高分子系複合材料の制振特性のマイクロメカニクス解析*

荒 木 栄 敏^{*1}, 山 下 浩 儀^{*2}
水 谷 直 弘^{*3}, 杉 本 明 男^{*4}Micromechanical Analysis of Vibration Damping Properties
of A Polymer Based Composite MaterialShigetoshi ARAKI^{*5}, Hironori YAMASHITA,
Naohiro MIZUTANI and Akio SUGIMOTO^{*5} Department of Mechanical and System Engineering, Kyoto Institute of Technology,
Matsugasaki, Sakyo-ku, Kyoto-shi, Kyoto, 606-8585 Japan

A tangent delta of a polymeric material, which influences the vibration damping capacity strongly, is high in value nearby the glass transition temperature of the material. Therefore, when the constituents of a polymer-based composite material are various in their glass transition temperatures, the magnitude of the macroscopic tangent delta of such a composite is expected to be high in wider range in temperature. In the present study, a shape memory polymer (SMP) particle/SMP matrix is used as a sample material and its macroscopic complex modulus and tangent delta are derived explicitly by using the equivalent inclusion method and the Mori-Tanaka's theorem. For the case of a four mode type of distribution of the glass transition temperatures of particles, the value of the macroscopic tangent delta becomes higher than that of the monolithic SMP at any temperature and it becomes constant in the temperature range from 20°C to 60°C.

Key Words: Equivalent Inclusion Method, Tangent Delta, Shape Memory Polymer, Glass Transition Temperature, Polymer Based Composite

1. 結 言

高分子材料の制振特性を支配するタンジェントデルタはガラス転移点近傍において大きく増加するという性質がある。この性質を利用して、ガラス転移点異なる材料を複合化することで広い温度範囲で制振特性に優れた材料が創製できるといわれている。タンジェントデルタは複素弾性率の実部と虚部の比⁽¹⁾であることから、このような材料を創製するには、構成要素の複素弾性率や形状、含有率等を含む形で複合材料全体の巨視的な複素弾性率を求めることが必要となる。

複合材料の巨視的な力学特性を解析する有力な手法の一つであるマイクロメカニクス⁽²⁾は、材料中の強化基材の形状や含有量などを陽に含む解が得られるという特徴を有するものであり、複合材料の弾性特性、特に、巨視的弾性係数に関する研究は枚挙にいとまが

ない^{(3)~(10)}。しかしながら、粘弾性特性についてはわずかに Taya らの空孔成長モデルの解析⁽¹⁾などが行われているだけで、制振特性に関するものは著者の知る限りほとんど行われていないようである。

線形粘弾性体における応力-ひずみ関係式は、通常、線形常微分方程式で表されるため、定常振動入力に対する定常応答の範囲であれば、結局、代数方程式に帰着することになり、形式的に線形弾性のものと一致する⁽¹⁾。したがって、複合材料の巨視的弾性係数の解に含まれる構成要素の弾性定数を複素弾性率で置換えることによって巨視的な複素弾性率を求めることができる。本研究は、このような手法を用いて、ガラス転移点が-30~70°Cの範囲で比較的自由に設定できるという特徴を有するポリウレタン系の形状記憶ポリマ(SMP)⁽¹²⁾⁽¹³⁾から成る複合材料を取り上げ、種々のガラス転移点を有するポリマ粒子が母材中に多数存在する状態をモデル化し、モデルの制振特性が温度によってどのように変化するかを明らかにする。これによって、広い温度範囲で良好な制振特性を示す高分子系複合材料開発の可能性を探ることを目的とする。

2. 線形粘弾性体の力学挙動

2.1 線形粘弾性体の複素弾性率⁽¹⁾ 線形粘弾性

* 原稿受付 2003 年 9 月 11 日。

^{*1} 正員, 京都工芸繊維大学工学部(〒606-8585 京都市左京区松ヶ崎御所海道町)。^{*2} 正員, 京都工芸繊維大学大学院[現, 三菱電機(株)]。^{*3} 京都大学大学院エネルギー科学研究科(〒606-8501 京都市左京区吉田本町)。^{*4} 正員, (株)神戸製鋼所(〒651-2271 神戸市西区高塚台 1-5-5)。

E-mail: araki@mech.kit.ac.jp

体に, 振幅 σ_0 , 角振動数 ω の振動応力,

$$\sigma^c(t) = \sigma_0 \exp(i\omega t) \quad \cdots \cdots (1)$$

が作用し, 十分時間 t が経過して定常応答している状態を想定する。ここで上付添字 c は複素量を表し, $i = \sqrt{-1}$ である。このとき, 定常ひずみ応答 $\varepsilon^c(t)$ は, 複素コンプライアンス $D^c(\omega)$ を用いて,

$$\varepsilon^c(t) = D^c(\omega) \sigma^c(t) \quad \cdots \cdots (2)$$

となる。また, ひずみ入力 $\varepsilon^c(t) = \varepsilon_0 \exp(i\omega t)$ に対する応力応答 $\sigma^c(t)$ は, 複素弾性率 $E^c(\omega)$ を用いて,

$$\sigma^c(t) = E^c(\omega) \varepsilon^c(t) \quad \cdots \cdots (3)$$

で与えられる。 $E^c(\omega)$ と $D^c(\omega)$ との間には, $E^c(\omega) \cdot D^c(\omega) = 1$ なる関係が成立する。また, 複素量の実部と虚部を上付添字 ' $'$ ' と ' $'$ ' を用いて区分すると, 複素弾性係数は $E^c(\omega) = E'(\omega) + iE''(\omega)$, 複素コンプライアンスは $D^c(\omega) = D'(\omega) - iD''(\omega)$ となる。このとき, タンジェントデルタ $\tan \delta$ は,

$$\tan \delta = \frac{E''(\omega)}{E'(\omega)} = \frac{D''(\omega)}{D'(\omega)} \quad \cdots \cdots (4)$$

