstanten Viskosität ausgegangen werden kann, die mit GK-Referenzsimulationen übereinstimmt¹.

Die Analyse in Kap. 3.3 und die Ergebnisse aus 4.1 haben gezeigt, dass die Autokorrelationsfunktionen der Dichte- und Impulsfluktuationen eingeschlossener Fluide dieselbe funktionale Form wie im unbegrenzten Fall haben, jedoch weichen die Transportkoeffizienten deutlich von denen unendlicher Medien ab. Dieses Ergebnis stimmt qualitativ mit der Arbeit von Porcheron und Schoen [141] überein. Für die Abhängigkeit der Transportkoeffizienten von der Spalthöhe wurde in Ref. [141] ein oszillierendes Verhalten gefunden, das mit Zunahme der Ordnung im Spalt beschrieben wurde. Ein Zustand hoher Ordnung – also z. B. bei ausgeprägten Dichteoszillationen – führt dabei sowohl zur Zunahme der Dissipation als auch der lateralen Schallgeschwindigkeit. Bei der Herleitung der Korrelationsfunktionen wurden allerdings reine Schlupfrandbedingungen angenommen, sodass die Translationsinvarianz in der Spaltkoordinate erhalten bleibt und sich das eingeschlossene Fluid letztendlich wie ein Fluid ohne Wände verhält. Eine geometriebedingt wellenlängenabhängige Schallgeschwindigkeit und der damit einhergehende Übergang zum Kriechfall für lange Wellenlängen wird dabei genauso vernachlässigt wie die Konvergenz der Relaxationszeiten gegen einen konstanten Grenzwert. In MD-Simulationen sind diese Effekte aber zu beobachten, sofern Simulationsboxen hinreichender Größe verwendet werden.

Die langwelligen Autokorrelationsfunktionen von Systemen mit und ohne Wänden weichen, wie in Abb. 4.1 gezeigt, deutlich voneinander ab. Dies äußert sich insbesondere durch verkürzte Relaxationszeiten für Scher- und Schallwellen in der Ebene parallel zu den Wänden. Bei kleinen Wellenlängen in der Größenordnung der Spalthöhe ist der Unterschied noch marginal und auch die für diffusive Transportprozesse charakteristische quadratische Abhängigkeit von der Wellenlänge ist erkennbar. Mit steigender Wellenlänge weichen die Relaxationszeiten von der quadratischen Skalierung ab und konvergieren gegen einen konstanten Grenzwert, wie Abb. 4.2a-b dargestellt. Die in MD-Simulationen gemessenen wellenlängenunabhängigen Relaxationszeiten stimmen somit qualitativ mit der Vorhersage aus den höhengemittelten Bilanzgleichungen, Gl. (4.3), überein. Die empirisch ermittelte effektive Relaxationsrate ergibt sich direkt aus der Addition der Raten für die beiden theoretischen Grenzfälle eines dreidimensionalen Systems ohne Wände und eines über die Spalthöhe gemittelten Systems, Gl. (4.2), wobei der jeweils schnellere Zerfallsprozess dominiert. Hierbei sei ausdrücklich darauf hingewiesen, dass aus der effektiven Relaxati-

¹ Hess [138] extrapoliert, wie von Palmer [154] vorgeschlagen, mit einer Parabel zu $k = 0$, was zu einer Viskosität $\nu \approx 1,0 \sigma \sqrt{\epsilon/m}$ führt. Die im Anhang B.1 beschriebenen GK-Simulationen führen hingegen auf $\nu \approx 1,22 \sigma \sqrt{\epsilon/m}$ und stimmen gut mit der hier beschriebenen Methode überein.

onszeit nicht etwa auf eine effektive Viskosität der Form $\nu_{\text{eff}} = \nu(1 + 12/h^2 k^2 \kappa)$ geschlossen werden kann. In der kontinuumsmechanischen Betrachtung des Schmierpalts geht die kinematische Viskosität ν schlicht als Eigenschaft des unbegrenzten Fluids ein, welche dessen innere Reibung beschreibt. Beim Übergang zu großen Wellenlängen gewinnen nun Dissipationsprozesse aufgrund der Randbedingungen an den Wänden an Bedeutung. Eine getrennte Betrachtung der Dissipationsprozesse im Fluid und an den Grenzflächen, wie von Zhou et al. [156] vorgeschlagen ist zweifelsfrei erstrebenswert, allerdings hat in molekularen Systemen die Natur der Grenzfläche aufgrund von Ordnungsphänomenen durchaus Einfluss auf die Fluideigenschaften. Dies äußert sich hier durch eine leichte Erhöhung der Viskosität als Ergebnis der Anpassung der effektiven Relaxationszeiten an Gl. (4.2) in Abb. 4.5a mit steigender Fluid-Wand-Wechselwirkung, ist aber aufgrund der größeren Spalthöhe bei weitem nicht so signifikant wie in Ref. [141].

Abbildung 4.2c zeigt, dass thermische Relaxationsprozesse im betrachteten Wellenlängenbereich von den Wänden unbeeinflusst sind. Obwohl thermische Effekte in der Herleitung der höhengemittelten Bilanzgleichungen nicht betrachtet wurden, können Analogien zu den übrigen Bilanzgleichungen herangezogen werden. Das oben beschriebene charakteristische Verhalten eingeschlossener Fluide lässt sich auf nicht verschwindende Flussgrößen an der Grenzfläche zurückführen. Verschwindet beispielsweise der Impulstransport durch die Grenzfläche im Falle idealer Schlupfrandbedingungen, erhält man das effektive Verhalten eines unbegrenzten Fluids. Demnach scheint das betrachtete MD-System mit starren, athermischen Wänden ein System mit solchen idealisierten Randbedingungen für den Wärmestrom zu repräsentieren. Für eine quantitative Untersuchung dieser Fragestellung sind MD-Simulationen in Systemen mit thermischen Wänden notwendig, für die analog eine Abweichung vom Verhalten unbegrenzter Fluide erwartet wird.

5.2. Diffusive Schallausbreitung

Neben den veränderten Relaxationszeiten in eingeschlossenen Fluiden wurden Frequenzänderungen im oszillierenden Teil der Autokorrelationsfunktionen der Dichte- und Longitudinalimpulsfluktuationen beobachtet (Abb. 4.3a). Dies lässt sich auf die wellenlängenabhängige Schallgeschwindigkeit, Gl. (3.41), zurückführen, was durch eine Anpassung der Dispersionsrelation in Abb. 4.3b gezeigt werden konnte. Ähnlich zu den Relaxationszeiten weicht die Schallgeschwindigkeit mit zunehmender Wellenlänge vom Verhalten unbegrenzter Fluide ab. Statt Konvergenz der charakteristischen Zeitskala ist hier jedoch

die Divergenz der Periodendauer zu beobachten, was letztendlich zu einer verschwindenden Schallgeschwindigkeit bei λ_{crit} führt. Wellenlängenabhängige Transportkoeffizienten werden üblicherweise nur auf molekularen Längen- und Zeitskalen relevant. Approximationen der linearen Hydrodynamik, die explizit nur für kleine Wellenzahlen gelten, verlieren dann ihre Legitimation und Terme höherer Ordnung in k müssen berücksichtigt werden [123]. Für eingeschlossene Fluide hingegen taucht nun eine geometriebedingt wellenlängenabhängige Schallgeschwindigkeit bei makroskopischen Wellenlängen auf. Auch hier sei erneut hervorgehoben, dass sich die effektive Schallgeschwindigkeit aus der Kombination intrinsischer Eigenschaften des Fluids und der Randbedingungen ergibt, wobei in der atomistischen Betrachtung Erstere durch Letztere leicht beeinflusst werden, da Ordnungsphänomene die Kompressibilität im Vergleich zum unbegrenzten Fluid verändern.

Eine fundamentale Änderung des Schalltransports ergibt sich bei der Betrachtung von Wellenlängen oberhalb der kritischen Wellenlänge, wofür sehr große MD-Simulationsboxen erforderlich sind. Sowohl Dichte- also auch Longitudinalimpulskorrelationen lassen sich im überkritisch gedämpften Bereich effektiv durch Exponentialfunktionen beschreiben. Die Anpassung an die modifizierten Autokorrelationsfunktionen zeigen eine Aufspaltung hinsichtlich der Relaxationszeiten in Abb. 4.4b. Während Impulsfluktuationen mit einer endlichen Relaxationszeit zerfallen, die sich in longitudinaler Richtung mit steigender Wellenlänge der Relaxationszeit der transversalen Richtung annähert, relaxieren Dichtefluktuationen mit einer Rate proportional zum Quadrat der Wellenzahl, also ähnlich wie in einem System ohne Wände. Dies ist die Signatur eines diffusiven Transportmechanismus. Zur Veranschaulichung stelle man sich einen lokalen Impulsausschlag vor, der mit extrem kurzer Relaxationszeit abklingt, sodass der damit einhergehende Massentransport ebenfalls eine sehr kurze Reichweite hat. Aufgrund der kurzen Zeit- und Längenskalen ist dieser kontinuierliche Vorgang vergleichbar mit einem diskreten „Sprung“ eines Partikels auf einen benachbarten Platz. Durch mehrmalige Wiederholung des Sprungvorgangs unter der Annahme, dass die einzelnen Sprünge unkorreliert sind, erhält man einen *random walk*, welcher im Übergang zum Kontinuum wiederum auf die Diffusionsgleichung führt [157].

Der Übergang zu diffusivem Schalltransport findet bei Wellenlängen in der Größenordnung der quadratischen effektiven Spalthöhe statt. Selbst bei sehr dünnen Spalten im Nanometer-Bereich kann der Übergang durch das Auftreten von Wandschlupf bei mehreren hundert Nanometern liegen. Dies übersteigt die Größe typischer MD-Systeme, sodass der diffusive Schalltransport, obwohl in realen Systemen möglicherweise dominant, in

Simulationen üblicherweise nicht abgebildet wird. Durch geeignete Anpassung der effektiven Spalthöhe liegt die kritische Wellenlänge im Bereich der Wellenlänge des sichtbaren Lichts. Die experimentelle Untersuchung des hier simulativ beschriebenen Übergangs, wäre somit denkbar, da der dynamische Strukturfaktor – die Fourier-transformierte Dichte-Autokorrelationsfunktion – durch Lichtstreuungsexperimente zugänglich ist [125].

Die Ergebnisse der Kontinuumssimulationen in Abb. 4.9 veranschaulichen den diffusiven Schalltransport in einem einfachen Nichtgleichgewichtsszenario. Durch Veränderung der Spalthöhe lässt sich zwischen konventionellem und diffusivem Schalltransport interpolieren, wie bereits von Ramaswamy und Mazenko [158] im Kontext von Adsorbatfilmen vorhergesagt, wobei die Reibung zwischen Substrat und Adsorbat nicht genauer quantifiziert wurde. Mit der effektiven Spalthöhe lässt sich dies nun für eingeschlossenen Fluide leicht beschreiben. Der gleiche Effekte wurde außerdem für das ungewöhnliche Langzeitverhalten der Geschwindigkeits-Autokorrelationsfunktion von suspendierten Partikeln in eingeschlossenen Fluiden verantwortlich gemacht, welches zuvor in *lattice Boltzmann*-Simulationen beobachtet wurde [159, 160]. Der durch die Kontinuumssimulationen empirisch ermittelte Schall-Diffusionskoeffizient, Gl. (4.5), stimmt mit dem aus Ref. [161] überein. Eine rigorose mathematische Betrachtung des Problems wurde von Felderhof für eine einzelne Wand [162], zwei parallele Wände [163], sowie für kreisförmigen Querschnitte [164] vorgenommen. Im Rahmen dieser Arbeit konnte gezeigt werden, dass eine höhengemittelte Formulierung der hydrodynamischen Grundgleichungen, in Anlehnung an die Reynoldsgleichung, diesen Effekt ebenfalls abbildet. Die Vorhersagen der höhengemittelten Theorie stimmen für große Wellenlängen mit den Ergebnissen aus MD-Simulationen überein.

5.3. Bestimmung der Schlupflänge

Die Quantifizierung der Schlupflänge an den Wänden eingeschlossener Fluide wird überwiegend in MD-Simulationen im Nichtgleichgewicht vorgenommen, also durch das Einstellen von Couette- oder Poiseuille-Strömungsprofilen. Dadurch sind in der Regel nur sehr hohe Scherraten zugänglich, mit Ausnahme der Technik der *transient time correlation function* (TTCF), welche erst kürzlich zur Bestimmung des Wandschlupfs angewendet wurde [165]. Der in Kap. 4.1.2 beschriebene Übergang zu konstanten Relaxationszeiten wurde in Kap. 4.1.4 ausgenutzt um mithilfe der kontinuumsmechanischen Vorhersage

Rückschlüsse auf die effektive Spalthöhe zu ziehen. Bei Kenntnis der Permeabilität κ der gegebenen Geometrie (siehe Anhang A.3) kann somit die Schlupflänge bestimmt werden. Die Grundidee dieser Methode zur Messung des Wandschlupfs ist ähnlich zu Ref. [166], wo eine einzelne Relaxationszeit aus der kollektiven Geschwindigkeits-Autokorrelationsfunktion verwendet und die Viskosität als Input-Parameter benötigt wird [166, 167]. Durch die spektrale Auflösung der Relaxationszeiten in Abb. 4.5a erhält man bei der im Rahmen dieser Arbeit vorgeschlagenen Methode sowohl Viskosität als auch Wandschlupf aus der Anpassung an die effektive Relaxationszeit. Für das WCA-Potential, welches ausschließlich repulsive Interaktionen modelliert, wurde die längste Relaxationszeit gemessen, aber auch hier war der Übergang im betrachteten Wellenlängenbereich sichtbar. Dem Grenzfall unendlicher Schlupflänge könnte man sich vermutlich durch Erhöhung der Wanddichte annähern, sodass das Abweichen von der Relaxationszeit eines Systems ohne Wände zu größeren Wellenlängen verschoben würde.

