２つのスケーリング指数で拡張された Flory-Rehner モデルの実装と基礎的解析

清水 章司，奥村 大，内田 真，田中 展

２つのスケーリング指数で拡張されたFlory-Rehner モデルの実装と基礎的解析

IMPLEMENTATION OF AN EXTENDED FLORY-REHNER MODEL WITH TWO SCALING EXPONENTS AND BASIC ANALYSIS

清水 章司 [1)], 奥村 大 [2)], 内田 真 [3)], 田中 展 [4)]

Shoji SHIMIZU, Dai OKUMURA, Makoto UCHIDA, and Hiro TANAKA

1) 名古屋大学大学院工学研究科（〒464-8603 名古屋市千種区不老町，E-mail: shimizu@mml.mech.nagoya-u.ac.jp）

2) 大阪大学大学院工学研究科（〒565-0871 吹田市山田丘，E-mail: okumura@mech.eng.osaka-u.ac.jp）

3) 大阪市立大学大学院工学研究科（〒558-8585 大阪市住吉区杉本，E-mail: uchida@imat.eng.osaka-cu.ac.jp）

4) 大阪大学大学院工学研究科（〒565-0871 吹田市山田丘，E-mail: htanaka@mech.eng.osaka-u.ac.jp）

In this study, we perform finite element implementation of a free energy function extended by introducing two scaling exponents into the Flory-Rehner model for swollen elastomers. This extended model is implemented into the finite element package Abaqus using the user-defined material subroutine UHYPER. To verify this implementation, the stress-stretch responses of elastomers at equilibrium swelling under uniaxial tension are simulated and compared with analytical predictions. The aid of artificial damping is needed to capture a rapid decrease in stress caused by swelling-induced strain softening. Effects of artificial damping on automatic incrementation analysis are discussed.

Key Words: Constitutive model, Elastomers, Swelling, Strain softening, Finite element analysis

1. 緒　　言

高分子ゲルは生体代替材料として期待されている(1)．また，外部刺激（温度や光，溶媒の pH など）に反応して，自発的に溶媒を吸収（以後，膨潤と呼ぶ）・排出する特徴を有しており，この特徴を利用したセンサーやアクチュエータの開発事例が数多く報告されている(2)．さらには，基盤に拘束されたゲル膜は，膨潤誘起型のパターン変態により，膜表面に複雑なパターンを形成することが観察されており，表面改質などへの応用が期待されている(3)．したがって，膨潤現象を考慮した高分子ゲルの力学応答数値シミュレーションの重要性は高まっている．

高分子ゲルの力学特性を表す自由エネルギー関数として，Flory-Rehner（F-R）モデル(4)が最も基礎的かつ有名である．近年，不均質場理論(5),(6)に基づいて，有限要素解析ソフトAbaqus(7)のユーザー材料サブルーチン（UHYPER や UMAT）への実装方法が示され，膨潤現象を伴った不均質変形や不安定変形の解析も可能になってきている(5),(6),(8),(9)．しかしながら，この自由エネルギー関数は，Neo-Hookean 型の弾性ひずみエネルギーと Flory-Huggins 理論に基づく混合エネルギーの和で構成されており，ヤング率や浸透圧といった力学特性の膨潤度依存性をいつもうまく再現できる訳ではない(10)．

この問題を解決するため，Okumura ら(10)は 2 つのスケーリング指数を導入して F-R モデルを拡張した．この拡張 F-R モデルでは，2 つのスケーリング指数を調整することによって，上述の膨潤度依存性を再現することが可能であり，この結果として，膨潤平衡下での単軸引張においてひずみ軟化現象が生じ得ることを明らかにした．この膨潤誘起ひずみ軟化の発現傾向は過去の実験(11)と対応関係があるため，高分子ゲルに特有の不安定変形機構として，検証のための実験や解析を行うなどより詳細に研究する必要がある．したがって，拡張 F-R モデルを有限要素解析ソフトに実装すれば，均質変形だけでなく不均質変形下での膨潤誘起ひずみ軟化現象の解析も可能になるため有意義である．

そこで本研究では，拡張 F-R モデルを有限要素解析ソフトAbaqus のユーザー材料サブルーチン UHYPER に実装し，基礎的な検討を行う．このため，はじめに拡張 F-R モデルについて述べ，つづいて，有限要素法への実装方法について述べる．解析例題として，膨潤平衡下での単軸引張に対して，固定増分解析を行い，人工粘性を導入する必要について述べる．最後に自動増分解析も行い，結果を議論する．

2. 拡張 F-R モデル

拡張 F-R モデル(10)は，Flory-Rehner(4)の自由エネルギー関数を 2 つのスケーリング指数を用いて拡張したものであり，

2016 年 9 月 17 日受付，2016 年 10 月 18 日受理

$$
\begin{aligned}
W &= \frac{E_\mathrm{d}}{6}J^m(I-3J^{2/3})+\frac{E_\mathrm{d}}{6}J^n(3J^{2/3}-3-a\log J)\\
&\quad -\frac{kT}{\upsilon}\left\{\upsilon C\log\left(1+\frac{1}{\upsilon C}\right)+\frac{\chi}{1+\upsilon C}\right\}
\end{aligned}
\tag{1}
$$