で定義され, これを用いて式(2)を書換えると,

$$\varepsilon(t) = D'(\omega) \sigma_0 \{\cos \omega t + \tan \delta \sin \omega t\} \quad \cdots \cdots (5)$$

となる。式(5)より, $\tan \delta = 0$ のときには $\varepsilon(t) = D'(\omega) \sigma(t)$ となるため, $D'(\omega)$ は線形弾性問題における弾性コンプライアンスに相当することがわかる。次に, 1周期の間になされる単位体積当たりの損失仕事 W_σ を求める。式(1), (5)と式(4)より,

$$W_\sigma = \int_0^{2\pi/\omega} \sigma(t) d\varepsilon(t) = \pi \sigma_0^2 D''(\omega) \quad \cdots \cdots (6 \cdot a)$$

となる。また, 同様にしてひずみ入力の場合の損失仕事 W_ε は,

$$W_\varepsilon = \pi \varepsilon_0^2 E''(\omega) \quad \cdots \cdots (6 \cdot b)$$

となる。したがって, $E''(\omega)$ と $D''(\omega)$ は損失仕事を表すことがわかる。

Fig. 1 Hysteresis loop to sine wave excitation

2・2 線形粘弾性体のヒステリシスループ 式

(1)と式(5)より $\sin \omega t$ と $\cos \omega t$ とを消去すると,

$$\frac{\varepsilon(t)}{D' \sigma_0} = \frac{\sigma(t)}{\sigma_0} \pm \tan \delta \sqrt{1 - \left\{ \frac{\sigma(t)}{\sigma_0} \right\}^2} \quad \cdots \cdots (7 \cdot a)$$

となる。同様にして, ひずみ入力の場合には,

$$\frac{\sigma(t)}{E' \varepsilon_0} = \frac{\varepsilon(t)}{\varepsilon_0} \pm \tan \delta \sqrt{1 - \left\{ \frac{\varepsilon(t)}{\varepsilon_0} \right\}^2} \quad \cdots \cdots (7 \cdot b)$$

となる。図1に, 式(7・a)を用いて求めた $\sigma(t)/\sigma_0$ と $\varepsilon(t)/(D' \sigma_0)$ の関係を示す。図中のだ円の面積を S , アスペクト比を k , 傾き角を θ , 応答振幅を d とおくと, これらはそれぞれ,

$$S = \pi \tan \delta \quad \cdots \cdots (8 \cdot a)$$

$$k = \frac{2 \tan \delta}{(2 + \tan^2 \delta) - \sqrt{4 + \tan^4 \delta}} \quad \cdots \cdots (8 \cdot b)$$

$$\theta = \frac{1}{2} \tan^{-1} \left(\frac{2}{\tan^2 \delta} \right) \quad \cdots \cdots (8 \cdot c)$$

$$d = \sqrt{1 + \tan^2 \delta} \quad \cdots \cdots (8 \cdot d)$$

となる。したがって, この粘弾性体の制振特性を表すヒステリシスだ円の形状は, $\tan \delta$ によって一意的に表されることがわかる。また, 式(4)の関係から, 式(6・a)の損失仕事 W_σ はこのだ円で囲まれる領域の仕事を表していることがわかる。

2・3 線形粘弾性体の等価式

線形粘弾性体の構成式は, 粘弾性体に生じる応力とひずみをそれぞれ $\sigma(t)$, $\varepsilon(t)$ とおくと, 一次元の場合には一般的に,

$$P(D) \sigma(t) = Q(D) \varepsilon(t) \quad \cdots \cdots (9)$$

と書くことができる。ここで $D \equiv \partial/\partial t$ であり,

$$P(D) = \sum_{k=0}^m a_k D^k = \sum_{k=0}^m a_k \frac{\partial^k}{\partial t^k} \quad \cdots \cdots (10 \cdot a)$$

$$Q(D) = \sum_{k=0}^n b_k D^k = \sum_{k=0}^n b_k \frac{\partial^k}{\partial t^k} \quad \cdots \cdots (10 \cdot b)$$

である。いま, このような構成関係を有する無限体 D 中のだ円体部分領域 Ω 内に, 振幅 ε_{ij}^* を有する固有ひずみ,

$$\varepsilon_{ij}^*(t) = \bar{\varepsilon}_{ij}^* \exp(i\omega t) \quad \cdots \cdots (11)$$