Der Vergleich mit Nichtgleichgewichts-Systemen in Abb. 4.5b zeigt für das Lennard-Jones System mit kubisch-flächenzentrierten (111)-Wänden eine gute Übereinstimmung für verschiedene Wand-Fluid-Interaktionsstärken. Leichte Abweichungen zwischen Gleichgewichts- und Nichtgleichgewichts-Simulationen sind für starke Fluid-Wand-Interaktionen erkennbar. Bei der Interpretation ist zu beachten, dass die Gleichgewichtssimulationen den Grenzwert der Schlupflänge bei verschwindender Scherrate abbilden, während im Nichtgleichgewicht die Scherratenabhängigkeit eine Rolle spielt. Hier wurden möglichst kleine Scherraten gewählt, um einen Vergleich zu ermöglichen. Die Schlupflänge nimmt näherungsweise exponentiell mit steigender Fluid-Wand-Wechselwirkung ab, was auch in vergleichbaren Studien beobachtet wurde [46]. Leichte Abweichungen vom exponentiellen Trend sind für die Gleichgewichtssimulationen bei großen Wechselwirkungen zu erkennen, welche vermuten lassen, dass die Schlupflänge gegen einen endlichen Grenzwert von etwa 1σ konvergiert. Dieser Grenzwert entspricht dem erwartbaren theoretischen Minimum der Schlupflänge in MD-Simulationen. Die verschwindende Schlupflänge im Nichtgleichgewichtssystem, welche idealen Haftbedingungen im kontinuumsmechanischen Sinne entspricht, ist demnach auf Artefakte der Geschwindigkeitsprofil-Anpassung zurückzuführen.

Im Gegensatz zu anderen Gleichgewichtsmethoden zur Quantifizierung des Wandschlupfs [46, 166] basiert die hier vorgestellte Methode auf Simulationen in extrem großen MD-Systemen, um den langwelligen Bereich abzubilden. Der hier beschriebene charakteristische Übergang setzt allerdings schon bei viel kleineren Wellenlängen in der Größenordnung der geometrischen Spalthöhe ein. Daher ist im Prinzip auch eine Bestimmung

der effektiven Relaxationszeiten in viel kleineren Systemen denkbar, sodass die benötigte Simulationszeit drastisch reduziert werden kann. Eine systematische Untersuchung der Anwendbarkeit der Methode in kleineren Systemen, sowie für verschiedene Fluide, Geometrien und Wand-Fluid-Wechselwirkungen steht noch aus.

5.4. Skizzierung einer Multiskalenmethode

In Kap. 3.1 wurde die Separation des Schmierungsproblems in Mikro- und Makroproblem eingeführt und verschiedene Lösungsansätze aufgezeigt, die für sich genommen noch keine Multiskalenmethode darstellen. Insbesondere die Validierung für Schmierungsprobleme in Kap. 4.3 hat gezeigt, dass das implementierte Schema mit gewöhnlichen Konstitutivgesetzen äquivalente Ergebnisse wie konventionelle Reynolds-Löser liefert. Der Vorteil der Trennung von Konstitutivgesetzen und der Mittelung über der Spaltkoordinate wird in Kap. 4.3.3 deutlich, wobei die Spannungskomponenten analytisch als Funktion der Zustandsvariablen berechnet wurden und dann in das bestehende Schema eingesetzt wurden. Da die Herkunft des Spannungstensors somit beliebig ist, eignet sich der Kontinuumslöser prinzipiell auch für die Anwendung in Multiskalensimulationen, wo Spannungen direkt in Molekulardynamik-Simulationen berechnet werden. Im Folgenden soll der vollständige Ablauf einer solchen Methode basierend auf den im Rahmen dieser Arbeit vorgestellten Bestandteilen skizziert werden. Dabei spielen die Anwendungsbeispiele der Gaußprozess-Regression aus Kap. 4.4 eine besondere Rolle, da sie die Potentiale der MD-informierten Ersatzmodellierung hervorheben.

5.4.1. Ersatz des Mikroproblems

Die Kernidee des Multiskalenansatzes ist der teilweise oder vollständige Ersatz des Mikroproblems durch repräsentative MD-Simulationen, sodass lokal Informationen über den Spannungszustand im Schmierespalt gewonnen werden können. Hier sollen einige Möglichkeiten aufgezeigt werden, wie die dafür notwendigen MD-Simulationen aussehen könnten. Wie in Gl. (3.2) gezeigt, besteht die Flussfunktion aus Massenflussvektor und Komponenten des Spannungstensors. Der Massenfluss – oder auch die Impulsdichte – ist Teil der Lösungsvariablen \mathbf{q} und demnach bekannt, weshalb ausschließlich der Spannungstensor beachtet werden muss.

Zunächst wurde die Diagonale des Spannungstensors, d. h. der hydrostatische Druck, betrachtet, der in vorherigen Kapiteln durch (semi-)empirische Zustandsgleichungen gegeben war. In MD-Simulationen kann der thermodynamische Druck eines Systems bei konstanter Dichte und Temperatur über die Virialgleichung bestimmt werden [22]. Dies könnte, ähnlich zu den in Kap. 3.3.2 beschriebenen MD-Simulationen, im thermodynamischen Gleichgewicht geschehen, obwohl das Makroproblem ein Nichtgleichgewichtssystem beschreibt. Dabei macht man sich die Annahme eines lokalen thermodynamischen Gleichgewichts [168] zunutze. Ebenso kann die Viskosität aus Gleichgewichtssimulationen bestimmt werden, wie bereits in Kap. 3.3.2 gezeigt, oder durch die Auswertung der Green-Kubo-Integrale. Damit ließe sich systematisch die Druck- und Temperaturabhängigkeit der Viskosität untersuchen. Allerdings misst man in diesem Fall immer die Newton'sche Viskosität im Grenzfall verschwindender Scherraten und die für die Schmierungsmodellierung interessanten nicht-Newton'schen Eigenschaften bleiben verborgen. Ein Ausweg stellen Nichtgleichgewichts-MD-Simulationen dar, bei denen die scherratenabhängige Viskosität direkt gemessen werden kann [169]. Aufgrund der rechenzeitbedingt kurzen Zeitskalen in MD-Simulationen, sowie einem ungünstigen Signal-Rausch-Verhältnis bei kleinen Scherraten, sind Nichtgleichgewichts-Simulationen jedoch nur für extrem hohe Scherraten geeignet. In einem sequentiellen Multiskalenansatz würden dann parameterfreie Konstitutivgesetze, wie beispielsweise das Viskositätsgesetz in Kap.4.4.1, in den Kontinuumslöser eingesetzt. Die Annahme eines generalisierten Newton'schen Fluids bleibt dabei allerdings erhalten. Eine allgemeinere Beschreibung könnte erreicht werden, wenn Spannungskomponenten direkt in einer repräsentativen MD-Simulation des Schmierspalt gemessen werden.

Eine repräsentative Realisierung der lokalen Bedingungen im Schmierspalt ist durch die schematische Darstellung des Mikroproblems in Abb. 3.1b gegeben. Der einfache geometrische Aufbau ist äquivalent zu gängigen Nichtgleichgewichts-MD-Systemen, und die Herausforderung liegt in der korrekten Beschreibung der Randbedingungen. Da die Topografie der Wände im Mikromodell nicht berücksichtigt wird, muss zusätzlich zur lokalen Scherrate der Massenstrom aufgrund von makroskopischen Druckgradienten eingestellt werden. Die geläufigste Methode, um Poiseuille-Strömung in MD-Kanälen zu erhalten, ist die sogenannte *gravity fed*-Methode [170], bei der eine konstante Kraft in Strömungsrichtung auf alle Fluidatome aufgebracht wird. Allerdings wird dabei die eigentliche Ursache des Flusses, nämlich ein Druckgradient entgegen der Strömungsrichtung, nicht abgebildet. Ein Ausweg liefern Methoden, die eine künstliche Modifikation des Flusses nur in einer sogenannten Pumpregion vornehmen, sodass der Fluss im ungestörten Bereich

(stromabwärts) gemessen werden kann. Die Realisierung des Pumpens kann z. B. durch Manipulation der mikroskopischen Kräfte [171] oder der Geschwindigkeitsfreiheitsgrade (d. h. Massenflüsse) [172] geschehen, wobei Letzteres gerade für den hier dargestellten Fall geeignet ist. Weiter stromabwärts kann dann eine Poiseuille-Strömung als Reaktion auf einen Druckgradienten in einem ungestörten Bereich des Systems gemessen werden. Somit lässt sich eine repräsentative Nichtgleichgewichts-MD-Simulation einstellen, in der sowohl Druck als auch Scherspannungskomponenten direkt gemessen werden können und auf klassische Konstitutivgesetze komplett verzichtet werden kann.

Eine solche Multiskalenmethode kann als Erweiterung der IMM-Methode [82] auf Schmierungsprobleme betrachtet werden. Das Makroproblem berücksichtigt dabei die Relativbewegung und Topografie der Wände und ermöglicht die korrekte Einstellung der Randbedingungen des Mikroproblems. In Kombination mit einer Ersatzmodellierung durch Gaußprozess-Regression nach Vorbild von Ref. [87] erhält man ein simultanes Multiskalenschema, welches die Anzahl der notwendigen MD-Simulationen optimiert und auf bisher nicht explorierte Zustände adaptiv reagieren kann. In einem transienten Schema dieser Art sind die Zeitskalen von Kontinuums- und atomistischer Simulation entkoppelt. MD-Simulationen repräsentieren einen lokalen Zustand der Makrolösung, der nicht notwendigerweise einem stationären Zustand der Makrolösung entspricht. Nichtsdestoweniger wird der lokale Spannungszustand in der MD-Simulation durch eine geeignete Mittelung des stationären Zustands des Mikroproblems erhalten. Im folgenden Abschnitt wird ein vollständiger Simulationsablauf einer solchen Multiskalenmethode für Schmierungsprobleme exemplarisch dargestellt.

5.4.2. Simulationsablauf

Wesentliches Merkmal der Methode ist die Separation von Mikro- und Makroproblem, also von konstitutivem Verhalten und Zeitintegration. Das Gesamtproblem kann vereinfacht durch

$$\mathbf{q}_{n+1} = \mathcal{D} [\mathbf{F}(\mathbf{q}_n)], \quad (5.1)$$

beschrieben werden, wobei \mathcal{D} ein Operator ist, der das Makroproblem und die numerischen Methoden aus Kap. 3.4 repräsentiert, \mathbf{q}_n beschreibt die Zustandsvariablen zum Zeitschritt n und $\mathbf{F}(\mathbf{q}_n)$ die Flussfunktion, also das Mikroproblem. In Kap. 3.2 war $\mathbf{F}(\mathbf{q}_n)$ bekannt durch die Wahl geeigneter Konstitutivgesetze. Hier soll das Mikroproblem durch ein Regressionsschema basierend auf MD-Simulationen der Mikrozustände \mathbf{q}^* ersetzt

werden, was durch $F(\mathbf{q}_n, \mathbf{q}^*)$ beschrieben werden kann. Ein schematischer Ablauf der Multiskalensimulation ist in Abb. 5.1 dargestellt. Im Folgenden soll auf die einzelnen Prozesse und Teilschritte eingegangen werden:

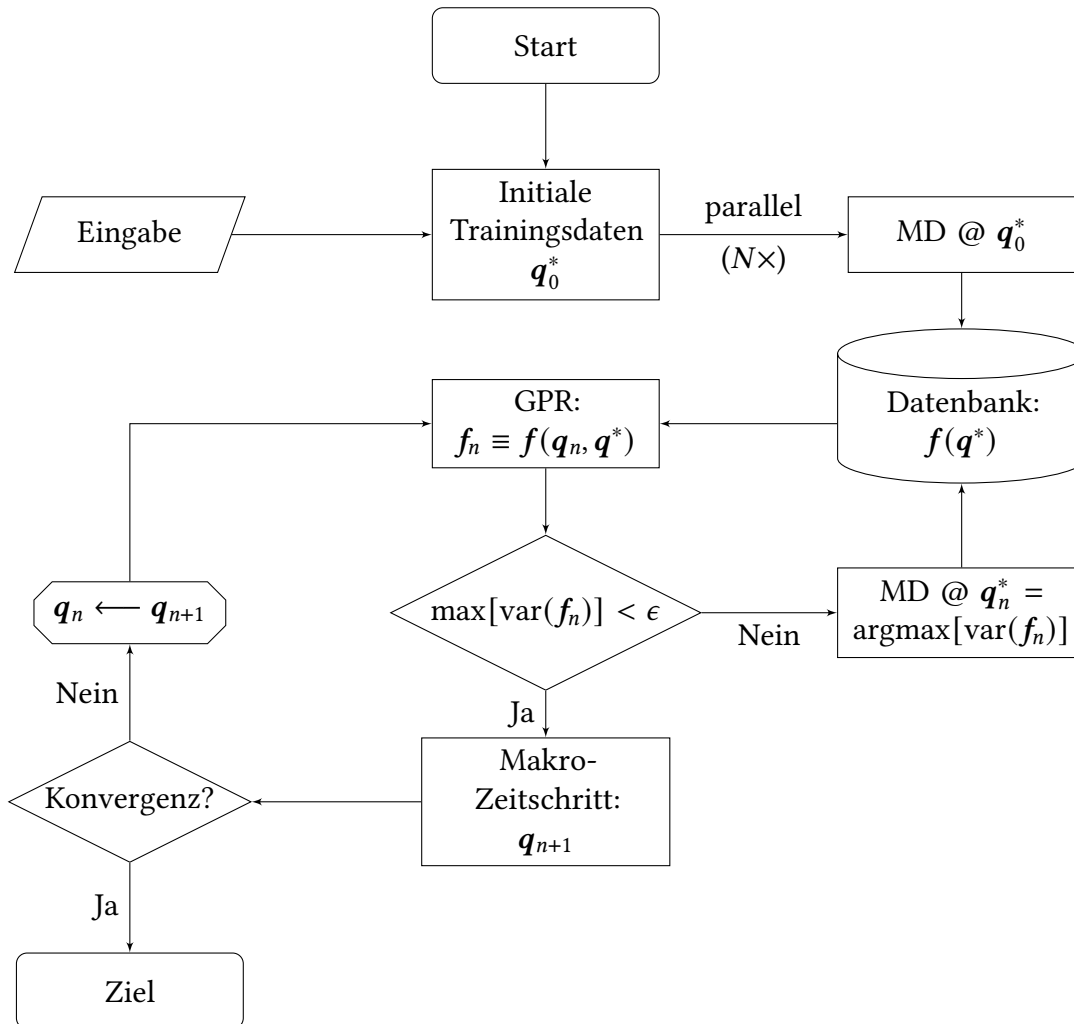


Abbildung 5.1.: Flussdiagramm zur Skizzierung des Ablaufs einer Multiskalensimulation

Eingabe—Eingabegrößen umfassen die numerische Diskretisierung des Makroproblems, Anfangs- und Randbedingungen, die Wahl des Kovarianz-Kernels für die Gaußprozess-Regression, der Optimierungsalgorithmus für Hyperparameter, etc.

