

# 膜の座屈による皺パターン

## Wrinkle Patterns on Buckled Membranes

内田 就也  
Nariya UCHIDA

東北大学 大学院理学研究科 物理学専攻  
Department of Physics, Tohoku University

### 1 緒論

弾性体の座屈問題は Euler の安定性解析に始まる長い歴史を持つ [1]. その最も基本的な例である, 軸に平行な圧縮力を受けた細い棒は, 力が長さの逆 2 乗, 直径の逆 4 乗に比例する臨界値を超えたとき, 曲げに対して不安定となる. 座屈したあとの棒の平衡形状は, Euler による解析解が *elastica* として知られている. 棒に比べると 2 次元弾性体, すなわち膜の座屈形状の解析は少しく困難である. 膜の大変形を記述する方程式は 4 階非線形連立偏微分方程式となり, その解は数値的にのみ得られることが多い. 一方, 我々の身のまわりにおいて, 弾性膜の座屈問題は, 乗物のボディーや耐圧容器の設計に際して重要となるほか, 紙をくしゃくしゃに丸めたときの皺のパターンにも関連がある. また皮膚の皺なども, 基板上に接着した膜の座屈として捉えることができる. 近年, このような皺の力学に対する物理からのアプローチが盛んになって来ている [2, 3, 4, 5, 6]. 力学的に見たとき, 弾性膜の大変形パターンを構成する基本要素は, 弾性エネルギーが集中する線状領域 (リッジ) である. リッジは紙の皺における折れ目 (山折れ, 谷折れ) に相当する. ただし紙の折れ目は塑性変形して鋭角的になっているのに対し, 弾性膜のリッジは曲げ弾性のために丸みを帯び, その曲率は, 曲げと面内歪みの 2 種類の弾性エネルギーのバランスで決まる. リッジ (尾根) という呼称は, それが両端点をピークとする吊尾根のような形状を持つことによる. Witten ら [2] のスケーリング理論によると, 長さ  $l$  のリッジの弾性エネルギーは  $l^{1/3}$  に比例する. 多数の同様なリッジを含む皺パターンでは, 1 本のリッジあたりの面積は  $l^2$  だから, 単位面積あたりの弾性エネルギーは  $l^{-5/3}$  に比例する.

本論文では, 弾性膜の座屈によって生じる皺パターンの特徴を議論する. これはリッジ間の相互作用の解析に帰着するが, 特にここで着目するのはリッジの方向自由度である. 四囲から等方的な圧力を受けて座屈する膜においては, 皺が特に走りやす

い方向はなく、すべての方向が等価である。自発的対称性の破れによって特定の方向に皺が生じ、他の皺と合体成長して座屈が進行する。この過程はベクトルスピン系の相転移ダイナミクスとのアナロジーで理解することができる。ここでスピン変数となるのは膜の勾配ベクトルであり、シアー歪みはスピン間の有効長距離相互作用を媒介することが示される。本論文ではシアー歪みの役割を明示するため、弾性膜と、シアー弾性を持たない模型的な「流体膜」を比較しながら議論を進める。

## 2 モデル

本論文では弾性膜の可逆変形を、膜厚が変形の特徴的な長さに比べて十分小さい薄膜極限で取り扱う。変形する前の膜は  $xy$ -平面上にあったものとして、膜を構成する各点の変位を  $U = U(x, y) = (u, h) = (u_x, u_y, h)$  とする。また、変形によって生じる膜の勾配は小さい、すなわち  $|\nabla h| \ll 1$  と仮定すると、力学的平衡条件下において歪みの水平成分

$$U_{ij} = \frac{1}{2} (\partial_i u_j + \partial_j u_i) \quad (1)$$

は  $O((\nabla h)^2)$  の微小量になることが、三平方の定理から容易に導かれる。このことを利用して Cauchy の歪みテンソルを水平成分について線形化し、

$$E_{ij} = \frac{1}{2} [\partial_i u_j + \partial_j u_i + (\partial_i h)(\partial_j h)] \quad (i, j = x, y) \quad (2)$$