と表される．ここで，右辺の第1項及び第2項は弾性ひずみエネルギーである．mとnはスケーリング指数であり，偏差成分と体積成分をそれぞれスケーリングしている．IとJはひずみの不変量であり，変形勾配F_{ij}を用いると，$I=F_{ij}F_{ij}$，$J=\det \mathbf{F}$と表され，主方向の伸びλ_iを用いると，$I=\lambda_1^2+\lambda_2^2+\lambda_3^2$，$J=\lambda_1\lambda_2\lambda_3$と表される．$E_\mathrm{d}$は未変形，乾燥状態でのヤング率であり，$a$は係数である．右辺第3項は網目構造の高分子と溶媒分子の混合エネルギーであり，Cは溶媒分子の濃度，kTは熱エネルギー換算の絶対温度である．υは溶媒1分子当たりの体積，χは Flory-Huggins の相互作用係数である．拡張 F-R モデルでは，ヤング率及び浸透圧の膨潤度依存性を再現するために，mとnをそれぞれ調整することができ，$m=n=0$のとき，元の F-R モデルに帰着する(10)．

網目構造の高分子と溶媒分子に対して，非圧縮性の近似が成り立つと仮定すると(5),(6),(12)，高分子ゲルの体積は乾燥状態の網目構造の体積と吸収された溶媒の体積の和として，

$$
J=1+\upsilon C \tag{2}
$$

と表され，Jは体積膨潤比と呼ばれる．式(1)に式(2)の拘束条件をラグランジュの未定乗数法を用いて導入すると，未定乗数Πを用いて次式が得られる．

$$
\begin{aligned}
W &= \frac{E_\mathrm{d}}{6}J^m(I-3J^{2/3})+\frac{E_\mathrm{d}}{6}J^n(3J^{2/3}-3-a\log J)\\
&\quad -\frac{kT}{\upsilon}\left\{\upsilon C\log\left(1+\frac{1}{\upsilon C}\right)+\frac{\chi}{1+\upsilon C}\right\}+\Pi(1+\upsilon C-J)
\end{aligned}
\tag{3}
$$

式(3)より，主方向の伸びλ_iを用いて公称応力$s_i=\partial W/\partial\lambda_i$は求められ，真応力は換算式$\sigma_i=s_i\lambda_i/J \quad (i=1,2,3)$より，

$$
\begin{aligned}
\sigma_i &= \frac{E_\mathrm{d}}{3}J^{m-1}\left\{\lambda_i^2-J^{2/3}+\frac{m}{2}(I-3J^{2/3})\right\}\\
&\quad +\frac{E_\mathrm{d}}{3}J^{n-1}\left\{J^{2/3}-\frac{a}{2}+\frac{n}{2}(3J^{2/3}-3-a\log J)\right\}-\Pi \qquad (i=1,2,3)
\end{aligned}
\tag{4}
$$

と求められる（主方向成分の関係であるため，総和規約に従わないことに注意）．また，外部溶媒の化学ポテンシャルをμと表すとき，高分子ゲル中の溶媒分子の化学ポテンシャルとのつり合いは，式(3)に$\mu=\partial W/\partial C$の関係を適用して，

$$
\mu=kT\left\{\log\left(\frac{J-1}{J}\right)+\frac{1}{J}+\frac{\chi}{J^2}\right\}+\Pi\upsilon \tag{5}
$$

となる．上式の右辺第1項は混合エネルギー寄与成分であり，第2項は弾性エネルギー寄与成分である．未変形，乾燥状態では$C=0$，$\lambda_i=J=1$なので$\mu=-\infty$である．一方，膨潤平衡下では，$\mu=0$であり，式(4)と(5)を組み合わせて解くことによって，応力や伸び，体積膨潤比を調べることができる．

単軸負荷（$\sigma_1\neq 0$, $\sigma_2=\sigma_3=0$）では，式(4)と$s_1=(\sigma_1-\sigma_2)J/\lambda_1$の関係から未定乗数$\Pi$を消去でき，負荷方向の公称応力は，

$$
s_1=\frac{E_\mathrm{d}}{3}J^m\left(\lambda_1-\lambda_1^{-1}\lambda_2^2\right)=\frac{E_\mathrm{d}}{3}J^m\left(\lambda_1-J\lambda_1^{-2}\right) \tag{6}
$$

