

# 磁性粒子複合材料のせん断剛性変化

THE SHEAR MODULUS VARIANCE OF MAGNETO PARTICLE COMPOSITE

石川覚志<sup>1)</sup>, 津守不二夫<sup>2)</sup>, 小寺秀俊<sup>3)</sup>

Satoshi ISHIKAWA, Fujio TSUMORI and Hidetoshi KOTERA

1)株式会社メカニカルデザイン 名古屋支社 (〒460-0003 名古屋市中区錦3-5-27,ishikawa@mech-da.co.jp)

2)工博 京都大学 大学院工学研究科 (〒606-8501 京都市左京区吉田本町, tsumori@me.kyoto-u.ac.jp)

3)工博 京都大学教授 大学院工学研究科 (〒606-8501 京都市左京区吉田本町, kotera\_hide@me.kyoto-u.ac.jp)

Magneto-sensitive (MS) elastomers are a class of smart materials whose mechanical properties may be changed rapidly by the application of a magnetic field. Such materials typically consist of micron-sized ferrous particles dispersed within an elastomeric matrix. The equations governing deformations of these materials were discussed in a recent paper by numerical model. In the present paper we develop the governing equations for a more general form of constitutive model and provide alternative forms of the strain energy functions. The constitutive equation for the magnetic particle composite elastomer is applied on the pure shear experimental test. The results, which show the stiffening of the shear modulus response with increasing magnetic field strength, are illustrated graphically.

**Key Words** : Magneto Elastomer, Particle Composite Material, Finite Element Method,

## 1. はじめに

磁性エラストマーは、固体と液体の両方の特性を持つエラストマーに強磁性粒子を含ませて、外部磁場による機械的特性を変化させる磁性粒子複合材料として近年脚光を浴びており、工学的な利用方法の議論が盛んになっている。磁性エラストマーを使用して、実用化されている製品として、アクチュエータ・振動制御マウント・サスペンションブッシュなどがある[1,2]。これらは基本的に外部磁場による磁気双極子モーメントのエネルギー変化により、瞬時にせん断剛性を変化させることで、各製品の機能を満たしている。この外部磁場による剛性変化は、幅広い範囲での周波数領域に対応させることが可能である。さらに、磁場による剛性変化は磁場方向に依存するので、異方性の効果も期待できる[3]。

本報では、外部磁場の効果を含んだ超弾性体の構成則を示すと共に、磁場によるせん断剛性の変化を捉えられるひずみエネルギー関数の提案を行う。また、PDMSを用いた純せん断試験を行い、有限要素法解析による数値計算との比較を試みた。

## 2. 磁性エラストマーの構成則

磁性粒子複合材料である磁性エラストマーが磁場中に置かれた場合、個々の磁性粒子は外部磁場及び他の粒子が外部磁場により磁化することで生じる磁場の影響を受ける。この作用力はマクスウェルの応力 $T_m$ として、次式で定義できる[4]。

$$T_m = B \otimes H - U, \quad U = \frac{1}{2}(B \cdot H)I \quad (1)$$

ここで、 $B$ は磁束密度、 $H$ は磁場の強さ、 $U$ は電磁エネルギー密度、 $I$ は2階の単位テンソルである。物質中の透磁率 $\mu$ と磁化 $M$ の間には

$$B = \mu(H + M) \quad (2)$$

の関係がある。このマクスウェル応力は物体力としてエラストマーに作用する。

有限要素法解析を用いて、エラストマーのような超弾性体の応力場を解析する場合、ひずみエネルギー関数 $\Psi$ を用いて定式化される。本研究ではエラストマー中の磁性粒子の回転は非常に微小であるとして、局所回転による非対称性は考慮に入れないものとする。従って、ひずみエネルギー関数ならびにそこから得られる応力テンソルについても対称性の仮定の下で取り扱うことができる。このとき、真応力 $T$ は右コーシー・グリーン変形テンソル $C$ と体積変化率 $J$ を用いて、次式で得られる[5]。

