

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 7 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K14011

研究課題名(和文)セメント系材料のレオロジー挙動の焦点性に基づくビンガム流動特性の実態解明

研究課題名(英文)Elucidation of essential rheological property of Bingham fluid based on the focal point formation among flow curves of fresh cementitious materials

研究代表者

岸 利治 (KISHI, TOSHIHARU)

東京大学・生産技術研究所・教授

研究者番号：90251339

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、フレッシュセメントモルタルにおいて、高分子分散剤(SP)の添加量を変化させた場合のビンガム流動群がせん断速度-せん断応力関係の負の領域で焦点を結ぶことから、その規則性に基づいて、回転粘度計内流動速度分布の変化を考察するとともに、流体の有する静的なくつき力と粘度で表される動的な摩擦との関係を考察した。また、核磁気画像共鳴法(MRI)を用いて回転二重円筒間のサスペンションの流動速度分布を測定した既往の文献のデータを分析することにより、流動速度分布がべき乗則ではなく、物理的な意味を有した二次関数ないし三次関数で定式化できることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：It is known that rheological property of fresh cement mortar with superplasticizer shows Bingham fluid character which has plastic viscosity and yielding value. It is also found that the linear shear strain and shear stress relationship of these Bingham fluids which have different plastic viscosities due to different dosage of superplasticizer cross and form clear focal point in the third quadrant. In this research it was found that this focal point shifts linearly according to the dynamic change between local shear strain and apparent one. Consequently, it is hypothesized that the position of focal point on its locus is changed according to clearance between rotor and outer wall of the rotating viscometer. Further, detailed data of non-linear flow rate distribution in space detected by MRI in the published literatures were analyzed in this research and it was found that they can be clearly represented by quadratic function or cubic one.

研究分野：コンクリート工学

キーワード：コンクリート フレッシュ レオロジー ビンガム流動 流動曲線 焦点 流動速度分布 二次関数

1. 研究開始当初の背景

モルタル・コンクリートのフレッシュ性状は、施工性や硬化後のコンクリート品質に大きな影響を及ぼす極めて重要な特性である。モルタルないしペーストレベルでの流動特性はレオロジーとして把握するのが一般的であり、様々な粘度計やレオメーターが使用されている。しかし、これらの評価手法によって同定された物性値の用途は、定量的な相対比較や定性的な特徴の把握に留まっており、精緻な流動解析に資するものとはなっていない。そもそも、モルタル・コンクリートのような高濃度の凝集分散系流体の流動を精緻に記述できる構成則が確立していない。水に代表されるニュートン流体では、せん断応力とせん断速度の比例関係が成立しており、その流動は粘度を用いて記述できる。一方、モルタル・コンクリートは非ニュートン流体の一つであるビンガム流動を示すと考えられているが、その挙動はかなり複雑である。せん断応力とせん断速度の比例関係が成立しないビンガム流動の特性は、塑性粘度や降伏値といったレオロジーパラメータや流動曲線によって規定されるが、流動挙動の定式化を特に困難にしているのが、チクソトロピーと称される粘度の時間依存性である。チクソトロピーとは、せん断により時間の経過に伴って粘度が減少し、静置により粘度が回復する現象と捉えられているが、その実態には不明な部分が多く、その特性を定式化するための糸口も掴めていないのが現状である。

2. 研究の目的

(1) 上記のような背景の下、申請者らは従来のレオロジーに基づく解釈では、少なくともモルタル・コンクリートが示すビンガム流動とチクソトロピーの本質を正確に理解することは困難と考え、従来とは異なる手法によるデータの分析を試みて、高分子分散剤 (SP) の添加量を変化させた場合のビンガム流動群がせん断速度 - せん断応力関係の負の領域で規則性の基点となる焦点を結ぶことを確認した。従来の理論では、ビンガム流動は塑性粘度と降伏値という2つのレオロジーパラメータ、すなわち、せん断速度 - せん断応力関係における第一象限に限定した規則性として特徴付けられていたのに対して、申請者らが確認した新たな実験事実は、ビンガム流体の規則性を負の領域である第三象限にまで拡張することに他ならない。また、規則性の基点となる焦点は時間の経過に伴って移動することから、チクソトロピーの本質を理解するためには、焦点性に関わる規則性を深く理解する必要があると考えられる。このように、従来の解釈とは大きく異なる視点に基づき、従来の理論にとらわれない斬新なアプローチによって、ビンガム流動の実態に迫るのが本研究の目的である。そこで、まず、せん断速度 - せん断応力関係におけるビンガム流動の第三象限における焦点性につい