と求められる．上式に示すように，$\lambda_2=J^{1/2}\lambda_1^{-1/2}$の関係（$J=\lambda_1\lambda_2\lambda_3$に基づく）より公称応力は$\lambda_1$と$J$を用いて表現できる．さらに，式(4)から$\Pi$も$\lambda_1$と$J$を用いて表すことができ，膨潤平衡下（$\mu=0$）において，式(5)は，$\Pi$を消去して，次式のように求められる．

$$
\begin{aligned}
&\left\{\log\left(\frac{J-1}{J}\right)+\frac{1}{J}+\frac{\chi}{J^2}\right\}\\
&+\frac{E_\mathrm{d}\upsilon}{3kT}J^{m-1}\left\{J\lambda_1^{-1}-J^{2/3}+\frac{m}{2}\left(\lambda_1^2+2J\lambda_1^{-1}-3J^{2/3}\right)\right\}\\
&+\frac{E_\mathrm{d}\upsilon}{3kT}J^{n-1}\left\{J^{2/3}-\frac{a}{2}+\frac{n}{2}\left(3J^{2/3}-3-a\log J\right)\right\}=0
\end{aligned}
\tag{7}
$$

したがって，λ_1を入力として，式(7)よりJを求め，つづいて，式(6)よりs_1を求められるので，膨潤平衡下での単軸負荷応答を解析することができる(10)．本研究では，式(6)と(7)から求められた解析解を有限要素解析の結果と比較する．

3. 有限要素法への実装

拡張F-Rモデルを有限要素解析ソフトAbaqus(7)に実装する方法について述べる．式(1)と(3)は，変形勾配F_{ij}と溶媒分子の濃度Cの関数であり，式(4)と(5)の関係からわかるように，Πを経由して，応力と溶媒濃度（言い換えると，体積膨潤比）は連成関係にある．したがって，応力分布に依存して濃度分布も不均質になるため，一般に溶媒濃度は未知である．このため，以下に述べるように変数変換が必要になる(5),(6)．

静的つり合い状態からの位置x_iと溶媒濃度Cの任意の変分をδx_iとδCで表すとき，仮想仕事の原理より，

$$
\int_V \delta W dV=\int_V B_i\delta x_i dV+\int_A T_i\delta x_i dA+\mu\int_V \delta C dV \tag{8}
$$

ここで，VとAは基準状態での物体の体積と境界をそれぞれ表す．右辺は外部仮想仕事であり，第1項と第2項は物体力B_iと表面力T_iによる仕事である．また，第3項は外部溶媒による仕事である．

変形勾配F_{ij}と溶媒濃度Cの関数であるWは，ルジャンドル変換

$$
\hat{W}=W-\mu C \tag{9}
$$

によって，F_{ij}とμの関数$\hat{W}$に変換され，式(8)と(9)より，

$$
\int_V \delta\hat{W} dV=\int_V B_i\delta x_i dV+\int_A T_i\delta x_i dA \tag{10}
$$

が成り立つ(7)．すなわち，静的つり合い状態にあるとき，高分子ゲル中の溶媒分子の化学ポテンシャルは一様かつ外部溶媒の化学ポテンシャルと等しい．結果として，μは状態変数と見なすことができ，式(10)のつり合い条件は超弾性体のつり合い条件と同じ形式を取る．

式(1)と(2), (9)を用いると，拡張 F-R モデルの自由エネルギー関数は，次のように書き換えられる．

$$
\begin{aligned}
\hat{W} &= \frac{E_\mathrm{d}}{6}J^m(I-3J^{2/3})+\frac{E_\mathrm{d}}{6}J^n(3J^{2/3}-3-a\log J)\\
&\quad -\frac{kT}{\upsilon}\left[(J-1)\log\frac{J}{J-1}+\frac{\chi}{J}\right]-\frac{\mu}{\upsilon}(J-1)
\end{aligned}
\tag{11}
$$

上式の自由エネルギー関数$\hat{W}$は，変形勾配F_{ij}と化学ポテン

シャルμの関数として陽な形式を取っており，溶媒吸収による体積変化を含んでいるため，圧縮性のある超弾性体のための自由エネルギー関数と同じ形式となる．

有限要素解析ソフト Abaqus(7)では，非線形問題を増分解析するために，積分点では，与えられた変形状態に対応する真応力σ_{ij}とそこでのコンシステント接線係数を求める必要がある．コンシステント接線係数は，キルヒホフ応力$J\sigma_{ij}$の変分を表す次式においてC_{ijkl}として表される．

$$\delta(J\sigma_{ij}) = J(C_{ijkl}\delta D_{kl} + \delta W_{ik}\sigma_{kj} - \sigma_{ik}\delta W_{kj}) \tag{12}$$

ここで，δD_{ij}とδW_{ij}はそれぞれ変形速度とスピンの変分である．なお，材料モデルを実装するために 2 つのユーザー材料サブルーチンが提供されており，汎用的に用いることのできる UMAT と超弾性体用の UHYPER がある．F-R モデル及び拡張 F-R モデルの実装には, どちらも利用可能であるが(5),(6)，本研究では UHYPER への実装を考える．UMAT への実装や違いについては，参考文献(6)に詳しく書かれている．

