

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年5月25日現在

機関番号：32665

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K05485

研究課題名(和文)ペーストの記憶の外的擾乱に対する非線形応答を用いた破壊と材料物性の制御

研究課題名(英文) Control of crack formation and material property by using nonlinear response of memory in paste under external perturbations

研究代表者

中原 明生 (NAKAHARA, Akio)

日本大学・理工学部・教授

研究者番号：60297778

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：塑性流体である高濃度固液混合ペーストが揺れや流れや磁場の方向を記憶し、その記憶に従って壊れやすい方向が決まる現象のメカニズム解明を試みた。記憶の刷り込みと書き換えの実験を系統的に行い、数理モデルのシミュレーションを行った。その結果、揺れの記憶は揺れによってペースト内に異方性を持った残留張力が発生することで、流れの記憶は引力によって構成されたコロイド粒子のネットワークが流れの方向に平行に引き伸ばされることで、磁場の記憶は磁性コロイド粒子が磁場下で配向や配列してその向きが磁場の方向に揃うことで形成されることが分かった。逆にペーストに超音波を照射することで記憶を消去し壊れにくくする結果も得られた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

我々が安全な日常生活を送るためには破壊現象の理解と制御は不可欠である。通常予測不能な破壊がいつどのように起きるかまで制御できる例として、建築資材などの固液混合材料に対し事前に振動や流動や磁場などの外場を加えることで割れやすい方向を記憶させることに我々は成功してきた。本研究では、ペーストの記憶を司るメカニズムの解明を行うとともに、超音波照射で記憶を消去することで壊れにくい材料を作成する手法を開拓した。

研究成果の概要(英文)：Due to its plasticity, a densely packed colloidal suspension, called a paste, remembers the direction of its vibration, shear and magnetic field, and these memories control preferential directions for cracks to propagate. To reveal the mechanism of this memory effect of paste, systematic experiments to imprint and rewrite memories in paste and numerical simulations based on theoretical models are performed. It is shown that a memory of vibration is kept as a residual tension along the vibration inside plastic media and a memory of shear is maintained as an elongated clusters of colloidal particles along shear direction. As for a memory of magnetic field, X-ray CT scan reveals that magnetic colloidal particles rotate and move to make chains toward the direction of magnetic field. These structures called memories in paste control the crack formation. By irradiating ultrasonic waves to paste, we find that memories in paste are erased and the breaking strength of the material increases.

研究分野：物性物理学

キーワード：破壊の制御 レオロジーと塑性変形 亀裂パターンの多様性と普遍性

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

破壊現象とは、我々が安全な日常生活を送るためには理解し制御すべき工学的にも非常に重要な研究課題であるとともに、理学的にも非平衡非線形物理学の代表例と言われる難しい研究テーマでもある。破壊現象を理解するための一連の研究の中で、塑性流体である高濃度固液混合材料(ペースト)は揺れや流れなどの己の動きを記憶し、その記憶はペーストを乾燥させた時に発生する亀裂パターンの形状として視覚化されるという現象(ペーストのメモリー効果)が研究代表者によって約10年前に発見された。具体的には、ペーストが揺れを記憶した場合にはペーストは揺れた方向に対し垂直な方向に割れやすくなり、一方ペーストが流れを記憶した場合には流れに平行な方向に割れやすくなることが示された。この現象は、理学的にはソフトマターのレオロジーの基礎的な問題として多くの研究者の学問的な興味を引き、なぜペーストが過去の動きを記憶できるか塑性流動の観点から盛んに議論されるとともに、工学的にはペースト内の記憶を制御することによって亀裂の伝播方向や形態を制御するなど破壊の制御へと応用できることが示され、破壊現象の研究が一層促進されるきっかけとなった。

### 2. 研究の目的

本研究では、理学の基礎研究としてペーストのメモリー効果のメカニズム解明を目標に掲げ、ペーストがなぜ揺れや流れなどの己の動きを記憶できるのか、なぜその記憶によって割れやすい方向が決まるのかを調べる。研究代表者によるこれまでの継続的な研究により、ペーストは揺れや流れだけでなく印加された磁場の方向も記憶し磁場に平行な方向に割れやすくなること、また、超音波照射によってペースト内の記憶を消去し特定の方向に割れやすい状態を解消することも見出された。そのため、理学的な研究目標として、揺れや流れや磁場などの各種の外場を印加することによりペースト内に記憶がどのように形成されるかそのメカニズムを解明するとともに、超音波照射によってペースト内の記憶が消去されるメカニズムも解明する。

