

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 31 日現在

機関番号：14602

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26400395

研究課題名(和文) wet granular の破壊特性を決める内部構造の解明

研究課題名(英文) Research on Internal Structures Responsible for the Fracture Properties of Wet Granular Materials

研究代表者

狐崎 創 (Kitsunezaki, So)

奈良女子大学・自然科学系・准教授

研究者番号：00301284

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)：固体微粒子と液体の混合物のペーストは水平加振した後に静置して乾燥すると加振方向に垂直な方向に乾燥亀裂が現れる。本研究ではこのような「揺れの記憶」を持つペーストを調べ、板バネを用いた応力測定法を開発し、炭酸カルシウムペーストで乾燥前に応力異方性が発達することを見つけた。さらに、澱粉ペーストや石松子のペーストといったサイズの大きな粉体のペーストで記憶効果を確認し、石松子のミクロな粒子配列にもマクロな異方性と整合する統計的異方性が生じていることをマイクロフォーカスX線CTを用いて確認した。これらは、亀裂形成以前に存在している異方的な構造を初めて確認した成果であり、記憶効果の解明に繋がる結果である。

研究成果の概要(英文)：When paste-like mixtures of fine solid particles and liquid are shaken horizontally and left undisturbed, lines of desiccation cracks perpendicular to the direction appear after drying. We investigated wet granular materials (pastes) with such memory of shaking. We developed the method of stress measurements by using plate springs and found that stress anisotropy increases as drying proceeds in calcium carbonate pastes. We next confirmed that two types of pastes of large granules, starch and Lycopodium powder, exhibit the memory effect of shaking, and found statistical anisotropies in the microscopic arrangements of Lycopodium particles by using micro focus X-ray CT, which are consistent with macroscopic anisotropy in stresses. These are the first results which indicate the existence of anisotropic structures before the formation of desiccation cracks and important information to clarify the memory effect.

研究分野：非線形動力学

キーワード：物性基礎論 非線形動力学 レオロジー 乾燥破壊 揺れの記憶効果 応力異方性 X線CT 石松子ペースト

1. 研究開始当初の背景

固体微粒子と液体とのペースト状の混合物は、液体の割合が大きいと降伏応力が小さくほとんど流体的に振る舞うが、乾燥などにより液体が減るにつれて、降伏応力が急激に増加して脆性固体へと変化する。この過程でしばしば形成される乾燥亀裂は、泥やペンキの亀裂など日常でも馴染み深い現象である。物理では非線形動力学のパターン形成の問題として研究が始まり、本研究の代表者も連携研究者の水口や研究協力者の西本とともに、典型的なセル状亀裂パターンや、澱粉ペーストにおける柱状節理状亀裂の形成を調べてきた。このような実験の蓄積を経て、近年ペーストの亀裂は、金属やガラスといった固い材料の破壊現象とは異なる特徴をもつことがわかってきた。

研究分担者の中原、松尾によって発見されたペーストの記憶効果は、ペーストに生じた塑性変形が、乾燥させた後にできる亀裂パターンの形成に影響することを示す代表的な現象である。最も調べられている「揺れの記憶」では、乾燥前にペーストに水平振動を短時間加えておき、数時間あるいは数日間静置して乾燥させると、最初に加えた振動に対して垂直に伸びる亀裂が優先的に形成される。これは塑性をもつペーストに降伏応力以上のずり応力が加わったときに生じ、主に粘土や炭酸カルシウムなど粘土の主成分からなるペーストで実験的に確認された。理論的には、連携研究者の大槻や研究分担者の大信田によって現象論的な弾塑性論が提案され、加振後の残留応力に異方性が現れると予想された。また、この記憶効果の発見により、国外では L. Pauchard や、S. Tarafdar らのグループによってそれぞれ磁場と電場が印加されたコロイドゲル中の亀裂の研究が行われるなど、亀裂の制御という観点からの関連研究も進んだ。

ペーストの破壊は、素材がまだやわらかい状態で発生するという点でも、固体の破壊と異なる。乾燥破壊では破断面には特有の羽毛状の様相が生成される。さらに研究代表者の実験では、一様に乾燥したペースト層で生成した亀裂は、乾燥速度に依存して非常にゆっくり成長することがわかった。また、海外では L. Goehring らによりコロイドゲルの亀裂進展で大きな塑性変形が確認された。これらの特徴から、ペーストの破壊は大きな粘性散逸と塑性変形を伴うソフトマター特有の破壊であることが示された。

2. 研究の目的

ペーストの記憶効果の実験では、乾燥によって生じる亀裂パターンを「記憶された異方性の検出方法」として利用して多く成果があったが、破壊前のペーストがどのような異方性を持ち、どのような内部構造がその異方性を担っているかはわかっていなかった。本研究では、破壊前のペーストのマクロな変形