$$T = J^{-1}F \frac{\partial \Psi}{\partial C} F^T \quad (3)$$

ここで、磁性粒子を複合した超弾性体のひずみエネルギー関数を、変形による機械的なひずみエネルギーと磁場のひずみエネルギーに分解すると

$$\Psi(C, B) = \Psi_{\text{mech}}(C) + \Psi_{\text{mag}}(C, B) \quad (4)$$

となる。

次に、不変量を基にしたひずみエネルギー関数における磁性エラストマーの応力テンソルの一般形を考える。ひずみエネルギー関数の客観性が失われなためには、磁場に関するひずみエネルギー関数の変数は、変形を表す右コーシー・グリーン変形テンソル $\mathbf{C}$ と、磁束密度のテンソル積 $\mathbf{B} \otimes \mathbf{B}$ で表される磁場構造テンソルの二つとなる。

$$\Psi_{\text{mag}} = \Psi_{\text{mag}}(\mathbf{C}, \mathbf{B} \otimes \mathbf{B}) \quad (5)$$

この二つの量を変数とすると、ひずみエネルギー関数はSpencerの不変量の理論[6]から次の6個の不変量を変数として持つ。

$$I_1 = \text{tr} \mathbf{C} \quad (6)$$

$$I_2 = \frac{1}{2} (\text{tr} \mathbf{C} \text{tr} \mathbf{C} - \text{tr} \mathbf{C}^2) \quad (7)$$

$$I_3 = \det \mathbf{C} \quad (8)$$

$$I_4 = \mathbf{B} \cdot \mathbf{C} \cdot \mathbf{B} = \mathbf{C} : (\mathbf{B} \otimes \mathbf{B}) \quad (9)$$

$$I_5 = \mathbf{B} \cdot \mathbf{C}^2 \cdot \mathbf{B} = \mathbf{C}^2 : (\mathbf{B} \otimes \mathbf{B}) \quad (10)$$

$$I_6 = |\mathbf{B}|^2 \quad (11)$$

$I_1, I_2, I_3$ は変形による機械的な不変量であり、 $I_4, I_5, I_6$ は材料内部の磁束密度ベクトルによる不変量である。これらの不変量は、異方性超弾性体構成則[7]と同じ取り扱いを行える。ただし、異方性超弾性体の場合、材料の強化配向方向は単位ユニットのベクトル量であるので不変量の数は5つであるが、磁性粒子を複合した超弾性体構成則の場合、磁束密度は方向だけでなくその量も重要な変数となるので、6番目の不変量 $I_6$ が適用される。

第2ピオラ・キルヒホッフ応力テンソル $\mathbf{S}$ は、ひずみエネルギー関数 $\Psi$ を右コーシー・グリーン変形テンソル $\mathbf{C}$ で微分することで応力場が得られるので、微分の連鎖則を用いると、

$$\mathbf{S} = 2 \frac{\partial \Psi(\mathbf{C}, \mathbf{B} \otimes \mathbf{B})}{\partial \mathbf{C}} = 2 \sum_{a=1}^6 \frac{\partial \Psi(\mathbf{C}, \mathbf{B} \otimes \mathbf{B})}{\partial I_a} \frac{\partial I_a}{\partial \mathbf{C}} \quad (12)$$

で得られる。各不変量の微分を行えば

$$\mathbf{S} = 2 \left[ \left( \frac{\partial \Psi}{\partial I_1} + I_1 \frac{\partial \Psi}{\partial I_2} \right) \mathbf{I} - \frac{\partial \Psi}{\partial I_2} \mathbf{C} + I_3 \frac{\partial \Psi}{\partial I_3} \mathbf{C}^{-1} + \frac{\partial \Psi}{\partial I_4} \mathbf{B} \otimes \mathbf{B} + \frac{\partial \Psi}{\partial I_5} (\mathbf{B} \otimes \mathbf{C} \mathbf{B} + \mathbf{B} \mathbf{C} \otimes \mathbf{B}) \right] \quad (13)$$