て実験データの積み上げを図り、仮説の検証を行う。そして、焦点軌跡の規則性から、ビンガム流動の実態、特にチクソトロピーの実態を明らかにする。これらの取り組みを通して、従来のレオロジーのうち、ビンガム流動理論の解釈の拡張を試みた。

(2) 流動性を評価するために、回転粘度計を用いた流動曲線の測定が一般的に行われているが、その測定においては、単純ずりが成り立つという仮定の下、見掛けせん断速度とせん断応力関係を評価している。ところが、近年、核磁気画像共鳴法 (MRI) を用いて回転二重円筒間の流動速度分布が計測されるようになると、流動場は非線形であり、実験条件によって流動域と不動域に分かれる場合があることが様々な流体において報告されている。さらに、セメントペーストを対象とした研究において、流動域と不動の域境界は不連続で、critical shear rate と呼ばれるロータの回転速度によらない一定の傾きを持つが、それは従来までのビンガムモデルや Herschel-Bulkley モデルでは表現することが出来ない現象であると報告されている。

セメントペーストに限らず、現在まで考察されている流動モデルの多くは、流動曲線の測定に基づく、見掛けせん断速度とせん断応力の関係から導かれているが、単純ずりが成り立つことを仮定して得られた値がもとになっている。したがって、見掛けの値ではなく実測値として得られる、流動速度分布に基づいた流動モデルの構築が必要であると考えられる。これに関して、まずは二次関数を用いて流動速度分布が近似可能であることを明らかにしたが、その検証は不十分であると考えられた。そこで、二次関数形をもとに二重円筒間における流動現象の理解を深めることを目的として、二次関数形の意義を確認し、広く用いられているべき乗則との比較を通じて、実測された種々の速度分布を表現可能であることを示すとともに、二次関数形を用いることで種々の流動曲線を導出した。

3. 研究の方法

(1) 多くの流体の流動曲線を比較的広いずり粘度で表すことが可能で、かつ形式が簡易であるために広く用いられているべき乗則モデルと二次関数によるモデルを比較することとした。表-2 にそれぞれの関数形を示す。なお、ロータ中心からの距離を r 、流動停止端の位置を r_c としており、二次関数における、 r やべき乗側における r 、 m は材料定数である。流動速度分布の形状に関しては、Raynaud らにより、一定の critical shear rate を持つことが報告されている。両関数形においてそれぞれ $V(r)$ を微分し $r=r_c$ を代入すると二次関数形は $V(r) = a(r-r_c)^2 + b(r-r_c) + c$ となり定数になるのに対し、べき乗則は $V(r) = a/r^m$ となり、 r_c はロータの回転速度に応じた変数であるため、一定値であることを表現できない (表-1)。

表-1 フィッティングに用いる関数形

二次関数	べき乗則
$V(r) = \alpha(r_c - r)^2 + \beta(r_c - r)$	$V(r) = \alpha \left\{ \left(\frac{r}{r_c} \right)^{-m} - \left(\frac{r}{r_c} \right) \right\}$

表-2 両関数形の一階微分と二階微分

	二次関数	べき乗則
一階微分	$-\beta$	$\alpha(m+1)/r_c$
二階微分	2α	$\frac{\alpha m(m+1)}{r_c} \left(\frac{r}{r_c} \right)^{-(m+2)}$

表-3 対象とした論文及び材料

Author	Material
Raynaud et al. (2002)	3.2% Bentonite suspension
Coussot et al. (2002)	Soft-Glassy materials
Roussel et al. (2004)	3.2% Bentonite suspension
Wasenius et al. (2005)	46% PMMA core-shell latex
Jarny et al. (2008)	W/C35% Cement paste
Gabriele et al. (2009)	Sunflower oil
Rodts et al. (2005)	Foam
Ragouilliaux et al. (2006)	Drilling mud
Drappier et al. (2006)	Surfactant solutions

