球殻構造体分散系の粘弾性*

高 野 庸** 坂 西 明 郎***

The Viscoelasticity of the Disperse System of Spherical Shell Structures

by

Yo TAKANO

(Faculty of General Study, Gunma University, Maebashi)

and Akio SAKANISHI

(Faculty of Science, Tokyo University, Tokyo)

The bulk modulus κ^* and the rigidity μ^* of dilute dispersions of spherical shell structures have been calculated by using the following equations:

$$\kappa^* = \frac{Q - 4c\mu Q'}{Q + 3cQ'} \quad \text{and} \quad \frac{\mu^*}{\mu} = \frac{\Gamma - \frac{3}{2}c\Gamma'}{\Gamma + c\Gamma'}$$

where κ and μ are the bulk modulus and the rigidity of the medium, c is the volume concentration of the structures composed of the shell region with κ_m , μ_m and the inside region with κ' , μ' , $Q = (3\kappa' + 4\mu_m)(3\kappa_m + 4\mu) + 12A^3(\kappa' - \kappa_m)(\mu_m - \mu)$, $Q' = (\kappa - \kappa_m)(3\kappa' + 4\mu_m) - A^3(\kappa' - \kappa_m)(3\kappa + 4\mu_m)$, $\Gamma = \Gamma_A\mu_m^2 + \Gamma_B\mu_m\mu + \Gamma_C\mu^2$, $\Gamma' = \Gamma'_A\mu_m^2 + \Gamma'_B\mu_m\mu + \Gamma'_C\mu^2$, $\Gamma_A = -38\mu_2\mu_4 + (450 - 672A^2)A^3\mu_1\mu_4 + 400A^7\mu_1\mu_3 - 1824A^{10}\mu_1^2 = -\Gamma'_A$, $\Gamma_B = -89\mu_2\mu_4 + (150 - 336A^2)A^3\mu_1\mu_4 + 200A^7\mu_1\mu_3 + 3648A^{10}\mu_1^2$, $\Gamma'_B = -6\mu_2\mu_4 + (500 - 1344A^2)A^3\mu_1\mu_4 + 800A^7\mu_1\mu_3 - 608A^{10}\mu_1^2$, $\Gamma_C = -48\mu_2\mu_4 - (600 - 1008A^2)A^3\mu_1\mu_4 - 600A^7\mu_1\mu_3 - 1824A^{10}\mu_1^2 = 3/2\Gamma'_C$, $\mu_1 = \mu_m - \mu'$, $\mu_2 = 3\mu_m + 2\mu'$, $\mu_3 = 18\mu_m + 19\mu'$, $\mu_4 = 16\mu_m + 19\mu'$, $A = a'/a$, a and a' are the inner and the outer radii of the shell, respectively.

(Received Jan. 13, 1973)

1 緒 言

複合材料・複合体のレオロジーは今後の産業材料の発展方向として重要視されているように思われる。なかんずく、マイクロカプセルは球殻構造という単純なカプセル構造のもとに、様々な機能を有する複合体として幅広い分野に利用されている。その球殻構造体のレオロジカルな性質は、たとえばカーボンレス複写紙・医薬品・人工赤血球等々の使用例から推察されるように、直接その機能に関係する。一方、生体における最も簡単な細胞は自然界のマイクロカプセルともいふべきものである。このようなミクロな球殻構造体は、現実には広い意味で分散状態で存在することが多い。さきにわれわれは球殻構造体分散系の粘弾性定数を Oldroyd の方法²⁾にならって計算した。^{3,4)} その際、剛性率の導出にあたっては、球殻の厚みが球殻構造体の半径に比べて充分薄いと見た。ここでは任意の厚みの球

殻について分散系の体積弾性率と剛性率を計算した結果を述べる。

2 理 論

2.1 モデルと計算法

媒質および分散粒子が粘弾性体の場合、希薄な分散系の粘弾性定数は分散粒子が均一な球の場合について Oldroyd らにより求められている。⁵⁾ (岡野の解説を参照されたい。) われわれの取り扱う球殻構造体の場合には、Oldroyd の方法と全く同様に考え、ただ境界条件を均一な球の場合より一つ多くして解けばよいと考えられる。希薄で粒子間の相互作用が無視される場合には、結局一粒子問題に帰着され、次のような仮定のもとにこの問題を解くことになる。