UHYPER は超弾性体に限定されたサブルーチンであるため，このサブルーチン内では，真応力やコンシステント接線係数を直接計算するのではなく，その計算に必要なひずみの不変量に対する自由エネルギー関数の微分係数を与えるだけでよい(7)．微分係数は解析的に導出できるため，コーディングは非常に容易である．ただし，以下の 2 点について注意が必要である．

まず，Abaqus(7)ではひずみの不変量として低減不変量（$\bar{I}_1, \bar{I}_2, J$）が用いられており，本研究で用いている不変量Iに対して，$I = J^{2/3}\bar{I}_1$の変換が必要である．次に，未変形，乾燥状態（I=3, J=1）において，$\mu = -\infty$であるから，この状態を初期状態にはできない．このため，無応力状態（σ_{0ij}=0）での初期自由膨潤 J_0，言い換えれば，初期変形勾配 F_{0ij} = $J_0^{1/3}\delta_{ij}$（δ_{ij}はクロネッカーデルタ）を考え，式(4)と(5)より化学ポテンシャルの初期値μ_0を決定する(5)．このとき式(11)は，

$$\begin{aligned}\hat{W}' = J_0^{-1}\hat{W} &= \frac{E_\mathrm{d}}{6}J_0^{m-1/3}J^{m+2/3}(\bar{I}_1 - 3)\\ &+ \frac{E_\mathrm{d}}{6}J_0^{n-1}J^{n}(3J_0^{2/3}J^{2/3} - 3 - a\log J_0 J)\\ &- \frac{kT}{\upsilon}\left[(J - J_0^{-1})\log\frac{J}{J - J_0^{-1}} + \frac{\chi}{J_0^2 J}\right] - \frac{\mu}{\upsilon}(J - J_0^{-1})\end{aligned} \tag{13}$$

と展開できる．なお上式では，単位体積当たりの自由エネルギーとして，$\hat{W}$と区別するために$\hat{W}'$を定義している(5)．

化学ポテンシャルμの変化は，温度の変数を代用するなどして入力ファイル内で設定でき，初期値としてμ_0を与える．したがって，UHYPER 内では，J_0を初期値として，増分解析において引き渡される$\bar{I}_1$，J，μに対して，$\hat{W}'$の$\bar{I}_1$及びJに関する微分係数を与える．本研究では，解析例題として，膨潤平衡下での単軸引張解析を行う．このため，初期状態は無応力下での膨潤平衡状態であり，μ_0=0 としてJ_0を求め，μ=0 を保って単軸引張変形を解析する．

4. 解析モデル

開発した UHYPER を用いた基礎的解析として，膨潤平衡下での単軸引張を解析する．緒言で述べたように，拡張 F-R モデルの特徴は，膨潤誘起型のひずみ軟化を表現可能な点であり，本研究では，このひずみ軟化が生じるときの増分解析の安定性に着目し，以下に示す条件で解析を行う．

はじめに，解析に必要な材料定数は，無次元化されたヤング率$E_\mathrm{d}\upsilon/(3kT)$, スケーリング指数$m$と$n$, 係数$a$, Flory-Huggins の相互作用係数$\chi$の合計 5 個になる．Table 1 に示すように，天然ゴムに対する検討(10)を参考にして，低剛性から高剛性の場合について幅広く解析を行う．χについても，良溶媒から貧溶媒まで広く考慮して，それぞれの場合を調べる．

Table 1　Sets of material parameters used in this study(10).

$E_\mathrm{d}\upsilon/(3kT)$	m	n	a	χ
0.01	−0.3	−0.4	−2	0.2, 0.4, 0.6, 0.8
0.05	0	−0.4	−2	
0.1	0.3	−0.4	−4	

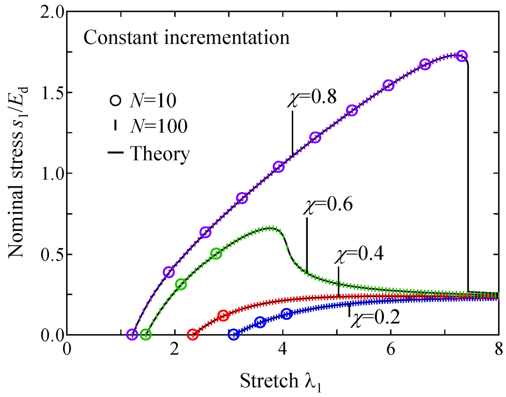
解析対象として，単位長さで構成される立方体の 1 要素を考える．要素タイプは，3 次元 8 節点 1 次のハイブリッド要素（C3D8H）とする．単なる 1 次要素（C3D8）を用いても，ほとんど同じ結果が得られるが，拡張 F-R モデルを用いた解析では，ほぼ非圧縮という変形状態も考えられ，よく使われる要素タイプであることから，この要素を用いる．

解析対象には，無応力下での膨潤平衡状態を想定し，μ_0=0 での体積膨潤比J_0を初期値として与える（J_0の値は材料定数の組み合わせに依存する）．つづいて，膨潤平衡下（すなわちμ=0）でのx_1方向への単軸引張を，この方向への伸びがλ_1 =8 になるまで与える．解析解は，式(6)と(7)を用いて求めることができるため，得られた結果の検証に用いる．