工学的な研究目標としては、ペーストのメモリー効果を用いて亀裂の進行を誘導する破壊の制御手法を実用化し、超音波照射によって構造が均一で壊れにくい材料を作成する手法も確立する。これらの研究成果は、コンクリートなどの建築資材の製法や3Dプリンターで得られる成型物の積層構造の平滑化など、幅広く工学的な応用へとつながるものであると期待できる。

ペーストのメモリー効果は未来に発生する破壊の制御などの応用だけでなく、ペースト内の記憶を読み解くことによって過去にペーストが体験した出来事を見出せる可能性も示唆している。例えば地球物理学的には岩石の亀裂パターンや内部構造として解読できる記憶を調べることによって過去に起きた地震や流動化現象の痕跡を検出する手法も提案し試行する。

### 3. 研究の方法

本研究では、まず理学的な実験研究として、ミクロンサイズの粉と水を混ぜた固液混合ペーストに揺れや流れや電磁場などの外場を体験させ、その後外場の印加を停止し乾燥させて亀裂を発生させることで、外場の体験がどのような形で記憶として残り乾燥亀裂パターンとして可視化されるか一連の実験を行うことで、ペーストがどのような条件下で何を記憶しているのか系統的に調べた。ペーストが外場を記憶するメカニズムを解明するために、外場を体験し記憶する段階でのペーストの流体としてのレオロジー特性(粘性率、塑性を意味する降伏応力)を粘弾性測定装置で測定するとともに、その後乾燥して亀裂が発生する段階でのペーストの固体材料特性(弾性率、破壊強度、およびそれらの方向依存性)を万能試験機で3点曲げ法を行い測定した。ペースト内の記憶の強さや状態を検出するために別の外場を加えてその応答を調べる手法も行った(記憶の書き換え実験)。ペースト内に外場の記憶がどのように保存されているかを直接見る手法として、X線CT撮影を用いた非破壊観察も行った。また、すでに何らかの外場を記憶して特定の方向に割れやすくなっているペーストに超音波を照射することで記憶を消去し、特定の方向に割れやすい状態を解消することもわかってきたので、照射する超音波の周波数や強度をコントロールして記憶消去の条件を調べた。

理学的な理論研究としては、ペーストのメモリー効果のメカニズムの解明のために、数理モデルに基づくシミュレーションを行い、実験結果と比較をした。揺れの記憶に関してはすでに残留張力理論に基づく数理モデルが国内の複数の研究グループから提案されているので、本研究で行う書き換え実験の結果と比較することで理論の妥当性の検証を行った。流れの記憶に関しては、本研究によって複数の離散粒子モデルに基づくシミュレーションを行って実験結果の再現にチャレンジした。

工学的な応用研究としては、まずペーストに外場を加えて割れやすい方向を記憶させるだけでなく、いったん特定の方向に割れやすくなっているペーストにあとから別の外場を印加してペースト内の記憶を書き換え、割れやすい方向を変更するという実験を行った。また、超音波照射で記憶を消去しペースト内の構造を均一化して特定の方向に割れやすい状態を解消したということはペースト全体としては割れにくくなっていると予想されるので、破壊強度が増加しているか検証した。これらの手法を建築資材に用いられるセメントやコンクリート固液混合ペーストに応用して壊れにくい頑丈な建築資材を製造するとともに、3Dプリンターなどの積層状の造形物の平滑化にも応用を試みた。地球物理学の分野では大規模な再現実験は大変だが、岩石の記憶から過去の大地震・流動化・地殻変動などの履歴を読み出せれば有効な手法となる。