や応力の状態を測定する。さらに記憶効果を示すペーストの中で大きな粒径を持つものを選び、マイクロフォーカス X 線 CT を用いて内部の粒子配列を直接観察することで、「揺れの記憶」による異方性を解明する実験的な手がかりを得ることを目的とした。

3. 研究の方法

以下のようなマクロな応力測定と、ミクロな粒子配列の観察を行った。

- (1) 炭酸カルシウム微粒子と水のペースト層を一様に乾燥させながらペースト内部に生じる水平方向の応力を測定した。研究開始当初に予備実験として、ペーストの容器を柔らかいプラスチックシートで作成し、水平加振を加えた後で乾燥させてみたところ、図 1 のように乾燥収縮に伴いペースト層と容器が一体になって座屈し、亀裂が入るまで徐々に反っていくのが観察された。座屈の方向は初期の加振方向で決まることから、乾燥亀裂のパターンに頼らないでペーストの異方性を検出できることが初めて確認できた。

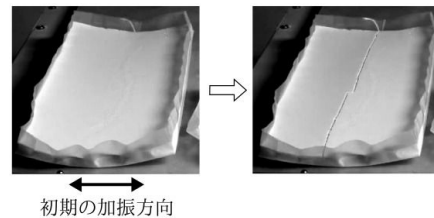


図 1 揺れの記憶によるペースト層の変形

次に定量的な測定のために、ステンレスの板バネを水平な底一部になるように 4 方向に取り付けた容器を作成した。この容器にペーストを入れて電子天秤に固定し、変位計とともに水平加振機にのせて振動を加えた後、乾燥中の質量変化をモニターしながら、4 つの板バネの変位をレーザー変位計で同時測定する。有限変形弾性論によると、板バネはペースト内部の水平方向の応力によって生じるトルクのために反る。従って、引張圧縮試験機であらかじめ測定した各板バネの曲げ弾性率と、乾燥後に測定したペースト層の厚さから、ペースト内部に生じた水平方向の応力を初期の加振に対して平行な方向と垂直な方向のそれぞれで推定できる。

- (2) ペースト内部のミクロな粒子配列の測定を、島津テクノロジー(京都)で X 線 CT 撮影を依頼して行った。サンプル郵送によるテストを 3 回、および研究者立ち合いによる撮影が 6 回(計 8 日間)である。研究開始時点で記憶効果を示すことを発見していた澱粉のペーストが撮影対象の当初の候補であったが、テスト撮影によ

り造影剤を工夫しても粒子の撮影が困難であることがわかった。そこで、新たに粒子サイズの大きいペーストを探し、試験用の標準粉体として販売されている石松子（ヒカゲノカズラの花粉）と塩化セシウム水溶液のペーストが、「揺れの記憶」を示し、かつ、明瞭な粒子撮影が可能であることをみつけた。撮影サンプルの作成は、直径 3mm 程度の樹脂製の二重円筒容器を用意して、乾燥させていないペーストを入れ、撮影直前に通常の乾燥破壊実験と同程度の往復歪み変形をステップモーターで与える方法、および、あらかじめ寒天を少量溶かしたペーストに加振を加えて高温環境で乾燥させ、乾燥破壊が起き始める頃に室温に戻してゲル化させ、固まってから撮影用のサンプルを切り出す方法、の 2 通りを試みた。

- (3) これらの実験とともに、新しく使われた石松子ペーストに対して、水や、寒天を混ぜた塩化セシウムなどを溶媒として、記憶効果の現れ方を詳しく調べ、亀裂パターンの形態相図を作成した。また、研究分担者の中原とともに、中原研究室のレオメーターを使用してレオロジー測定を行った。

4. 研究成果

研究方法(1)～(3)に対応して以下の成果が得られた。

- (1) 応力測定を炭酸カルシウムと水のペーストで行ったところ、柔らかいペースト内に生じている応力を高い精度で測定することができた。図 2 のように乾燥とともに水平方向の張力はほぼ等方的に増加するが、詳しく調べてみると初期に水平加振され「揺れの記憶」をもつ場合には、

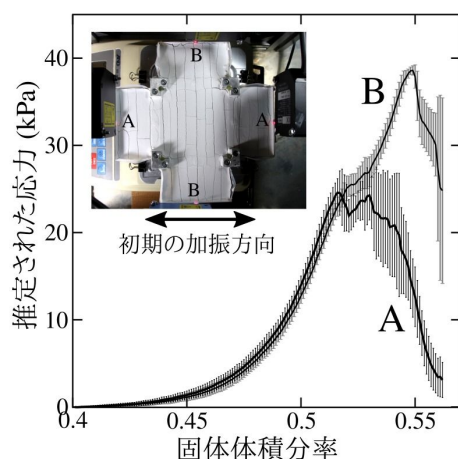


図 2 乾燥に伴う応力の増加
写真は亀裂が入った後に上から見た容器の様子。加振方向に平行な方向の応力 A と垂直な方向の応力 B は、亀裂が入るまで単調に増加するが、A の方が B よりわずかに大きい。