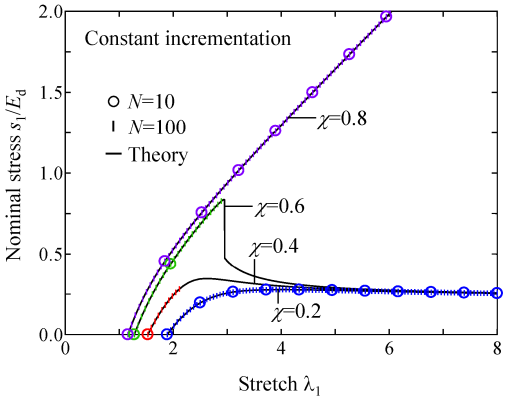
増分解析では，まず，解析区間をN等分する固定増分を考え，N=10, 100,…として解析を行う．Nを大きく取れば，一般に計算負荷は増える．一方，Nを小さくしすぎると，増分解析の途中で収束解が得られなくなり，解析は打ち切られる場合がある．本研究では，膨潤誘起ひずみ軟化発生前後の増分解析の安定化のために，人工粘性を導入し（*STATIC 解析における STABILIZE オプション），散逸エネルギー比を変化させて解析を行う(7),(9)．散逸エネルギー比が小さすぎる場合には，人工粘性は，影響を及ぼさず，効果的に作用しない．一方，大きくするとともに，増分解析は安定化するが，人工粘性の影響が強く入ってしまい．高剛性側に解析精度が悪くなる(9)．したがって，最適な値を試行錯誤的に調べる必要がある．本研究では，散逸エネルギー比の値 10^{ω}のωを整数値で変化させて解析を行う．さらに，自動増分を用いた解析も行い，人工粘性の導入に及ぼす相互作用効果を調べる．自動増分解析では，増分計算の破棄条件や増分量の再設定条件といった制御パラメータがあり，ディフォルト値を用いる(7)．本研究では, 初期増分と最大増分が, 固定増分におけるN=10（固定増分と区別するため，以後，N_0=10 と表す）に相当するようにし, 解析打ち切りのための最小増分は設定せずに解析を行う．

5. 解析結果

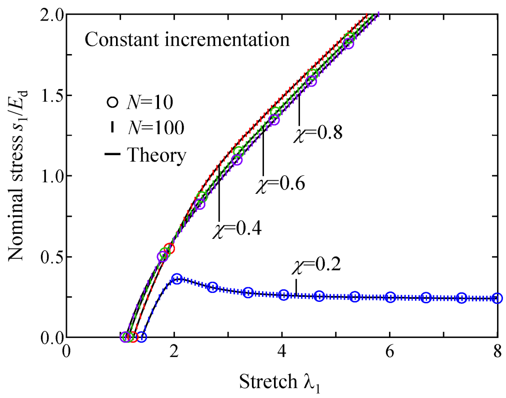
Fig.1 は，固定増分N=10,100 で人工粘性を用いずに解析を



(a) $E_d\upsilon/(3kT)$ =0.01, m =–0.3, n =–0.4, a =–2



(b) $E_d\upsilon/(3kT)$ =0.05, m =0, n =–0.4, a =–2



(c) $E_d\upsilon/(3kT)$ =0.1, m =0.3, n =–0.4, a =–4

Fig. 1　Stress-stretch responses of elastomers at equilibrium swelling under uniaxial tension without automatic incrementation and artificial damping, where solid lines are predicted from Eqs. (6) and (7), while Symbols ○ and | are obtained from Abaqus using N=10 and 100, respectively.

行った結果である．図中の実線は式(6)と(7)に基づく解析解であり，印 |（N=100）と印○（N=10）は有限要素解析の結果である．この図が示すように，材料定数の組み合わせに依存して良溶媒側からひずみ軟化が生じており，とりわけ，$E_d\upsilon/(3kT)$ =0.01 でχ=0.8 の場合や $E_d\upsilon/(3kT)$ =0.05 でχ=0.6 の場合には，急激な応力減少を伴ってひずみ軟化が生じている．分割数 N によらず，解析解と有限要素解析の結果はよく一致しており，開発した UHYPER は正しく動作していることが確認できる．しかしながら，印○や印 | が途中までしかない

Table 2　Influence of the total number of increments on the convergence of global iterations, where S and S(n_{inc}) represent success in the convergence until λ_1=8, where n_{inc} is the total number of increments under automatic incrementation analysis, while F(n_{inc}) indicates no convergence in the n_{inc}-th increment under constant incrementation analysis.