とするのが、いわゆる Föppl-von Kármán (以下 FvK) 近似である [7]。この近似では膜の弾性エネルギー  $F$  は歪みエネルギー  $F_s$  と曲げエネルギー  $F_b$  の和として表され、前者は

$$F_s = \int dx dy \left( \frac{\lambda}{2} E_{ii}^2 + \mu E_{ij}^2 \right) \quad (3)$$

の形を取る。ここに  $\lambda$  と  $\mu$  は 2 次元 Lamé 定数であり、 $K = \lambda + \mu$  が面内での等方的な変形 (面積変化) に対する弾性率、 $\mu$  が面内シアー弾性率である。曲げ弾性エネルギーは膜の平均曲率  $H = (\nabla^2 h)[1 + O((\nabla h)^2)]$  の 2 乗に比例するが、再び  $O((\nabla h)^2)$  の項を無視するならば

$$F_b = \frac{\kappa}{2} \int dx dy (\nabla^2 h)^2 \quad (4)$$

で与えられる。曲げ弾性率  $\kappa$  は膜厚の 3 乗に比例することが示されている。

次に変形のダイナミクスについて、本論文では overdamped な方程式

$$\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} = -L_u \frac{\delta F}{\delta \mathbf{u}}, \quad \frac{\partial h}{\partial t} = -L_h \frac{\delta F}{\delta h} \quad (5)$$

