膨潤誘起座屈によって生じるダイヤモンドプレートパターンの有限要素解析

Finite element analysis of diamond plate pattern generated by swelling-induced buckling

○ 稲垣 貴裕 (名大院) 桑山 剛 (名大院) 正 奥村 大 (名大) 正 大野 信忠 (名大)

Takahiro INAGAKI, Tsuyoshi KUWAYAMA, Dai OKUMURA, and Nobutada OHNO,
Nagoya University, Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya 464-8603, Japan**Key Words:** Buckling, Swelling, Gels, Polymeric films, Instability, Finite element analysis

1. はじめに

高分子ゲル膜に膨潤(溶媒吸収による体積増加)誘起型の座屈を生じさせることによって、複雑かつ多彩な規則的パターンの創製が可能であることが観察されている。例えば、円孔を有する高分子ゲル膜には、膨潤によってダイヤモンドプレートパターンと呼ばれる特徴的な座屈パターンが現れるだけでなく、予負荷によって座屈パターンは変化する⁽¹⁾。したがって、このような現象の機構を解明するために、膨潤を考慮した固体力学的数値シミュレーションの必要性は非常に高いといえる。

膨潤は応力状態に依存して進展する現象であり、Hong ら⁽²⁾は、応力及び化学ポテンシャルのつり合いを考慮した解析を行うために、Flory-Rehner の自由エネルギーに対して、有限要素解析ソフトへの実装方法を示した。この研究では、主に実装方法の検証が行われており、適用性を示すために円孔を有するゲル膜の膨潤座屈問題が解析された。しかしながら、解析条件の詳細についてはほとんど述べられていない。また、実物の円孔ゲル膜⁽¹⁾は初期不整を必ず含むことから、膨潤座屈挙動に対する初期不整の影響を調べることは重要である。

そこで本研究では、Hong らの不均質場理論⁽²⁾を用いて、円孔を有する高分子ゲル膜に生じるダイヤモンドプレートパターンの有限要素解析を行う。解析では簡単のため、一般化平面ひずみ問題を考える。また、周期単位には 10×10 のユニットセル(図1参照)を考え、周期単位中に含まれる円孔の形状にランダムな初期不整を与え、パターン形成に初期不整の果たす役割について考察する。

2. 不均質場理論

Flory-Rehner の自由エネルギー W は、高分子の弾性エネルギー項とゲル材料を構成する高分子と溶媒分子の混合エネルギー項の和として、

Fig. 1 Initial configuration and finite element meshes for Random models R1-R10 (10x10 unit cells).

$$W = \frac{1}{2} NkT(I - 3 - 2\log J) - \frac{kT}{v} [\nu C \log(1 + 1/\nu C) + \chi / (1 + \nu C)] \quad (1)$$

と表される。ここで、 N, k, T はそれぞれ乾燥状態における単位体積当りの高分子鎖数、ボルツマン定数、絶対温度を表し、 ν, C, χ はそれぞれ溶媒1分子当りの体積、ゲル材料中での溶媒分子の濃度、高分子と溶媒の相互作用を表す無次元パラメータを表す。また、変形勾配を $F_{ij} (= \mathbf{F})$ と表すとき、 $I = F_{ij}F_{ij}$, $J = \det \mathbf{F}$ である。

Hong ら⁽²⁾は、式(1)にルジャンドル変換($\hat{W} = W - \mu C$)を行い、ゲル材料の体積変化を表す J とゲル材料中の溶媒分子の濃度を表す C を結び付ける関係式($1 + \nu C = J$)を用いて、自由エネルギーの変換形式

$$\hat{W}(\mathbf{F}, \mu) = \frac{1}{2} NkT(I - 3 - 2\log J) - \frac{kT}{v} \left[(J - 1) \log \frac{J}{J - 1} + \frac{\chi}{J} \right] - \frac{\mu}{v} (J - 1) \quad (2)$$

を導いた。ここで、 μ はゲル材料中の溶媒分子の化学ポテンシャルであり、つり合い状態では、外部の溶媒分子の化学ポテンシャル $\hat{\mu}$ と等しい値となる。 $\hat{\mu}$ の値は乾燥状態において $\hat{\mu} = -\infty$ あり、値を増加させるにしたがって、高分子中には溶媒が浸透していき、ゲル材料の膨潤は進行する。

式(2)の自由エネルギー $\hat{W}$ は、化学ポテンシャルを温度などの変数で置き換えれば、有限要素解析ソフトにおいて、超弾性体用のユーザーサブルーチンに実装することが可能である。したがって、本研究では、有限要素解析ソフト Abaqus に、Hong ら⁽²⁾の作成したユーザーサブルーチン UHYPER を組込んで解析を実施する。なお、乾燥状態では $\hat{\mu} = -\infty$ となり、初期値を設定できない。Hong らは、この問題を避けるために、初期状態として自由膨潤によって体積変化している状態($\mathbf{F}_0 = \lambda_0 \delta_{ij}$)を考えた。本研究でもこの方法を採用することとし、 $\lambda_0 = 1.01$ とする。詳細については文献⁽²⁾に詳しく述べられている。