となり、最後の2項が磁場による項となる。

そして、非圧縮性の磁性超弾性体と考えたとき、通常の超弾性体と同様に等容性項のひずみエネルギー関数は体積変化を表す $I_3$ を省いた変数によって定義される。

$$\Psi = \Psi(I_1, I_2, I_4, I_5, I_6) \quad (14)$$

ここで、式(13)と式(3)の関係から、負の静水圧を $p$ とすると、機械的な応力と磁場的な応力の和として全真応力 $\mathbf{T}$ は

$$\mathbf{T} = p \mathbf{I} + 2 \left[ \left( \frac{\partial \Psi}{\partial I_1} + I_1 \frac{\partial \Psi}{\partial I_2} \right) \mathbf{b} - \frac{\partial \Psi}{\partial I_2} \mathbf{b}^2 + \mathbf{b} \frac{\partial \Psi}{\partial I_4} \mathbf{B} \otimes \mathbf{B} + \frac{\partial \Psi}{\partial I_5} (\mathbf{B} \otimes \mathbf{b}^2 \mathbf{B} + \mathbf{B} \mathbf{b}^2 \otimes \mathbf{B}) \right] \quad (15)$$

となり、ひずみエネルギー関数の微分項と左コーシー・グリーン変形テンソル $\mathbf{b}$ と材料内部の磁束密度で得ることができる。この式(15)の磁性エラストマーの応力テンソル $\mathbf{T}$ は異方性超弾性体の応力テンソルと等価であり、異方性超弾性体の接線剛性マトリックスにおける初期配置ベクトルを初期の磁束密度に置き換えることで、磁性エラストマーの応力-ひずみ関係を有限要素法解析で得ることができる。

また、磁場の強さと磁束密度の関係は

$$\mathbf{H} = 2 \left( \frac{\partial \Psi}{\partial I_4} \mathbf{B} + \frac{\partial \Psi}{\partial I_5} \mathbf{b} \mathbf{B} + \frac{\partial \Psi}{\partial I_6} \mathbf{b}^{-1} \mathbf{B} \right) = \mu_0^{-1} \mathbf{B} - \mathbf{M} \quad (16)$$

となる。

### 3. せん断試験

超弾性材料として、マイクロマシンの作製に一般的に用いられているPDMSを用いた。PDMSは構造材料としてのみならず、通気性の特徴を有することから機能性材料として用いられている。近年、Tsumoriら[8]は、PDMSに磁性材料である50nm粒径の鉄粉を混練し、外部磁界を利用して駆動する微小アクチュエータや機能素子を報告している。本研究でも同様の方法でPDMSに磁性材料を混練し、試験片を作製して実験に用いた。

磁性材料体積密度により、外部磁界に対する挙動が異なることから、0%、1%、2%の3種類の体積密度になるように試験片を作製し、純せん断試験を行った。その概要をFig.1に示す。治具に試験片を挟み、横幅20mm・高さ2mm・幅1mmとなるように細長い試験片を上下に引っ張ることで純せん断場とすることができる[9,10]。試験片にかかる磁場が幅方向に平行になるように、試験片の両端にネオマグ社製のNeFeBの永久磁石を配置し、磁石の距離を制御することにより試験片に与える磁場の強さを制御した。

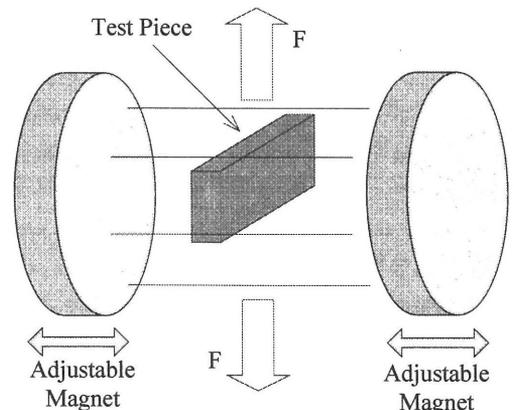


Fig.1 Concise figure of pure shear test

計測した変位と荷重から、ひずみと応力を計算し、それぞれの体積密度での試験片と各外部磁場における実験結果をFig.2に示す。磁性粒子を含まない試験片を磁場0Tの環境でひずみ0.8まで引っ張った場合の結果を記号なしの実線で示した。磁性粒子の体積密度が1%の試験片についての応力-ひずみ線図を、磁場がない状態を○で、磁場0.25Tの状態を△で、磁場0.4Tの状態を□でプロットした。また、磁性粒子の体積密度が2%の試験片についての応力-ひずみ線図を、磁場がない状態を●で、磁場0.25Tの状態を▲で、磁場0.4Tの状態を■でプロットした。