が存在する場合, この介在物領域 Ω 内の応力 σ_{ij} -ひずみ ε_{ij} 関係式は,

$$P_1(D) \sigma'_{ij}(t) = Q_1(D) \{ \varepsilon'_{ij}(t) - \varepsilon_{ij}^*(t) \} \quad \cdots \cdots (12 \cdot a)$$

$$P_2(D) \sigma_{kk}(t) = Q_2(D) \{ \varepsilon_{kk}(t) - \varepsilon_{kk}^*(t) \} \quad \cdots \cdots (12 \cdot b)$$

となる。ここで $P_i(D)$, $Q_i(D)$ は, 式(10)と同様に $D \equiv \partial/\partial t$ の関数である。また, 上付添字 ' $'$ ' は偏差成分を表す。次に, 母材とは異なる線形粘弾性特性 $P_i^*(D)$, $Q_i^*(D)$ を有する不均質物 Ω が含まれる状態を考える。このとき, Ω 内の応力-ひずみ関係式は,

$$P_1^*(D) \sigma'_{ij}(t) = Q_1^*(D) \varepsilon'_{ij}(t) \quad \cdots \cdots (13 \cdot a)$$

$$P_2^*(D) \sigma_{kk}(t) = Q_2^*(D) \varepsilon_{kk}(t) \quad \cdots \cdots (13 \cdot b)$$

となる。式(12)と式(13)を等置し, $\exp(i\omega t)$ で両辺

を除すと、線形粘弾性不均質物 Ω の等価式は、

$$\frac{Q_1^*(i\omega)}{P_1^*(i\omega)}(\bar{\varepsilon}_{ij}^0 + \bar{\varepsilon}_{ij}') = \frac{Q_1(i\omega)}{P_1(i\omega)}(\bar{\varepsilon}_{ij}^0 + \bar{\varepsilon}_{ij}' - \bar{\varepsilon}_{ij}^*) \quad \dots\dots\dots (14 \cdot a)$$

$$\frac{Q_2^*(i\omega)}{P_2^*(i\omega)}(\bar{\varepsilon}_{kk}^0 + \bar{\varepsilon}_{kk}') = \frac{Q_2(i\omega)}{P_2(i\omega)}(\bar{\varepsilon}_{kk}^0 + \bar{\varepsilon}_{kk}' - \bar{\varepsilon}_{kk}^*) \quad \dots\dots\dots (14 \cdot b)$$

となる。ここで $\bar{\varepsilon}_{ij}^0$ などの上線の付いたものはそれぞれの振幅を表す。

一方、線形弾性不均質物の等価式は、

$$2\mu^*(\bar{\varepsilon}_{ij}^0 + \bar{\varepsilon}_{ij}') = 2\mu(\bar{\varepsilon}_{ij}^0 + \bar{\varepsilon}_{ij}' - \bar{\varepsilon}_{ij}^*) \quad \dots\dots\dots (15 \cdot a)$$

$$3K^*(\bar{\varepsilon}_{kk}^0 + \bar{\varepsilon}_{kk}') = 3K(\bar{\varepsilon}_{kk}^0 + \bar{\varepsilon}_{kk}' - \bar{\varepsilon}_{kk}^*) \quad \dots\dots\dots (15 \cdot b)$$

となる⁽²⁾。ここで、 μ と K は母材の剛性率と体積弾性係数、 μ^* と K^* は不均質物の剛性率と体積弾性係数である。また、Eshelby の解より $\bar{\varepsilon}_{ij}$ は、

$$\bar{\varepsilon}_{ij} = S_{ijkl}\bar{\varepsilon}_{kl}^* \quad \dots\dots\dots (16)$$

で与えられる。ここで S_{ijkl} は不均質物の Eshelby テンソル⁽²⁾である。

式(14)と式(15)を比較すると、

$$2\mu^* = \frac{Q_1^*(i\omega)}{P_1^*(i\omega)}, \quad 2\mu = \frac{Q_1(i\omega)}{P_1(i\omega)} \quad \dots\dots\dots (17 \cdot a)$$

$$3K^* = \frac{Q_2^*(i\omega)}{P_2^*(i\omega)}, \quad 3K = \frac{Q_2(i\omega)}{P_2(i\omega)} \quad \dots\dots\dots (17 \cdot b)$$

なる対応関係が成り立つ。これらの結果より、線形粘弾性体の等価式は線形弾性体に対する等価式の弾性係数を複素量に置換えたものとなることがわかる。したがって、線形粘弾性体からなる複合材料の巨視的複素弾性率を求めるには、これに対応する線形弾性体からなる複合材料の巨視的弾性係数を求め、それに含まれる構成要素の弾性定数を複素弾性率で置換えればよいことがわかる。このような手順を用いて以下の解析を進めることにする。

