

様式 C-19

科学研究費補助金研究成果報告書

平成 21 年 6 月 1 日現在

研究種目：基盤研究（C）
研究期間：2007～2008
課題番号：19560491
研究課題名（和文） 粘土のせん断抵抗係数 $\tan \phi$ のメカニズムに関する研究
研究課題名（英文） Research on mechanism of coefficient of shear resistance “ $\tan \phi$ ” of clay
研究代表者
大河原 正文（OKAWARA MASAFUMI）
岩手大学・工学部・准教授
研究者番号：80223741

研究成果の概要：

せん断抵抗係数 $\tan \phi$ は、土のせん断特性を表す強度パラメータのひとつで、地すべり安定解析に用いられるなど、地盤防災に直接的に関わる重要なパラメータである。これまで $\tan \phi$ の存在理由、すなわち、なぜ垂直応力の増加に伴ってせん断強さが増加するのかについて明確な説明がなされていなかった。本研究の主な成果として、肉眼では密着しているように見えるせん断面も、実際にはマイクロ領域では接触部分と非接触部分が存在し、接触部分の面積が垂直応力の増加に比例して大きくなることを明らかにした。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	2,600,000	780,000	3,380,000
2008年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：土木工学・地盤工学

キーワード：せん断強さ、物理化学、表面・界面、粘土鉱物、水、分子

1. 研究開始当初の背景

せん断抵抗係数 $\tan \phi$ は、垂直応力の増減に対するせん断応力の増減率を表し、土のせん断特性を表す重要なパラメータのひとつである。 $\tan \phi$ はせん断強度の種類ごとに、それぞれ $\tan \phi_p$ (ピーク状態)、 $\tan \phi_s$ (完全軟化状態)、 $\tan \phi_r$ (残留状態) と表記される。ここでピーク状態とは、過圧密粘土の最大せん断強さを発揮しているときの状態で、通常、

せん断強さといえばこの状態のせん断強さを示している。完全軟化状態とは、繰り返した粘土を正規圧密してせん断したとき最大せん断強さのことで、残留状態とは、大きなせん断変位後に強度が定常状態に至った時点の状態をさす。残留強度は、応力履歴やせん断速度の影響をほとんど受けず粘土鉱物の種類ごとに一定値に収束することが知ら

れている。せん断抵抗係数 $\tan \phi$ は、土質力学において最も重要な強度パラメータであるにもかかわらず、 $\tan \phi$ の存在理由、すなわち、なぜ垂直応力の増加に伴ってせん断強さが増加するのかについて明確な説明がなされていない。ところで、T. Mitachi、T. Kuda、M. Okawara et al. (2003) は、残留状態でのせん断抵抗係数 $\tan \phi_r$ が現在のところもっとも真の値に近いと考えられているボルスレフのせん断抵抗係数 $\tan \phi_0$ に等しいことを理論的に導いており、このことは ($\tan \phi_r = \tan \phi_0$)、種々あるせん断強度のなかで残留強度の理解が、真のせん断強さとは何かを説明する上で核心であることを示している。

2. 研究の目的

本研究の目的は、粘土のせん断抵抗係数“ $\tan \phi$ ”のメカニズムを解明することである。具体的には、以下の4点について研究した。

- (1)せん断面の真実接触面と $\tan \phi$ との関係
- (2)せん断面に存在する水の物性
- (3)せん断強度と粘土鉱物の電荷との関係
- (4)メソメカニズム (ミクロをマクロにつなげるメカニズム)

3. 研究の方法

- (1)せん断面の真実接触面積と $\tan \phi$ との関係
 - ①AFM (原子間力顕微鏡) によるせん断面の表面形状測定

残留状態でのせん断面 (以後、残留状態せん断面) を、大変位一面せん断試験装置により作製し (圧密定圧条件、垂直応力 150 kPa、せん断変位量 200 mm、せん断速度 0.5 mm/min)、AFM によりせん断面の表面粗さならびに表面凹凸測定を行った。使用した AFM は、DI 社製 Dimension3000 (写真1) で、測定範囲は $10 \times 10 \mu\text{m}$ 、使用したプローブは NCH (ナノワールド社)、測定モードはタッピングモードである。得られた凹凸データから、表面粗さパラメータ「算術平均高さ R_a 」、「表面積増加率 RIA」を算出した。算術平均高さ R_a は、JIS によると「粗さ曲線から、その平均線に基準長さ l だけ抜き取り、この抜き取りの部分の平均線から測定曲線までの偏差の絶対値を合計し、平均した値」と規定されている。図1に算術平均高さ R_a の概念図を示す。表面積増加率 RIA は、測定範囲におけるうねりの大きさを捉えるものである。これら2つのパラメータから粘土の残留状態せん断面の表面粗さを定量的に評価した。