各試験片と磁場を変更した条件での応力-ひずみ線図から算出した見かけの弾性定数をTable 1に示す。見かけの弾性定数は、各応力-ひずみ線図が単一のゴム材料のせん断試験結果であるとして、その線図からNeo-Hooke体の材料物性値を同定し、その値から換算した。磁性粒子の弾性定数が母剤のPDMSよりも弾性定数が大きいため、磁場を与えない状態においても、磁性粒子の体積密度が大きいほど見かけの弾性定数は大きくなっている。また、この剛性増加は、マトリックスの連続相に微粒子が不連続相として分散する粒子複合の効果に寄るものとも考えられる。

Fig.3に横軸に体積密度、縦軸に見かけの弾性定数を取り、磁場がない状態を●で、磁場0.25Tの状態を▲で、磁場0.4Tの状態を■でプロットした。いずれの外部磁場の状態でも、見かけの弾性定数が磁性粒子の体積密度にほぼ線形に比例している結果となった。また、外部磁場が大きいほど、剛性変化率が大きいことが明らかとなっている。

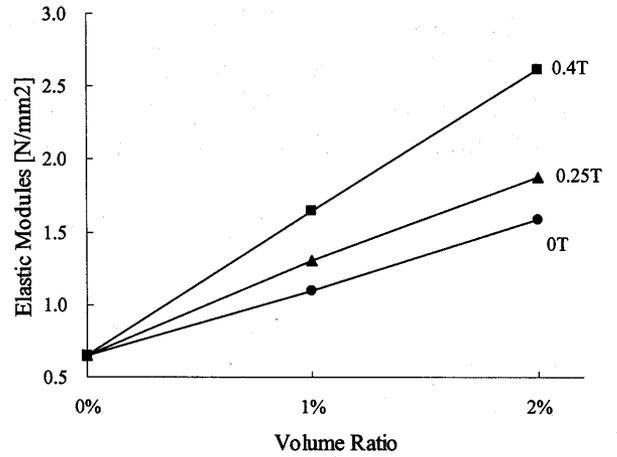


Fig.3 Ground-state Elastic Modulus

#### 4. 有限要素法解析

外部磁場による磁歪に対する初期応力は微小であり、材料中の磁束密度は均一であり、変形後も同じ方向を向いていると仮定すると、そのひずみエネルギー関数には、式(11)の不変量 $I_6$ が磁場に関する不変量として適用される。磁束密度に依存するせん断剛性の式に修正Neo-Hooke則を用いて、有限要素法に組み込んだ。ひずみエネルギー関数を以下に示す。

$$W(I_1, I_6) = \frac{1}{q} G(I_1 - 3)^{q/2} \quad (17)$$

ここで、 $G$ はせん断剛性であり、 $q=2$ の時、式(17)は単純なNeo-Hooke則となる。本研究では、 $G$ 、 $q$ 共に不変量 $I_6$ を変数として持ち、 $G$ はLangevin関数の形式とし、 $q$ は二次関数形式とした。

$$\begin{aligned} G(I_6) &= G_0 + G_1 \cdot \mathcal{L}(G_2 \cdot I_6) \\ &= G_0 + G_1 \left[ \coth(G_2 \cdot I_6) - \frac{1}{G_2 \cdot I_6} \right] \end{aligned} \quad (18)$$

$$q(I_6) = q_0 + q_1 \cdot I_6 \quad (19)$$

本研究で提案するひずみエネルギー関数は、磁場に依存しない物性値 $G_0$ 、 $q_0$ と磁場に依存する物性値 $G_1$ 、 $G_2$ 、 $q_1$ の5つの物性値を取る。基本となるひずみエネルギー関数はNeo-Hooke則の変形であるので、せん断変形による応力-ひずみ関係の理論解は容易に得られる。その理論解と実験値から近似解法を用いて、材料物性値を算出できる。