		Constant inc.		Automatic inc.
$E_d\upsilon/(3kT)$	χ	N=10	N=100	N_0=10*, ω=–12
0.01	0.2	F(3)	S	S(13)
	0.4	F(2)	S	S(13)
	0.6	F(3)	S	S(20)*
	0.8	F(10)	F(92)	S(97)
0.05	0.2	S	S	S(10)
	0.4	F(1)	F(10)	S(15)
	0.6	F(2)	F(25)	S(27)*
	0.8	S	S	S(10)
0.1	0.2	S	S	S(10)
	0.4	F(2)	S	S(12)
	0.6	S	S	S(10)
	0.8	S	S	S(10)

* Note that N_0=20 is used for the convergence especially for $E_d\upsilon/(3kT)$=0.01 and χ=0.6, and $E_d\upsilon/(3kT)$=0.05 and χ=0.6.

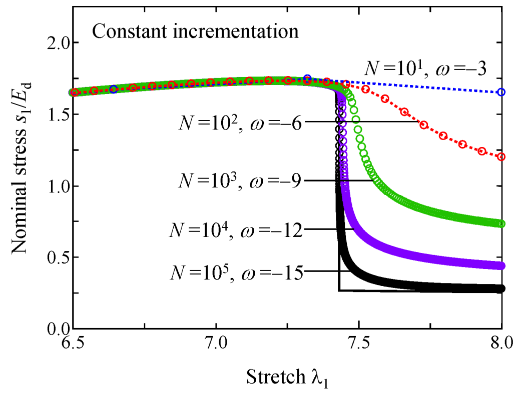


Fig. 2　Effects of artificial damping on constant incremental analysis for $E_d\upsilon/(3kT)$ =0.01, m =–0.3, n =–0.4, a =–2 and χ=0.8, where dissipated energy fraction 10^{ω} is optimized for total number of increments N.

結果があり，これらの解析では，次の増分の反復計算が収束せず，解析が打ち切られた（Table 2）．すなわち，基本傾向として，増分量が大きい場合（N =10）には，ひずみ軟化の開始前に打ち切りが生じ，小さい場合（N=100）にも，急激な応力減少を伴う解析では同様の打ち切りが生じた．この結果は，応力が急激に減少するパターンでは，ひずみ軟化の前後の応力状態が大きく離れており，N を大きく取ることは，収束解を得るための根本的な解決策にはならないことを示している．

最も急激な応力減少を示す $E_d\upsilon/(3kT)$ =0.01 かつχ=0.8 の解析を，人工粘性を導入して行った結果を Fig.2 に示す．図中には解析に用いた固定増分と散逸エネルギー比の値がそれぞれ示されている．この図は，まず分割数 N を決定し，散逸エネルギー比 を小さい値から大きな値に変えながらそれぞ

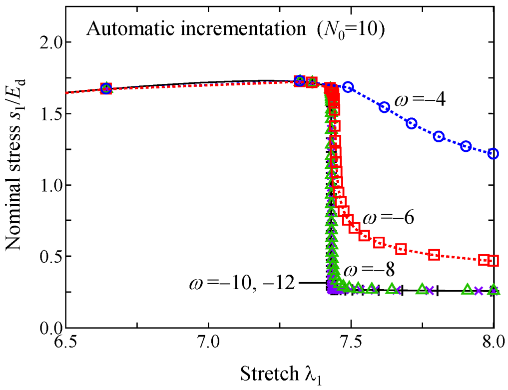


Fig. 3 Effects of artificial damping on automatic incremental analysis for $E_d\upsilon/(3kT)$ =0.01, m =–0.3, n =–0.4, a =–2 and χ=0.8, where N_0=10 is fixed and ω is parametrized using ω=–4, –6, –8, –10 and –12.

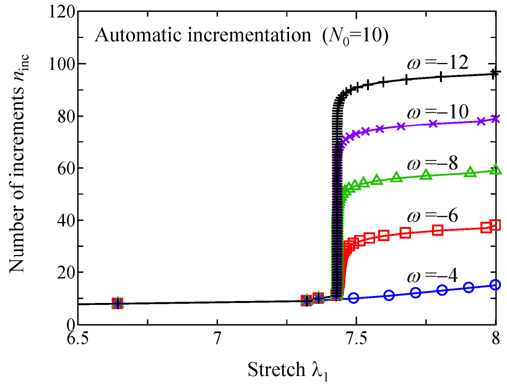


Fig. 4 Change in the number of increments n_{inc} as a function of stretch λ_1 in Fig.3.

れ解析を行い，解析が打ち切られずに最後まで進む場合のωを探索することによって作成された．粘性の影響によって，応力の急激な減少が抑制されるため，増分解析は打ち切られずに進むようになる．Nが小さい場合，すなわち増分が大きい場合には，収束解を得るために応力減少を強く抑制する必要があり，ωには大きな値が必要になる．一方，N が大きい場合には，相対的に弱い粘性でも収束解を得ることができるため，ωの値は小さくなる．したがって，人工粘性の値を最適化すれば，増分解析は安定化することがわかった．しかしながら，結果は分割数 N に大きく依存するようになり，解析解を高精度に再現するためには, N を非常に大きく取る必要がある（この解析では，N =10^5 以上を必要）．今回用いている単純な解析モデルに対して，このように膨大な分割数が必要であるとすると，大規模でより複雑な不均質変形を伴う問題への適用は困難になる．