写真1 AFM(原子間力顕微鏡)

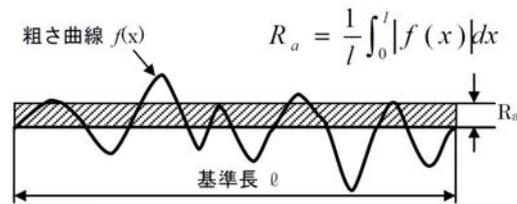


図1 算術平均高さ R_a

- ②CLSM (共焦点レーザー顕微鏡) によるせん断面のその場観察

せん断面の接触部分を共焦点レーザー顕微鏡 (Confocal Laser Scan Microscope、以後 CLSM、パイオラッド社製、MRC-1024、写真2) により観察した。観察面は、スライドガラス上のせん断面である。つまり観察面はスライドガラスとせん断面との接触部分ということになる。CLSMとは、レーザーを対象物に照射し、そこから反射した光ないし放出された蛍光を検出してコンピュータで画像化する。特徴は、ピンホールと呼ばれる絞りを利用することで同一焦点 (共焦点) 面だけの反射光、蛍光を検出するため、任意の面の鮮明な光学平面・断面像を得ることができる点にある (図2)。観察にあたり CLSM の焦点をスライドガラスの上面に合わせ、ガラスとせん断面との接触部を詳細に観察した。また、垂直荷重との関係については、試験後の供試体を加圧試験機にセットし、荷重を増加させながら CLSM で観察した (図3)。このとき荷重によるガラス自体のたわみを極力少なくさせるために強化ガラスを用いた。



写真2 CLSM (共焦点レーザー顕微鏡)

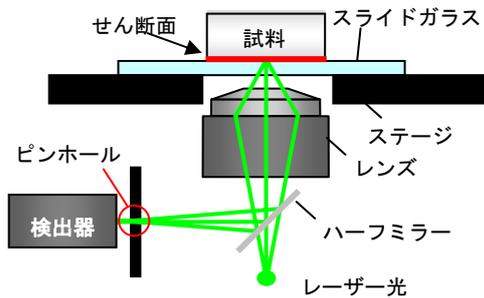


図2 CLSMの測定原理と界面の観察方法

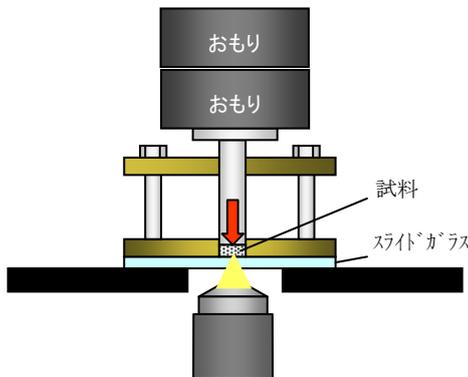


図3 加圧試験機による垂直力の载荷方法

(2) 粘土粒子表面に存在する水の物性

① AFM による粘性測定

せん断面上の水の物性を調べるために AFM による粘土表面の粘性測定を行った。粘性は AFM のプローブ (探針) の位相遅れにより測定される。図 4 は粘性の異なる物質を測定したときの位相差を模式的に表したものである。粘性が高い物質ほど位相が遅れる。測定範囲は $10 \times 10 \mu\text{m}$ 、プローブは NCH (ナノワールド社製) を使用し、測定モードはタッピングモードである。一般に粘性は温度依存性を示すため、温度との関係についても検討した。すなわち、測定時のステージの表面

温度を 20°C 、 25°C 、 30°C 、 35°C 、 40°C に設定し粘性を測定した。基盤には清浄なシリコンウエハを用い、粘土に蒸留水を加えて攪拌したものを試料の厚さに注意してシリコンウエハに擦りつけ室温で乾燥させたものを供試体とした。測定手順は、試料ステージに取り付けた試料にプローブを近づけて探針をスキャンし、スキャン開始直後 1 スキャンラインで固定した状態で往復の凹凸波形およびエラー波形が一致するようにパラメータを調整した。調整後、 $10 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$ の範囲をスキャンさせ凹凸像および位相像を得た。粘土とシリコンウエハとの位相差は画像解析により位相遅れのヒストグラムとして表される。