数値計算には汎用有限要素法プログラムMSC.Marcを用いた。ひずみエネルギー関数は通常の有限要素法には用意されていない型式であるので、ユーザーサブルーチンを用いて組み込んだ。なお、本来であれば磁場と応力場を連成させて解析できる点が有限要素法の大きな利点であるが、今回の問題では単調な磁束密度変化を与えるだけであるので、磁束密度を状態変数として扱い、境界条件として磁束密度変化を与えた。有限要素法による解析結果と実験結果をFig.4, Fig.5, Fig.6に示す。実験値について、磁場なし

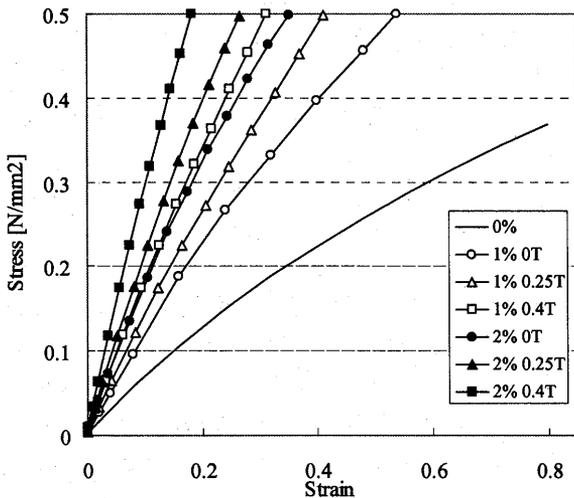


Fig.2 Experimental test of pure shear test with Magnetic field

Table 1 Ground-state Elastic Modulus

	0T	0.25T	0.4T
0%	0.6506	0.6506	0.6506
1%	1.0955	1.3090	1.6454
2%	1.5898	1.8827	2.6195

を○記号で, 0.25Tを△記号で, 0.4Tを□記号でそれぞれ示した。有限要素解析による解析結果について, 磁場なしを破線, 0.25Tを実線, 0.4Tを一点鎖線で示した。いずれの体積密度の試験片においても, 提案したエネルギー関数による数値計算結果は実験値と良く一致している。

