

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 4 月 29 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560096

研究課題名(和文)ゲル材料の膨潤分岐座屈解析のための理論構築と検証及び応用

研究課題名(英文)Theoretical development and applications for swelling-induced buckling analysis of gels

研究代表者

奥村 大(Okumura, Dai)

名古屋大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：70362283

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 4,100,000円

研究成果の概要(和文):本研究課題では,円孔を有するゲル膜に生じる膨潤誘起パターン変態の有限要素解析を行い,実験で発生が確認されているダイヤモンドプレートパターン及び予ひずみ依存性の再現及びメカニズム解明に成功した.解析にはゲル材料のための不均質場理論を用いた.ダイヤモンドプレートパターンを形成する座屈は局所的に発生し,伝ばすることによって均質化することがわかった.また,引張りの予ひずみはパターン変態の開始を遅らせ,異なるパターンは変態間の過渡的状态として現れることがわかった.

研究成果の概要(英文):In this study, we performed finite element analysis of swelling-induced pattern transformation of gel films with a square lattice of holes, to simulate diamond plate patterns observed in experiments and then to explain the mechanism and the dependence on prestrains. We used an inhomogeneous field theory for polymeric gels in finite element analysis. It was found that buckling to form diamond plate patterns starts locally and then propagates until homogeneous transformation is achieved. It was further found that prestrains in tension delays the onset of pattern transformation and different patterns appear as transitional states during the transformation.

研究分野:計算固体力学

キーワード:ゲル 膨潤 座屈 不安定 有限要素

1. 研究開始当初の背景

ゲル材料は、優れた保水特性によりソフトコンタクトレンズや紙おむつなどに利用されており、人工筋肉や軟骨といった生体材料としても有望視されている。また、マイクロデバイスの分野では、ゲル薄膜もしくは円孔ゲル薄膜の溶媒吸収による急激な体積増加（以後、単に膨潤と呼ぶ）によって誘起される分岐座屈現象に着目して、複雑かつ多彩な規則的パターンの創製が試みられている。この手法は、膨潤という材料が自然に有する特性を利用した新しい設計プロセスであるとして注目を浴びており、実験観察的な論文が数多く発表されてきている。したがって、ゲル薄膜に生じる分岐座屈パターンの発現機構を解明し体系化するとともに、より一般に変形や応力を予測するための解析技術として、膨潤現象を考慮したゲル材料の固体力学的数値シミュレーションの必要性は益々高まることが予測される。

2. 研究の目的

そこで本研究では、円孔を有するゲル膜の膨潤誘起座屈によって生じるパターン変態に着目し、その発生機構を明らかにするとともに、予びずみを受けるときのパターン変化についても機構解明することを試みる。このため、ゲルの膨潤現象は Flory-Rehner の自由エネルギー関数を用いて再現されると仮定し、有限要素解析を行う。また、この自由エネルギー関数はゲル材料の膨潤や変形に対する基本モデルと見なすことができるが、必ずしも高精度ではない。このことを示すとともに、修正モデルの提案を行い、検証を行う。

3. 研究の方法

Flory-Rehner の自由エネルギー関数は、変形勾配と溶媒濃度の関数であるが、この関数に対して、高分子及び溶媒分子の非圧縮性を仮定し、ルジャンドル変換を行って得られる自由エネルギー関数は、変形勾配と外部溶媒の化学ポテンシャルの関数となる。外部溶媒の化学ポテンシャルの値は、乾燥状態において $-\infty$ 、膨潤平衡状態にして0と考えることができる。したがって、外部溶媒の化学ポテンシャルの値を、増加させることによって膨潤過程を再現することができる。なお、本解析では、溶媒の拡散現象を考慮せず、準静的つり合い状態を解くことを考える。