(1) 媒質および球殻、球殻の内側の物質は一樣な等方性線型粘弾性体で、非線型効果はないものとする。

(2) 球殻構造体の体積分率は充分小さく、粒子間の相互作用は無視する。

(3) 媒質と球殻、球殻と球殻の内側の物質との境界

* 原稿受理 昭和48年1月13日

** 群馬大学教養部 前橋市荒牧町

*** 東京大学理学部 東京都文京区本郷

面における応力と変位の各成分は連続とする。

(4) 熱伝導、構成物質の拡散などの輸送現象は無いものとする。

Oldroyd によれば線型粘弾性体の問題は、弾性体論における応力-ひずみ関係において、剛性率 μ を粘性率 η によって

$$\mu = \eta \Delta \quad \left(\Delta = \frac{d}{dt} \right) \quad (1)$$

と置き換えると流体力学の粘性応力テンソルが得られることなどを考え合わせると、形式的には線型弾性体の問題を解くことになる。

連続物体の力学のつりあいの式は、変位を u_i 、応力を σ_{ij} 、密度を ρ として、

$$\rho \frac{d^2 u_i}{dt^2} = \sum_j \frac{\partial \sigma_{ji}}{\partial x_j} = 0 \quad (2)$$

で与えられる。また、応力-ひずみ関係は、 κ を体積弾性率、 $\lambda = \kappa - 2\mu/3$ として、

$$\begin{aligned} \sigma_{ij} &= 2\mu \left(\gamma_{ij} - \frac{1}{3} \gamma \delta_{ij} \right) + \kappa \gamma \delta_{ij} \\ &= 2\mu \gamma_{ij} + \lambda \gamma \delta_{ij} \end{aligned} \quad (3)$$

ただし、

$$\gamma_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right), \quad \gamma = \gamma_{11} + \gamma_{22} + \gamma_{33} \quad (4)$$

これらの式を極座標で書けば、($x_1 = r \cos \theta$, $x_2 = r \sin \theta \cos \varphi$, $x_3 = r \sin \theta \sin \varphi$)

$$\begin{aligned} \rho \frac{\partial^2 u_r}{\partial t^2} &= \frac{\partial \sigma_{rr}}{\partial r} + \frac{1}{r} \frac{\partial \sigma_{r\theta}}{\partial \theta} + \frac{1}{r} (2\sigma_{r\varphi} - \sigma_{\theta\theta} - \sigma_{\varphi\varphi}) \\ &\quad + \frac{1}{r} \cot \theta \cdot \sigma_{r\theta} = 0 \end{aligned} \quad (5)$$

$$\begin{aligned} \rho \frac{\partial^2 u_\theta}{\partial t^2} &= \frac{\partial \sigma_{r\theta}}{\partial r} + \frac{1}{r} \frac{\partial \sigma_{\theta\theta}}{\partial \theta} + \frac{1}{r} [3\sigma_{r\varphi} \\ &\quad + \cot \theta \cdot (\sigma_{\theta\theta} - \sigma_{\varphi\varphi})] = 0 \end{aligned} \quad (6)$$

$$\sigma_{i\varphi} = 2\mu \gamma_{i\varphi} + \lambda \gamma \delta_{i\varphi} \quad (7)$$

$$\left. \begin{aligned} \gamma_{rr} &= \frac{\partial u_r}{\partial r}, \quad \gamma_{\theta\theta} = \frac{u_r}{r} + \frac{1}{r} \frac{\partial u_\theta}{\partial \theta}, \\ \gamma_{\varphi\varphi} &= \frac{u_r}{r} + \frac{u_\theta}{r} \cot \theta, \\ \gamma_{r\theta} &= \frac{1}{2} \left[\frac{1}{r} \frac{\partial u_r}{\partial \theta} + r \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{u_\theta}{r} \right) \right] \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

$$\gamma = \frac{1}{r^2} \frac{\partial(r^2 u_r)}{\partial r} + \frac{1}{r \sin \theta} \frac{\partial(u_\theta \sin \theta)}{\partial \theta} \quad (9)$$

ただし、後に系にかかる外力による解の対称性を考慮した。(5)~(9)式より次式が得られる。

$$\begin{aligned} \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial u_r}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2 \sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left[\sin \theta \left(\frac{\partial u_r}{\partial \theta} - 2u_\theta \right) \right] \\ - \frac{2u_r}{r^2} = - \frac{\lambda + \mu}{\mu} \frac{\partial \gamma}{\partial r} \end{aligned} \quad (10)$$

$$\begin{aligned} \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial u_\theta}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2 \sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\sin \theta \frac{\partial u_\theta}{\partial \theta} \right) \\ + \frac{2}{r^2} \frac{\partial u_r}{\partial \theta} - \frac{u_\theta}{r^2 \sin^2 \theta} = - \frac{\lambda + \mu}{\mu} \frac{1}{r} \frac{\partial \gamma}{\partial \theta} \end{aligned} \quad (11)$$