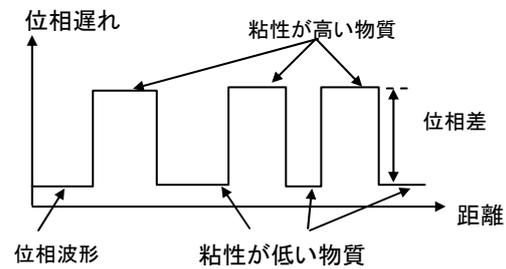


図4 AFMによる粘性の測定原理

② 分光学的手法による水の結合力測定

せん断面上の水の分光学的特性をフーリエ変換型顕微分光装置 (日本分光 VIR-9500、IRT-30、以後、顕微 FTIR、写真 3) により調べた。測定は、試料表面にプリズムを密着させる ATR 法 (全反射法) によった。顕微 FT-IR は試料表面の局所分析、微量、微小試料の測定に威力を発揮し、本実験での測定範囲は $\phi 250 \mu\text{m}$ 、測定深度は $250 \text{nm} \sim 2000 \text{nm}$ である。測定においては、まず試料のない状態でバックグラウンド測定を行い、次いでせん断面を ATR 装置のプリズムに密着させて赤外スペクトルを測定した。このとき、試料の下部に取り付けた小型圧力計で試料表面とプリズムとの接触圧を測定した (図 5)。測定波数域は中赤外領域 $4000 \sim 400 \text{cm}^{-1}$ 、測定時の分解能は 4cm^{-1} 、積算回数は 87 回である。また、自然乾燥させた試料の顕微反射測定を行った。試料はアルミ板上に平らにセットし、その表面に赤外線を反射させ赤外スペクトルを測定した。



写真3 フーリエ変換型顕微分光装置

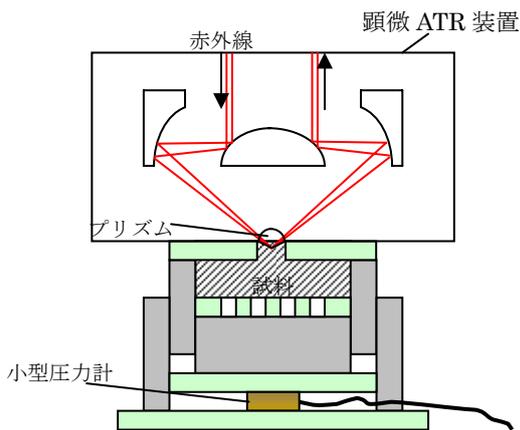


図5 ATRによる試料接触圧測定の概要

(3)せん断強度と粘土鉱物の電荷との関係

①陽イオン交換容量(CEC)測定

粘土試料の電荷をCECにより求めた。CEC測定は、平衡法に準拠した方法で行った。試料約100mgを蓋付遠心管に入れ、0.5mol/lの塩化カルシウム溶液で5回洗浄し陽イオンで飽和した後、0.01mol/lの塩化カルシウム溶液で5回洗浄し、平衡濃度とした。最後の洗浄の上澄み液を平衡溶液とし、遠心管を秤量し湿潤試料とした。最後に1mol/lの塩化アンモニウム溶液で5回洗浄した。この上澄み液を50mlのメスフラスコに集積し蒸留水で50mlに定容したものを測定溶液とした。遠心管は蒸留水とエタノールの1:1混合溶液、エタノールのみ、エタノールとアセトンの1:1混合溶液で各1回ずつ洗浄し、110℃で20時間炉乾燥したものを乾燥重量とした。原子吸光光度計で測定溶液と平衡溶液のイオン濃度を測定し、測定されたイオン濃度からCECを算出した。

(4)メソメカニズム

(1)～(3)の結果に基づきマイクロ強度とマクロ強度を結びつけるメカニズム(メソメカニズム)について考察した。

4. 研究成果

(1)せん断面の真実接触面と $\tan \phi$ との関係

①AFMによるせん断面の表面形状

図6にクニピアF、カオリンKH、NSF粘土の残留状態せん断面の凹凸像、断面画像、3次元凹凸像を示す。なお、中段の断面画像の断面位置は上段凹凸像の直線部である。表1に表面粗さRa、算術平均高さRおよび表面積増加率RIAを示す。いずれのせん断面も表面に凹凸が確認され、粗さの程度はクニピアF<カオリンKH<NSF粘土であった。