加振に平行な方向の応力が、垂直な方向よりもわずかに大きいことがわかった。このような応力異方性は、研究分担者の大信田によって提案された残留応力理論によって期待された符号と一致する。また、2つの方向の応力差は応力自体の1/10程度であるが、乾燥とともに増加し、亀裂が入る時点では初期の降伏応力(10Pa以下)と比べると数百倍になることがわかった。また、同じ容器を用いると、柔らかいペーストの曲げ試験を乾燥途中で行うことができる。これにより、ペーストの降伏応力自体も乾燥とともに増加し、発生した応力と同程度であることも明らかになった。

- (2) X線CTによる観察では、と の両方の方法で石松子の3次元的な粒子配列画像を得ることができた。撮影された粒子配列は図3のように一見ほとんどランダムであったが、そのうち の乾燥中に寒天で固めたサンプルでは、共通の弱い統計的異方性が水平面内に見つかり、初期の加振方向に垂直な方向で隣接粒子が増えていることがわかった。相関関数でみるとこの異方性は短距離であるが、乾燥に伴って生じる間隙水圧を支える反発力が隣接粒子間に働いていると考え、(1)で測定されたマクロな異方性の方向と整合する。これらの結果は「揺れの記憶」がマイクロクラックのような不連続な構造ではなく、一様に生じた物性の異方性のために生じていることを示しており、ペーストの記憶効果の理論的な解明につながる手がかりであると期待される。今回、方法 で作成した乾燥させていないペーストのサンプルでも と同程度の異方性が観察できたが、初期に加えたずり変形への明確な依存は確認できなかった。これは初期のペーストの降伏応力が非常に小さく、撮影までの準備中で加わる摂動程度でも容易に異方性が変化することを示唆していると推測している。

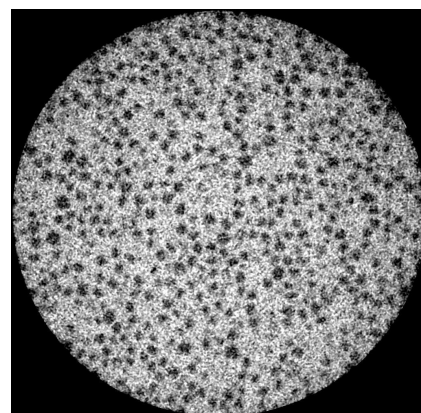


図 3 X線CTによって撮影された、寒天で固めた石松子ペースト内部の粒子配列

- (3) X線CTによる粒子観察で当初予定した澱粉ペーストが使えなかったことがきっかけとなって、澱粉より粒子サイズが2倍程度大きい石松子でも記憶効果を示すことを明らかにすることができた。石松子の粒子は澱粉と比べると吸水性がなく、油脂からなる疎水性の表面を持つが、記憶効果の形態相図やレオロジー特性は澱粉とよく類似していた。これら粒子サイズの大きい球状の粉体のペーストでも記憶効果が見つかったことで、「揺れの記憶」が多くのペーストが持つ普遍的な特性であることが確認された。

これらの成果は学会、国際会議などですでに発表済みである。(1)の実験結果はEurophysics lettersに論文として掲載されており、(2),(3)の結果も論文にまとめて現在投稿中である。

また本研究に関連していくつかのプロジェクトが進んでいる。研究分担者の中原は、本研究のX線CTによる粒子観察をきっかけに記憶効果を示す磁性ペースト内の粒子配列の観察を試み、ペースト内で磁性粒子の配向に異方性が生じていることを発見した。また、同じく研究分担者の大信田によって高密度のコロイド粒子系の理論的研究が進み、変形勾配の相関などの計算も行われた。

今後は、加振によって粒子配列の異方性が出現する仕組みを解明すること、観察された異方性がどのように亀裂成長を支配するか明らかにすること、「揺れ」以外のペーストの記憶に対しても異方的な構造を見つけること、が目標になる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計3件)

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、12007-1~4

So Kitsunezaki, Akio Nakahara and Yousuke Matsuo, Shaking-induced stress anisotropy in the memory effect of paste, Europhysics Letters, 査読有、114巻、2016、64002-1~6
DOI:10.1209/0295-5075/114/64002

中原明生, 松尾洋介, 大信田丈志, ペーストの記憶効果と破壊の制御への応用、日本物理学会誌、査読有、70巻、2016、179-187

〔学会発表〕(計14件)