Fig. 2 Elastic model for a SMP Particle reinforced SMP Composite

3. 高分子系複合材料のモデル化と解析

3.1 幾何学的モデル化

高分子系複合材料のモデルとしては、 $-30 \sim 70^\circ\text{C}$ の間でガラス転移点と比較的自由に設定できるという特徴を有するポリウレタン系の形状記憶ポリマ(SMP)⁽¹²⁾⁽¹³⁾からなる複合材料を想定する。図2はSMP母材 D 中に種々のガラス転移点を有するSMP粒子が完全にランダムに存在する状態を示したものであり、そのガラス転移点の値によって、ガラス状態、ゴム状態およびそれらの中間の遷移状態にある粒子が混在している。これらの粒子はそのガラス転移点によって区別され、各領域を $\Omega(i)$ と表すことにする。また、すべてのSMP粒子の長手方向は図の x_3 軸方向に一致し、 x_1 - x_2 面内で対称な回転だ円体形状とする。すなわち、 i 番めの粒子に対して、長径を $a_3(i)$ 、短径を $a_1(i)$ とすると、

$$\left\{ \frac{x_1}{a_1(i)} \right\}^2 + \left\{ \frac{x_2}{a_1(i)} \right\}^2 + \left\{ \frac{x_3}{a_3(i)} \right\}^2 \leq 1 \quad \dots\dots\dots (18)$$

なる形状とする。粒子のEshelbyテンソルは、その大きさではなくアスペクト比に依存するため、 x_1 - x_2 面内の短径に対する x_3 方向の長径の比をアスペクト比 $\omega(i) = a_3(i)/a_1(i)$ と定める。また、 D には作用せん断応力 σ_{23}^0 と σ_{32}^0 が作用するものとする。

3.2 巨視的剛性率の解析

3.2.1 粒子の等価固有ひずみ 粒子の等価式は、 $\Omega(i)$ 内で、

$$\begin{aligned} \sigma_{ij}^0 + \bar{\sigma}_{ij} + \sigma_{ij}^*(i) \\ = C_{ijk}^*(i)\{\varepsilon_{kl}^0 + \bar{\varepsilon}_{kl} + S_{klmn}(i)\varepsilon_{mn}^*(i)\} \\ = C_{ijkl}\{\varepsilon_{kl}^0 + \bar{\varepsilon}_{kl} + S_{klmn}(i)\varepsilon_{mn}^*(i) - \varepsilon_{kl}^*(i)\} \end{aligned} \quad \dots\dots\dots (19)$$

となる。ここで C_{ijkl} と $C_{ijk}^*(i)$ は、それぞれ母材と $\Omega(i)$ 粒子の弾性定数であり、 $S_{ijkl}(i)$ は $\Omega(i)$ のEshelbyテンソルである。また、 $\varepsilon_{kl}^*(i)$ は母材と $\Omega(i)$ の弾性定数の違いを代行する等価固有ひずみ、 $\sigma_{ij}^0(i)$ は固有応力である。 σ_{ij}^0 と ε_{ij}^0 は作用応力と作用ひずみ、 $\bar{\sigma}_{ij}$ と $\bar{\varepsilon}_{ij}$ は相互作用場であり、これらの間に、

$$\sigma_{ij}^0 = G_{ijkl}\varepsilon_{kl}^0, \quad \bar{\sigma}_{ij} = C_{ijkl}\bar{\varepsilon}_{kl} \quad \dots\dots\dots (20)$$

なる関係がある。

等価式(19)をせん断成分についてのみ書き直し、作用応力の対称性 $\sigma_{23}^0 = \sigma_{32}^0$ と固有ひずみの対称条件 $\varepsilon_{23}^*(i) = \varepsilon_{32}^*(i)$ を用いると、

$$\begin{aligned} 2\mu^*(i)\{\varepsilon_{23}^0 + \bar{\varepsilon}_{23} + 2S_{2323}(i)\varepsilon_{23}^*(i)\} \\ = 2\mu\{\varepsilon_{23}^0 + \bar{\varepsilon}_{23} + 2S_{2323}(i)\varepsilon_{23}^*(i) - \varepsilon_{23}^*(i)\} \dots\dots\dots (21) \end{aligned}$$

となる。ここで μ と $\mu^*(i)$ は母材と $\Omega(i)$ の剛性率である。また、Eshelbyテンソル $S_{2323}(i)$ は、だ円体 $\Omega(i)$ の形状にかかわらず、

$$S_{2323}(i) = \frac{(1-\nu) + (1+\nu)H_3^s(i) + 2H_{31}^s(i)}{4(1-\nu)} \dots (22)$$

となる⁽¹⁴⁾。ここで、 ν は母材のポアソン比であり、 $H_3^s(i)$ と $H_{31}^s(i)$ は、著者らが求めた回転だ円体に対する Eshelby テンソルの形状因子⁽¹⁴⁾である。式(22)を等価式(21)に代入すると、等価固有ひずみ $\varepsilon_{23}^*(i)$ は、

$$\varepsilon_{23}^*(i) = -A(i)(\varepsilon_{23}^0 + \bar{\varepsilon}_{23}) \dots (23)$$

となる。ここで、

$$A(i) = \frac{g(i)-1}{2\{g(i)-1\}S_{2323}(i)+1} \dots (24\cdot a)$$

$$g(i) = \frac{\mu^*(i)}{\mu} \dots (24\cdot b)$$

である。また、式(19)と式(20)より固有応力 $\sigma_{ij}^0(i)$ は次式となる。

$$\sigma_{ij}^0(i) = C_{ijkl}\{S_{klmn}(i)\varepsilon_{mn}^*(i) - \varepsilon_{kl}^*(i)\} \dots (25)$$