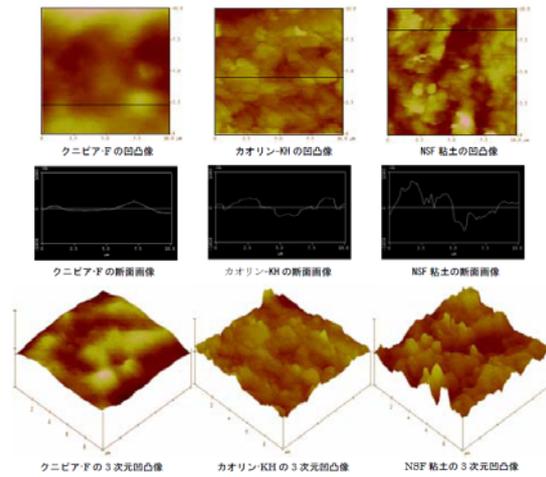


図6 せん断面のAFM像

表1 残留状態せん断面の表面解析結果

kunipia-F		kaolin-KH		NSF-clay	
Ra (nm)	RIA (%)	Ra (nm)	RIA (%)	Ra (nm)	RIA (%)
47.58	0.69	191.70	19.92	232.04	20.11
46.69	0.68	154.07	33.76	283.68	33.67
49.57	0.70	114.68	14.08	275.47	38.60

②CLSMによるせん断面のその場観察

図7は加圧試験機により垂直応力を载荷したときのせん断面とスライドガラスとの接触部の平面像である。ガラスとせん断面を構成する粘土粒子が接触していると白色に見える。図より白色と黒色の明暗の模様が分布していることが分かる。このことからせん断面とガラスは全面で接触しているのではなく部分接触である。また、垂直応力を $\sigma_v=0\text{kPa}$ 、 24.0kPa 、 47.7kPa 、 98.4kPa と段階的に増加させるのに伴って全体的に白色が増している様子が認められる。接触部分の面積率を算出するために白と黒に二値化して総面積における白色域の占める割合を算出した(表2、図8)。垂直応力の増加に伴って白色域の面積率が增加している。白色域の面積増加は、粘土粒子とスライドガラスとの接触面積すなわち真実接触面積の増加を示している。

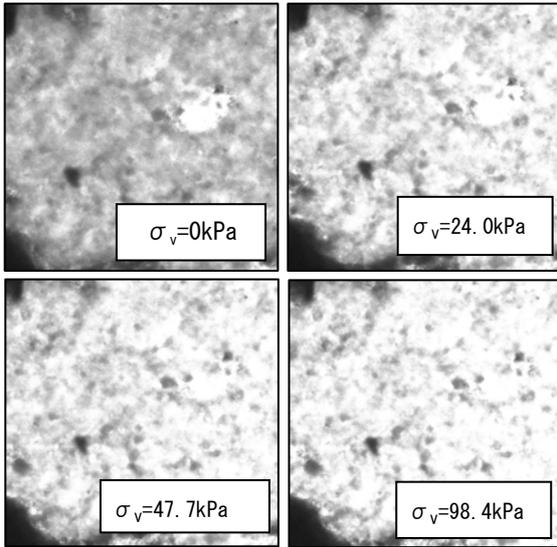


図7 垂直荷重ごとの接触面のCLSM像

表2 白色部分の計測結果

垂直応力 σ_v [kPa]	計測範囲 [μm^2]	白色部総面積 [μm^2]	白色部の占有割合 [%]
0.0	28900	19129	66.19
24.0	28900	21277	73.62
47.7	28900	22803	78.90
98.4	28900	24042	83.19