Initiale Trainingsdaten—Die Anfangsbedingungen \mathbf{q}_0 definieren zunächst alle auftretenden Mikrozustände bei $n = 0$. Um eine erste Vorhersage zu machen, werden erste Trainingsdaten \mathbf{q}_0^* benötigt. Hier ergibt sich eine erste Fragestellung bezüglich der bestmöglichen Wahl von Anzahl und Lage der initialen Daten. Ohne Vorwissen bietet sich ein aktives Lernschema analog zu Kap. 4.4.2 an, um eine initiale Vorhersage über das

konstitutive Verhalten zu treffen. Eine Möglichkeit bereits vorhandenes Vorwissen in die Gaußprozess-Vorhersage einzubauen ist die Wahl deterministischer Prior-Funktionen. In den beiden Beispielen in Kap. 4.4 wurden jeweils konstante *a priori*-Mittelwert Funktionen angenommen ($m(x) = 0$). Genauso ließe sich aber auch eine deterministische Mittelwert-Funktion implementieren, die beispielsweise Newton'sches Verhalten überall dort vorhersagt, wo keine Trainingsdaten verfügbar sind, wobei die Unsicherheit mit der Entfernung von den Daten i. A. zunimmt. Die einfachste Realisierung dieser Idee wäre das „Lernen“ des Unterschieds zur Newton'schen Spannung bei bekannter Newton'scher Viskosität (z. B. durch Auswertung der GK-Relationen oder als *educated guess*) statt des Lernens der Spannung direkt. Alternativ lassen sich Mittelwert Funktionen aus Gaußprozessen und linearen Modellen² kombinieren, wobei die Parameter des linearen Modells zusammen mit den Hyperparametern optimiert werden [89].

MD—Nichtgleichgewichts-MD-Simulation des Mikrozustand \mathbf{q}^* bis zum Erreichen eines stationären Zustands. Man beachte, dass \mathbf{q} in dieser abstrakten Darstellungsform auch Informationen über die Randbedingungen enthält.

Datenbank—Die Ergebnisse der MD-Simulationen (Rohdaten und post-prozessierte Daten) werden in einer geeigneten Datenbank gespeichert. Zur Auffindbarkeit und späteren Wiederverwertbarkeit werden Datensätze inklusive geeigneter Metadaten konsistent abgelegt. Das Forschungsdatenmanagement-Tool `dtool` [173] ist ein geeigneter Kandidat für diese Anforderungen und wurde für den Demonstrator-Workflow in Kap. 4.4.2 bereits eingesetzt.

Gaußprozess-Regression (GPR)—Vorhersage der Flussfunktion $f_n \equiv f_n(\mathbf{q}_n, \mathbf{q}^*)$ für alle in diesem Zeitschritt auftretenden Mikrozustände \mathbf{q}_n basierend auf allen bisher explizit berechneten Mikrozuständen \mathbf{q}^* . Neben der mittleren Vorhersage f_n liefert die Gaußprozess-Regression auch eine Vorhersageunsicherheit $\text{var} f_n$, auf deren Grundlage die Notwendigkeit neuer MD-Simulationen bewertet wird.

Aktives Lernen—Unterschreitet die maximale Vorhersagevarianz einen zuvor definierten Toleranzwert ϵ , kann ein Zeitintegrationsschritt vollzogen werden. Falls dies nicht der Fall ist, sind weitere Trainingsdaten vonnöten. Die Akquisitionsfunktion wählt den Mikrozustand der nächsten MD-Simulation aus. Die naheliegendste Funktion ist die des aktiven Lernens, d. h. dass neue Informationen immer am Punkt maximaler Unsicherheit $\mathbf{q}_n^* = \text{argmax}[\text{var}(f_n)]$ eingeholt werden. Andere Akquisitionsfunktionen sind ebenfalls

² Hier ist die Linearität in den Parametern gemeint, also z. B. $f(\mathbf{x}) = \mathbf{h}(\mathbf{x})^\top \mathbf{B}$, wobei $\mathbf{h}(\mathbf{x})$ auch nichtlineare Funktionen enthalten kann und \mathbf{B} konstante Parameter beschreibt.

denkbar, z. B. solche, die „günstigere“ MD-Simulationen (kleine Spalthöhen, geringere Dichten, höhere Scherraten, etc.) bevorzugen.

Makrozeitschritt—Hier wird ein Zeitintegrationsschritt des Makroproblems, z. B. durch das MacCormack-Schema, vollzogen. Ob in Mehrschrittverfahren auch nach dem Prediktorschritt ein Regressionsschritt gemacht werden soll, oder ob ein Korrektorschritt basierend auf der „alten“ gelernten Flussfunktion ausreicht, ist eine offene Frage.

Konvergenzkriterium—Nach jedem Makrozeitschritt wird die erhaltene Lösung auf Konvergenz geprüft. Eine geeignete skalare Größe für die Konvergenzprüfung ist z. B. die kinetische Energie des Gesamtsystems $E_{\text{kin}} = |\vec{j}|^2 / 2\rho$.

6. Zusammenfassung und Ausblick

6.1. Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurde eine Methode zur Multiskalensimulation von Schmierungsprozessen entwickelt. Die Methode basiert auf der Trennung eines Schmierungsproblems in ein Mikroproblem, welches das konstitutive Verhalten im Schmiererspalt lokal abbildet, und ein Makroproblem, welches die Lösung der mechanischen Bilanzgleichung auf der Makroskala beschreibt. Die Herleitung der Makro-Gleichungen basiert in Anlehnung an die Reynoldsgleichung auf einer Mittelung über die Spaltkoordinate, jedoch werden vor der Mittelung keine Annahmen über das Konstitutivgesetz gemacht. Das somit entstandene dimensionsreduzierte Schema enthält einen Quellterm, der die für Schmierung relevanten Dissipationsterme enthält, und wird mit einer expliziten Finite-Volumen-Diskretisierung numerisch gelöst. Das Mikroproblem enthält das konstitutive Verhalten des Schmiermittels und kann für einfache Fluide analytisch gelöst werden. Die numerische Implementierung wurde unter Verwendung der Lösungen des Mikroproblems validiert und ist zur Modellierung von Schmierungsproblemen unter Berücksichtigung nicht-Newton'scher Fluide, von Trägheitseffekten und Kavitation geeignet.

Aus der linearisierten Form des Makroproblems wurden Entwicklungsgleichungen für die Fourier-Moden der Zustandsvariablen hergeleitet. Durch Vergleich mit Autokorrelationsfunktionen von Gleichgewichtsfluktuationen in Molekulardynamik-Simulationen, wurde auch diese Lösung validiert. Dadurch konnten die Relaxationszeiten und Schwingungsfrequenzen eingeschlossener Fluide mit dem konstitutiven Verhalten des Fluids, der Geometrie und den Randbedingungen an der Fluid-Grenzfläche in Verbindung gesetzt werden. Aus den Gleichungen geht hervor, dass die Schallgeschwindigkeit in dünnen Kanälen von der Wellenlänge abhängt. Insbesondere wurde damit ein Übergang zu überkritischer Schalldämpfung bei Wellenlängen in der Größenordnung der quadratischen effektiven Spalthöhe vorhergesagt, der durch Molekulardynamik-Simulationen bestätigt wurde. Der

diffusive Schalltransport dominiert in dünnen Spalten, wird aber in Simulationen i. d. R. nicht abgebildet.

Das Mikroproblem mit expliziten Konstitutivgesetzen soll in einer vollständig gekoppelten Multiskalenmethode durch repräsentative Molekulardynamik-Simulationen ersetzt werden, was jedoch nicht Teil dieser Arbeit war. Lediglich wurden die dafür notwendigen algorithmischen Bestandteile einzeln evaluiert. Eine geeignete Interpolation im Raum der Zustandsvariablen zwischen einzelnen repräsentativen Mikro-Simulationen kann durch ein Ersatzmodell mittels Gaußprozess-Regression durchgeführt werden, was am Beispiel eines Scherverdünnungsgesetz gezeigt wurde. Der adaptive Charakter der vorgeschlagenen Multiskalenmethode wurde anhand eines aktiven Lernverfahrens für Zustandsgleichungen illustriert, wodurch die Anzahl aufwendiger Molekulardynamik-Simulationen basierend auf der Vorhersageunsicherheit der Ersatzmodellierung optimiert wurde.

6.2. Ausblick

Für eine gekoppelte Multiskalen-Schmierungssimulation müssten die im Rahmen dieser Arbeit vorgestellten Bestandteile zusammengeführt werden. Dabei könnte auf dem bereits vollständig automatisierten und in Forschungsdatenmanagement-Infrastruktur integrierten Beispiel des aktiven Lernens von Zustandsgleichungen aufgebaut werden. Eine Alternative bieten sogenannte *Workflow-Management-Systeme*, die insbesondere für den Einsatz auf Hochleistungsrechnern interessant sind.

Außerdem wäre eine Erweiterung auf elastohydrodynamische Schmierungsprobleme denkbar, welche die elastische Verformung der Kontaktkörper unter großem Druck in die Kontinuumslösung miteinbezieht. Die dazu benötigte Veränderung der Spaltgeometrie ließe sich durch Kopplung mit Lösern für das Kontaktproblem mittels hocheffizienter Randelementmethoden realisieren.

Die Untersuchung der charakteristischen Zeitskalen durch Molekulardynamik-Simulationen erfolgte ausschließlich in Geometrien mit atomar flachen Oberflächen. Um Schlüsse auf das Relaxations- und Transportverhalten in realen Spalten zu ziehen, ist eine Betrachtung von Oberflächenrauheit essentiell, wobei der Einfluss der Topografie sowohl über die Geometrie als auch über den Wandschlupf anzunehmen ist. Aufgrund der Selbstaffinität realer Oberflächentopografien, stellt sich die Frage, ob sich charakteristische Größen der Rauheitsstatistik in den effektiven Transportkoeffizienten wiederfinden.

Auf Seite der Kontinuumsmechanik des Fluids stellt sich die Frage, bis zu welchen Spalthöhen Kontinuumshypothesen gültig sind, da auf sehr kleinen Skalen Fluktuationen der Erhaltungsgrößen relevant werden. Die Methode der fluktuierenden Hydrodynamik ermöglicht die thermodynamisch konsistente Behandlung von thermischen Fluktuationen in Kontinuumsmodellen und wird häufig mittels expliziter Finite-Volumen-Methoden implementiert. Eine Erweiterung der höhengemittelten Gleichungen auf fluktuierende Systeme liegt daher nahe, stellt jedoch auch Herausforderungen hinsichtlich der Behandlung der Schlupfrandbedingungen. Solch eine mesoskopische Beschreibung wäre insbesondere dadurch interessant, dass thermische Fluktuationen aus Molekulardynamik-Simulationen via Gaußprozess-Regression in die Kontinuumsrechnung eingehen und dort konsistent propagiert werden.

A. Detaillierte Herleitungen

A.1. Höhengemittelte Bilanzgleichungen

Ausgehend von Gl. (3.4) und unter Anwendung der Leibnizregel für Parameterintegrale auf der linken Seite erhält man

$$\frac{1}{h} \int_{h_1}^{h_2} \partial_t \mathbf{q} dz = \frac{1}{h} \left(\partial_t \int_{h_1}^{h_2} \mathbf{q} dz - \mathbf{q}|_{z=h_2} \frac{dh_2}{dt} + \mathbf{q}|_{z=h_1} \frac{dh_1}{dt} \right). \quad (\text{A.1})$$

Der erste Term auf der rechten Seite von Gl. (A.1) kann mithilfe der Produktregel umgeschrieben werden

$$\frac{1}{h} \partial_t \int_{h_1}^{h_2} \mathbf{q} dz = \partial_t \left(\frac{1}{h} \int_{h_1}^{h_2} \mathbf{q} dz \right) + \frac{1}{h^2} \frac{dh}{dt} \int_{h_1}^{h_2} \mathbf{q} dz. \quad (\text{A.2})$$

Die Verwendung von $\frac{dh}{dt} = \frac{dh_2}{dt} - \frac{dh_1}{dt}$ und Einsetzen in Gl. (A.1) führt auf

$$\begin{aligned} \frac{1}{h} \int_{h_1}^{h_2} \partial_t \mathbf{q} dz = \partial_t \left(\frac{1}{h} \int_{h_1}^{h_2} \mathbf{q} dz \right) + \frac{1}{h} \left(\frac{1}{h} \int_{h_1}^{h_2} \mathbf{q} dz - \mathbf{q}|_{z=h_2} \right) \frac{dh_2}{dt} \\ - \frac{1}{h} \left(\frac{1}{h} \int_{h_1}^{h_2} \mathbf{q} dz - \mathbf{q}|_{z=h_1} \right) \frac{dh_1}{dt}. \end{aligned} \quad (\text{A.3})$$

Multipliziert man Gl. (A.3) mit h und verwendet die Kurzschreibweise für Höhenmittelwerte $\bar{\phi} = \frac{1}{h} \int_{h_1}^{h_2} \phi dz$, so erhält man Gl. (3.5). Die Ableitung für die Terme der rechten Seite von Gl. (3.4) folgt äquivalent.

A.2. Geschwindigkeitsprofile für Potenzgesetz-Fluide

Die konstitutive Beziehung für ein Potenzgesetz-Fluid (3.23) führt zusammen mit der Gleichung für das Mikroproblem (3.15) zu einer nichtlinearen gewöhnlichen Differentialgleichung für das Geschwindigkeitsprofil. Für den unteren Teil von Fall 1 gilt

$$\frac{\partial^2 u}{\partial z^2} = -\frac{\alpha_1}{n} \left(\frac{\partial u}{\partial z} \right)^{1-n}, \quad 0 \leq z \leq h_1^*, \quad (\text{A.4})$$

wobei α_1 eine Konstante ist. Die Wahl eines Ansatzes für die Scherrate der Form

$$\frac{\partial u}{\partial z} = A (h_1^* - z)^\chi, \quad (\text{A.5})$$

führt auf

$$A\chi(h_1^* - z)^{\chi-1} = \frac{\alpha_1}{n} A^{1-n} (h_1^* - z)^{\chi(1-n)}. \quad (\text{A.6})$$

Daraus lässt sich $\chi = 1/n$ und $A = \alpha_1^{1/n}$ ablesen, sodass der untere Teil des Geschwindigkeitsprofils durch

$$u(z) = -\frac{n}{n+1} \alpha_1^{\frac{1}{n}} (h_1^* - z)^{\frac{n+1}{n}} + \beta_1, \quad 0 \leq z \leq h_1^* \quad (\text{A.7})$$

gegeben ist. Die Integrationskonstante β_1 wird mithilfe der Randbedingung an der unteren Wand $u(0) = U$ bestimmt.