大信田丈志, 大槻道夫, 後藤晋, 松本剛, 粒子系のシミュレーションによる変形勾配相関の計算、2017年3月20日、日本物理学会第72回年次大会、大阪大学(大阪)

So Kitsunezaki, Arina Sasaki, Akihiro Nishimoto, Yousuke Matsuo, Akio Nakahara and Tsuyoshi Mizuguchi, Anisotropy of Particle Arrangements in Granular Paste with Memory of Shaking, 2017年3月11日、YITP Workshop on Non-Gaussian Fluctuation and Rheology in Jammed Matter、基礎物理学研究所(京都)

Akio Nakahara, Control of crack patterns using the memory in paste of magnetic field, 2017年3月11日、YITP Workshop on Non-Gaussian Fluctuation and Rheology in Jammed Matter、基礎物理学研究所(京都)

So Kitsunezaki, Yousuke Matsuo and Akio Nakahara, 2016年8月9日、Stress Development up to Crack Formation in Drying Paste, 20th International Drying Symposium、長良川国際会議場(岐阜)

So Kitsunezaki, Akio Nakahara and Yousuke Matsuo, Stress Anisotropy Induced by the Memory Effect of Drying Paste, 2016年6月7日、31st IUGG Conference on Mathematical Geophysics, Paris(France)

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

So Kitsunezaki, Akihiro Nishimoto, Akio Nakahara, Yousuke Matsuo and Tsuyoshi Mizuguchi, X-ray CT observation of the particle arrangement in paste exhibiting the memory, 2016年5月4日、7th Hungary-Japan Bilateral Workshop on Statistical Physics of Breakdown Phenomena effect of shaking, Debrecen (Hungary)

狐崎創, 西本明弘, 中原明生, 松尾洋介, 水口毅, 乾燥破壊の記憶効果を示すペーストのX線CTによる粒子配列の観察、

2016年3月19日、日本物理学会 第71回年次大会、東北学院大学(仙台)

Akio Nakahara、Non-destructive observation of memory in magnetic paste which governs crack propagation、2016年1月6日、6th Hungary-Japan Bilateral Workshop on Statistical Physics of Breakdown Phenomena、Debrecen(Hungary)

内田恭輔、中原明生、松尾洋介、出井裕、狐崎創、フェレンツ・クン、磁性ペーストのメモリー効果の非破壊構造解析、2015年9月17日、日本物理学会 2015年秋季大会、関西大学(大阪)

Ooshida Takeshi、Residual anisotropy in granular pastes produced by repeated shear、2015年6月19日、Engineering Mechanics Institute Conference、Stanford(USA)

狐崎創、中原明生、松尾洋介、記憶効果による応力異方性の検出(II)、2015年3月21日、日本物理学会 第70回年次大会、早稲田大学(東京)

大信田丈志、大槻道夫、中原明生、松尾洋介、狐崎創、水平加振した弾塑性流体層における残留張力、2014年9月16日、日本流体力学会 年会 2014、東北大学(仙台)

狐崎創、中原明生、松尾洋介、記憶効果による応力異方性の検出、2014年9月9日、日本物理学会 2014年秋季大会、中部大学(春日井市)

〔図書〕(計1件)

Lucas Goehring, Akio Nakahara, Tapati Dutta, So Kitsunezaki and Sujata Tarafdar, Wiely, Desiccation Cracks and their Patterns: Formation and Modelling in Science and Nature、2015、368 ページ(207-239, 335-341)

〔その他〕

ホームページ等

論文リスト

<http://www.complex.phys.nara-wu.ac.jp/~kitsune/paper/paper.html>

ペースト破壊関係のセミナー&研究会

<http://www.complex.phys.nara-wu.ac.jp/~kitsune/fracture/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

狐崎 創 (KITSUNEZAKI, So)

奈良女子大学・自然科学系・准教授
研究者番号：00301284

(2) 研究分担者

中原 明生 (NAKAHARA, Akio)

日本大学・理工学部・教授

研究者番号：60297778

大信田 丈志 (OOSHIDA, Takeshi)

鳥取大学・工学研究科・助教

研究者番号：50294343

松尾 洋介 (MATSUO, Yousuke)

日本大学・理工学部・研究員

研究者番号：40611140

(3) 連携研究者

水口 毅 (MIZUGUCHI, Tsuyoshi)

大阪府立大学・工学研究科・准教授

研究者番号：80273431

大槻 道夫 (OTSUKI, Michio)

島根大学・総合理工学研究科・講師

研究者番号：30456751

(4) 研究協力者

西本 明弘 (NISHIMOTO, Akihiro)

関西大学・人間健康学部・非常勤講師