表-4 残差分散の算出結果

種類		二次関数	べき乗
Soft-Glassy materials	(a)Bentonite	1.78E-06	1.08E-06
	(b)Bentonite	5.706E-06	3.136E-06
	(c)Mayonnaise	1.181E-05	3.477E-06
	(d)Silica	9.714E-07	4.877E-07
	(d)honey	3.868E-06	3.178E-06
	(e)Cement paste	1.31E-06	1.73E-06
3.2% Bentonite suspension		2.69E-06	3.13E-06
46% PMMA core-shell latex	1Hz, 2Hz	4.565E-08	1.334E-08
	0.16, 0.8Hz	1.246E-08	1.652E-08
W/C35% Cement paste		8.74E-06	1.07E-05
Sunflower oil		1.354.E-06	1.595.E-06
Foam		2.076E-05	8.560E-06
Drilling mud		1.31E-06	1.73E-06

また、二次関数は二階微分を取ると -2 となり定数になる。(表-2)これは速度の傾きの変化率、すなわち速度の減衰の割合(減衰率と呼ぶこととする)が で表されることを示している。べき乗則においては速度分布における材料定数、mの物理的意味は明確ではない。したがって、式の形としては非常に簡易な形式でありつつも、 が減衰率を示し、 が critical shear rate そのものを示す二次関数形の方が、流動場を表現するに当たって適切であると考えられる。そこで本検討ではMRIによって速度分布が測定されている事例をまとめ、べき乗則とフィッティングの誤差の比較を行うこととした。

4. 研究成果

(1) 表-3 に示した、種々の流体に対し二次関数とべき乗則による近似を行い、残差分散の平均値による比較を行った。速度分布の形状について、部分流動である場合には相似性を有する可能性があるという報告があることを踏まえ、速度分布の相似性を確認するために、フィッティングに際して、流動停止端あるいは、二重円筒間で全域流動しているものに対しては外円筒の位置を原点に取り直したグラフを用いてフィッティングを行った。

表-4 に残差分散の算出結果を示した。誤差が小さい、すなわち精度の良い方を黄色で示している。残差分散の比較からは必ずしも二次関数による近似が優れているとは言えないが、広く用いられているべき乗則と同様に、二次関数形においても種々の流体の速度分布を近似可能であることが確認された。また、速度分布の相似性に関して、全域流動していない場合であっても必ずしも速度分布は相似にならないことが確認された。ただし、泡の速度分布に関して、ロータの回転速度が遅い場合には相似性を有しており、回転速度が速く、流動停止端が外壁に近い 80rpm で速度分布がずれていることから、速度分布が相似になる条件は、部分流動であるだけでなく、回転速度が一定以下であることが必要であると考えられる。原因として、流動停止端が外壁に達せずとも、近くなると外壁の影響を受け、流動性が変化する可能性が考えられる。また、セメントペーストについては、二つのグループに分かれているようであるが、回転速度の大小によるものではない。速度分布の測定に際して、各回転速度において新しく練った試料を用いていることが理由であると考えられるが、すべての回転速度で別々の形状になるのではなく、二つのグループに分かれていることは興味深い。理由については不明であるが、微妙な配合条件などの差で流動機構が二種類に分かれ、それぞれ相似形の速度分布を持つに至った可能性が考えられる。

(2) 次に、二次関数形を用いた場合の流動曲線の導出を行った。速度分布が相似であることを踏まえ、同じ材料では を一定とする。

また壁面における Non-slip 条件を用いると、ニュートンの粘性法則よりロータ壁面におけるせん断応力は次式で表される。

$$\tau = \mu \left(\frac{\dot{\gamma}(r_1 - r_0)}{r_0} + \sqrt{\beta^2 + 4\alpha\dot{\gamma}(r_1 - r_0)} \right) \quad (1)$$

(ただし r_1 は外円筒の位置、 r_0 はロータ壁面の位置、 $\dot{\gamma}$ は見掛けのせん断速度を表す。)