Der obere Teil des Geschwindigkeitsprofils für Fall 1 kann auf ähnliche Weise ermittelt werden, wobei

$$\frac{\partial^2 u}{\partial z^2} = -\frac{\alpha_1}{n} \left(-\frac{\partial u}{\partial z} \right)^{1-n}, \quad 0 \leq z \leq h_1^* \quad (\text{A.8})$$

zu lösen ist. Der Ansatz

$$\frac{\partial u}{\partial z} = A (z - h_1^*)^\chi \quad (\text{A.9})$$

führt analog auf den oberen Teil des Geschwindigkeitsprofils

$$u(z) = -\frac{n}{n+1} \alpha_1^{\frac{1}{n}} (z - h_1^*)^{\frac{n+1}{n}} + \gamma_1, \quad h_1^* \leq z \leq h. \quad (\text{A.10})$$

Die Herleitung des Geschwindigkeitsprofils für Fall 2 ist identisch zum unteren Teil von Fall 1.

A.3. Permeabilitätsfaktoren

Die effektive Spalthöhe $h^* = \sqrt{\kappa}h$ in einem flachen Kanal ergibt sich aus Gl. (3.35), mit einem parabolischen Geschwindigkeitsprofil der Form

$$u(z) = az(z - h) + \frac{U_2 - U_1}{h}z + U_1, \quad (\text{A.11})$$

wobei U_1 und U_2 die Schlupfgeschwindigkeiten an der unteren bzw. oberen Wand sind. Das korrespondierende Geschwindigkeitsprofil mit Haftbedingungen über der effektiven Spalthöhe h_{eff} lautet

$$u^*(z) = az(z - h_{\text{eff}}). \quad (\text{A.12})$$

Die Definition der Navier-Schlupflänge setzt U_1 und U_2 mit b_1 und b_2 in Beziehung durch

$$\begin{aligned} U_1 &= u'(0)b_1, \\ U_2 &= -u'(h)b_2, \end{aligned} \quad (\text{A.13})$$

sodass

$$\frac{U_2 - U_1}{h} = ah \frac{b_1 - b_2}{h + b_1 + b_2}, \quad (\text{A.14})$$

und

$$U_1 = \left(\frac{b_1 - b_2}{h + b_1 + b_2} - 1 \right) ahb_1 \quad (\text{A.15})$$

in Gl. (A.11) ersetzt werden können. Die Auswertung von Gl. (3.35), bzw. Gleichsetzen von Gl. (A.11) und (A.12), führt schließlich auf

$$h_{\text{eff}}^2 = \underbrace{\left[1 + \frac{6b_1}{h} - 3 \frac{b_1 - b_2}{h + b_1 + b_2} \left(1 + \frac{2b_1}{h} \right) \right]}_{=: \kappa} h^2. \quad (\text{A.16})$$

Für einen eindimensionalen Kanal mit kreisförmigem Querschnitt und Radius R lautet das Poiseuille-Geschwindigkeitsprofil

$$u(r) = \alpha(R^2 - r^2) + U_s, \quad (\text{A.17})$$

mit Schlupfgeschwindigkeit $U_s = 2\alpha bR$ und das korrespondierende Profil mit Haftbedingungen

$$u^*(r) = \alpha(R_{\text{eff}}^2 - r^2). \quad (\text{A.18})$$

Gleichsetzen der integralen Flüsse

$$\frac{1}{\pi R^2} \int_0^{2\pi} \int_0^R u(r) r dr d\theta = \frac{1}{\pi R_{\text{eff}}^2} \int_0^{2\pi} \int_0^{R_{\text{eff}}} u^*(r) r dr d\theta \quad (\text{A.19})$$

führt wiederum auf

$$R_{\text{eff}}^2 = \left(1 + \frac{4b}{R}\right) R^2. \quad (\text{A.20})$$

A.4. Überkritische Dichterelaxation

Das Verhalten von Gl. (3.43) im überkritisch gedämpften Bereich für große Wellenlängen lässt sich leicht ermitteln, indem man den Grenzwert des wellenlängenabhängigen Eigenwertanteils aus Gl. (3.40) betrachtet

$$\lim_{k \rightarrow 0} \text{is}_{\text{T}} k = \lim_{k \rightarrow 0} -\sqrt{\left(\frac{6\nu}{h^2 \kappa}\right)^2 - c_{\text{T}} k^2} = -\frac{6\nu}{h^2 \kappa}. \quad (\text{A.21})$$

Daher ist der zeitliche Verlauf der Fourier-Koeffizienten von Impulsfluktuationen in Längsrichtung identisch mit dem der Transversalrichtung

$$\begin{aligned} \lim_{k \rightarrow 0} \tilde{j}_{\parallel}(k, t) &= \exp\left(-\frac{6\nu}{h^2 \kappa} t\right) \left[\cosh\left(-\frac{6\nu}{h^2 \kappa} t\right) + \sinh\left(-\frac{6\nu}{h^2 \kappa} t\right) \right] \\ &= \exp\left(-\frac{12\nu}{h^2 \kappa} t\right) \\ &= \tilde{j}_{\perp}(k, t), \end{aligned} \quad (\text{A.22})$$

wobei $\tilde{j}_{\parallel}(k, t) = j_{\parallel}(k, t) / j_{\parallel}(k, 0)$. Für Dichtefluktuationen ergibt sich jedoch

$$\lim_{k \rightarrow 0} \tilde{\rho}(k, t) = \exp\left(-\frac{6\nu}{h^2 \kappa} t\right) \left[\cosh\left(-\frac{6\nu}{h^2 \kappa} t\right) - \sinh\left(-\frac{6\nu}{h^2 \kappa} t\right) \right] = 1, \quad (\text{A.23})$$

und es stellt sich die Frage wie dieser Grenzwert erreicht wird. Der Kürze halber sei $a \equiv 6\nu/h^2 \kappa$ und $b \equiv -\text{is}_{\text{T}} = \sqrt{(a/k)^2 - c_{\text{T}}^2}$ mit $c_{\text{T}} < a/k$, d. h.

$$\tilde{\rho}(k, t) = e^{-at} \left[\cosh(bkt) + \frac{a}{bk} \sinh(bkt) \right], \quad (\text{A.24})$$

wobei die Symmetrien der hyperbolischen Funktionen verwendet wurden. Zu Zeiten t_0 , die viel größer sind als eine charakteristische Zeit des Systems (z. B. $t_0 \gg 1/bk$), kann angenommen werden, dass $\sinh(bkt_0) = \cosh(bkt_0)$. Durch Entwicklung von $\rho(\tilde{k}, t)$ um t_0 erhält man

$$\begin{aligned} \tilde{\rho}(k, t) &= \tilde{\rho}(k, t_0) + \frac{bk + a}{bk} e^{-at_0} \cosh(bkt_0) \left[(bk - a)(t - t_0) + \frac{1}{2!} (bk - a)^2 (t - t_0)^2 + \dots \right] \\ &= \tilde{\rho}(k, t_0) \left[1 + (bk - a)(t - t_0) + \frac{1}{2!} (bk - a)^2 (t - t_0)^2 + \dots \right] \\ &= \tilde{\rho}(k, t_0) e^{(bk-a)(t-t_0)}. \end{aligned} \tag{A.25}$$

Daraus ist ersichtlich, dass Dichtemoden im überkritisch gedämpften Regime exponentiell in der Zeit mit einer Rate $bk - a < 0$ zerfallen, wobei a eine geometrieabhängige Konstante ist und $bk - a \sim O(k^2)$, wie in Abb. A.1 dargestellt.

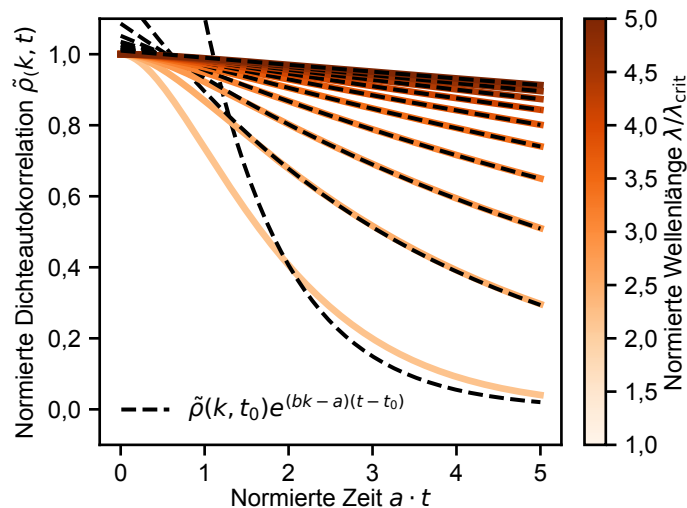


Abbildung A.1.: Überkritische Dichterelaxation und Vergleich mit Approximation. Gleich wie Abb. 3.6c, aber mit dem effektiven Langzeitausdruck für $\tilde{\rho}(k, t)$. Die in Gl. A.25 gezeigte Taylor-Entwicklung ist um $t_0 = 2/a$, und mit Ausnahme des aperiodischen Grenzfalls erhält man eine gute Übereinstimmung mit der ursprünglichen Form für große t . In Anlehnung an Ref. [P3].

A.5. MacCormack-Verfahren

Gleichung (3.53) kann mithilfe der numerischen Flüsse (3.56a)–(3.56d) geschrieben werden als

$$\begin{aligned} Q_{ij}^{n+1} = Q_{ij}^n &- \frac{\Delta t}{2\Delta x} [f_x(Q_{i+1,j}^n) - f_x(Q_{ij}^n) + f_x(Q_{ij}^*) - f_x(Q_{i-1,j}^*)] \\ &- \frac{\Delta t}{2\Delta y} [f_y(Q_{i,j+1}^n) - f_y(Q_{ij}^n) + f_y(Q_{ij}^*) - f_y(Q_{i,j-1}^*)]. \end{aligned} \quad (\text{A.26})$$

Durch einfaches Umsortieren ergibt sich

$$\begin{aligned} Q_{ij}^{n+1} = \frac{Q_{ij}^n}{2} + \frac{1}{2} &\left\{ Q_{ij}^n - \frac{\Delta t}{\Delta x} [f_x(Q_{i+1,j}^n) - f_x(Q_{ij}^n)] - \frac{\Delta t}{\Delta y} [f_y(Q_{i,j+1}^n) - f_y(Q_{ij}^n)] \right\} \\ &- \frac{\Delta t}{2\Delta x} [f_x(Q_{ij}^*) - f_x(Q_{i-1,j}^*)] - \frac{\Delta t}{2\Delta y} [f_y(Q_{ij}^*) - f_y(Q_{i,j-1}^*)]. \end{aligned} \quad (\text{A.27})$$

Der Term in geschweiften Klammern beschreibt ein Aufwind-Verfahren erster Ordnung, dessen Lösung als Q_{ij}^* definiert wird. Dies ist der Prädiktorschritt, Gl. (3.57a). Daraus folgt analog

$$Q_{ij}^{n+1} = \frac{Q_{ij}^n}{2} + \frac{1}{2} \left\{ Q_{ij}^* - \frac{\Delta t}{\Delta x} [f_x(Q_{ij}^*) - f_x(Q_{i-1,j}^*)] - \frac{\Delta t}{\Delta y} [f_y(Q_{ij}^*) - f_y(Q_{i,j-1}^*)] \right\}. \quad (\text{A.28})$$

Bezeichnet man den Term in geschweiften Klammern als Q_{ij}^{**} (vgl. Gl. (3.57b)), kann die Lösung zum Zeitpunkt t_{n+1} mit Gl. (3.57c) berechnet werden.

A.6. TVD-Korrektur

Um eine TVD-Variante des MacCormack-Schemas zu erhalten, wird ein Korrekturterm zum Korrektorschritt, Gl. (3.57c), hinzugefügt

$$\begin{aligned} \Delta Q_{i,j}^{\text{TVD}} = [K(r_i^+) + K(r_{i+1}^-)] \Delta Q_{i+1/2,j}^n &- [K(r_{i-1}^+) + K(r_i^-)] \Delta Q_{i-1/2,j}^n \\ &+ [K(r_j^+) + K(r_{j+1}^-)] \Delta Q_{i,j+1/2}^n - [K(r_{j-1}^+) + K(r_j^-)] \Delta Q_{i,j-1/2}^n \end{aligned} \quad (\text{A.29})$$

mit

$$r_i^\pm = \frac{\Delta Q_{i-1/2,j}^n \cdot \Delta Q_{i+1/2,j}^n}{\Delta Q_{i\pm 1/2,j}^n \cdot \Delta Q_{i\pm 1/2,j}^n}, \quad (\text{A.30a})$$

$$r_j^\pm = \frac{\Delta Q_{i,j-1/2}^n \cdot \Delta Q_{i,j+1/2}^n}{\Delta Q_{i,j\pm 1/2}^n \cdot \Delta Q_{i,j\pm 1/2}^n}, \quad (\text{A.30b})$$

$$\Delta Q_{i\pm 1/2,j}^n = \pm(Q_{i\pm 1,j}^n - Q_{i,j}^n), \quad (\text{A.30c})$$

$$\Delta Q_{i,j\pm 1/2}^n = \pm(Q_{i,j\pm 1}^n - Q_{i,j}^n), \quad (\text{A.30d})$$

und

$$K(r) = \frac{C}{2}(1 - \phi(r)), \quad (\text{A.31})$$

wobei $\phi(r) = \max(0, \min(2r, 1))$ die Flussbegrenzerfunktion ist und der Parameter C von der lokalen Courant-Zahl ν abhängt durch

$$C = \begin{cases} \nu(1 - \nu); & \nu \leq 0,5 \\ 0,25; & \nu > 0,5. \end{cases} \quad (\text{A.32})$$

Für weitere Einzelheiten siehe Ref. [133].

B. Superkritische Lennard-Jones Fluide

Die in Kap. 4.1 beschriebenen MD-Simulationen wurden für ein superkritisches Lennard-Jones-Fluid am Zustandspunkt $T = 2,0 \epsilon/k_B$ und $\rho = 0,452 \sigma^{-3}$ (vgl. Ref. [138]) durchgeführt. Hier finden sich zusätzliche Informationen über das LJ-Fluid sowohl für das System ohne Wände als auch das eingeschlossene System.