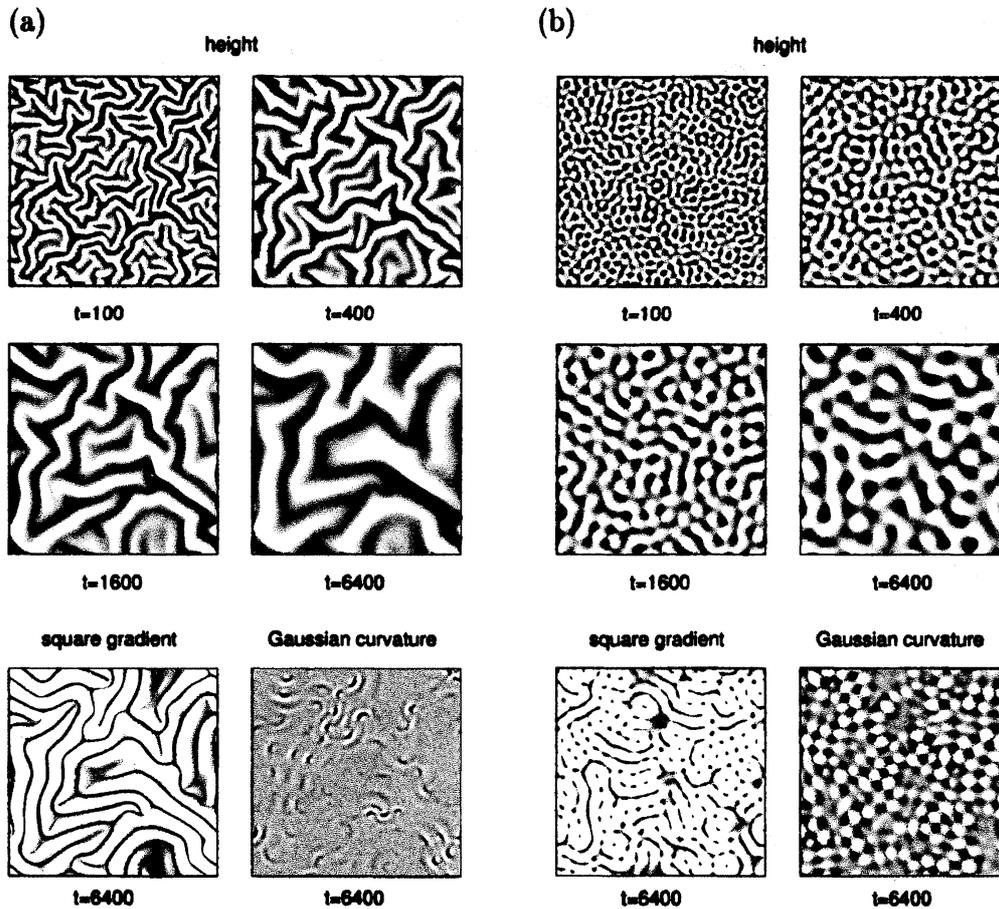


図 1: 膜の高さ  $h$  のスナップショット (時間発展), および時刻  $t = 6400$  における 2 乗勾配  $(\nabla h)^2$  と Gauss 曲率  $\det(\nabla \nabla h)$ . (a) 弾性膜 ( $K = 2, \mu = 1$ ). (b) 流体膜 ( $K = 2, \mu = 0$ ). グレースケールは, 高さ と Gauss 曲率は正 (負) の所が明色 (暗色), 2 乗勾配は 0 の点が黒となるよう取った.

を仮定する. このような模型的なダイナミクスを採用する理由には, 数値計算の単純化のためという側面もあるが, 後述するように, 相転移ダイナミクスとのアナロジーからスケーリング則を検証することができるという利点もある. 制御パラメータとしては水平歪みの空間平均  $\bar{U}_{ij}$  を取る. 時刻  $t = 0$  に等方的な圧縮  $\bar{U}_{ij} = U\delta_{ij}$  ( $U < 0$ ) を与えて固定し, その後の座屈パターンの時間発展を見ることにする. これは弾性膜を枠にはめて, 瞬間的に枠を狭めることに対応している. シミュレーションにおいては  $U(x, y)$  に周期境界条件を仮定した. 用いたパラメータ値は, 格子長, 時間ステップをそれぞれ長さ, 時間の単位に取ったとき, 格子サイズ  $512^2$ , 時定数  $L_h = L_u = 0.01$ ,  $\kappa = 0.01$  である. シアー弾性の役割を調べるため, 弾性膜  $(\lambda, \mu) = (1, 1)$  と「流体膜」 $(\lambda, \mu) = (2, 0)$  の 2 つの場合についてシミュレーションを行なった.

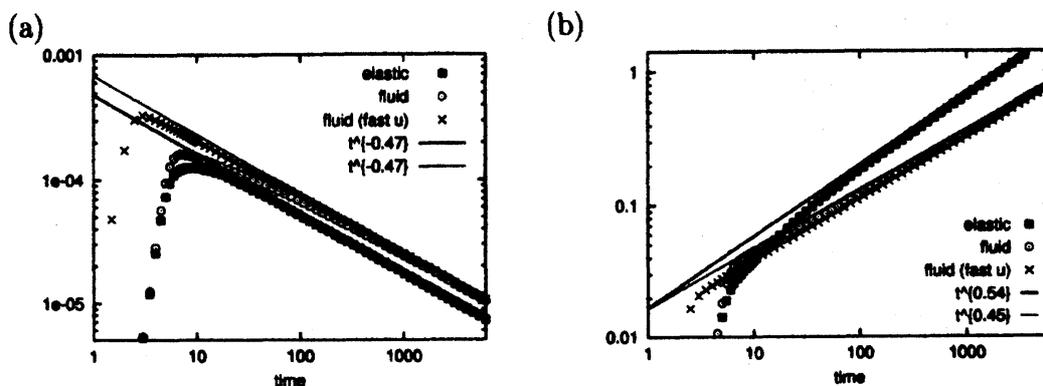


図2: (a) 曲げ弾性エネルギー及び (b) 高さの2乗平均の時間発展. 実線はべき乗則によるフィッティング. fluid (fast u) とあるのは流体膜に対する有効な動力学方程式 (10) を解いた結果.

