

乾燥亀裂における含水量分布

大阪府立大学大学院工学研究科数理工学分野 水口 毅 (Tsuyoshi Mizuguchi)¹

Department of Mathematical Sciences, Osaka Prefecture University

京都大学大学院理学研究科物理学第一専攻 西本 明宏 (Akihiro Nishimoto)

Department of Physics, Kyoto University

奈良女子大学人間文化研究科 狐崎 創 (So Kitsunezaki)

Department of Physics, Nara Women's University

早稲田大学理工学部 山崎 義弘 (Yoshihiro Yamazaki)

Department of Physics, Waseda University

明治鍼灸大学医療情報学ユニット 青木 伊知男 (Ichio Aoki)

Department of Medical Informatics, Meiji University of Oriental Medicine

1 はじめに

亀裂によるパターン形成は日常生活においてよく見られる現象であり、様々な分野で研究されている [1]。しかしながら、そこで起きている破壊という過程は、強い非線形性と不可逆性を持っており、十分理解されているとはいいがたい。様々な破壊現象の中で、温度や含水量などの外的な場の勾配が、物質の音速よりゆっくりした速度で、方向性を持って伝搬していく亀裂をつくり出すことがある。このような破壊過程において、亀裂はしばしば規則正しい構造を作ることが知られている。たとえば、準二次元的な系での方向性破壊現象については、ガラス板の冷却過程 [2, 3, 4] や、コロイドサスペンションの乾燥過程 [5] などの実験系で、単独亀裂の運動や複数亀裂の亀裂間間隔選択問題などについての研究がある。三次元的な系としては、ガラスの急冷実験 [6] や数値モデル [7] 以外に、玄武岩等の火成岩に見られる柱状節理—すなわち、地上に噴出した溶岩の冷却過程において形成された角柱構造 (図 1)— がもっとも興味を引くものの一つとしてあげられるだろう。柱状節理に関する多くの研究は、観測および理論的なモデルを出発点としている [8, 9, 10, 11]。これは、温度や圧力などの条件が実験室内で再現しにくいという理由だけでなく、三次元的な物

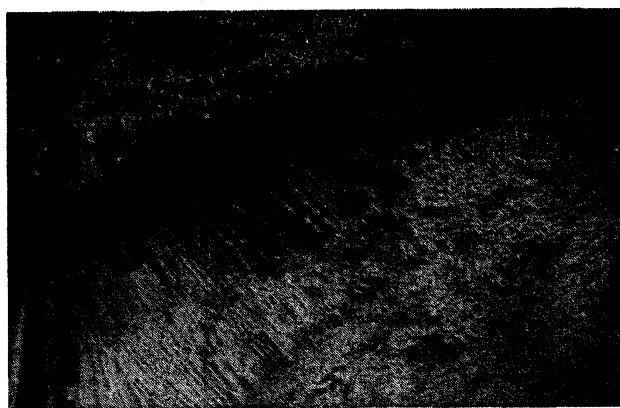


図 1: 柱状節理 (京都府玄武洞).

¹ corresponding author

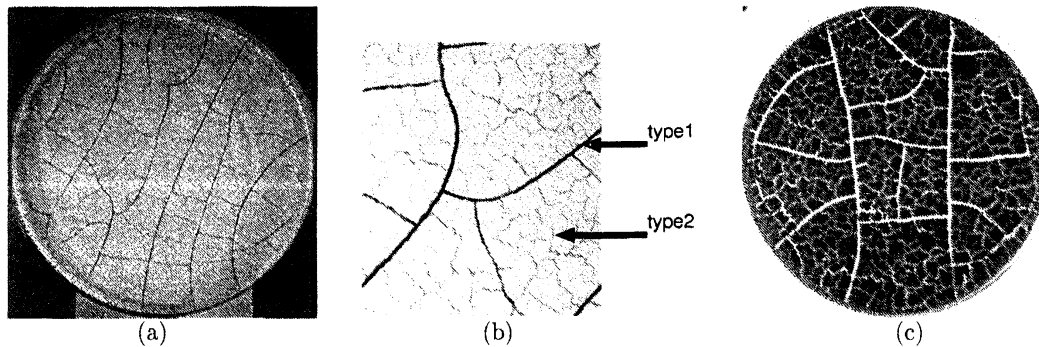


図 2: 水=デンプン系の薄いサンプルの乾燥亀裂パターン. (a) 反射光. 直径 160mm. (b) (a) の拡大図. (c) 透過光. 直径 120mm.