B.1. Viskosität mittels Green-Kubo Simulationen

Eine geläufige Methode die Viskosität eines Fluids im Gleichgewicht zu bestimmen ist die Green-Kubo (GK)- Methode. Dazu werden die Autokorrelationsfunktionen der Fluktuationen des viskosen Spannungstensors berechnet und über die Zeit integriert

$$\eta = \frac{V}{k_B T} \int_0^\infty \langle \tau_{ij}(t) \tau_{ij}(0) \rangle dt, \quad (\text{B.1})$$

wobei V das betrachtete Volumen ist, k_B ist die Boltzmann-Konstante und τ_{ij} sind Komponenten des Spannungstensors. Dabei ist zu beachten, dass $\langle \cdot \rangle$ ein Mittelwert über verschiedene Startkonfigurationen bezeichnet. Prinzipiell können sowohl Scher- ($i \neq j$) als auch Normalspannungskomponenten ($i = j$) für die Berechnung von Gl. (B.1) zugrunde gelegt werden, wobei für Letztere eine Skalierung mit Faktor 3/4 berücksichtigt werden muss [174]. In Abb. B.1 ist der Wert des Integrals normiert auf die Dichte, also die kinematische Scherviskosität, über der Zeit aufgetragen. Dazu wurden 20 MD Simulationen mit Simulationszeit $2500 \sqrt{\sigma^2 m / \epsilon}$ durchgeführt, wobei die Autokorrelationsfunktionen jeweils für ein Zeitintervall von $2,5 \sqrt{\sigma^2 m / \epsilon}$ berechnet wurden. Innerhalb dieser Zeit konvergiert der Wert des Integrals, welcher nahezu identisch mit dem Wert in Tab. 4.2 ist.

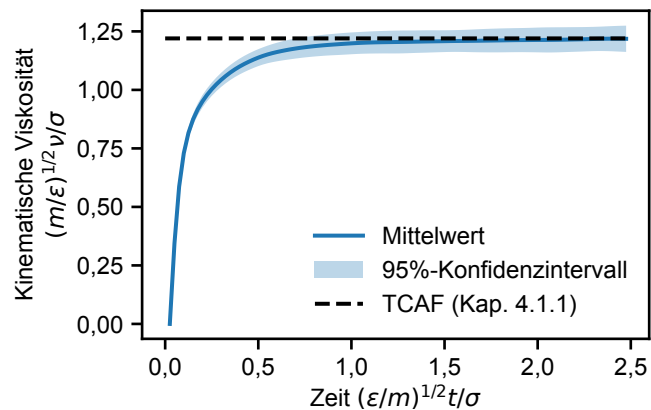


Abbildung B.1.: Konvergenz des Green-Kubo Integrals zur Viskositätsbestimmung. Mittelwert und Konfidenzintervall aus 20 Replica-Simulationen und Vergleich mit Ergebnissen der *transverse current autocorrelation function* (TCAF)-Methode.

B.2. Zustandsgleichung

Die für den kompressiblen Kontinuumslöser notwendige Zustandsgleichung wurde mittels MD-Simulationen parametrisiert. Dazu wurden zehn Simulationen mit je 5 000 Atomen bei äquidistant verteilten Dichten zwischen $0,06$ und $0,6 \sigma^{-3}$ und $T = 2,0 \epsilon/k_B$ durchgeführt. Der Druck in den äquilibrierten Systemen wurde für 100 000 Zeitschritte aufgenommen und ist in Abb. B.2 aufgetragen. Die Parametrisierung erfolgte durch Anpassung eines kubischen Polynoms an die Simulationsdaten. Aus der Steigung der Isothermen lässt sich wiederum die adiabatische Schallgeschwindigkeit $c_s = \sqrt{\gamma dp/d\rho}$. Für die Umrechnung in SI-Einheiten wurden die LJ-Parameter für Argon, $\sigma = 0,34 \text{ nm}$ und $\epsilon = 120 \text{ K}/k_B$, sowie die molare Masse $m = 39,948 \text{ g/mol}$ verwendet.

B.3. Dichteoszillationen

Ordnungsphänomene an der Fluid-Wand-Grenzfläche führen zu Oszillationen der Dichte. Für die in Kap. 4.1 untersuchten Systeme eingeschlossener Fluide sind die Dichteprofile entlang der Spaltkoordinate für drei verschiedene Interaktionsstärken in Abb. B.3a dargestellt. An beiden Wänden sind für alle betrachteten Interaktionsstärken je zwei deutliche Dichtemaxima zu erkennen, wobei die Dichte der Schichten mit der Interaktionsenergie zunimmt. Ab einem Abstand von etwa 3σ von der Wand ist die Dichte konstant. Die

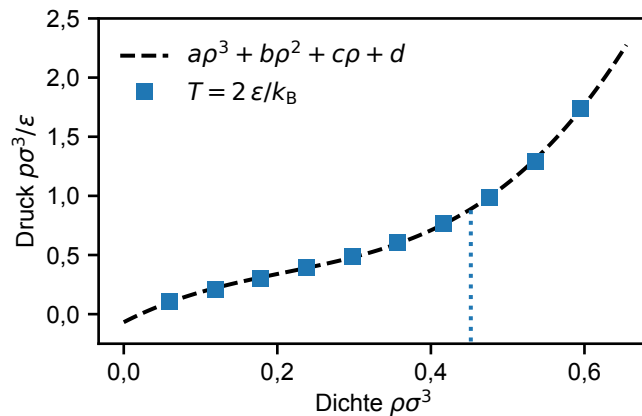


Abbildung B.2.: Isotherme Zustandsgleichung des superkritischen LJ-Fluids. Aus der Anpassung an ein kubisches Polynom ergeben sich die Parameter $a = 15,20 \epsilon \sigma^6$, $b = -9,60 \epsilon \sigma^3$, $c = 3,35 \epsilon$ und $d = -0,07 \epsilon \sigma^{-3}$.

Dichte im Inneren unterscheidet sich aufgrund der Ordnungseffekte leicht vom Eingabewert $\rho = 0,452 \sigma^{-3}$. Im grau schattierten Bereich wurde die radiale Verteilungsfunktion berechnet und mit dem Ergebnis eines Systems ohne Wände verglichen. Zur besseren Vergleichbarkeit wurde dazu der graue Bereich auch in z -Richtung periodisch fortgesetzt. Das Ergebnis des Vergleichs ist in Abb. B.3b dargestellt. Im Zentrum des Kanals ist die Struktur des eingeschlossenen Fluids ununterscheidbar zu der eines Fluids ohne Wände, unabhängig von der Fluid-Wand-Interaktionsstärke.

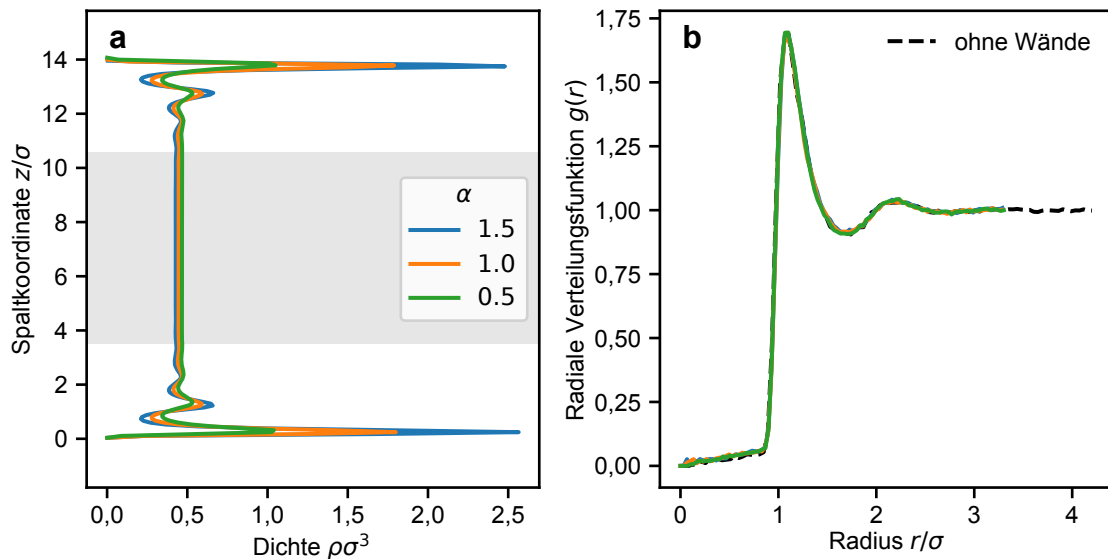


Abbildung B.3.: Charakterisierung des eingeschlossenen LJ-Fluids. (a) Dichteverlauf über der Spalthöhe für drei Fluid-Wand-Interaktionen. (b) Radiale Verteilungsfunktion und Vergleich mit einem System ohne Wände.

C. Autokorrelationsfunktionen

Die in Abb. 4.2 und 4.5a dargestellten Relaxationszeiten, bzw. die Periodendauer in Abb. 4.3, sind arithmetische Mittelwerte basierend auf Funktionsanpassungen sowohl des Real- als auch des Imaginärteils der Fourier-Koeffizienten aus MD-Fluktuationen.

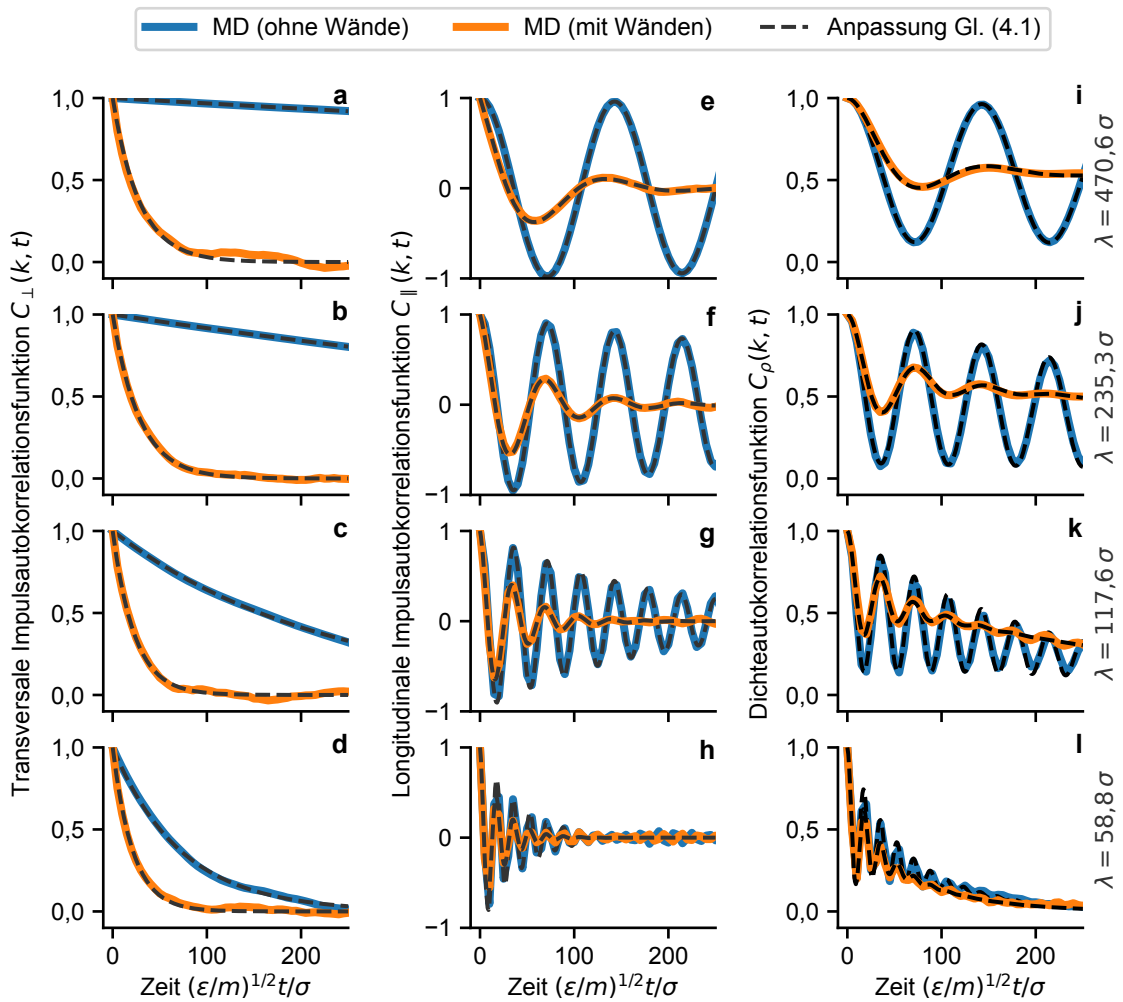


Abbildung C.1.: Autokorrelationsfunktionen von Gleichgewichtsfuktuationen. Gleich wie Abb. 4.1, aber für den Imaginärteil der Fourier-Koeffizienten.

Analog zu Abb. 4.1 sind in Abb. C.1 die Autokorrelationsfunktionen des Imaginärteils von Impuls- und Dichtefluktuationen für vier Wellenlängen und $\alpha = 0,75$ dargestellt. Außerdem zeigen Abb. C.2 und C.3 die Autokorrelationsfunktionen und Funktionsanpassungen für Wand-Fluid-Interaktionen mit $\alpha = 1,25$ für den Real- bzw. Imaginärteil.