3・2・2 相互作用ひずみ 相互作用応力 $\bar{\sigma}_{ij}$ は、 $\Omega(i)$ の体積含有率を $f(i)$ とくと、Mori-Tanakaの定理⁽¹⁵⁾より、

$$\bar{\sigma}_{ij} = -\sum f(i)\sigma_{ij}^0(i) \dots (26)$$

となる。相互作用ひずみ $\bar{\varepsilon}_{23}$ は、式(20)に式(26)を代入し、対称性を用いることによって、

$$\bar{\varepsilon}_{23} = -\sum f(i)B(i)\varepsilon_{23}^*(i) \dots (27)$$

となる。ここで、

$$B(i) = 2S_{2323}(i)-1 \dots (28)$$

である。式(27)に式(23)を代入し、 ε_{23}^0 と $\bar{\varepsilon}_{23}$ が D 内で一様であることを考慮すると、

$$\bar{\varepsilon}_{23} = (\varepsilon_{23}^0 + \bar{\varepsilon}_{23}) \sum f(i)A(i)B(i)$$

$$\therefore \bar{\varepsilon}_{23} = \frac{\sum f(i)A(i)B(i)}{1 - \sum f(i)A(i)B(i)} \varepsilon_{23}^0 \dots (29)$$

を得る。式(29)を式(23)に代入すると、最終的に等価

固有ひずみは次式となる。

$$\varepsilon_{23}^*(i) = -\frac{A(i)}{1 - \sum f(i)A(i)B(i)} \varepsilon_{23}^0 \dots (30)$$

3・2・3 巨視的剛性率 物体 D 内に生じる巨視的
平均ひずみ $\bar{\varepsilon}_{ij}$ は、

$$\bar{\varepsilon}_{ij} = \varepsilon_{ij}^0 + \sum f(i)\varepsilon_{ij}^*(i) \dots (31)$$

となる⁽¹⁴⁾。これに式(30)を代入すると、

$$\bar{\varepsilon}_{23} = \frac{1 - \sum f(i)A(i)\{B(i)+1\}}{1 - \sum f(i)A(i)B(i)} \varepsilon_{23}^0 \dots (32)$$

を得る。巨視的剛性率 $\bar{\mu}$ は、

$$\bar{\mu} = \frac{\sigma_{23}^0}{2\bar{\varepsilon}_{23}} = \frac{\varepsilon_{23}^0}{\bar{\varepsilon}_{23}} \mu \dots (33)$$

により求められるため、式(33)に式(32)を代入すると、

$$\bar{\mu} = \frac{1 - \sum f(i)A(i)B(i)}{1 - \sum f(i)A(i)\{B(i)+1\}} \mu \dots (34)$$

を得る。

3・3 高分子系複合材料の巨視的タンジェントデルタの解析 図3は図2の弾性モデルに対応する線形粘弾性モデルである。母材と $\Omega(i)$ 粒子の複素弾性率を C_{ijkl}^0 と $C_{ijkl}^*(i)$ とし、 D には振動せん断応力 $\sigma_{23}^0 \exp(i\omega t)$ と $\sigma_{32}^0 \exp(i\omega t)$ が作用している。

このモデルの巨視的複素弾性率を求めるために、2章で述べた方法に従って弾性問題における巨視的剛性率を複素量に変換する。このために、まず、弾性解析で用いた弾性定数を次のような複素量に置換える。

$$\mu \rightarrow \mu^c = \mu' + i\mu'' = \mu'(1 + i \tan \delta) \dots (35\cdot a)$$

$$\mu^*(i) \rightarrow \mu^{*c}(i) = \mu^{*'}(i) + i\mu^{*''}(i) \\ = \mu^{*'}(i)\{1 + i \tan \delta^*(i)\} \dots (35\cdot b)$$

$$\nu \rightarrow \nu^c = \nu' + i\nu'' \dots (35\cdot c)$$

ここで $\tan \delta$ と $\tan \delta^*(i)$ は、それぞれ母材と粒子 $\Omega(i)$ のタンジェントデルタである。次に、Eshelby テンソルと $g(i)$ に対して、

$$S_{2323}(i) \rightarrow S_{2323}^c(i) = S_{2323}(i) + iS_{2323}^*(i) \dots (36\cdot a)$$

$$g(i) \rightarrow g^c(i) = g'(i) + ig''(i) \dots (36\cdot b)$$

なる置換えを行う。式(22)と式(24・b)に対して、式(35)の置換えを行うとともに、式(36)に従ってその結果を整理すると、

$$S'_{2323}(i) = \frac{1}{4} + \frac{(\nu'^2 + \nu''^2 - 1)H_3^s(i) + 2(1-\nu')H_{31}^s(i)}{4\{(1-\nu')^2 + \nu''^2\}} \dots (37\cdot a)$$

$$S''_{2323}(i) = \frac{\nu''\{H_{31}^s(i) - H_3^s(i)\}}{2\{(1-\nu')^2 + \nu''^2\}} \dots (37\cdot b)$$

$$g'(i) = \frac{\mu^{*'}(i)}{\mu'} \cdot \frac{1}{1 + \tan^2 \delta} \{1 + \tan \delta \tan \delta^*(i)\} \dots (37\cdot c)$$