前述したように希薄分散系では一粒子問題に帰着されることを考慮して、実際に計算を行なう上でのモデルを Fig. 1 に示す。すなわち、同心球で囲まれた領域を中心より順番に、球殻の内側の物質 $S'(r < a')$ 、球殻部分 $S_m(a' < r < a)$ 、媒質 $S(a < r < b)$ とする。(これらを複合系と名づける) その際、球殻構造体から充分離れた点における変位が、その点で同一の応力を与える見掛けの粘弾性定数 κ^* , μ^* をもった一様な線型粘弾性体 S^* (これを一様な系と名づける) のそれに等しくなければならないとする^{*1}。この条件から κ^* , μ^* の決定を行なう。S において(1)~(11)式が成立するが対応する同様の式が、 κ , μ または η にダッシュ、m, * を付けることにより、それぞれ S' , S_m , S^* において成立する。

Fig. 1. Disperse system of spherical shell structures consisting of an inside region ($r < a'$) with bulk modulus κ' , rigidity μ' (or viscosity η'), a shell region ($a' < r < a$) with κ_m , μ_m , a medium ($a < r < b$) with κ , μ (or η), and a continuum ($b < r$) equivalent to the macroscopic disperse system with κ^* , μ^* (or η^*); b determined from the volume concentration $c = (a/b)^3$.

2.2 体積変化と境界条件

系に次のような外力を加える。

$$\mathbf{P} = \begin{pmatrix} -P & 0 & 0 \\ 0 & -P & 0 \\ 0 & 0 & -P \end{pmatrix} \quad (12)$$

一様な等価な系 S^* において、 r の大きなところで ($r = R \gg b$)、応力を(12)より極座標で表わすと、

$$\sigma_{rr} = \sigma_{\theta\theta} = \sigma_{\varphi\varphi} = -P, \quad \sigma_{r\theta} = \sigma_{r\varphi} = \sigma_{\theta\varphi} = 0 \quad (13)$$

対応する変位は

$$u_r = -\frac{Pr}{3\kappa^*}, \quad u_\theta = 0 \quad (14)$$

である。また球殻構造体を含む複合系における応力と変位は、領域 S で

$$\sigma_{rr} = 3\alpha\kappa - 4\mu\beta r^{-3}, \quad \sigma_{\theta\theta} = 3\alpha\kappa + 2\mu\beta r^{-3} \quad (15)$$

$$u_r = \alpha r + \beta r^{-2}, \quad u_\theta = 0 \quad (16)$$

*1 このような方法は最初に Fröhlich-Sack⁹⁾ により用いられた。

となり, $\alpha, \beta, \kappa, \mu$ にダッシュ, $m, *$ を付けた式がそれぞれ S', S_m, S^* で成立する. ただし後の計算に必要な成分のみを記してある. 変位と応力の連続の条件は, 境界で σ_{rr} と u_r が不連続でないということである. $r=a'$ で

$$\alpha' = \alpha_m + a'^{-3}\beta_m \quad (17)$$

$$3\kappa'\alpha' = 3\kappa_m\alpha_m - 4\mu_m a'^{-3}\beta_m \quad (18)$$

$r=a$ で

$$\alpha_m + a^{-3}\beta_m = \alpha + a^{-3}\beta \quad (19)$$

$$3\kappa_m\alpha_m - 4\mu_m a^{-3}\beta_m = 3\kappa\alpha - 4\mu a^{-3}\beta \quad (20)$$

$r=b$ で

$$\alpha + b^{-3}\beta = \alpha^* + b^{-3}\beta^* \quad (21)$$

$$3\kappa\alpha - 4\mu b^{-3}\beta = 3\kappa^*\alpha^* - 4\mu^* b^{-3}\beta^* \quad (22)$$

また複合系は, 巨視的には一様な系と等価でなければならないから, 充分大きな $r(R \gg b)$ に対して次の関係が成立する.

$$\alpha^* + R^{-3}\beta^* = -\frac{P}{3\kappa^*} \quad (23)$$

$$3\kappa^*\alpha^* - 4\mu^* R^{-3}\beta^* = -P \quad (24)$$

$$3\kappa^*\alpha^* + 2\mu^* R^{-3}\beta^* = -P \quad (25)$$

2.3 ずり変形と境界条件

簡単のため系は非圧縮性とする. 取り扱いには 2.2 の場合と同様である. 次のような外力を系に加える.

$$P = \begin{pmatrix} 2T & 0 & 0 \\ 0 & -T & 0 \\ 0 & 0 & -T \end{pmatrix} \quad (26)$$

S^* において $r=R$ で, 応力は極座標を用いて,

$$\left. \begin{aligned} \sigma_{rr} &= T(3\cos^2\theta - 1), \quad \sigma_{\theta\theta} = T(2 - 3\cos^2\theta) \\ \sigma_{\varphi\varphi} &= -T, \quad \sigma_{\theta\varphi} = \sigma_{\varphi r} = 0, \quad \sigma_{r\theta} = -3T\cos\theta\sin\theta \end{aligned} \right\} \quad (27)$$