本研究では、有限要素解析ソフト Abaqus のユーザー材料サブルーチン UHYPER にこの変換された自由エネルギー関数を組み込んで解析に用いる。化学ポテンシャルの値は引数として標準的に装備されていないが、温度をこの値と見なして、値の受け渡しを行う。この結果として、Abaqus が持っている多様な解析機能を利用しつつ、膨潤現象を考慮した解析が可能になる。このため、ユーザー材料サブルーチンへの実装によるツール化は大

きな利点をもっている。

4. 研究成果

(1) 図1は 2×2 周期単位の解析によって得られた結果である。3つのモデルは、それぞれ異なる巨視的応力値においてパターン化が起こっており、結果として、最大応力点(印○)とそれに続く不安定点(印×、反復計算が収束しなかった点)が現れた。図2には不安定点における変形状態及び溶媒分子の濃度分布(無次元量)をそれぞれ示す。モデル m1 は初期不整を与えていないが、どの円孔もひし形に変形する座屈パターンが現れた。一方、モデル m2 は円孔が横方向及び縦方向に交互につぶれる座屈パターン、すなわちダイヤモンドプレートパターンが現れた。また、モデル m3 は左下の円孔が左斜め45度方向につぶれ、右上の円孔が右斜め45度方向につぶれる座屈パターンであった。

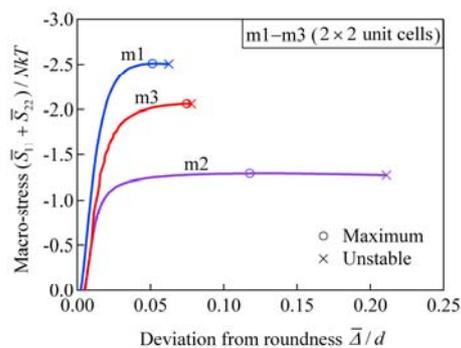


Fig.1 Macroscopic stress as a function of the average deviation from roundness of each hole for Models m1-m3.

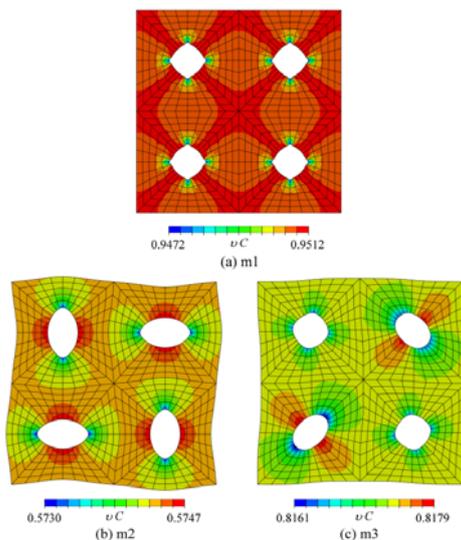


Fig.2 Deformed configurations and normalized concentration distributions νC at unstable point; Models (a) m1, (b) m2 and (c) m3.

これらの結果は、初期不整の与え方によって、発現する座屈パターンが異なり、開始応力も大きく異なることを示している。さらに、

実験結果と比較するとき、モデル m2 の結果が実際の座屈パターンと一致していることがわかる。この一致は、この座屈パターンの開始応力が、ほかのパターンの開始応力と比較して最も低いことから整合的に説明できる。しかし初期不整に依存して異なる座屈パターンが現れることは実験と一致しない。

この理由を確かめるため、 10×10 周期単位の解析を行った結果を示す。なお初期不整はランダムに与えた。図3にランダムモデル R10 の変形過程を示す。図3(a)からわかるように、パターン化の生じる応力レベルは、モデル m2 とほとんど同じである。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3(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、モデル m1 や m3 によって予測されたより高次の座屈パターン（図2(a), (c)）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。