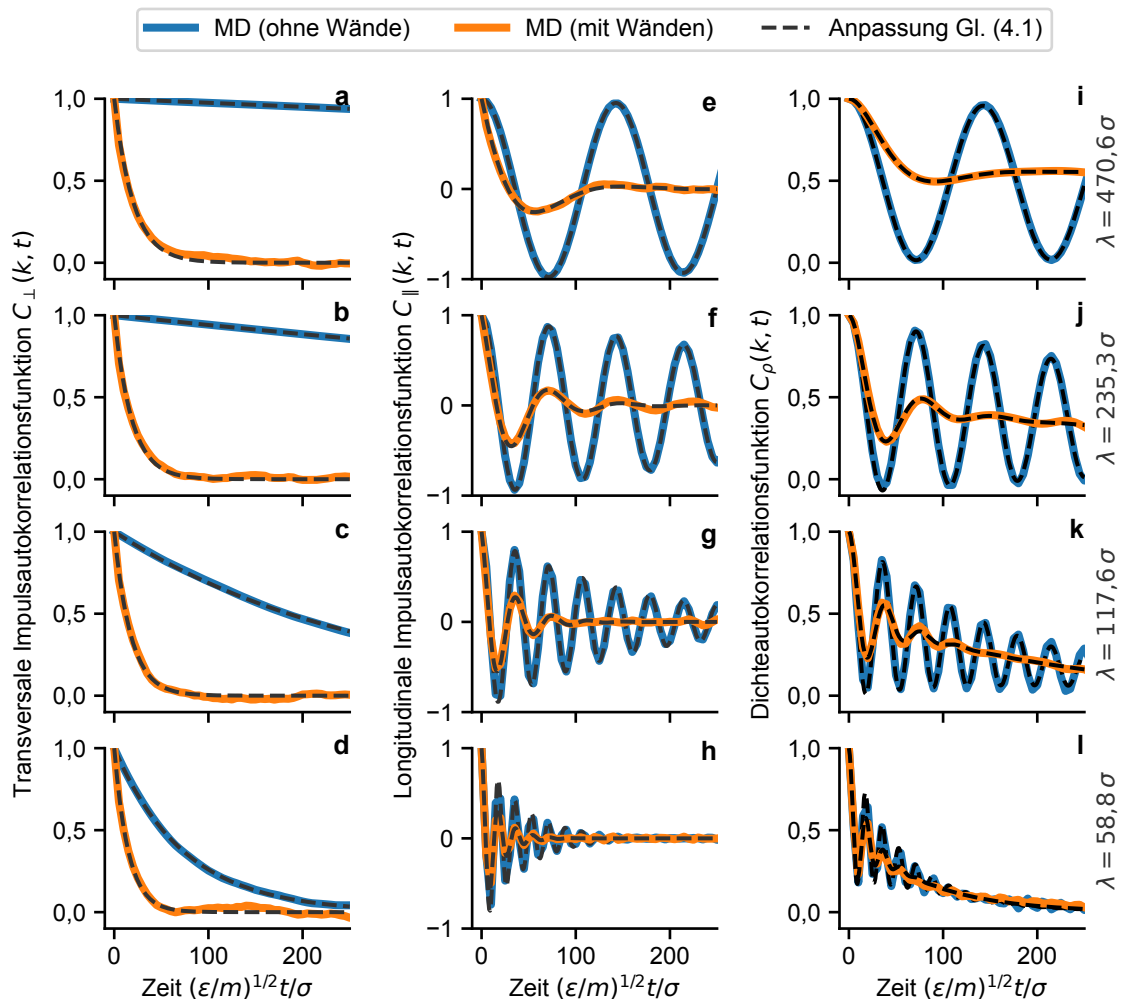


Abbildung C.2.: Autokorrelationsfunktionen von Gleichgewichtsfluktuationen. Gleich wie Abb. 4.1, aber für Wand-Fluid-Interaktionen mit $\alpha = 1,25$.

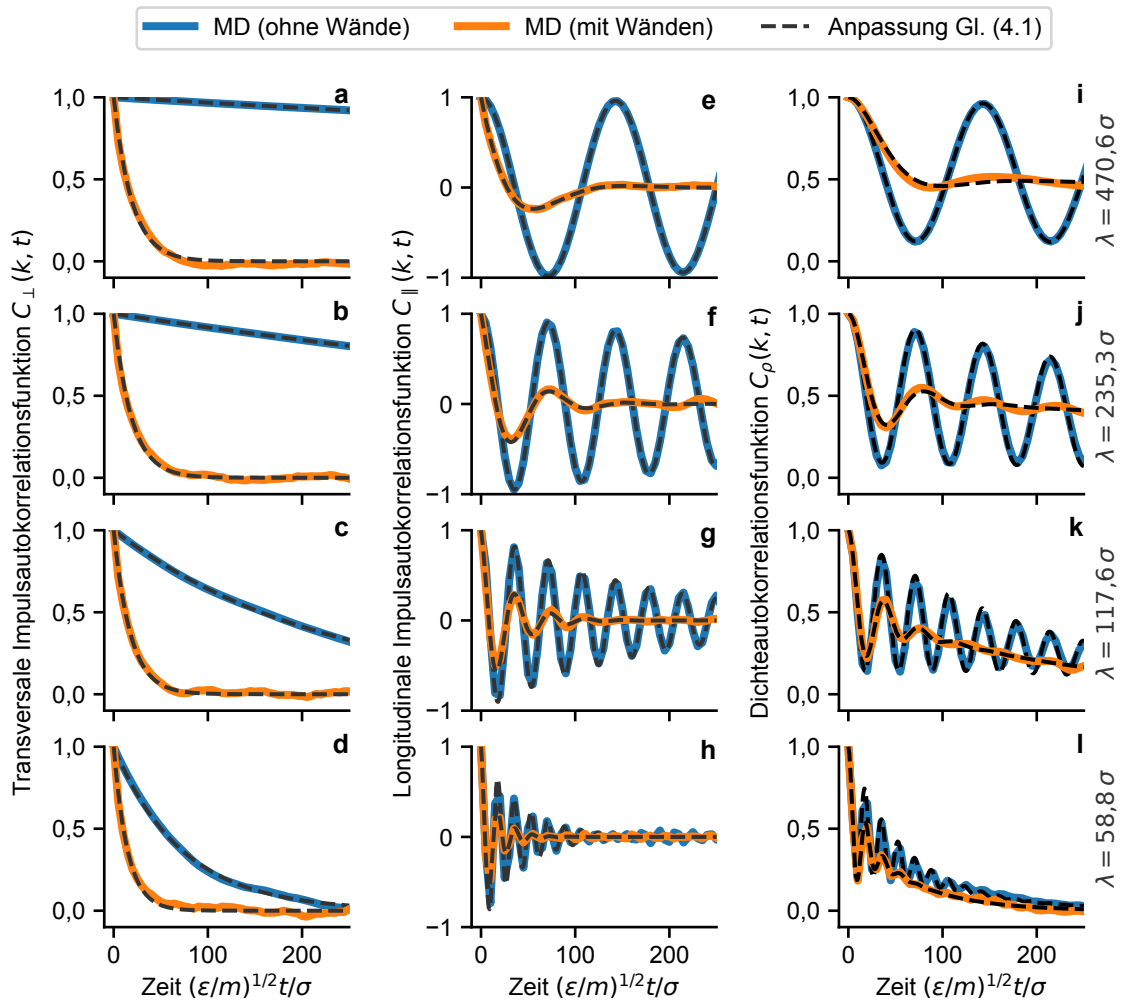


Abbildung C.3.: Autokorrelationsfunktionen von Gleichgewichtsfluktuationen. Gleich wie Abb. C.2, aber für den Imaginärteil der Fourier-Koeffizienten.

Literaturverzeichnis

- [1] P. E. Newberry, *The Tomb of Tehuti-Hetep*, Bd. 1, Archaeological Survey of Egypt (Egypt Exploration Society, London, 1895).
- [2] A. Fall, B. Weber, M. Pakpour, N. Lenoir, N. Shahidzadeh, J. Fiscina, C. Wagner und D. Bonn, „Sliding friction on wet and dry sand“, *Physical Review Letters* **112**, 175502 (2014).
- [3] S. J. G. Wilkinson, *Transport du colosse de Djéhoutihétep, bas-relief de el-Bersheh*, Wikimedia Commons, (1854) <https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Colosse-dj%C3%A9houtih%C3%A9tep2.jpg> (besucht am 13. 11. 2022).
- [4] O. Reynolds, „IV. On the theory of lubrication and its application to Mr. Beauchamp Tower’s experiments, including an experimental determination of the viscosity of olive oil“, *Philosophical Transactions of the Royal Society of London* **177**, 157–234 (1886).
- [5] B. Tower, „First report on friction experiments“, *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers* **34**, 632–659 (1883).
- [6] R. Stribeck, „Die wesentlichen Eigenschaften der Gleit- und Rollenlager“, *Zeitschrift des Vereins Deutscher Ingenieure* **46**, 1341–1348 (1902).
- [7] K. Holmberg und A. Erdemir, „The impact of tribology on energy use and CO2 emission globally and in combustion engine and electric cars“, *Tribology International* **135**, 389–396 (2019).
- [8] P. Arias, N. Bellouin, E. Coppola, R. Jones, G. Krinner, J. Marotzke, V. Naik, M. Palmer, G.-K. Plattner, J. Rogelj, M. Rojas, J. Sillmann, T. Storelvmo, P. Thorne, B. Trewin, K. Rao, B. Adhikary, R. Allan, K. Armour und K. Zickfeld, „IPCC AR6 WGI Technical Summary“, in *Climate Change 2021: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* [Masson-Delmotte, V., P. Zhai, A. Pirani, S.L. Connors, C. Péan, S. Berger, N. Caud, Y. Chen, L. Goldfarb, M.I. Gomis, M. Huang, K. Leitzell, E.

- Lonnoy, J.B.R. Matthews, T.K. Maycock, T. Waterfield, O. Yelekçi, R. Yu, and B. Zhou (Hrsg.)*] (Cambridge University Press, Cambridge, 2021), S. 33–144.
- [9] G. Vaitkunaite, C. Espejo, C. Wang, B. Thiébaud, C. Charrin, A. Neville und A. Morina, „MoS₂ tribofilm distribution from low viscosity lubricants and its effect on friction“, *Tribology International* **151**, 106531 (2020).
- [10] G. Mordukhovich, J. Qu, J. Y. Howe, S. Bair, B. Yu, H. Luo, D. J. Smolenski, P. J. Blau, B. G. Bunting und S. Dai, „A low-viscosity ionic liquid demonstrating superior lubricating performance from mixed to boundary lubrication“, *Wear* **301**, 740–746 (2013).
- [11] T. Kuwahara, P. A. Romero, S. Makowski, V. Weihnacht, G. Moras und M. Moseler, „Mechano-chemical decomposition of organic friction modifiers with multiple reactive centres induces superlubricity of ta-C“, *Nature Communications* **10**, 151 (2019).
- [12] C. Truesdell und K. R. Rajagopal, *An Introduction to the Mechanics of Fluids* (Birkhäuser, Boston, MA, 2000).
- [13] K. R. Rajagopal, „Remarks on the notion of “pressure”“, *International Journal of Non-Linear Mechanics* **71**, 165–172 (2015).
- [14] A. Z. Szeri, *Fluid Film Lubrication*, 2. Aufl. (Cambridge University Press, Cambridge, 2010).
- [15] K. Rajagopal und A. Szeri, „On an inconsistency in the derivation of the equations of elastohydrodynamic lubrication“, *Proceedings of the Royal Society of London. Series A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences* **459**, 2771–2786 (2003).
- [16] G. Bayada, B. Cid, G. García und C. Vázquez, „A new more consistent Reynolds model for piezoviscous hydrodynamic lubrication problems in line contact devices“, *Applied Mathematical Modelling* **37**, 8505–8517 (2013).
- [17] T. Gustafsson, K. R. Rajagopal, R. Stenberg und J. Videman, „Nonlinear Reynolds equation for hydrodynamic lubrication“, *Applied Mathematical Modelling* **39**, 5299–5309 (2015).
- [18] A. Almqvist, E. Burtseva, F. Pérez-Ráfols und P. Wall, „New insights on lubrication theory for compressible fluids“, *International Journal of Engineering Science* **145**, 103170 (2019).

-
- [19] A. Almqvist, E. Burtseva, K. Rajagopal und P. Wall, „On lower-dimensional models in lubrication, Part B: Derivation of a Reynolds type of equation for incompressible piezo-viscous fluids“, *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part J: Journal of Engineering Tribology* **235**, 1703–1718 (2021).
- [20] D. Dowson, „A generalized Reynolds equation for fluid-film lubrication“, *International Journal of Mechanical Sciences* **4**, 159–170 (1962).
- [21] M. H. Müser, S. V. Sukhomlinov und L. Pastewka, „Interatomic potentials: achievements and challenges“, *Advances in Physics: X* **8**, 2093129 (2023).
- [22] D. Frenkel und B. Smit, *Understanding Molecular Simulation - From Algorithms to Applications*, 2. Aufl., Bd. 1, Computational Science Series (Academic Press, San Diego, London, 2002).
- [23] B. J. Alder und T. E. Wainwright, „Phase transition for a hard sphere system“, *The Journal of Chemical Physics* **27**, 1208–1209 (1957).
- [24] D. Levesque, L. Verlet und J. Kürkijarvi, „Computer “experiments” on classical fluids. IV. Transport properties and time-correlation functions of the Lennard-Jones liquid near its triple point“, *Physical Review A* **7**, 1690–1700 (1973).
- [25] I. Bitsanis, J. J. Magda, M. Tirrell und H. T. Davis, „Molecular dynamics of flow in micropores“, *The Journal of Chemical Physics* **87**, 1733–1750 (1987).
- [26] F. F. Abraham, „The interfacial density profile of a Lennard-Jones fluid in contact with a (100) Lennard-Jones wall and its relationship to idealized fluid/wall systems: A Monte Carlo simulation“, *The Journal of Chemical Physics* **68**, 3713–3716 (1978).
- [27] J. J. Magda, M. Tirrell und H. T. Davis, „Molecular dynamics of narrow, liquid-filled pores“, *The Journal of Chemical Physics* **83**, 1888–1901 (1985).
- [28] R. G. Horn und J. N. Israelachvili, „Direct measurement of structural forces between two surfaces in a nonpolar liquid“, *The Journal of Chemical Physics* **75**, 1400–1411 (1981).
- [29] S. Granick, „Motions and relaxations of confined liquids“, *Science* **253**, 1374–1379 (1991).
- [30] I. Bitsanis, S. A. Somers, H. T. Davis und M. Tirrell, „Microscopic dynamics of flow in molecularly narrow pores“, *The Journal of Chemical Physics* **93**, 3427–3431 (1990).