Fig. 3 Viscoelastic model for a SMP Particle reinforced SMP Composite

$$g''(i) = \frac{\mu''(i)}{\mu'} \cdot \frac{1}{1 + \tan^2 \delta} \{ \tan \delta^*(i) - \tan \delta \} \quad \dots\dots\dots (37 \cdot d)$$

となる。さらに、式(24・a)と式(28)についても、

$$A(i) \rightarrow A^c(i) = A'(i) + iA''(i) \quad \dots\dots\dots (38 \cdot a)$$

$$B(i) \rightarrow B^c(i) = B'(i) + iB''(i) \quad \dots\dots\dots (38 \cdot b)$$

なる置換えを行うと、式(37)より、

$$A'(i) = \frac{\{g'(i) - 1\}A_1(i) + g''(i)A_2(i)}{A_1(i)^2 + A_2(i)^2} \quad \dots\dots\dots (39 \cdot a)$$

$$A''(i) = \frac{g''(i)A_1(i) - \{g'(i) - 1\}A_2(i)}{A_1(i)^2 + A_2(i)^2} \quad \dots\dots\dots (39 \cdot b)$$

$$B'(i) = 2S'_{2323}(i) - 1, \quad B''(i) = 2S''_{2323}(i) \quad \dots\dots\dots (39 \cdot c)$$

となる。ここで式中の係数 $A_1(i)$ と $A_2(i)$ は以下のとおりである。

$$A_1(i) = 2\{g'(i) - 1\}S'_{2323}(i) + 1 - 2g''(i)S''_{2323}(i) \quad \dots\dots\dots (40 \cdot a)$$

$$A_2(i) = 2\{g'(i) - 1\}S''_{2323}(i) + 2g''(i)S'_{2323}(i) \quad \dots\dots\dots (40 \cdot b)$$

これらの結果を用いて、式(34)の $\bar{\mu}$ に対して式(35)の置換えを行うと、巨視的複素剛性率は、

$$\begin{aligned} \bar{\mu}^c &= \frac{1 - \sum_i f(i)A^c(i)B^c(i)}{1 - \sum_i f(i)A^c(i)\{B^c(i) + 1\}} \mu^c \\ &= (F' + iF'')(\mu' + i\mu'') \\ &= \mu' \{(F' - F'' \tan \delta) + i(F' \tan \delta + F'')\} \quad \dots\dots\dots (41) \end{aligned}$$

となる。各係数は以下のとおりである。

$$F' = \frac{(1 - G_1)(1 - G_3) + G_2G_4}{(1 - G_3)^2 + G_4^2} \quad \dots\dots\dots (42 \cdot a)$$

$$F'' = \frac{(1 - G_1)G_4 - G_2(1 - G_3)}{(1 - G_3)^2 + G_4^2} \quad \dots\dots\dots (42 \cdot b)$$

$$G_k = \sum_i G_k(i) \quad (k=1, 2, 3, 4) \quad \dots\dots\dots (42 \cdot c)$$

$$G_1(i) = f(i)\{A'(i)B'(i) - A''(i)B''(i)\} \quad \dots\dots\dots (42 \cdot d)$$

$$G_2(i) = f(i)\{A'(i)B''(i) + A''(i)B'(i)\} \quad \dots\dots\dots (42 \cdot e)$$

$$G_3(i) = f(i)\{A'(i)\{B'(i) + 1\} - A''(i)B''(i)\} \quad \dots\dots\dots (42 \cdot f)$$

$$G_4(i) = f(i)\{A'(i)B''(i) + A''(i)\{B'(i) + 1\}\} \quad \dots\dots\dots (42 \cdot g)$$

巨視的剛性率 $\bar{\mu}^c$ を、 $\bar{\mu}^c = \bar{\mu}' + i\bar{\mu}''$ で表すと、式(41)から、

$$\bar{\mu}' = \mu'(F' - F'' \tan \delta) \quad \dots\dots\dots (43 \cdot a)$$

$$\bar{\mu}'' = \mu'(F' \tan \delta + F'') \quad \dots\dots\dots (43 \cdot b)$$

となる。さらに、これらの比を取るにより、巨視的タンジェントデルタ $\tan \delta$ は次式となる。

$$\tan \delta = \frac{\bar{\mu}''}{\bar{\mu}'} = \frac{F' \tan \delta + F''}{F' - F'' \tan \delta} \quad \dots\dots\dots (44)$$

4. 数値計算結果および考察

4・1 モデルの材料定数 本解析では母材、粒子ともにポリウレタン系形状記憶ポリマ(SMP)を用いた。SMPの剛性率 μ' とタンジェントデルタの温度変化については、戸伏らの実験結果⁽¹⁶⁾を用いた。これらをそれぞれ図4と図5に示す。ポアソン比の実部 ν' の温度変化については既報で示したデータ⁽¹⁷⁾を用いた。これを図6に示す。なお、これらの図中にはガラス領域とゴム領域および遷移領域の範囲を示しているが、遷移領域の温度幅は既報と同様に T_g を挟んで $\pm 15^\circ\text{C}$ とした。また、虚部 ν'' については零とおいた。なお、母材のガラス転移点 T_g は 70°C とし、粒子はすべて球形とした。