#### 4. 研究成果

本研究では、塑性流体である高濃度固液混合ペーストが揺れや流れや磁場の方向を記憶し、その記憶に従って亀裂の伝播しやすい方向が決まる現象（ペーストのメモリー効果）のメカニズムを解明するとともに、この現象を破壊や材料物性の制御に応用し、また過去の履歴の解読にも役立てることを目指した。

まず、揺れの記憶のメカニズムの解明のために、ある方向に揺らされて揺れの記憶を持ったペーストに対し別の方向に揺らして記憶を書き換える実験を行った。その結果、新たな方向に2周期分以上ペーストを揺ると、ペースト内の古い記憶は新しい記憶に書き換わることが分かった。当時揺れの記憶のメカニズムとして振動下での塑性変形が残留張力の起因になっていたとした2種類の数理モデルが提案されていた。ひとつは準線形解析モデルであり、満員電車で例えば急ブレーキすると電車の後方で乗客間の距離が広がるようにペーストに加えられた揺れが止まったタイミングで振動方向に引張りが残留した領域では残留張力が発生し揺れに垂直な方向に割れやすくなると予測していた。もうひとつの非線形解析モデルでは剪断変形によってペースト全体に張力が発生するため場所によらず揺れに垂直な方向に割れやすくなると主張していた。これらふたつの残留張力モデルの正しさと適応範囲を検証するために記憶の書き換え過程を詳細に調べた結果、揺れた方向を記憶として覚る初期段階では振動方向に引張りが残ったか否かが重要であるとする準線形解析モデルのメカニズムが発現されるが、記憶を定着させる後期段階では剪断変形によってペースト全体に張力が発生するとして非線形解析モデルのメカニズムへと移行する過程が見出された。

流れの記憶のメカニズムの解明のために東大物性研の大型計算機にて LAMMPS という分子動力学計算シミュレーターを用いて流れの記憶の再現シミュレーションを行った。コロイド粒子はレナード・ジョーンズ・ポテンシャルという粒子間引力で相互作用するとし、一様剪断流下のコロイド粒子のクラスター構造の形成過程を調べたところ、流れの方向に平行な縞状構造の形成を得た。この構造は流れを記憶したペーストを乾燥させた時に現れる亀裂の伝播方向に一致するので、流れを記憶するメカニズムが数理的に解明されたことになる。コロイド粒子が水中で帯電してお互いクーロン斥力で反発しあっている場合は流れを記憶できないという実験結果もシミュレーションで再現することができた。

ペーストが磁場の方向を磁化だけでなく磁場の方向に割れやすくなる形で力学的に記憶する現象のメカニズムを解明するために、印加した磁場の方向を記憶した磁性ペーストの内部構造を調べるために X 線 CT を用いて非破壊観察を行った。その結果、十分強い磁場を印加してペーストの磁場の記憶が強い場合は磁性コロイド粒子の空間配置が磁場の方向に平行なチェーン構造になっていてその方向に割れやすくなっていること、一方、磁場によって引き起こされた応力がペーストの降伏応力を上回っていればそれほど強くはない磁場を印加した場合でも磁場の記憶は残っているが磁性コロイド粒子のチェーン構造は形成されていないことが分かった。磁場の記憶にとっての必要十分条件を探ったところ、磁化を持つ磁性コロイド粒子がその磁化が磁場の方向に平行になるように塑性変形を通して回転し配向することが本質であることが分かった。

外場ごとの記憶の構造の違いを調べるために、ペーストの磁場の記憶を別の方向の磁場を印加することで書き換える実験をしたところ、記憶の単なる書き換えではなく古い記憶と新しい記憶の重ね合わせ状態が見出され、磁場の記憶は揺れの記憶とは本質的に異なることも確認された。また、ペーストを揺らしてのちに磁場をかける実験と磁場をかけた後に揺らす実験を行い、揺れの記憶と磁場の記憶の違いを調べたところ、揺れの記憶は簡単に磁場の記憶に書きかわるが、磁場の記憶はなかなか揺れの記憶には書き換えられないことがわかり、磁場の記憶のほうが揺れの記憶よりも階層構造は深いことも確認された。

メモリー効果などによって生じた内部構造の異方性を考慮したペーストの乾燥破壊のシミュレーションを行ったところ、異方性の強弱で破片のサイズ分布に変化が生じることが示された。