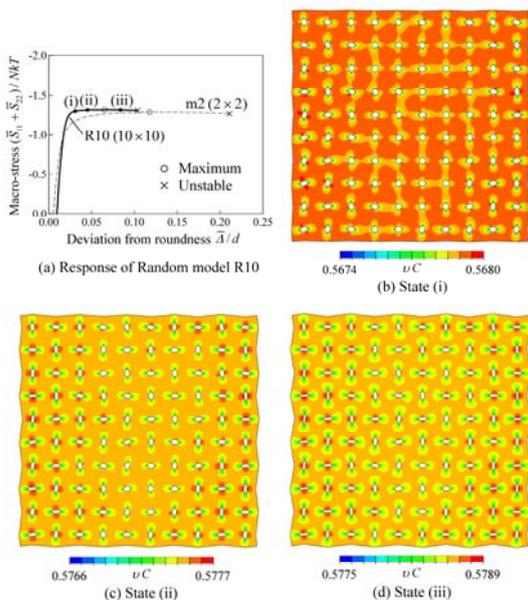


Fig. 3 Deformation process finalizing the homogeneous transformation into the diamond plate pattern for Random models R10; (a) macroscopic stress as a function of the average deviation from roundness, and (b), (c) and (d) deformed configurations (displacement 2x) and normalized concentration distributions vC for states (i), (ii) and (iii), respectively.

この機構は、実験において、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（詳細は雑誌論文①を参照）。

(2) 膨潤前の予ひずみとしての水平方向にひずみ制御された単軸引張りを与えたときに膨潤平衡において現れるパターンを図4に示す。図4(a)は予ひずみがない場合 ($\epsilon=0\%$) の結果であり、パターン変態によって、円孔はスリット状に変形し、隣接するスリットはお互いに直交して配列している。すなわち、ダイヤモンドプレートパターンが現れている。一方、図4(d)は予ひずみが最も大きな場合 ($\epsilon=60\%$) の結果であり、予ひずみによって円孔はだ円化するものの、膨潤過程によってパターン化は発生せず、結果としてだ円の単調パターンが現れることがわかった。

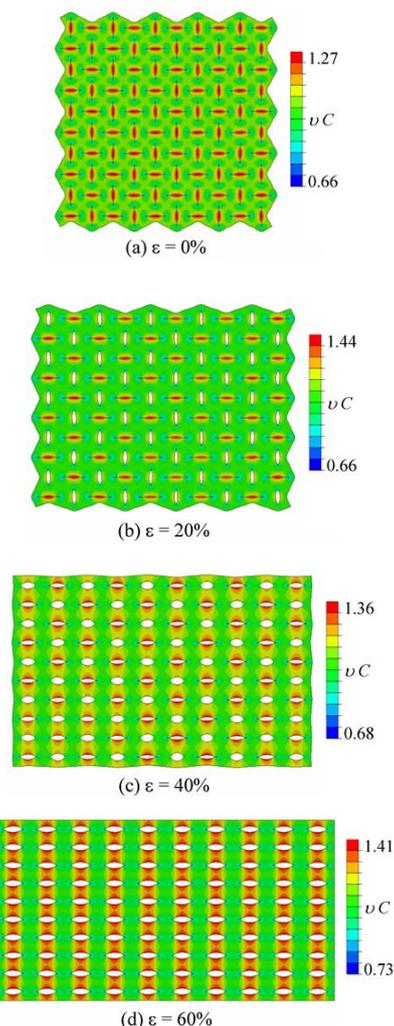


Fig. 4 Deformed configurations and normalized concentration distributions at equilibrium swelling.