- [31] P. T. Cummings, H. Docherty, C. R. Iacovella und J. K. Singh, „Phase transitions in nanoconfined fluids: The evidence from simulation and theory“, *AIChE Journal*, 842–748 (2010).
- [32] J. Klein und E. Kumacheva, „Confinement-induced phase transitions in simple liquids“, *Science* **269**, 816–819 (1995).
- [33] P. A. Thompson, G. S. Grest und M. O. Robbins, „Phase transitions and universal dynamics in confined films“, *Physical Review Letters* **68**, 3448–3451 (1992).
- [34] J. Gao, W. D. Luedtke und U. Landman, „Layering transitions and dynamics of confined liquid films“, *Physical Review Letters* **79**, 705–708 (1997).
- [35] K. P. Travis, B. D. Todd und D. J. Evans, „Departure from Navier-Stokes hydrodynamics in confined liquids“, *Physical Review E* **55**, 4288–4295 (1997).
- [36] R. Pit, H. Hervet und L. Léger, „Direct experimental evidence of slip in hexadecane: Solid interfaces“, *Physical Review Letters* **85**, 980–983 (2000).
- [37] J. Baudry, E. Charlaix, A. Tonck und D. Mazuyer, „Experimental evidence for a large slip effect at a nonwetting fluid-solid interface“, *Langmuir* **17**, 5232–5236 (2001).
- [38] Y. Zhu und S. Granick, „Rate-dependent slip of Newtonian liquid at smooth surfaces“, *Physical Review Letters* **87**, 096105 (2001).
- [39] P. A. Thompson und M. O. Robbins, „Shear flow near solids: Epitaxial order and flow boundary conditions“, *Physical Review A* **41**, 6830–6837 (1990).
- [40] A. Martini, H.-Y. Hsu, N. A. Patankar und S. Lichter, „Slip at high shear rates“, *Physical Review Letters* **100**, 206001 (2008).
- [41] J. Gao, W. Luedtke und U. Landman, „Structures, solvation forces and shear of molecular films in a rough nano-confinement“, *Tribology Letters* **9**, 3–13 (2000).
- [42] L. Bocquet und J.-L. Barrat, „Hydrodynamic boundary conditions and correlation functions of confined fluids“, *Physical Review Letters* **70**, 2726–2729 (1993).
- [43] L. Bocquet und J.-L. Barrat, „Hydrodynamic boundary conditions, correlation functions, and Kubo relations for confined fluids“, *Physical Review E* **49**, 3079–3092 (1994).
- [44] M. S. Green, „Markoff random processes and the statistical mechanics of time-dependent phenomena. II. Irreversible processes in fluids“, *The Journal of Chemical Physics* **22**, 398–413 (1954).

- [45] R. Kubo, „Statistical-mechanical theory of irreversible processes. I. General theory and simple applications to magnetic and conduction problems“, *Journal of the Physical Society of Japan* **12**, 570–586 (1957).
- [46] K. Huang und I. Szlufarska, „Green-Kubo relation for friction at liquid-solid interfaces“, *Physical Review E* **89**, 032119 (2014).
- [47] J. P. Ewen, D. M. Heyes und D. Dini, „Advances in nonequilibrium molecular dynamics simulations of lubricants and additives“, *Friction* **6**, 349–386 (2018).
- [48] E. B. Tadmor und R. E. Miller, *Modeling Materials: Continuum, Atomistic and Multiscale Techniques* (Cambridge University Press, Cambridge, 2011).
- [49] S. J. Marrink, H. J. Risselada, S. Yefimov, D. P. Tieleman und A. H. de Vries, „The MARTINI force field: Coarse grained model for biomolecular simulations“, *The Journal of Physical Chemistry B* **111**, 7812–7824 (2007).
- [50] H. Lin und D. G. Truhlar, „QM/MM: What have we learned, where are we, and where do we go from here?“, *Theoretical Chemistry Accounts* **117**, 185–199 (2007).
- [51] R. E. Miller und E. B. Tadmor, „A unified framework and performance benchmark of fourteen multiscale atomistic/continuum coupling methods“, *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering* **17**, 053001 (2009).
- [52] Z. Li, J. R. Kermode und A. De Vita, „Molecular dynamics with on-the-fly machine learning of quantum-mechanical forces“, *Physical Review Letters* **114**, 096405 (2015).
- [53] A. Martini, Y. Liu, R. Snurr und Q. J. Wang, „Molecular dynamics characterization of thin film viscosity for EHL simulation“, *Tribology Letters* **21**, 217–225 (2006).
- [54] N. Fillot, H. Berro und P. Vergne, „From continuous to molecular scale in modelling elastohydrodynamic lubrication: Nanoscale surface slip effects on film thickness and friction“, *Tribology Letters* **43**, 257–266 (2011).
- [55] D. Savio, N. Fillot, P. Vergne, H. Hetzler, W. Seemann und G. E. Morales Espejel, „A multiscale study on the wall slip effect in a ceramic–steel contact with nanometer-thick lubricant film by a nano-to-elastohydrodynamic lubrication approach“, *Journal of Tribology* **137**, 031502 (2015).
- [56] J. H. Walther, K. Ritos, E. R. Cruz-Chu, C. M. Megaridis und P. Koumoutsakos, „Barriers to superfast water transport in carbon nanotube membranes“, *Nano Letters* **13**, 1910–1914 (2013).

- [57] D. M. Holland, D. A. Lockerby, M. K. Borg, W. D. Nicholls und J. M. Reese, „Molecular dynamics pre-simulations for nanoscale computational fluid dynamics“, *Microfluidics and Nanofluidics* **18**, 461–474 (2015).
- [58] M. K. Borg und J. M. Reese, „Multiscale simulation of enhanced water flow in nanotubes“, *MRS Bulletin* **42**, 294–299 (2017).
- [59] J. K. Holt, H. G. Park, Y. Wang, M. Stadermann, A. B. Artyukhin, C. P. Grigoropoulos, A. Noy und O. Bakajin, „Fast mass transport through sub-2-nanometer carbon nanotubes“, *Science* **312**, 1034–1037 (2006).
- [60] S. Kohlhoff, P. Gumbsch und H. F. Fischmeister, „Crack propagation in b.c.c. crystals studied with a combined finite-element and atomistic model“, *Philosophical Magazine A* **64**, 851–878 (1991).
- [61] K. M. Mohamed und A. A. Mohamad, „A review of the development of hybrid atomistic–continuum methods for dense fluids“, *Microfluidics and Nanofluidics* **8**, 283–302 (2010).
- [62] S. T. O’Connell und P. A. Thompson, „Molecular dynamics–continuum hybrid computations: A tool for studying complex fluid flows“, *Physical Review E* **52**, R5792–R5795 (1995).
- [63] N. G. Hadjiconstantinou und A. T. Patera, „Heterogeneous atomistic-continuum representations for dense fluid systems“, *International Journal of Modern Physics C* **08**, 967–976 (1997).
- [64] T. Werder, J. H. Walther und P. Koumoutsakos, „Hybrid atomistic–continuum method for the simulation of dense fluid flows“, *Journal of Computational Physics* **205**, 373–390 (2005).
- [65] E. G. Flekkøy, G. Wagner und J. Feder, „Hybrid model for combined particle and continuum dynamics“, *Europhysics Letters* **52**, 271 (2000).
- [66] R. Delgado-Buscalioni und P. V. Coveney, „Continuum-particle hybrid coupling for mass, momentum, and energy transfers in unsteady fluid flow“, *Physical Review E* **67**, 046704 (2003).
- [67] G. De Fabritiis, R. Delgado-Buscalioni und P. V. Coveney, „Multiscale modeling of liquids with molecular specificity“, *Physical Review Letters* **97**, 134501 (2006).
- [68] R. Delgado-Buscalioni und G. De Fabritiis, „Embedding molecular dynamics within fluctuating hydrodynamics in multiscale simulations of liquids“, *Physical Review E* **76**, 036709 (2007).

-
- [69] X. Nie, S. Chen und M. O. Robbins, „Hybrid continuum-atomistic simulation of singular corner flow“, *Physics of Fluids* **16**, 3579–3591 (2004).
- [70] X. Nie, M. O. Robbins und S. Chen, „Resolving singular forces in cavity flow: Multiscale modeling from atomic to millimeter scales“, *Physical Review Letters* **96**, 134501 (2006).
- [71] W. E und B. Engquist, „The heterogeneous multiscale methods“, *Communications in Mathematical Sciences* **1**, 87–132 (2003).
- [72] W. E, B. Engquist und Z. Huang, „Heterogeneous multiscale method: A general methodology for multiscale modeling“, *Physical Review B* **67**, 092101 (2003).
- [73] C. Theodoropoulos, Y.-H. Qian und I. G. Kevrekidis, „“Coarse” stability and bifurcation analysis using time-steppers: A reaction-diffusion example“, *Proceedings of the National Academy of Sciences* **97**, 9840–9843 (2000).
- [74] I. G. Kevrekidis, C. W. Gear, J. M. Hyman, P. G. Kevrekidis, O. Runborg und C. Theodoropoulos, „Equation-free, coarse-grained multiscale computation: Enabling microscopic simulators to perform system-level analysis“, *Communications in Mathematical Sciences* **1**, 715–762 (2003).
- [75] I. G. Kevrekidis und G. Samaey, „Equation-free multiscale computation: Algorithms and applications“, *Annual Review of Physical Chemistry* **60**, 321–344 (2009).
- [76] W. E, B. Engquist, X. Li, W. Ren und E. Vanden-Eijnden, „Heterogeneous multiscale methods : A review“, *Communications in Computational Physics* **2**, 367–450 (2007).
- [77] W. Ren und W. E, „Heterogeneous multiscale method for the modeling of complex fluids and micro-fluidics“, *Journal of Computational Physics* **204**, 1–26 (2005).
- [78] J. H. Irving und J. G. Kirkwood, „The statistical mechanical theory of transport processes. IV. The equations of hydrodynamics“, *The Journal of Chemical Physics* **18**, 817–829 (1950).
- [79] S. Yasuda und R. Yamamoto, „A model for hybrid simulations of molecular dynamics and computational fluid dynamics“, *Physics of Fluids* **20**, 113101 (2008).
- [80] N. Asproulis und D. Drikakis, „An artificial neural network-based multiscale method for hybrid atomistic-continuum simulations“, *Microfluidics and Nanofluidics* **15**, 559–574 (2013).
- [81] M. K. Borg, D. A. Lockerby und J. M. Reese, „Fluid simulations with atomistic resolution: a hybrid multiscale method with field-wise coupling“, *Journal of Computational Physics* **255**, 149–165 (2013).

- [82] M. K. Borg, D. A. Lockerby und J. M. Reese, „A multiscale method for micro/nano flows of high aspect ratio“, *Journal of Computational Physics* **233**, 400–413 (2013).
- [83] A. Patronis, D. A. Lockerby, M. K. Borg und J. M. Reese, „Hybrid continuum–molecular modelling of multiscale internal gas flows“, *Journal of Computational Physics* **255**, 558–571 (2013).
- [84] A. Patronis und D. A. Lockerby, „Multiscale simulation of non-isothermal micro-channel gas flows“, *Journal of Computational Physics* **270**, 532–543 (2014).
- [85] M. K. Borg, D. A. Lockerby und J. M. Reese, „A hybrid molecular–continuum method for unsteady compressible multiscale flows“, *Journal of Fluid Mechanics* **768**, 388–414 (2015).
- [86] M. Salloum und J. A. Templeton, „Inference and uncertainty propagation of atomistically informed continuum constitutive laws, part 2: Generalized continuum models based on Gaussian processes“, *International Journal for Uncertainty Quantification* **4**, 171–184 (2014).
- [87] D. Stephenson, J. R. Kermode und D. A. Lockerby, „Accelerating multiscale modelling of fluids with on-the-fly Gaussian process regression“, *Microfluidics and Nanofluidics* **22**, 139 (2018).
- [88] L. Zhao, Z. Li, B. Caswell, J. Ouyang und G. E. Karniadakis, „Active learning of constitutive relation from mesoscopic dynamics for macroscopic modeling of non-Newtonian flows“, *Journal of Computational Physics* **363**, 116–127 (2018).
- [89] C. E. Rasmussen und C. K. I. Williams, *Gaussian Processes for Machine Learning*, Adaptive Computation and Machine Learning (MIT Press, Cambridge, MA, 2006).
- [90] M. Titsias, „Variational learning of inducing variables in sparse Gaussian processes“, in *Proceedings of the 12th International Conference on Artificial Intelligence and Statistics*, Bd. 5, hrsg. von D. van Dyk und M. Welling, *Proceedings of Machine Learning Research* (Clearwater Beach, FL, USA, 16–18 Apr 2009), S. 567–574.
- [91] E. Schulz, M. Speekenbrink und A. Krause, „A tutorial on Gaussian process regression: Modelling, exploring, and exploiting functions“, *Journal of Mathematical Psychology* **85**, 1–16 (2018).
- [92] C. Navier, „Mémoire sur les lois du mouvement des fluides“, *Mémoires de l’Académie Royale des Sciences de l’Institut de France* **6**, 389–440 (1823).
- [93] L. Bocquet und J.-L. Barrat, „Flow boundary conditions from nano- to micro-scales“, *Soft Matter* **3**, 685–693 (2007).

-
- [94] C. Barus, „Isothermals, isopiestic and isometrics relative to viscosity“, *American Journal of Science* **45**, 87–96 (1893).
- [95] C. J. A. Roelands, „Correlational aspects of the viscosity-temperature-pressure relationship of lubricating oils“, Diss. (Technical University of Delft, 1966).
- [96] A. K. Doolittle, „Studies in Newtonian flow. II. The dependence of the viscosity of liquids on free-space“, *Journal of Applied Physics* **22**, 1471–1475 (1951).
- [97] W. Ostwald, „Ueber die rechnerische Darstellung des Strukturgebietes der Viskosität“, *Kolloid-Zeitschrift* **47**, 176–187 (1929).
- [98] P. J. Carreau, „Rheological equations from molecular network theories“, *Transactions of the Society of Rheology* **16**, 99–127 (1972).
- [99] H. Eyring, „Viscosity, plasticity, and diffusion as examples of absolute reaction rates“, *The Journal of Chemical Physics* **4**, 283–291 (1936).
- [100] R. H. Ewell und H. Eyring, „Theory of the viscosity of liquids as a function of temperature and pressure“, *The Journal of Chemical Physics* **5**, 726–736 (1937).
- [101] V. Jadhao und M. O. Robbins, „Rheological properties of liquids under conditions of elastohydrodynamic lubrication“, *Tribology Letters* **67**, 66 (2019).
- [102] G. Davaa, T. Shigechi und S. Momoki, *Plane Couette-Poiseuille Flow of Power-Law Non-Newtonian Fluids*, Reports of the Faculty of Engineering 30 (Nagasaki University, Nagasaki, Jan. 2000).
- [103] L. C. Evans, *Partial Differential Equations*, 2. Aufl., Graduate Studies in Mathematics 19 (American Mathematical Society, Providence, R.I., 2010).
- [104] D. Dowson, G. Higginson und A. Whitaker, „Elasto-hydrodynamic lubrication: a survey of isothermal solutions“, *Journal of Mechanical Engineering Science* **4**, 121–126 (1962).
- [105] D. Dowson und G. R. Higginson, *Elasto-hydrodynamic Lubrication: The Fundamentals of Roller and Gear Lubrication* (Pergamon Press, Oxford, New York, 1966).
- [106] J. R. Blake und D. C. Gibson, „Cavitation bubbles near boundaries“, *Annual Review of Fluid Mechanics* **19**, 99–123 (1987).
- [107] B. Jakobsson und L. Floberg, *The finite journal bearing, considering vaporization*, Transactions of Chalmers University of Technology 190 (Chalmers University of Technology, Gothenburg, Sweden, 1957).