### 3 成長ダイナミクス

弾性膜と流体膜のそれぞれについて、座屈後の皺パターンの時間発展の様子を図1 (上段と中段) に示す. 図1下段に示す  $(\nabla h)^2$  のプロットから、弾性膜では線状のリッジ、流体膜では等方的な丘状の構造がパターンの基本単位であることが分かる. また弾性膜では Gauss 曲率のゆらぎが抑えられていることに注意する. 皺の成長の初期においては、勾配  $|\nabla h|$  が平衡値  $\sim \sqrt{|U|}$  に緩和して歪みエネルギーを解放する一方、曲げエネルギーは増加する. その後、曲げエネルギーを減少させるため皺パターンは粗大化していく. 曲げエネルギー  $F_b$  および高さ  $h$  の2乗平均を図2に示す. グラフから分かるように、これらの量は粗大化過程を通じてべき乗則

$$F_b \propto t^{-\alpha} \quad h \propto t^\beta \quad (6)$$

でよくフィットされる. べき指数は弾性膜では  $(\alpha, \beta) = (0.47, 0.54)$ , 流体膜では  $(\alpha, \beta) = (0.47, 0.45)$  であった.

弾性膜に対するべき乗則は、前述のリッジ描像によって説明することができる. 実際、弾性エネルギー  $F$  が平均のリッジ長  $L$  の  $3/5$  乗に比例することと、overdamped なダイナミクス  $dL/dt \propto F/L$  とを組み合わせれば、 $L \propto t^{3/11}$ , したがって  $\alpha = 6/11 = 0.545\dots$ ,  $\beta = 5/11 = 0.454\dots$  となる [3]. 上の数値シミュレーション結果はスケーリング描像を支持していると言える.

次に流体膜のべき乗則を理解するために、水平変位  $u$  は垂直変位  $h$  に隷属する速い変数であると仮定して、これを断熱的に消去する. 具体的な計算は次節に示すが、その結果は勾配ベクトル

$$m = \nabla h \quad (7)$$

に対する有効的な運動方程式として次の形に表すことができる。

$$\frac{\partial m}{\partial t} = \Gamma \left( \overline{U_{ii}} + \frac{1}{2} \overline{m^2} \right) \nabla^2 m - \Gamma \kappa \nabla^2 \nabla^2 m. \quad (8)$$

この式は、有効ハミルトニアン

$$H = H[m] = \frac{1}{2} \int dr \left[ \lambda \left( \overline{U_{ii}} + \frac{1}{2} \overline{m^2} \right) m^2 + \kappa (\nabla m)^2 \right] \quad (9)$$

を用いて、 $\partial m / \partial t = \Gamma \nabla^2 \delta H / \delta m$  の形に書き直すこともできる。これは相転移ダイナミクスで言うところの保存系 XY モデルの式とよく似ているが、ハミルトニアンの 4 次の非線形項が空間平均を含んでいる点が大きく異なる。実際、このグローバル結合のため、この系にはベクトルスピン系のような位相欠陥が存在しない。粗大化過程の後期において、方程式 (9) の右辺第一項は空間各点でほぼ同じように 0 に近づく。このことから次元解析が適用できて特徴的な長さが  $L \sim t^{1/4}$  となることが予想される。これは  $\alpha = \beta = 1/2$  を意味するが、数値的に得られた指数は  $1/2$  より若干小さい。このずれの理由は明らかではないが、2次元 Laplace 方程式の基本解が距離に対数的に依存することと関連した有限サイズ効果である可能性がある。なお、上の有効モデルを直接数値的に解いた結果は図 2 において fluid (fast u) として表示している。これは、成長過程の初期を除いて、最初のモデルの結果とよく一致しており、水平変位を速い変数として消去することを正当化している。