さらに、図4(b), (c)は予ひずみが中間の場合 ($\epsilon=20, 40\%$) の結果である。 $\epsilon=40\%$ では、予ひずみによって円孔が横方向にだ円化した状態からダイヤモンドプレートパターンへのパターン変態が始まることがわかった。縦方向にスリット化する円孔は一時的に正円に

近い形をとり、この状態で膨潤平衡に達するため、結果として円とスリットで作られるバイナリーパターンが現れる。また、 $\varepsilon=20\%$ においても、ダイヤモンドプレートパターンへのパターン変態が始まり、過渡的状态としてバイナリーパターンが現れ、膨潤がさらに進むことによってひずんだダイヤモンドプレートパターンが現れた(図4(b))。もしさらに膨潤が許されるのであれば、完全なダイヤモンドプレートパターンまで変態は進展することが期待されるが、膨潤平衡によってこれ以上の膨潤は許されない。以上のように、得られた変形状態(図4)は実験での観察結果と非常によく一致しており、有限要素解析はパターン変態の発生機構を詳細に解析することに成功している(詳細は雑誌論文②を参照)。

(3) いくつかの文献から実験データを整理することによって得られたヤング率の膨潤度依存性を図5に示す。図中のNR, PDMS, P/D, PBはそれぞれ高分子の種類を表している。架橋剤の添加量に依存して乾燥状態のヤング率が変わり、溶媒を変えることによって、膨潤平衡時の膨潤度 J の値が変化するため、図中に示されるようにヤング率の膨潤度依存性を示す図が得られる。この図は両対数グラフであるから、これらの材料のヤング率は膨潤度のべき乗とおおよそ線形関係にあることがわかる。また、図中に示すように、指数は材料に依存しており、おおよそ $0 \sim -1$ の範囲の値を取ることがわかる。一方、Flory-Rehner の自由エネルギー関数から予測される値は、傾きが $-1/3$ である。すなわち、Flory-Rehner の自由エネルギー関数は材料に依存した指数の変化を表すことはできない。

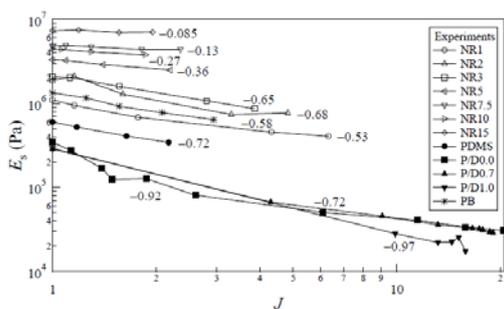


Fig.5 Young's modulus at equilibrium swelling as a function of swelling ratio.

つづいて、図6は浸透圧を乾燥状態のヤング率 E_d で割った値である。すなわち、Flory-Rehner の自由エネルギー関数の弾性ひずみエネルギー成分から導かれる浸透圧の無次元量をプロットしたものであり、この曲線は高分子や溶媒の種類には依存しない。一方、混合エネルギー成分から導かれる浸透圧をこの図にプロットすることを考えると、材料定数が必要になり、実験データを用いて

得られた結果が、図中には実験値として示されている。この図が示すように、実験値は右下がりの傾向を有し、膨潤度が大きくなると、材料に依存しておおよそ一定値をとる。実線は膨潤度が大きい領域において、一部の材料とよい一致を示すものの、膨潤度が小さい領域や異なる材料の場合により対応関係を示さないことがわかる。すなわち、浸透圧の膨潤度依存性においても、Flory-Rehner の自由エネルギー関数は改良の余地がある。

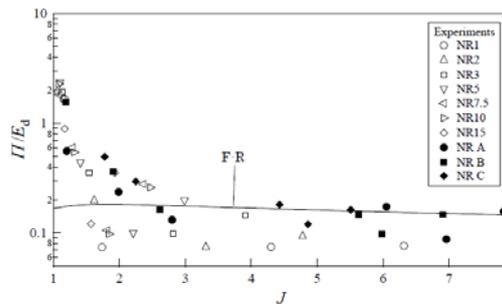


Fig.6 Osmotic pressure at equilibrium swelling as a function of swelling ratio.