ペーストのメモリー効果を応用すると亀裂の伝播方向は制御できるが、基本的には割れやすくする制御なので、記憶を消去して割れにくい固液混合材料を作成することは大きな意義がある。超音波照射によりペーストの記憶を消去できたので、さらに照射する超音波の周波数と音圧を広範囲に変化させたところ、これ以上の音圧をかけないと記憶が消去できない閾値があること、その閾値の値は周波数の増加関数であり超音波下でコロイド粒子が受ける応力から見積もることができることが分かった。

超音波照射による記憶の消去を工学的に応用するために、セメントの粉末と砂などの細骨材を水と混ぜたモルタルペーストを用意し、このペーストを加振してから超音波照射し、その後固化した後のサンプルの破壊強度を3点曲げ法で測定したところ、破壊強度が増加していることが分かった。これは最初の加振で細骨材の空間分布を均一化し、超音波照射でセメント粉末の揺れの記憶を消去したことで割れにくい状態にしたからだと考えられる。流れや磁場を記憶したペーストに超音波を照射することで流れや磁場の記憶を消去することも確かめられた。3D プリンターで作られる石膏や樹脂状造形物の積層構造を超音波で均一化するための準備として、固液混合ペーストに紐状高分子を混ぜて特性を調べたところ、紐状高分子を添加することでペーストが流れを記憶しやすくなり流れの方向に割れやすくなる実験結果を得た。

以上、本研究によりペーストのメモリー効果のメカニズムを解明し、破壊の制御への応用を広げることができた。

## 5 . 主な発表論文等

### [雑誌論文](計 4 件)

Akio Nakahara, Tomoki Hiraoka, Rokuya Hayashi, Yousuke Matsuo and So Kitsunezaki, Mechanism of memory effect of paste which dominates desiccation crack patterns, Philosophical Transactions of the Royal Society A, 査読有, 377 巻, 2018, pp. 20170395-1 から 20170395-13.

DOI:10.1098/rsta.2017.0395

Zoltan Halasz, Akio Nakahara, So Kitsunezaki and Ferenc Kun, Effect of disorder on shrinkage-induced fragmentation of a thin brittle layer, Physical Review E, 査読有, 96 巻, 2017, pp. 033006-1 から 033006-9.

DOI:10.1103/PhysRevE.96.033006

So Kitsunezaki, Arina Sasaki, Akihiko Nishimoto, Tsuyoshi Mizuguchi, Yousuke Matsuo and Akio Nakahara, Memory effect and anisotropy of particle arrangements in granular paste, European Physical Journal E, 査読有, 40 巻, 2017, pp. 88-1 から 88-8.

DOI:10.1140/epje/i2017-11578-4

Akio Nakahara, Ryota Yoneyama, Maruto Ito, Yousuke Matsuo and So Kitsunezaki, Erasure of memory in paste by irradiation of ultrasonic waves, European Physical Journal: Web of Conferences, 査読有, 140 巻, 2017, pp. 12007-1 から 12007-4.

DOI:10.1051/epjconf/201714012007

### [学会発表](計 20 件)

中原明生, 平岡智輝, 林緑也, 松尾洋介, 狐崎創, ペーストのメモリー効果のメカニズム解明のための記憶の書き換え実験, 日本物理学会 第74回年次大会, 2019年3月17日, 福岡

植村千尋, 中原明生, 松尾洋介, 岩田隆浩, 粒子間相互作用を変化させた時のペーストのレオロジーの温度依存性, 日本物理学会 第74回年次大会, 2019年3月17日, 福岡

馬場龍, 中原明生, 村松旦典, ペーストに混合させたデンブロンがメモリー効果に及ぼす影響, 日本物理学会 第74回年次大会, 2019年3月17日, 福岡

Akio Nakahara, Mechanism of controlled crack formation by memory effect of clay paste, The 9th International Conference on Multiscale Materials Modeling, 2018年11月1日, Osaka, Japan.

So Kitsunezaki, Dynamics of a solidification front made by invasion of fluid with a different temperature, The 9th International Conference on Multiscale Materials Modeling, 2018年11月1日, Osaka, Japan.