#### 4 方向相関

本節では、水平変位  $u$  を断熱的に消去した有効モデルを用いて弾性膜の皺パターンを解析する。FvK 自由エネルギーは  $u$  について線形なので、力学的つりあいの方程式  $\delta F / \delta u = 0$  は  $u$  について完全に解くことができ、その結果を  $F$  の表式に代入することで、有効自由エネルギーが膜の勾配  $m$  の汎関数として得られる。その結果、歪みエネルギーは次の形になる。

$$F_s = \int dr \left[ \frac{\lambda}{2} \left\{ \left( \overline{U_{ii}} + \frac{1}{4} \overline{m^2} \right) m^2 \right\} + \mu \left\{ \left( \overline{U_{ij}} + \frac{1}{4} \overline{m_i m_j} \right) m_i m_j \right\} + \frac{\mu(\lambda + \mu)}{2(\lambda + 2\mu)} \left\{ m^2 - \frac{\nabla_i \nabla_j}{\nabla^2} (m_i m_j) \right\}^2 \right] + \text{const.} \quad (10)$$

ここで被積分因子の第 1 行目は前節の流体膜の場合と同じ、非線形項がグローバル結合となった XY モデルの形をしている。一方第 2 行目において  $1/\nabla^2$  は Laplacian の逆演算子であるが、膜の Gauss 曲率  $\det(\nabla \nabla h)$  を用いて  $m^2 - \nabla_i \nabla_j / \nabla^2 (m_i m_j) = (1/\nabla^2) \det(\nabla \nabla h)$  と書き直せることに注意する。すなわち第 2 行目は、膜の各点での Gauss 曲率の間に、シア歪みを介した長距離斥力が働くことを意味する。このことから、弾性膜において Gauss 曲率のゆらぎが抑制されるという前節のシミュレーション

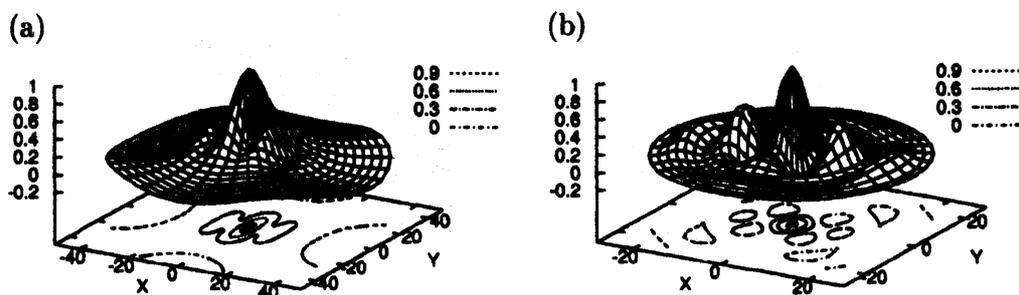


図 3: (a) 弾性膜および (b) 流体膜の相対方向相関関数  $G_{\text{rel}}(X, Y)$ .  $t = 1600$  におけるスナップショットから計算したもの (10 サンプルの平均). 縦軸は  $G_{\text{rel}}(0) = 1$  となるよう規格化してある.

ン結果が理解される. この有効相互作用はまた, リッジの方向相関に影響を与える. これを示すためにまず, リッジの方向は概ね  $m$  に垂直であり, また, 反転  $m \rightarrow -m$  に対して不変であることに注意する. このことから, 方向自由度をテンソル

$$Q_{ij} = m_i m_j - \frac{1}{2} \delta_{ij} \quad (11)$$

の形で取り出すのが都合がよい. これは  $m = m(\cos \theta, \sin \theta)$  とすれば  $Q_{xx} = -Q_{yy} = (m^2/2) \cos 2\theta$ ,  $Q_{xy} = Q_{yx} = (m^2/2) \sin 2\theta$  で与えられる, 対称かつトレースが零のテンソルである. 有効自由エネルギー (11) を Fourier 表示すると,  $|q_i q_j Q_{ij}|^2$  に比例する項が現れるが, これは  $Q_{ij}$  の空間相関を異方的にする. たとえば  $Q_{xx}$  については,  $x$  方向と  $y$  方向の相関が抑えられる. これを勾配ベクトル  $m$  の相関で言うと,  $m$  に平行および垂直な方向の相関が抑えられることを意味している. 一方  $m$  に対して斜め方向の相関は比較的長い距離まで持続する. このような, 各点での  $m$  の方向に対して相対的な異方性を定量化するため, 次の相対方向相関関数を定義する.