対応する変位は,

$$u_r = \frac{1}{2\mu^*} Tr(3\cos^2\theta - 1), \quad u_\theta = -\frac{3}{2\mu^*} Tr\sin\theta\cos\theta \quad (28)$$

複合系における応力と変位は, S において

$$\sigma_{rr} = \mu \left(-\frac{1}{7} Ar^2 - 3Br^{-3} + 4C + 24Dr^{-5} \right) \times \left(\frac{3}{2} \cos^2\theta - \frac{1}{2} \right) \quad (29)$$

$$\sigma_{r\theta} = -\mu \left(\frac{8}{7} Ar^2 + \frac{3}{2} Br^{-3} + 6C - 24Dr^{-5} \right) \times \sin\theta\cos\theta \quad (30)$$

$$u_r = \left(\frac{1}{7} Ar^3 + \frac{1}{2} Br^{-2} + 2Cr - 3Dr^{-4} \right) \times \left(\frac{3}{2} \cos^2\theta - \frac{1}{2} \right) \quad (31)$$

$$u_\theta = -\left(\frac{5}{14} Ar^3 + 3Cr + 3Dr^{-4} \right) \sin\theta\cos\theta \quad (32)$$

A, B, C, D, μ にダッシュ, $m, *$ を付けることにより, それぞれ S', S_m, S^* において同様の式が成立する. 応力と変位の連続の条件が, S' と S_m の境

界 ($r=a'$), S_m と S の境界 ($r=a$), S と S^* の境界 ($r=b$) および S^* における $r=R$ で与えられる.

3. 結 果

3.1 体積弾性率

(17)~(25)式より α, β などを消去すると κ^* が求まる.

$$\kappa^* = \frac{\kappa Q - 4c\mu Q'}{Q + 3cQ'}$$

$$Q = (3\kappa' + 4\mu_m)(3\kappa_m + 4\mu) + 12A^3(\kappa' - \kappa_m)(\mu_m - \mu)$$

$$Q' = (\kappa - \kappa_m)(3\kappa' + 4\mu_m) - A^3(\kappa' - \kappa_m)(3\kappa + 4\mu_m)$$

ここで, $A=a'/a$, c は分散粒子の体積濃度である.

3.2 剛性率

2.3 の境界条件より A, B, C, D などを消去し, μ^* が次のように求まる.

$$\frac{\mu^*}{\mu} = \frac{\Gamma - (3/2)c\Gamma'}{\Gamma + c\Gamma'}$$

ここに,

$$\Gamma = \Gamma_A \mu_m^2 + \Gamma_B \mu_m \mu + \Gamma_C \mu^2$$

$$\Gamma' = \Gamma_A' \mu_m^2 + \Gamma_B' \mu_m \mu + \Gamma_C' \mu^2$$

$$\Gamma_A = -38\mu_2\mu_4 + (450 - 672A^2)A^3\mu_1\mu_4$$

$$+ 400A^7\mu_1\mu_3 - 1824A^{10}\mu_1^2$$

$$\Gamma_B = -89\mu_2\mu_4 + (150 - 336A^2)A^3\mu_1\mu_4$$

$$+ 200A^7\mu_1\mu_3 + 3648A^{10}\mu_1^2$$

$$\Gamma_C = -48\mu_2\mu_4 - (600 - 1008A^2)A^3\mu_1\mu_4$$

$$- 600A^7\mu_1\mu_3 - 1824A^{10}\mu_1^2$$

$$\Gamma_A' = -\Gamma_A$$

$$\Gamma_B' = -6\mu_2\mu_4 + (500 - 1344A^2)A^3\mu_1\mu_4$$

$$+ 800A^7\mu_1\mu_3 - 608A^{10}\mu_1^2$$

$$\Gamma_C' = \frac{2}{3}\Gamma_C$$

ただし,

$$\mu_1 = \mu_m - \mu', \quad \mu_2 = 3\mu_m + 2\mu', \quad \mu_3 = 18\mu_m + 19\mu'$$

$$\mu_4 = 16\mu_m + 19\mu', \quad A = a'/a$$

(昭和47年10月16日 第20回レオロジー討論会にて講演)

参 考 文 献

- 1) 吉海俊彦, 表面, 6, 547 (1968).
- 2) Oldroyd, J.G., "Deformation and Flow of Solids.", p.304 (1956) ed. by R. Gammell, IUTAM Colloquium, Madrid, Springer.
- 3) Takano, Y., and A. Sakanishi, J. Phys. Soc. Japan, 32, 582 (1972).
- 4) Sakanishi, A., and Y. Takano, J. Phys. Soc. Japan, 32, 1160 (1972).
- 5) 岡野光治, 応用物理, 36, 1003 (1967).
- 6) Fröhlich, H., and R. Sack, Proc. Roy. Soc., A185, 415(1946).