中原明生, 平岡智輝, 林緑也, 松尾洋介, 狐崎創, ペーストのメモリー効果のメカニズム解明実験, 第66回レオロジー討論会, 2018年10月18日, 福岡

植村千尋, 中原明生, 松尾洋介, ペーストのレオロジーの温度依存性, 第66回レオロジー討論会, 2018年10月18日, 福岡

Akio Nakahara, Memory effect of paste and its mechanism to remember vibration, flow and magnetic field, 9th Hungary-Japan Bilateral Workshop o Statistical Physics of Breakdown Phenomena, 2018年10月3日, Debrecen, Hungary.

植村千尋, 中原明生, 松尾洋介, ペーストのレオロジーの温度依存性, 日本物理学会 2018 秋の分科会, 2018年9月11日, 京田辺

Akio Nakahara, Design of crack morphology using memory of plastic deformation, International Conference on Mathematical Modelling and Applications Based on Self-organization (招待講演), 2017年12月11日, Tokyo, Japan.

Akio Nakahara, Memory of magnetic field: Magnetization and crack pattern, 8th Hungary-Japan Bilateral Workshop o Statistical Physics of Breakdown Phenomena, 2017年11月22日, Debrecen, Hungary.

中原明生, 内田恭輔, Ferenc Kun, 出井裕, 松尾洋介, 笹川将, 狐崎創, 磁性ペーストのメモリー効果を用いた破壊の制御, 日本物理学会 2017年秋季大会, 2017年9月22日, 盛岡

笹川将, 村松旦典, 中原明生, 高橋秀典, 松尾洋介, 分子動力学シミュレーターLAMMPSを用いたペーストの流れの記憶の数値実験, 日本物理学会 2017年秋季大会, 2017年9月22日, 盛岡

笹川将, 村松旦典, 中原明生, 高橋秀典, 松尾洋介, 分子動力学 LAMMPS を用いた流れの記憶の数値計算, 日本流体力学会 年会 2017, 2017年9月1日, 東京

Akio Nakahara, Ryota Yoneyama, Maruto Ito, Yousuke Matsuo and So Kitsunezaki, Erasure of memory in paste by irradiation of ultrasonic waves, 8<sup>th</sup> International Conference on Micromechanics of Granular Media (Powders and Grains 2017), 2017年7月3日, Montpellier, France.

Akio Nakahara, Control of crack patterns using the memory in paste of magnetic field, YITP Workshop on Non-Gaussian fluctuation and rheology of jammed matter (招待講演), 2017年3月11日, Kyoto, Japan.

Akio Nakahara, Ryota Yoneyama, Maruto Ito, Ryoma Ishikawa and Yousuke Matsuo, Experiments to control wrack formation by imprinting and erasing memories in paste, Hungary-Japan Workshop on Physics of Rheology and Fracture, 2016 年 12 月 5 日, Fukuoka, Japan.

Akio Nakahara, Memory effect of paste and its application to control morphology of desiccation crack pattern, 20<sup>th</sup> International Drying Symposium, 2016 年 8 月 10 日, Gifu, Japan

Akio Nakahara, Memory of paste: Visualization as crack pattern and non-destructive structural analysis, 31th IUGG Conference on Mathematical Geophysics, 2016 年 6 月 7 日, Paris, France.

Akio Nakahara, Erasure of memory in paste by irradiation of ultrasonic waves, 7th Hungary-Japan Bilateral Workshop o Statistical Physics of Breakdown Phenomena, 2016 年 5 月 4 日, Debrecen, Hungary.

〔図書〕(計 1 件)

岩波書店編集部編(分担), 岩波書店, 広辞苑を 3 倍楽しむ その 2, 2018, 総ページ数 128 (中原担当箇所 pp. 36-37)

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.phys.ge.cst.nihon-u.ac.jp/~nakahara/text/project.html>

## 6 . 研究組織

### (1)研究分担者

研究分担者氏名：狐崎 創

ローマ字氏名：(KITSUNEZAKI, So)

所属研究機関名：奈良女子大学

部局名：自然科学系

職名：准教授

研究者番号(8桁): 00301284

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。