$$G_{\text{rel}}(X, Y) = \langle Q_{ij}(\mathbf{r}) Q_{ij}(\mathbf{r} + \mathbf{R}) \rangle, \quad \mathbf{R} = (X \cos \theta(\mathbf{r}), Y \sin \theta(\mathbf{r})), \quad (12)$$

ただし  $\theta(\mathbf{r})$  は上記したように  $m(\mathbf{r})$  の角度である. この相関関数の  $X$  軸および  $Y$  軸に沿った値はそれぞれ, 局所的な勾配ベクトルに対して平行および垂直な方向の相関を記述する. 弾性膜と流体膜のそれぞれについて, 数値シミュレーションの結果から計算した相関関数を図 3 に示す. 弾性膜については  $X$  および  $Y$  軸上では, 相関距離の約 2~4 倍の距離にあたる領域で相関が負になっている一方, 斜め方向では相関はすべての距離にわたって正である. これは上記の弾性相互作用の異方性から予想される傾向と一致する. 対照的に, 流体膜についてはすべての方向で振動的な相関が見られる.

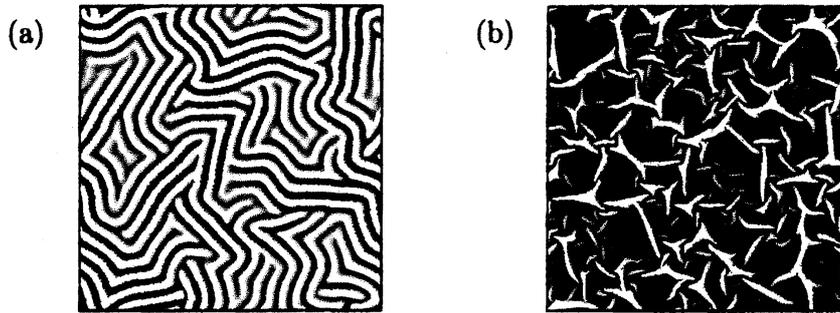


図4: 基板上的の膜の座屈パターン。(a) ソフト基板上的のマイクロ座屈。(b) ハード基板からの剥離。いずれも粗大化過程における高さ  $h$  のスナップショット。グレースケールは (a) では明色が  $h > 0$ , 暗色が  $h < 0$  に, (b) では  $h = 0$  が黒に対応。

## 5 基板上的の弾性膜の座屈

前節までの結果から分かるように, 単独の膜の場合, 平衡状態における座屈パターンの特徴的な長さは境界条件のみによって決まる。パターン自体も境界の形状に強く依存するため, 理論と実験の比較の上では単独膜は必ずしも理想的な系とは言えない。一方, 基板によって支持された膜を座屈させた場合, 基板の変形がパターンの成長を止めるか遅くするため, パターンの統計的な特徴が比較的良好に観察されている。また, 支持膜の場合, 座屈は基板と膜の熱膨張係数の差を利用して, 温度変化によって引き起こすことができる。高温で接着した基板と膜を冷却したとき, 基板の収縮率が膜より大きければ, 基板は膜に水平方向の圧力を及ぼすからである (パイメタルの原理)。このような実験系の例として (i) ゴムのようなソフト基板上的の膜のマイクロ座屈 (ii) 金属, ガラスのようなハード基板上的の膜の剥離の2つが挙げられる。(i) の典型的な例ではエラストマー基板に厚さ数十 nm の金属ナノ薄膜を蒸着したものが用いられる。膜は基板に接着したまま座屈変形し,  $\mu\text{m}$  オーダーの幅を持つ緻かなる迷路状パターンが得られている [8]。(ii) の例では mm オーダーの厚さの金属蒸着膜が座屈して基板から剥離し, 剥離した部分は細い網目状につながったパターンを形成する [9]。