3. 解析モデル

解析に用いる周期単位を図1に示す。すべての円孔は長径を $d_L = d(1 + \alpha)$ 、短径を $d_S = d(1 - \alpha)$ とするだ円であり、 $d = 1.5 \mu\text{m}$, $\alpha = 0.01$ とする。また、それぞれの円孔に対して、水平方向と長径方向の間の角度 θ_{ij} ($i = 1, 2, \dots, 10, j = 1, 2, \dots, 10$) をランダムに与える。ランダムさの影響を考慮するため、10パターンのランダムモデル R1-R10 をそれぞれ解析する。

実験⁽¹⁾に対応する境界条件を再現するため、周期単位境界上には周期境界条件を与え、面内の巨視的ひずみ成分を零に拘束する($\bar{H}_{11} = \bar{H}_{22} = \bar{H}_{12} = 0$)。また、要素分割には一般化平面ひずみ要素(CPEG8RH)を用い、化学ポテンシャルを初期値($\hat{\mu} < 0$)から順次増加させることによって溶媒の吸収プロセスを表すことにする。したがって、溶媒の吸収にとまない、

Fig. 2 Maximum macroscopic stresses for Random models R1-R10 (10x10 unit cells).

Fig. 3 Deformed configurations (displacement 2x) and normalized concentration distributions νC at unstable point; Random models (a) R8 and (b) R10 (10x10 unit cells).

巨視的ひずみの面外成分 $\bar{H}_{33} (\geq 0)$ 及び巨視的応力の面内成分 $\bar{S}_{11}, \bar{S}_{22} (\leq 0)$ がそれぞれ生じる。

本研究では、解析結果の定性的な検討を主目的とし、 NkT については応力を無次元化するために用い、 $N\nu = 10^{-3}$, $\chi = 0.1$ とした。どちらの値も溶媒分子にとって標準的な値である⁽²⁾。さらに、座屈パターンの進展を定量化するために、個々の円孔に対して、正円からのずれを表すスカラー値 Δ を次のように定義する。

$$\Delta = \min_{\mathbf{x}_0 \in \mathbf{x}} (r_{\max}(\mathbf{x}_0) - r_{\min}(\mathbf{x}_0)) \quad (3)$$

ここで、 $r_{\max}$ と $r_{\min}$ は着目する円孔の外接円及び内接円の半径を表し、点 $\mathbf{x}_0$ は $r_{\max} - r_{\min}$ を最小化する円の中心である。周期単位中のすべての円孔に対する平均値を $\bar{\Delta}$ と表すとき、座屈前までは $\bar{\Delta} \approx 0$ であり、座屈が始まると $\bar{\Delta} \gg 0$ となる。

4. 解析結果

図 2 には、ランダムモデル R1-R10 に対して、座屈によってパターン化が始まるときの最大応力値をそれぞれ示しており、破線 m1-m3 は試験計算として 2×2 周期単位で得られた結果である。モデル m2 の最大応力値はダイヤモンドプレートパターンが生じる応力値に対応しており、この図からわかるように、ランダムモデル R1-R10 の値はこの値とほとんど同じであることがわかる。このことは、すべてのランダムモデル R1-R10 がダイヤモンドプレートパターンへの変態を予測していることを示唆する。図 3 は、ランダムモデル R8 と R10 の変形状態及び溶媒分子の濃度分布（無次元量）を示しており、ダイヤモンドプレートパターンでの全体的な座屈の発生を確認することができる。そのほかのランダムパターンについても同様の結果であった。すなわち、ランダムな初期不整は、ダイヤモンドプレートパターンの発生を助ける役割を果たしていると考えられる。

Fig. 4 Deformation process finalizing the homogeneous transformation into the diamond plate pattern for Random models R10 (10x10 unit cells); (a) macroscopic stress as a function of the average deviation from roundness, and (b), (c) and (d) deformed configurations (displacement 2x) and normalized concentration distributions νC for states (i), (ii) and (iii), respectively.

このことを確かめるため、ランダムモデル R10 の変形過程を図 4 に示す。この図中の状態(i),(ii),(iii)における変形状態は図 4(b)-(d)にそれぞれ示すとおりであり、パターン化の開始初期段階（状態(i)）では、周期単位の両側面近傍において、局所的にダイヤモンドプレートパターンの発生が確認され、状態(ii),(iii)と進むにつれて、ダイヤモンドプレートパターンは周期単位の中心部にも伝ばしていることがわかる。しかも、図 4(a)からわかるように、この伝ばは応力レベルがほぼ一定の値で進展する。このため、図 3 の破線 m1 や m3 によって予測されるより高次の座屈パターンは局所的にも発生することはできず、結果として、周期単位内にはダイヤモンドプレートパターンでの均質なパターン化が生じる。この機構は、実験⁽¹⁾において、ダイヤモンドプレートパターンが現れる原因を説明することができ、ランダムな初期不整がダイヤモンドプレートパターンへの均質なパターン変化に対して重要な役割を果たしていることを示す結果である。

文 献

- (1) Zhang, Y., Matsumoto, E.A., Peter, A., Lin, P.C., Kamien, R.D., Yang, S., One-step nanoscale assembly of complex structures via harnessing of an elastic instability. *Nano Lett.* Vol.8 (2008), pp.1192-1196.
- (2) Hong, W., Liu, Z., Suo, Z., Inhomogeneous swelling of a gel in equilibrium with a solvent and mechanical load. *Int. J. Solids Struct.* Vol.46 (2009), pp.3282-3289.