- [108] L. Floberg, *The two-groove journal bearing, considering cavitation*, Transactions of Chalmers University of Technology 232 (Chalmers University of Technology, Gothenburg, Sweden, 1960).
- [109] L. Floberg, *Lubrication of two cylinder surfaces considering cavitation*, Transactions of Chalmers University of Technology 234 (Chalmers University of Technology, Gothenburg, Sweden, 1961).
- [110] K.-O. Olsson, *Cavitation in dynamically loaded bearings*, Transactions of Chalmers University of Technology 308 (Chalmers University of Technology, Gothenburg, Sweden, 1965).
- [111] H. Elrod und M. Adams, „A computer program for cavitation and starvation problems, cavitation and related phenomena in lubrication“, in *D. Dowson, M. Godet, C. M. Taylor (Hrsg.). Lubrication* (Mechanical Engineering Publications, London, 1975), S. 37–43.
- [112] H. G. Elrod, „A cavitation algorithm“, *Journal of Lubrication Technology* **103**, 350–354 (1981).
- [113] G. Bayada und L. Chupin, „Compressible fluid model for hydrodynamic lubrication cavitation“, *Journal of Tribology* **135**, 041702 (2013).
- [114] L. van Wijngaarden, „One-dimensional flow of liquids containing small gas bubbles“, *Annual Review of Fluid Mechanics* **4**, 369–396 (1972).
- [115] F. Sahlin, A. Almqvist, R. Larsson und S. Glavatskih, „A cavitation algorithm for arbitrary lubricant compressibility“, *Tribology International* **40**, 1294–1300 (2007).
- [116] A. P. Thompson, H. M. Aktulga, R. Berger, D. S. Bolintineanu, W. M. Brown, P. S. Crozier, P. J. in 't Veld, A. Kohlmeyer, S. G. Moore, T. D. Nguyen, R. Shan, M. J. Stevens, J. Tranchida, C. Trott und S. J. Plimpton, „LAMMPS - a flexible simulation tool for particle-based materials modeling at the atomic, meso, and continuum scales“, *Computer Physics Communications* **271**, 108171 (2022).
- [117] A. Jabbarzadeh, J. D. Atkinson und R. I. Tanner, „Wall slip in the molecular dynamics simulation of thin films of hexadecane“, *The Journal of Chemical Physics* **110**, 2612–2620 (1999).
- [118] N. V. Priezjev und S. M. Troian, „Molecular origin and dynamic behavior of slip in sheared polymer films“, *Physical Review Letters* **92**, 018302 (2004).
- [119] H. A. Lorentz, „Ueber die Anwendung des Satzes vom Virial in der kinetischen Theorie der Gase“, *Annalen der Physik* **248**, 127–136 (1881).

- [120] Y. Yamaguchi, H. Kusudo, D. Surblys, T. Omori und G. Kikugawa, „Interpretation of Young’s equation for a liquid droplet on a flat and smooth solid surface: Mechanical and thermodynamic routes with a simple Lennard-Jones liquid“, *The Journal of Chemical Physics* **150**, 044701 (2019).
- [121] C. Gattinoni, S. Maćkowiak, D. M. Heyes, A. C. Brańka und D. Dini, „Boundary-controlled barostats for slab geometries in molecular dynamics simulations“, *Physical Review E* **90**, 043302 (2014).
- [122] A. Stukowski, „Visualization and analysis of atomistic simulation data with OVITO—the Open Visualization Tool“, *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering* **18**, 015012 (2009).
- [123] J. P. Boon und S. Yip, *Molecular Hydrodynamics*, Advanced Book Programm (McGraw-Hill, New York [u.a.], 1980).
- [124] J.-P. Hansen und I. R. McDonald, *Theory of Simple Liquids*, 3. Aufl. (Elsevier / Academic Press, Amsterdam, Boston, 2007).
- [125] B. J. Berne und R. Pecora, *Dynamic Light Scattering: With Applications to Chemistry, Biology, and Physics* (Dover Publications, Mineola, N.Y., 2000).
- [126] C. Chatfield, *The Analysis of Time Series: An Introduction*, 6. Aufl. (Chapman and Hall/CRC, New York, 2003).
- [127] R. J. LeVeque, *Finite Volume Methods for Hyperbolic Problems*, Cambridge Texts in Applied Mathematics (Cambridge University Press, Cambridge, 2002).
- [128] P. D. Lax und B. Wendroff, „Difference schemes for hyperbolic equations with high order of accuracy“, *Communications on Pure and Applied Mathematics* **17**, 381–398 (1964).
- [129] R. W. MacCormack, „The effect of viscosity in hypervelocity impact cratering“, *Journal of Spacecraft and Rockets* **40**, 757–763 (2003), Original: AIAA paper 69-354, 1969.
- [130] R. J. LeVeque und H. C. Yee, „A study of numerical methods for hyperbolic conservation laws with stiff source terms“, *Journal of Computational Physics* **86**, 187–210 (1990).
- [131] R. D. Richtmyer und K. W. Morton, *Difference Methods for Initial-Value Problems* (Wiley-Interscience, New York, 1967).
- [132] X. Lin und J. Ballmann, „A numerical scheme for axisymmetric elastic waves in solids“, *Wave Motion* **21**, 115–126 (1995).

- [133] S. F. Davis, *TVD Finite Difference Schemes and Artificial Viscosity*, ICASE Report 84-20 (National Aeronautics and Space Administration, Hampton, VA, Juni 1984).
- [134] C. R. Harris, K. J. Millman, S. J. van der Walt, R. Gommers, P. Virtanen, D. Cournapeau, E. Wieser, J. Taylor, S. Berg, N. J. Smith, R. Kern, M. Picus, S. Hoyer, M. H. van Kerkwijk, M. Brett, A. Haldane, J. F. del Río, M. Wiebe, P. Peterson, P. Gérard-Marchant, K. Sheppard, T. Reddy, W. Weckesser, H. Abbasi, C. Gohlke und T. E. Oliphant, „Array programming with NumPy“, *Nature* **585**, 357–362 (2020).
- [135] R. Courant, H. Lewy und K. Friedrichs, „Über die partiellen Differenzgleichungen der mathematischen Physik“, *Mathematische Annalen* **100**, 32–74 (1928).
- [136] G. Hager und G. Wellein, *Introduction to High Performance Computing for Scientists and Engineers*, Computational Science Series 7 (CRC Press, Boca Raton, London, New York, 2010).
- [137] L. Dalcín, R. Paz und M. Storti, „MPI for Python“, *Journal of Parallel and Distributed Computing* **65**, 1108–1115 (2005).
- [138] B. Hess, „Determining the shear viscosity of model liquids from molecular dynamics simulations“, *The Journal of Chemical Physics* **116**, 209–217 (2002).
- [139] B. J. Berne, „Time Correlation Functions in Condensed Media“, in *Physical Chemistry*, Bd. VIII B (Academic Press, New York, 1971).
- [140] M. Schoen, R. Vogelsang und C. Hoheisel, „Computation and analysis of the dynamic structure factor $S(k, \omega)$ for small wave vectors“, *Molecular Physics* **57**, 445–471 (1986).
- [141] F. Porcheron und M. Schoen, „Propagating hydrodynamic modes in confined fluids“, *Physical Review E* **66**, 041205 (2002).
- [142] I.-C. Yeh und G. Hummer, „System-size dependence of diffusion coefficients and viscosities from molecular dynamics simulations with periodic boundary conditions“, *The Journal of Physical Chemistry B* **108**, 15873–15879 (2004).
- [143] J. D. Weeks, D. Chandler und H. C. Andersen, „Role of repulsive forces in determining the equilibrium structure of simple liquids“, *The Journal of Chemical Physics* **54**, 5237–5247 (1971).
- [144] N. V. Priezjev, „Rate-dependent slip boundary conditions for simple fluids“, *Physical Review E* **75**, 051605 (2007).

- [145] A. Codrignani, D. Savio, F. Magagnato und B. Frohnapfel, „A scaling parameter for pressure losses and thermal effects in lubricant flows with viscous dissipation“, *Tribology International* **113**, 238–244 (2017).
- [146] D. Savio, L. Pastewka und P. Gumbsch, „Boundary lubrication of heterogeneous surfaces and the onset of cavitation in frictional contacts“, *Science Advances* **2**, e1501585 (2016).
- [147] I. Etsion und L. P. Ludwig, „Observation of pressure variation in the cavitation region of submerged journal bearings“, *Journal of Lubrication Technology* **104**, 157–163 (1982).
- [148] H. Spikes und Z. Jie, „History, origins and prediction of elastohydrodynamic friction“, *Tribology Letters* **56**, 1–25 (2014).
- [149] S. Bair, P. Vergne, P. Kumar, G. Poll, I. Krupka, M. Hartl, W. Habchi und R. Larsson, „Comment on “History, origins and prediction of elastohydrodynamic friction” by Spikes and Jie“, *Tribology Letters* **58**, 16 (2015).
- [150] H. Spikes und J. Zhang, „Reply to the comment by Scott Bair, Philippe Vergne, Punit Kumar, Gerhard Poll, Ivan Krupka, Martin Hartl, Wassim Habchi, Roland Larson on “History, origins and prediction of elastohydrodynamic friction” by Spikes and Jie in Tribology Letters“, *Tribology Letters* **58**, 17 (2015).
- [151] J. Nicolas, K. Gubbins, W. Streett und D. Tildesley, „Equation of state for the Lennard-Jones fluid“, *Molecular Physics* **37**, 1429–1454 (1979).
- [152] J. K. Johnson, J. A. Zollweg und K. E. Gubbins, „The Lennard-Jones equation of state revisited“, *Molecular Physics* **78**, 591–618 (1993).
- [153] L. Onsager, „Reciprocal relations in irreversible processes. II.“, *Physical Review* **38**, 2265–2279 (1931).
- [154] B. J. Palmer, „Transverse-current autocorrelation-function calculations of the shear viscosity for molecular liquids“, *Physical Review E* **49**, 359–366 (1994).
- [155] B. Cheng und D. Frenkel, „Computing the heat conductivity of fluids from density fluctuations“, *Physical Review Letters* **125**, 130602 (2020).
- [156] R. Zhou, C. Sun und B. Bai, „Wall friction should be decoupled from fluid viscosity for the prediction of nanoscale flow“, *The Journal of Chemical Physics* **154**, 074709 (2021).
- [157] J. P. Sethna, *Statistical Mechanics: Entropy, Order Parameters, and Complexity* (Oxford University Press, Oxford, 2006).

- [158] S. Ramaswamy und G. F. Mazenko, „Linear and nonlinear hydrodynamics of low-friction adsorbed systems“, *Physical Review A* **26**, 1735–1741 (1982).
- [159] M. H. J. Hagen, I. Pagonabarraga, C. P. Lowe und D. Frenkel, „Algebraic decay of velocity fluctuations in a confined fluid“, *Physical Review Letters* **78**, 3785–3788 (1997).
- [160] I. Pagonabarraga, M. H. J. Hagen, C. P. Lowe und D. Frenkel, „Algebraic decay of velocity fluctuations near a wall“, *Physical Review E* **58**, 7288–7295 (1998).
- [161] I. Pagonabarraga, M. H. J. Hagen, C. P. Lowe und D. Frenkel, „Short-time dynamics of colloidal suspensions in confined geometries“, *Physical Review E* **59**, 4458–4469 (1999).
- [162] B. U. Felderhof, „Effect of the wall on the velocity autocorrelation function and long-time tail of Brownian motion in a viscous compressible fluid“, *The Journal of Chemical Physics* **123**, 184903 (2005).
- [163] B. U. Felderhof, „Diffusion and velocity relaxation of a Brownian particle immersed in a viscous compressible fluid confined between two parallel plane walls“, *The Journal of Chemical Physics* **124**, 054111 (2006).
- [164] B. U. Felderhof, „Transient flow of a viscous compressible fluid in a circular tube after a sudden point impulse“, *Journal of Fluid Mechanics* **644**, 97–106 (2010).
- [165] L. Maffioli, E. R. Smith, J. P. Ewen, P. J. Daivis, D. Dini und B. D. Todd, „Slip and stress from low shear rate nonequilibrium molecular dynamics: The transient-time correlation function technique“, *The Journal of Chemical Physics* **156**, 184111 (2022).
- [166] V. P. Sokhan und N. Quirke, „Slip coefficient in nanoscale pore flow“, *Physical Review E* **78**, 015301 (2008).
- [167] A. Sam, R. Hartkamp, S. K. Kannam und S. P. Sathian, „Prediction of fluid slip in cylindrical nanopores using equilibrium molecular simulations“, *Nanotechnology* **29**, 485404 (2018).
- [168] G. P. Morriss und D. J. Evans, *Statistical Mechanics of Nonequilibrium Liquids* (ANU Press, Canberra, 2007).
- [169] B. D. Todd und P. J. Daivis, „Homogeneous non-equilibrium molecular dynamics simulations of viscous flow: techniques and applications“, *Molecular Simulation* **33**, 189–229 (2007).

- [170] J. Koplik, J. R. Banavar und J. F. Willemsen, „Molecular dynamics of Poiseuille flow and moving contact lines“, *Physical Review Letters* **60**, 1282–1285 (1988).
- [171] Z. Liang und H.-L. Tsai, „A method to generate pressure gradients for molecular simulation of pressure-driven flows in nanochannels“, *Microfluidics and Nanofluidics* **13**, 289–298 (2012).
- [172] S. E. Strong und J. D. Eaves, „The dynamics of water in porous two-dimensional crystals“, *The Journal of Physical Chemistry B* **121**, 189–207 (2017).
- [173] T. S. G. Olsson und M. Hartley, „Lightweight data management with dtool“, *PeerJ* **7**, e6562 (2019).
- [174] P. J. Daivis und D. J. Evans, „Comparison of constant pressure and constant volume nonequilibrium simulations of sheared model decane“, *The Journal of Chemical Physics* **100**, 541–547 (1994).