このような基板上的の座屈の最も簡単なモデルとして, 膜と基板との相互作用を垂直ばねで置き換えたものを考える。基板の変形や剥離の非可逆性は考えないものとして, 前節までの膜のモデルに, 高さ依存するポテンシャル  $V(h(r))$  を加える。具体的には, ソフト基板の場合, 線形ばねを仮定して

$$V(h) = \frac{\gamma}{2} h^2, \quad (13)$$

ハード基板の場合, 線形ばねが臨界長  $h_c$  で切れると仮定して,

$$V(h) = \frac{\gamma}{2} (h^2 - h_c^2) \theta(h_c - h) \quad (14)$$

なるポテンシャルを用いた ( $\gamma$  はばね定数,  $\theta(x)$  は階段関数). それぞれに対してシミュレーションから得られたパターンを図 4 に示す. (i) のマイクロ座屈におけるストライプの幅  $w$  は, ばねのエネルギーと曲げ弾性のバランスから,  $w \sim (\kappa/\gamma)^{1/4}/\sqrt{|U|}$  と見積もられる. ストライプの向きの相関距離は時間とともに成長し,  $\sqrt{\gamma/\mu}$  を超えると前節で述べた有効相互作用が支配的となって異方的相関が顕著となる. 一方 (ii) の剥離においては核生成型の時間発展が見られた. 初期条件として斑点状の剥離パターンを与えたところ, 大きな斑点だけが線状に伸長し, その両末端に Y 字型分岐が形成された. この構造は, 前節でのリッジに相当する. その後, このリッジ状ドメインが伸長, 連結して全体としては網目状の剥離パターンとなった. 網目のサイズや網の太さは時間と共に増大するが, その発展則については今後の課題である. また, 実験で観察されている蛇行したリッジの成因についても検討の余地が残されている.

## 6 結論

本論文では, 弾性膜の座屈による縞パターンについて, 歪みが小さいという条件の下で, 連続体モデルによる数値シミュレーションを行なった. リッジ描像によるスケーリング理論を再検証した上で, シアー弾性が媒介する有効長距離相互作用によって縞の異方的方向相関が生まれることを示した. またポテンシャル中での座屈の例として, 基板で支持された膜のマイクロ座屈および剥離のモデルを考察した. これらの結果は今後, 大変形および不可逆変形を扱う上で基礎になるとと思われる.

本研究は科学研究費補助金「ソフトマターにおける方向自由度と粘弾性の協同効果」を受けて行なわれた. 本研究の詳細は論文 [10] およびその他に発表予定である.

## 参考文献

- [1] A. E. H. Love, "A Treatise on the Mathematical Theory of Elasticity", 4th Edition (Dover, New York, 1944).
- [2] T. A. Witten and H. Li, *Europhys. Lett.* **23**, 51 (1993); A. E. Lobkovsky *et al.*, *Science* **270**, 1482 (1995); E. M. Kramer and T. A. Witten, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 1303 (1997); B. A. Didonna and T. A. Witten, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 206105 (2001).
- [3] D. Moldovan and L. Golubović, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 2884 (1999); *Phys. Rev. E* **60**, 4377 (1999).
- [4] M. Ben Amar and Y. Pomeau, *Proc. R. Soc. Lond. A* **453**, 729 (1997).

- [5] S. Chaieb and F. Melo, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 2354 (1998); E. Cerda and L. Mahadevan, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 2358 (1998); E. Cerda *et al.*, *Nature (London)* **401**, 46 (1999); E. Cerda and L. Mahadevan, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 074302-1 (2003).
- [6] A. Boudaoud *et al.*, *Nature (London)* **407**, 718 (2000); B. Audoly and A. Boudaoud, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 086105-1 (2003).
- [7] L. D. Landau and E. M. Lifshitz, *Theory of Elasticity* (Pergamon, Oxford, 1986).
- [8] For a review, see: G. Giola and M. Ortiz, *Adv. Appl. Mech.* **33**, 119 (1997).
- [9] N. Bowden *et al.*, *Nature (London)* **393**, 146 (1998); N. Bowden *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **75**, 2557 (1999); D. B. H. Chua *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 721 (2000).
- [10] N. Uchida, *Physica D*, in press.