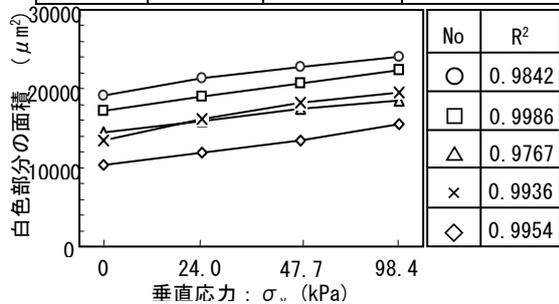


図8 垂直応力と白色部分の面積との関係

(2)粘土粒子表面に存在する水の物性

①AFMによる粘性測定

図9にクニピアF、クニボンド、カオリンKHおよび勝光山パイロフィライトの位相像を示す。図中に温度とスキャン速度(Scan Rate:SR)を示す。図において、白色部分は粘土粒子で黒色部分はシリコンウエハである。粘土粒子とシリコンウエハの境界部分で白色部分が最も明るい。図10は位相遅れのヒストグラムである。シリコンウエハの位相遅れは、温度に関係なくほぼ0°(粘性ゼロ)であるため、得られた位相差はそのまま粘土の粘性を表している。表3は温度ごとの粘土粒子表面とシリコンウエハとの位相差である。

る。表から全ての粘土において温度上昇に伴い位相差が減少している。位相差の減少は粘性の低下を示す。したがって、粘土粒子表面の粘性は温度上昇に伴い低下している。10°Cの温度上昇に伴う粘性の低下割合はクニピアFで平均3.7°、クニボンドで平均5.7°、カオリンKHで平均13.7°、勝光山パイロフィライトで平均28.0°である。

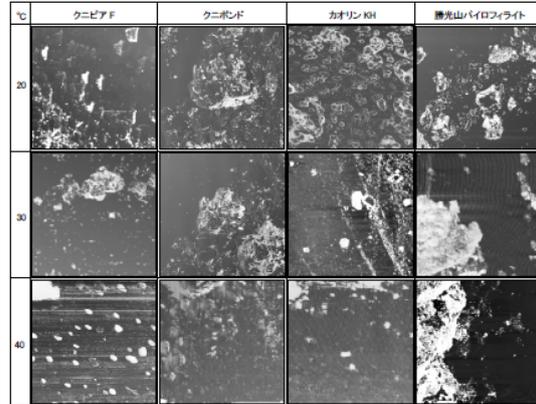


図9 異なる温度条件下での粘土の位相像(湿度90%)

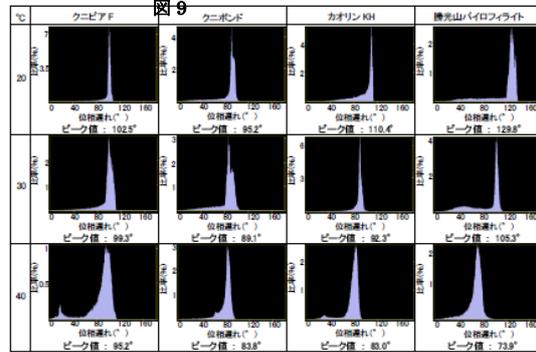


図10 位相遅れのヒストグラムとピーク値

表3 粘土とシリコンウエハとの位相差(湿度90%)

試料名	20°C	30°C	40°C
クニピアF	102.5°	99.3°	95.2°
クニボンド	95.2°	89.1°	83.8°
カオリンKH	110.4°	92.3°	83.0°
勝光山パイロフィライト	129.8°	105.3°	73.9°

②分光学的手法による水の結合力測定

図11にNSF粘土に対してATRプリズムの接触圧を10kPa~40kPaに変化させた時の赤外スペクトルを示す。3400cm⁻¹付近の幅広いピークはNSF粘土のせん断面付近の吸着水のOH伸縮振動である。NSF粘土は、接触圧の増加に伴い吸着水のOH伸縮振動の吸光度が減少している。図12はスメクタイトに対してATRプリズムの接触圧を変化させた結果であるが、吸着水・層間水のOH伸縮振動の変化は認められなかった。以上より、接触圧の増加に伴いNSF粘土は脱水し、ス

メクタイトの水は脱水せずに強く吸着していることが明らかになった。

さらに、偏光スペクトルの吸光度の変化から、スメクタイトの 3400cm^{-1} 付近のピークの水分子の配向が示唆される。この 3400cm^{-1} 付近の水分子が水素結合の影響による高波数シフトと考えると、配向している水分子は水素結合が弱い、または水素結合を切って配向していると推定される。