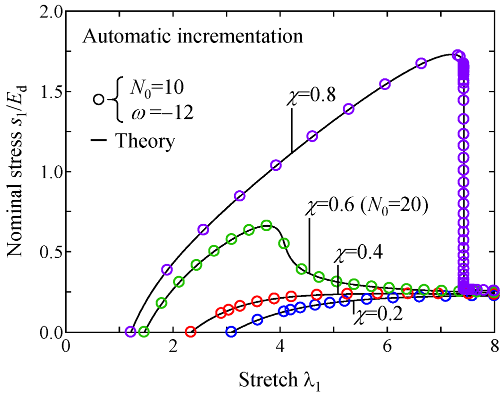
Fig.3 は, 自動増分と人工粘性を組み合わせ, $E_d\upsilon/(3kT)$ =0.01 かつχ=0.8 の解析を行った結果である．4 章で述べたように，自動増分の初期増分と最大増分は N_0 =10 に対応する値を用いた．この図は，固定増分と自動増分を用いる場合で，人工粘性の影響は大きく異なることを示している．すなわち，固定増分では，Fig.2 に示されるように，分割数 N と散逸エネルギー比ωには，明確な相関関係があり，N が大きいほど，ωは小さくなり，解析精度は改善していく．これに対して，自動増分では，Fig.3 に示されるように，ある一定以上に小さなωを用いれば，有限要素解析の結果はいずれも解析解とよく一致する．一方，この値以上の大きなωを用いると，大きくなるにしたがって，粘性の影響が強くなり，結果は解析解からずれていく．

Fig.3 に示されるような，自動増分と人工粘性の組み合わせによる相互作用効果は，次のように説明することができる．自動増分では，増分計算の破棄条件が設定されており，収束性の悪い増分区間では，収束性が良くなるまで，増分量を小さくしながら再計算を繰り返す．したがって，膨潤誘起ひずみ軟化の発生点に近づくと，再計算が繰り返され，増分量は小さくなってゆく．すると，人工粘性が効果的に作用する領域に増分量が入ってくるため，粘性の助けによって増分計算が収束し，この繰り返しで軟化前後の解析が進むようになる．Fig.4 は，解析途中の増分数 n_{inc} を伸びλ_1 の関数としてプロットしたものであり，膨潤誘起ひずみ軟化の発生する領域で増分量 n_{inc} が急上昇していることがわかる．ただし，n_{inc} が急上昇する場合でも，散逸エネルギー比が大きくなると，自動増分によって，増分が十分に細分化されるよりも前に，応力減少を抑制する形で粘性が作用してしまい，解析精度の低い結果が得られる場合がある．高精度な解析のためには，散逸エネルギー比ω=–8 以下が必要であり，ω=–8～–12 程度であれば，全体として増分回数（すなわち，λ_1 =8 での n_{inc}）は 100 未満であるから，解析は効率的に実行できるといえる．

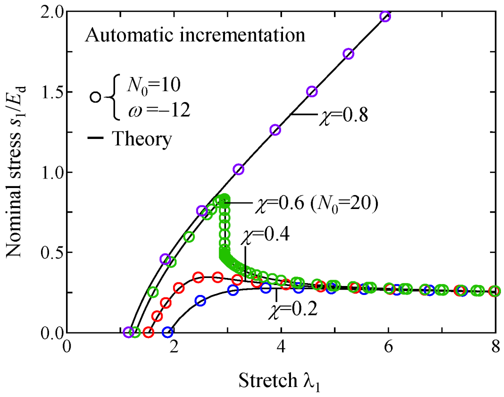
最後に，自動増分と人工粘性を用いて，Fig.1 と同じ解析を行った結果を Fig.5 に示す．この図が示すように，すべての場合で解析を最後まで行うことができた．このときに要した全体の増分数 n_{inc} を Table 2 に示す. 急激な応力減少が生じるところでは自動増分が機能して，増分が細かくなり，高精度な結果が得られる．一方，滑らかに応力減少を伴う場合には，増分はそれほど細かくならずに，解析は効率的に進んでいく．この解析では，散逸エネルギー比にはω =–12 の値を用いた．ただし，$E_d\upsilon/(3kT)$ =0.01 でχ=0.6，$E_d\upsilon/(3kT)$ =0.05 でχ=0.6 の場合には，膨潤誘起ひずみ軟化の開始前に解析の打ち切りが生じたため，自動増分解析の初期増分と最大増分を N_0 =10 から N_0 =20 に変更して再計算を行った．このケースでは，$E_d\upsilon/(3kT)$ =0.01 でχ=0.8 の場合と比較して，膨潤誘起ひずみ軟化の開始前までの解析領域が短いため，その間を分割するために比較的小さな初期増分が必要であったと考えられる．急激な応力減少を伴う場合には，材料定数の組み合わせに依存して，自動増分パラメータの調整値は異なるようであり，この点について，ほかの制御パラメータも含めて調整すれば，理解はより深まると考えられ，今後の課題といえる．