ヤング率と浸透圧の膨潤度依存性をより高精度に再現するため、Flory-Rehner の自由エネルギー関数を拡張することを考えた。本研究では、弾性ひずみエネルギーを等容成分と体積成分に分離し、それぞれの項を膨潤度のべき乗項で拡張した次式のべき乗型拡張モデルを考えた。結果として、二つのべき乗指数がパラメータとして導入され、ヤング率の膨潤度依存性及び浸透圧の膨潤度依存性はそれぞれのパラメータを調整することによって、精度よく再現されることがわかった(詳細は学会発表⑩を参照)。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計2件)

① Dai Okumura, Tsuyoshi Kuwayama, Nobutada Ohno, Effect of geometrical imperfections on swelling-induced buckling patterns in gel films with a square lattice of holes. International Journal of Solids and Structures Vol.51, 2014, pp.154-163, 査読有。
DOI:http://dx.doi.org/10.1016/j.ijsolstr.2013.09.018

② Dai Okumura, Takahiro Inagaki, Nobutada Ohno, Effect of prestrains on swelling-induced buckling patterns in gel films with a square lattice of holes. International Journal of Solids and Structure Vol.58, 2015, pp.288-300, 査読有。
DOI:http://dx.doi.org/10.1016/j.ijsolstr.2015.01.015

〔学会発表〕(計11件)

①桑山剛, 奥村大, 大野信忠, 円孔を有するゲル薄膜に生じる膨潤座屈パターンの解析. 日本機械学会東海支部第62期講演会, 2013.3.18-19, 三重大学.

② Dai Okumura, Tsuyoshi Kuwayama, Nobutada Ohno, Effects of geometrical imperfection on swelling induced buckling patterns of gel film with square lattice of holes. SES 50th Annual Technical Meeting and ASME-AMD Annual Summer Meeting, 2013.7.28-31, Providence, USA.

③ Dai Okumura, Tsuyoshi Kuwayama, Nobutada Ohno, Finite element analysis of swelling induced buckling of gel film with holes in square array. APCOM2013 & ISCM2013 Conference, 2013.12.11-14, Singapore.

④奥村大, 桑山剛, 大野信忠, 円孔を有するゲル薄膜に生じる膨潤誘起座屈の有限要素解析. 日本機械学会第26回計算力学講演会, 2013.11.2-4, 佐賀大学.

⑤稲垣貴裕, 桑山剛, 奥村大, 大野信忠, 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. 日本機械学会東海支部第63期講演会, 2014.3.18-19, 大同大学.

⑥奥村大, ゲル膜の膨潤誘起パターン変態の有限要素解析. 日本ゴム協会第19回ゴムの力学研究分科会, 2014.8.21, 名古屋大学.

⑦Dai Okumura, Takahiro Inagaki, Nobutada Ohno, Effects of prestrains on swelling induced buckling patterns of gel film with square lattice of holes. 17th U.S. National Congress of Theoretical and Applied Mechanics (USNCTAM2014), 2014.6.15-20, East Lansing, USA.

⑧奥村大, 稲垣貴裕, 大野信忠, 円孔を有するゲル膜の膨潤誘起座屈パターンに及ぼす予ひずみの影響. 日本機械学会 M&M2014 材料力学カンファレンス, 2014.7.18-21, 福島大学.

⑨奥村大, 稲垣貴裕, 大野信忠, 円孔を有するゲル膜の膨潤誘起パターン変態に及ぼす予ひずみの影響. 日本機械学会第27回計算力学講演会, 2014.11.22-24, 岩手大学.

⑩近藤晃史, 奥村大, 大野信忠, ゲル材料の膨潤度依存性を考慮した超弾性体モデルの開発. 日本材料学会東海支部第9回学術講演会, 2015.3.4, 名古屋大学.

⑪佐々木彰, 奥村大, 大野信忠, 正方配列の円孔を有するゲル膜における均質パターン変態の有限要素解析. 日本機械学会東海支部第64期講演会, 2015.3.13-14, 中部大学.

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.mech.nagoya-u.ac.jp/mm1/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

奥村 大 (OKUMURA, Dai)

名古屋大学・大学院工学研究科計算理工学専攻・准教授

研究者番号：70362283