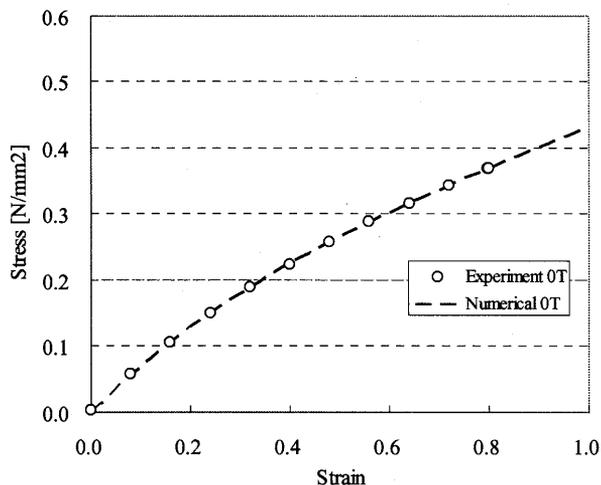


Fig.4 Pure Shear Test 0% material

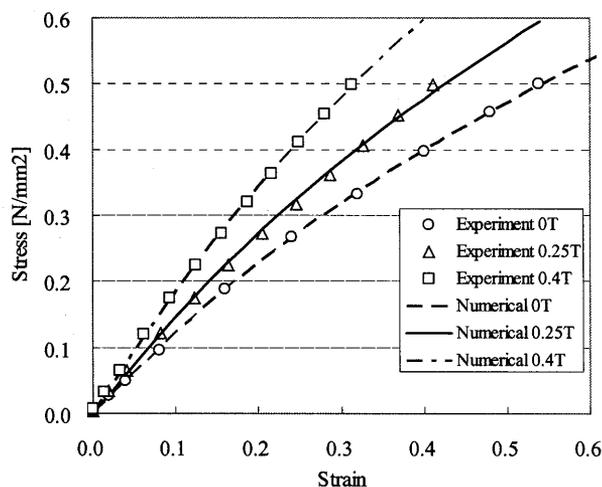


Fig.5 Pure Shear Test 1% material

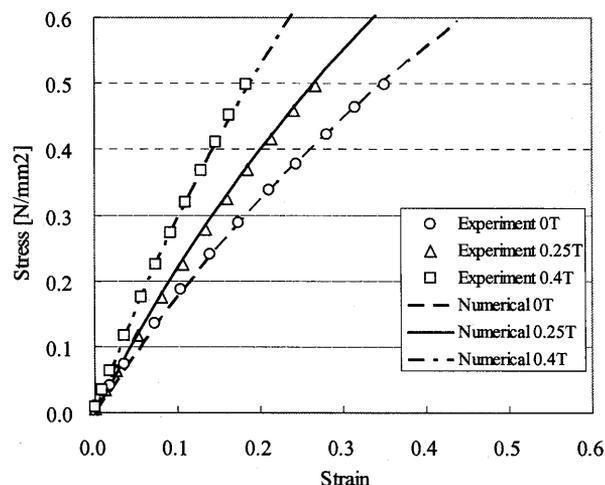


Fig.6 Pure Shear Test 2% material

## 5. まとめ

磁性粒子をエラストマーに複合させた磁性エラストマーの挙動を有限要素法で取り扱うための超弾性体の構成則を導出し, その有効性を検討した。磁性エラストマーを超弾性体として扱うためには, そのひずみエネルギー関数が磁束密度に依存し, 剛性変化を取り扱えるように定式化する必要がある。外部磁場による剛性変化は, 印可磁場力が大きくなることにより鎖状構造を保つための機械的エネルギーが増加するためと考察される。本報で取り扱った磁性粒子を含有したPDMSでは, 磁性粒子の含有体積密度が大きいくほど, 見かけの弾性定数がほぼ線形の関係で大きくなることと, 外部から与える磁場の強さが大きいくほど, 剛性変化率が大きくなることを確認した。

本報で提案したひずみエネルギー関数では, 磁気飽和により剛性変化が見られなくなる現象を取り扱うことも可能である[11]。基本となるひずみエネルギー関数はNeo-Hooke則を用いているので, その材料定数の算出も容易に行え, 定量的にも実験値と一致する結果を得ることができた。

## 参考文献

- 1) Ginder, J.M., Nichols, M.E., Elie, L.D., Tardiff, J.L. : Magnetorheological Elastomers: Properties and Applications, Smart Materials Technologies, ed. By Wuttig, M., pp131-138, 1999
- 2) Watson, J.R.: US Patent 5609353, 1997
- 3) Varga, Z., Filipcsei, G., Szilágyi, A., Zrínyi, M. : Magnetic field sensitive functional elastomers with tuneable elastic modulus, Polymer, Vol.47, pp227-233, 2006
- 4) 今井功: 電磁気学を考える, サイエンス社, 1990
- 5) Ogden, R.W. : Non-linear Elastic Deformations. Dover, New York, 1997
- 6) Spencer, A.J.M : Continuum Physics Vol.1, Eringen, A.C. Ed., Academic Press, New York, Part III Theory of invariants, 1971
- 7) 石川覚志, 徳田明彦, 小寺秀俊: 機械学会論文集A, Vol.74, No.740, pp.543-549, 2008
- 8) Tsumori, F., Miyano, N., Fukui, A., Sagawa, K., Kotera, H.: Development of Deformable Micropillar Array using Magnetic Particles and Elastic Material, Proceeding of Intelligent Processing and Manufacturing of Materials, 2007
- 9) Treloar, L.R.G : Stress-strain data for vulcanized rubber under various types of deformation, Trans. Faraday Soc., Vol.40, pp57-70, 1944
- 10) 日本ゴム協会: ゴム試験法[第3版], 丸善株式会社, pp.224-225, 2006
- 11) 石川覚志, 小寺秀俊: 日本機械学会第21回計算力学講演会論文集, pp295-296, 2008