一般的な流動曲線の形式に合わせて横軸に見掛けせん断速度、縦軸にせん断応力を取ったグラフを描くと図-1 のようになり擬塑性流動を表現することが可能である。特に、

の値が小さい場合はグラフの非線形性が小さくなりビンガム流動に近づく。そして、

の値がともに小さい場合、ニュートン流動を表現できることが確認された。ここで、

の値が小さいとは速度の減衰率が小さいということであり、速度分布形状は単純ずに近づくが、同時にこれは流動曲線が線形に近づくことを意味する。また で表される critical shear rate は、特定のせん断速度以下では不動になるという意味を持つので、降伏値と関連があると考えられる。実際二次関数から導かれる速度分布では、せん断速度が 0 の時のせん断応力が粘性係数 $\mu \times$ で表されている。すなわち の値が小さくなれば、降伏値も小さくなるためニュートン流動に近づくことになる。以上のように、二次関数形を仮定すると、ニュートン流動、ビンガム流動、擬塑性流動といった種々の流動曲線が導出でき、その挙動は、 の物理的な意味とも合致していることが確認された。

(3)表-4 の結果によれば、多くの流動速度分布は二次関数で表現することができるが、べき乗則で表現する方が残差分散が少ないものも多い。そこで、更に検討を進めたところ、このような流動速度分布は三次関数で表現するのが最も適切であることが明らかとなった。そして、二次関数および三次関数の何れよりもべき乗則で表現する方が依然として僅かに残差分散が少ないものについては、二次関数と三次関数の間の遷移過程である可能性が高いことも明らかとした。また、本研究で着目した流動曲線群が結ぶ焦点の軌跡は、流体の有する静的な“くっ

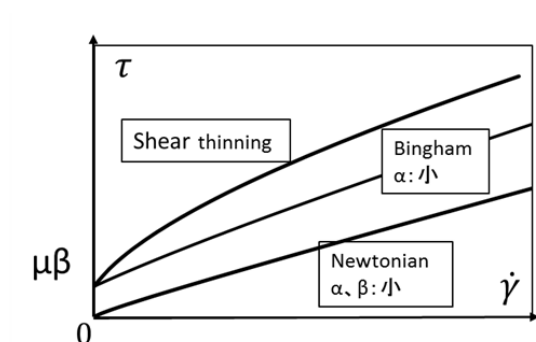


図-1 二次関数を用いた場合の流動曲線

つき力”と粘性で表される動摩擦力との関係であり、回転粘度計のローターと外壁間のクリアランスが狭ければ、レオロジーで想定する単純ずりの仮定に近づいて焦点位置は焦点軌跡の Y 切片に近い第二象限に位置するが、クリアランスが広いと流動速度分布の非線形性が大きくなって、焦点位置は第三象限に位置することを明らかとなった。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 3 件)

佐藤成幸, 岸利治, 二重円筒内の流動速度分布とせん断応力 - せん断速度関係の定式化に関する検討, コンクリート工学年次論文集, 査読有, Vol39.No1, 2017 (登載決定)

山崎慈生, 岸利治, 二重円筒間のセメントペーストの流動特性と粒子分散系の流動速度分布に関する研究, コンクリート工学年次論文集, 査読有, Vol38.No1, PP1341-1346, 2016

http://data.jci-net.or.jp/data_html/38/038-01-1219.html

松本利美, 岸利治, モルタルのビンガムモデル近似直線の焦点性およびその軌跡に及ぼす散剤種類の影響, コンクリート工学年次論文集, 査読有, Vol38.No.1, pp1365-1370, 2016

http://data.jci-net.or.jp/data_html/38/038-01-1223.html

〔学会発表〕(計 2 件)

佐藤成幸, 岸利治, 二次関数形に基づいた二重円筒内の流動速度分布に関する検討, 第 71 回セメント技術大会, 2017 年 5 月 29 日、ホテルメトロポリタン、池袋

佐藤成幸, 岸利治, 二重円筒内における流動速度分布の二次関数形による定式化, 第 44 回土木学会関東支部技術研究発表会, 2017 年 3 月 8 日、埼玉大学、さいたま市

6. 研究組織

(1)研究代表者

岸 利治 (KISHI, Toshiharu)
 東京大学・生産技術研究所・教授
 研究者番号：90251339

(2)研究分担者

なし ()
 研究者番号：

(3)連携研究者

なし ()
 研究者番号：

(4)研究協力者
なし()