6. 結　言

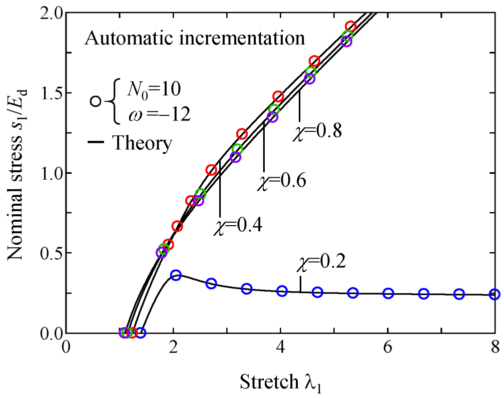
本研究では, 拡張 F-R モデルを有限要素解析ソフト Abaqus のユーザー材料サブルーチン UHYPER に実装し，基礎的な検討を行った．膨潤平衡下での単軸引張を解析することによって，開発した UHYPER の動作を検証した．UHYPER 内では，自由エネルギー関数の微分係数を単純にコーディングしているだけである．したがって，膨潤誘起ひずみ軟化が生じるときの増分解析の安定化に着目して検討を進めたところ，



(a) $E_d\upsilon/(3kT)$ =0.01, m =−0.3, n =−0.4, a =−2



(b) $E_d\upsilon/(3kT)$ =0.05, m =0, n =−0.4, a =−2



(c) $E_d\upsilon/(3kT)$ =0.1, m =0.3, n =−0.4, a =−4

Fig. 5　Stress-stretch responses of elastomers at equilibrium swelling under uniaxial tension with automatic incrementation and artificial damping, where solid lines are predicted from Eqs. (6) and (7), while Symbols ○ are obtained from Abaqus using N_0=10 or 20 and ω=−12.

固定増分を用いた解析では，急激な応力減少を伴う場合に収束解が得られなかった．人工粘性を導入すると，増分解析は安定化するが，解析を高精度化するためには，非常に小さな増分を必要とすることがわかった．これに対して，自動増分を用いた解析では，人工粘性との相互作用によって，効率的に高精度な解が得られることがわかった．ただし，適切な散逸エネルギー比を探索する必要がある．これらの知見は，拡張 F-R モデルを用いて大規模な有限要素解析を行う上で，非常に重要になると考えられる．

謝　　辞

本研究はJSPS科研費JP16H04234の助成を受けて行われた．ここに記して謝意を表する．

参考文献

(1) 例えば，T.L. Sun, T. Kurokawa, S. Kuroda, A.B. Ihsan, T. Akasaki, K. Sato, M.A. Haque, T. Nakajima, J.P. Gong: Physical hydrogels composed of polyampholytes demonstrate high toughness and viscoelasticity, Nature Materials, Vol.12, 2013, pp.932–937.

(2) 例えば，T. Tanaka, S.T. Sun, Y. Hirokawa, S. Katayama, J. Kucera, Y. Hirose, T. Amiya: Mechanical instability of gels at the phase transition, Nature, Vol.325, 1987, pp.796–798.

(3) S. Yang, K. Khare, P.C. Lin: Harnessing surface wrinkle patterns in soft matter, Advanced Functional Materials, Vol.20, 2010, pp.2550–2564.

(4) P.J. Flory, J. Rehner: Statistical mechanics of cross-linked polymer networks, II swelling, The Journal of Chemical Physics, Vol.11, 1943, pp.521–526.

(5) W. Hong, Z.S. Liu, Z. Suo: Inhomogeneous swelling of a gel in equilibrium with a solvent and mechanical load, International Journal of Solids and Structures, Vol.46, 2009, pp.3282–3289.

(6) M.K. Kang, R. Huang: A variational approach and finite element implementation for swelling of polymeric hydrogels under geometric constraints, The transactions of ASME Journal of Applied Mechanics, Vol.77, 2010, 061004.

(7) Abaqus 6.14 User Documentation, 2014, Dassault Systems SIMULIA Corporation.

(8) D. Okumura, T. Kuwayama, N. 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.

(9) D. Okumura, T. Inagaki, N. Ohno: Effect of prestrains on swelling-induced buckling patterns in gel films with a square lattice of holes, International Journal of Solids and Structures, Vol.58, 2015, pp.288–300.

(10) D. Okumura, A. Kondo, N. Ohno: Using two scaling exponents to describe the mechanical properties of swollen elastomers, Journal of the Mechanics and Physics of Solids, Vol.90, 2016, pp.61–76.

(11) G. Gee: The interaction between rubber and liquids. X. some new experimental tests of a statistical thermodynamic theory of rubber-liquid systems, Transactions of the Faraday Society, Vol.42, 1946, pp.B033–B044.

(12) L.R.G. Treloar: The Physics of Rubber Elasticity, 1975, Oxford University Press, Oxford.