4・2 巨視的剛性率とタンジェントデルタの解析

4・2・1 粒子のガラス転移点分布が単分散の場合 まず最初に、粒子のガラス転移点分布が単分散である単分散の場合に対する解析結果を示す。

Fig. 4 Shear modulus of SMP

Fig. 5 $\tan \delta$ of SMP

図7は、粒子のガラス転移点が30°C、体積含有率が50%の場合に対する巨視的剛性率 $\bar{\mu}'$ の温度変化を示したものである。図中の実線が解析結果であり、破線は母材単体の場合の結果を示す。図7より、巨視的剛性率 $\bar{\mu}'$ は、温度 T が30°Cを超えると急激に低下し、65°Cまではほぼ一定値を保った後に、65°Cを超えともう一度急激に低下する傾向にあることがわかる。最初の30°C近傍における剛性率の低下は、粒子のガラス転移点が30°Cであるため、粒子がガラス状態からゴム状態へと遷移したことによって生じたものである。また、35~65°Cの温度範囲で一定値を示した理由は、この温度範囲では粒子はすでにゴム状態であり、ガラス転移点が70°Cである母材は依然としてガラス状態を保っているためであると考えられる。65°Cを超えて再度剛性が低下する原因は、母材がゴム状態へと遷移したことによるものである。したがって、この結果は材

料中の構成要素の状態変化を考慮することによって説明でき、極めて妥当な結果であるものと思われる。さらに、母材単体においては、温度増加につれて徐々に剛性は低下し、65°Cを超えると急激にその値が減少していることがわかる。両者を比較すると、低いガラス転移点を有する粒子を含む複合材料のほうが明らかに巨視的剛性率は低くなることがわかる。したがって、剛性率という観点からは、ガラス転移点が高い粒子を混入すべきであると思われる。図8は、図7に対応する巨視的タンジェントデルタ $\tan \delta$ の温度変化を示したものである。図中の実線が解析結果であり、破線は母材単体の結果である。図8より、複合材料の $\tan \delta$ は、温度上昇につれて増加し、30°C近傍でいったん大きくなった後、逆に減少する傾向にあることがわかる。しかしながら、この後さらに温度を上昇させると再び増加に転じ、70°Cで最大値を示す。最初の30°Cにおけるピークは、粒子のガラス転移点に相当し、70°Cのピークは母材のそれに対応する。破線で示される母材単体については、当然の30°Cのピークは出現しない。両者を比較すると、複合材料の $\tan \delta$ は、20°Cから約40°Cまでの温度範囲で母材単体のそれより大きくなっていることがわかる。したがって、低いガラス転移点を有する粒子を混入させることで、単体ではあり得ない温度における $\tan \delta$ の増加が可能であることがわかった。

さらに、70°Cにおける $\tan \delta$ の最大値は、母材単体のものとほとんど変わらないこともわかる。ガラス転移点より温度が十分高いことから、70°Cにおける粒子の $\tan \delta$ の値は小さくなり、 $\tan \delta$ に対する寄与は小さなものとなる。このため、70°Cにおける $\tan \delta$ は、

Fig. 6 Poisson's ratio of SMP

Fig. 7 Macroscopic shear modulus of the SMP Particle reinforced SMP Composite

Fig. 8 $\tan \delta$ of the SMP Particle reinforced SMP Composite

体積含有率 50% の母材の特性のみが発露したものと考えられる。したがって、この点だけを考えると $\tan \delta$ は母材単体に比べて小さくなることになる。しかしながら、これとは逆の効果も存在する。図 4 に示したように、SMP の剛性率はガラス転移点を挟んで 2 けた以上減少するため、70°C でゴム状態となっている粒子は極めて低い剛性率を有することになる。この結果として、材料全体の剛性率 $\bar{\mu}'$ は図 7 に示したように低くなっている。式(43・a)と式(44)より、 $\tan \delta$ の分母が剛性率 $\bar{\mu}'$ に対応するため、 $\bar{\mu}'$ が減少すると、結果的に $\tan \delta$ は増加することになる。したがって、これら二つの効果が相殺しあって、図 7 のような結果になったものと思われる。

図 8 は、粒子のガラス転移点分布が 30°C の単分散である場合に対する結果であり、母材単体に比べて、粒子のガラス転移点近傍で $\tan \delta$ は増加した。しかしながら、粒子と母材のガラス転移点の中間の温度範囲で

Fig. 9 Macroscopic shear modulus of the SMP Particle reinforced SMP Composite (4 Mode)

Fig. 10 $\tan \delta$ of the SMP Particle reinforced SMP Composite (4 Mode)

ある 50°C 近傍においては、著しい増加は生じていない。この点をさらに改善するために、さらに粒子のガラス転移点分布を工夫することにする。

4・2・2 粒子のガラス転移点分布が 4 モード分布の場合 本解析で用いた SMP は、図 5 に示したようにガラス転移点を挟んだ前後約 10°C の温度幅で $\tan \delta$ が増加するという特徴を有している。このため、図 8 においても、粒子のガラス転移点 30°C から 10°C 高い 40°C まで $\tan \delta$ が増加している。したがって、この点を考慮すると、10~15°C 刻みでガラス転移点異なる粒子を混入すればよいと思われる。