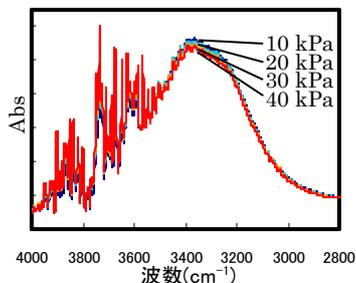


図 11 接触圧ごとの NSF 粘土の赤外スペクトル

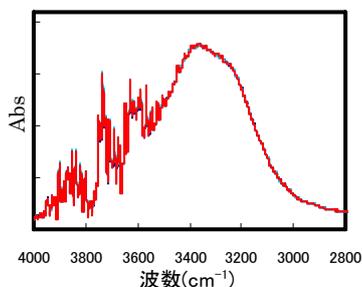


図 12 接触圧ごとのスメクタイトの赤外スペクトル

(3)せん断強度と粘土鉱物の電荷との関係

①CEC (陽イオン交換容量) 測定

表 4 に CEC 測定結果を示す。スメクタイトの CEC 値は、 $105.4\text{ meq}/100\text{g}$ 、カオリン鉱物の CEC 値は $9.2\text{ meq}/100\text{g}$ と極めて小さい。せん断抵抗係数 ϕ とは反比例の関係にある。

表 4 粘土鉱物の pH、CEC 測定結果

粘土鉱物	CEC (meq/100g)	pH
スメクタイト	105.4	7.8
カオリン鉱物	9.2	4.9

(4)メソメカニズム

実験結果より、せん断抵抗係数 $\tan \phi$ の存在理由、すなわち垂直応力の増加に伴うせん断強さの増加理由については、肉眼では全面接触しているように見えるせん断面も、実は部分的に接触しているにすぎず、その接触面積 (真実接触面積) が垂直応力の増加に伴っ

て大きくなるためと結論づける。

5. 主な発表論文等

[学会発表] (計 10 件)

①大河原正文、倉谷昌臣、三田地利之、赤外分光法による粘土鉱物中の水の状態分析、第 43 回地盤工学研究発表会、2008. 7. 10、広島・国際会議場

②久常雄大、大河原正文、三田地利之、原子間力顕微鏡による高純度粘土の積層数・摩擦力・粘性の測定、第 43 回地盤工学研究発表会、2008. 7. 10、広島・国際会議場

③太田征志、大河原正文、鈴木映一、分子軌道法による粘土の吸着水の構造最適化と結合エネルギー計算、第 43 回地盤工学研究発表会、2008. 7. 10、広島・国際会議場

④大河原正文、粘土の残留状態における強度パラメータ (c_r 、 ϕ_r) のメカニズムに関する研究、地盤工学会北海道支部第 48 回年次技術報告会、2008. 2. 5、札幌

⑤久常雄大、大河原正文、三田地利之、S. B. Tamrakar、原子間力顕微鏡による高純度粘土の異なる温度条件下での摩擦力・粘性係数、地盤工学会北海道支部第 48 回年次技術報告会、2008. 2. 5、札幌

⑥大河原正文、三田地利之、鈴木映一、太田征志、S. B. Tamrakar、Gaussian03 による 2:1 型粘土鉱物-水分子間の結合エネルギー、第 51 回粘土科学討論会、2007. 9. 13、札幌、北大

⑦久常雄大、大河原正文、三田地利之、原子間力顕微鏡による粘土の摩擦力測定、第 51 回粘土科学討論会、2007. 9. 13、札幌、北大

⑧Masafumi OKAWARA、Takehiro HISATSUNE、Toshiyuki MITACHI、Physico-chemical on mechanism of the coefficient of shear resistance at the residual state “ $\tan \phi$ ” of clay、International geotechnical symposium “Geotechnical engineering for disaster prevention & reduction”、2007. 7. 27、Yuzhno-Sakhalinsk, Russia.

⑨大河原正文、三田地利之、大久保幸倫、粘土の残留状態におけるせん断抵抗係数 $\tan \phi_r$ のメカニズム、第 42 回地盤工学研究発表会、2007. 7. 5、名古屋国際会議場

⑩久常雄大、大河原正文、三田地利之、原子間力顕微鏡による膨潤性粘土鉱物のミクロ摩擦力・粘性の温度依存性、第 42 回地盤工学研究発表会、2007. 7. 5、名古屋国際会議場

6. 研究組織

(1) 研究代表者

大河原 正文 (OKAWARA MASAFUMI)

岩手大学・工学部・准教授

研究者番号：80223741