図 9 と図 10 は、粒子のガラス転移点が 30°C から 10°C 刻みで 60°C まで 4 種類存在する 4 モード分布に対する結果を示したものである。実線は複合材料の解析結果を、破線は母材単体のそれを示す。また、図中には粒子のガラス転移点 T_g と確率密度 H との関係を示した分布も記載している。全粒子の体積含有率は単分散の場合と同様に 50% を用いた。

図 9 より、巨視的剛性率 $\bar{\mu}'$ は、4 モードガラス転移点分布を用いた場合には、25~75°C の温度範囲において、温度の上昇に伴ってほぼ直線的に単調減少する傾向にあることがわかる。これは、4 モード分布では母材を含めて五つの温度で順にゴム状態へと遷移するため、その一段ごとの変化量が小さくなることによって生じたものと考えられる。

図 10 は $\tan \delta$ の解析結果である。図 10 より、 $\tan \delta$ は 50°C 近傍においても母材単体のそれより増加しており、20~80°C という広い温度範囲で母材単体のそれと同等か、それより大きくなっていることがわかる。したがって、この結果より、粒子のガラス転移点分布

Fig. 11 $\tan \delta$ of the SMP Particle reinforced SMP Composite Containing Voids (4 Mode)

を工夫することで、制振特性が温度によらず一定である複合材料を設計できる可能性のあることがわかった。

4・2・3 母材の剛性率を低下させた場合 次に、この巨視的タンジェントデルタをさらに増加させることを検討する。4・2・2項で述べたように、巨視的剛性率 $\bar{\mu}'$ が減少すると $\tan \delta$ は増加することから、粒子のガラス転移点分布は変えずに $\bar{\mu}'$ を減少させればよい。

図11は、図10と同じ4モード分布で体積含有率50%のSMP粒子を含む複合材料に、新たに体積含有率20%の空孔を混入させた場合に対する $\tan \delta$ の解析結果を示したものである。加えた空孔の剛性率とタンジェントデルタはともに零とし、形状は球形とした。図中の(void+SMP)/SMPで示した実線がその解析結果であり、SMP/SMPは図10の結果である。図11より、さらに空孔を加えた場合には、 $\tan \delta$ は70°C近傍でわずかに減少しているものの30~50°C程度の温度範囲で若干増加していることがわかる。したがって、空孔を混入させて母材の剛性率を下げることでさらに $\tan \delta$ を増加できることがわかった。

5. 結 言

本研究は広い温度範囲で良好な制振特性を有する高分子系複合材料開発の可能性を探ることを目的としたものであり、種々のガラス転移点を有するSMPポリマ粒子を含む状態を想定し、これをマイクロメカニクスを用いてモデル化した。さらに、具体的にポリマ粒子のガラス転移点分布を与えることでモデルを解析した結果、ガラス転移点分布に4モード分布を用いた場合、複合材料の巨視的タンジェントデルタは全温度

範囲で母材単体のそれに比べて向上することがわかった。したがって、ポリマ粒子のガラス転移点分布を適切に与えることで、広い温度範囲で制振特性が一定である高分子系複合材料を開発できる可能性があることがわかった。また、ポリマ粒子に加えてさらに空孔を混入すると、巨視的タンジェントデルタはさらに若干増加することがわかった。

文 献

- (1) 降雅久・國尾武, 材料システム, **6** (1987), 21-48.
- (2) Mura, T., *Micromechanics of Defects in Solids*, 2nd revised ed., (1987), 1-587, Martinus Nijhoff Pub.
- (3) 若島健司, 日本複合材料学会誌, **2-4** (1976), 161-167.
- (4) 高橋清久, 日本複合材料学会誌, **8-2** (1982), 46-52.
- (5) Takao, Y., Chou, T. W. and Taya, M., *Trans. ASME, J. Appl. Mech.*, **49** (1982), 536-541.
- (6) 北條正樹・高橋清久・林龍一, 日本複合材料学会誌, **9-2** (1983), 64-71.
- (7) Benveniste, Y., *Mech. Mater.*, **6** (1987), 147-157.
- (8) Zhao, Y. H. and Weng, G. J., *Trans. ASME, J. Appl. Mech.*, **57** (1990), 158-167.
- (9) 荒木栄敏・齋藤憲司・加藤貴之・中原一郎, 機論, **61**-588, A (1995), 1833-1840.
- (10) Araki, S., Saito, K. and Kato, T., *Theoret. Appl. Mech.*, **45** (1996), 67-78.
- (11) Taya, M. and Seidel, E. D., *Int. J. Eng. Sci.*, **19** (1981), 1083-1094.
- (12) 戸伏壽昭・林俊一, 機械の研究, **45**-11 (1993), 1136-1140.
- (13) 戸伏壽昭・林俊一, 機械の研究, **46**-6 (1994), 646-652.
- (14) 山下浩儀・床井正義・荒木栄敏, 非圧縮性構成要素を含む複合材料の巨視的剛性のマイクロメカニクス解析, 機講論, No. 02-05 (2002-10), 95-96.
- (15) Mori, T. and Tanaka, K., *Acta Met.*, **21** (1973), 571-574.
- (16) 戸伏壽昭・林俊一・小島伸一, 機論, **57**-543, A (1991), 2760-2766.
- (17) 荒木栄敏・小野裕之・山田晴士・齋藤憲司, 機論, **67**-659, A (2001), 1140-1147.