質の内部の亀裂の可視化や外的な要因の制御が困難なためであると思われる. 近年, 柱状節理に酷似した構造が, 水=デンプン混合物の乾燥実験において示された [12, 13, 14]. その形態上の類似性は我々の想像力を大いにかきたてるが, 亀裂パターンの断面構造や時間発展に関する解析が十分になされたとは言えない. 特に, 応力分布や破壊過程の主駆動要因であると思われる含水量分布に関する直接的な測定は行われていない.

本論文は, 水=デンプン系の乾燥過程における亀裂のパターン形成現象での断面可視化と含水量分布の測定に関する報告である. まず最初に, 簡単なレビューを行い, 樹脂固化研磨法と乾燥後の断面画像から得られる亀裂パターンの静的な特徴について述べる. 次に, MRI を用いた実時間含水量測定について述べる. 最後に, 亀裂の排水機能を考慮した理論モデルに関して考察する.

2 静的な特徴 — 亀裂パターン

実験の典型的な設定は次の通りである. デンプン (コーンスターチ) と同じ質量の水を混合し, 容器 (ガラスあるいはアクリル) に注ぎ, 上面を開放したものをサンプルとする. サンプルは温度制御された電気炉やエアコンを効かせた部屋で乾燥させる. 乾燥は局所的な体積変化を引き起こし, それに伴う応力集中は亀裂の生成によって解放される. 水=デンプン系の乾燥過程では, 以下のようなことが知られている. サンプルが薄い (たとえばアスペクト比が 10 以上) 場合, 図 2 に示されるような二種類の亀裂が観測される. タイプ I と呼ばれる滑らかな亀裂と, タイプ II と呼ばれる入り組んで曲がった亀裂は, 形成過程も形態的にも異なる. 第一に, 形成の時間的な順序はタイプ II に比べてタイプ I が早い. 第二に, タイプ I は巨視的には深さ方向に一樣な構造を持っている² が, タイプ II は三次元的に変化しており, 後述するように角柱構造をなす [12, 13, 14]. 第三はそれぞれの亀裂の形成過程である. タイプ I は, それぞれの亀裂が逐次的に生じる—すなわち, “幹” が走った後に “枝” が形成される [15]. それに対して, タイプ II の形成過程はそれほど詳しくは調べられていないが, 表面から内部に向かって進行すると考えられている. 第四は亀裂生成に必要な応力集中の原因に関してである. タイプ I の場合, 応力集中は混合物と容器との乾燥過程における収縮率の差および両者の間の摩擦によって生じることが知られている [16, 17, 18, 19]. 一方, タイプ II では混合物内部での局所収縮率の非一様性によると考えられている. 第五に, タイプ I の亀裂は他の湿潤粉体の乾燥過程や塗料の乾燥過程でも観測さ

² 微視的にみるとタイプ I の側面には細かい羽毛状のパターンが見られる.

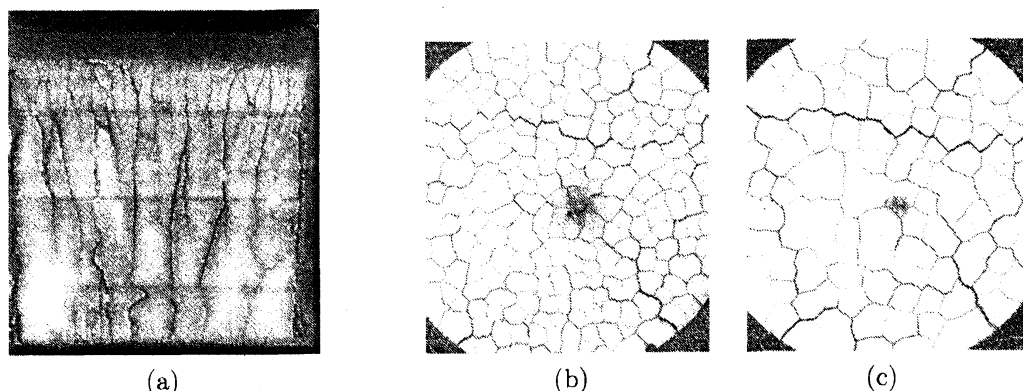


図 3: 樹脂固化研磨法によって可視化された亀裂パターン. (a) 直径 25mm のサンプルの垂直断面. 直径 40mm のサンプルの水平断面, (b) 表面からの深さ 6.25mm および (c) 11.60mm.

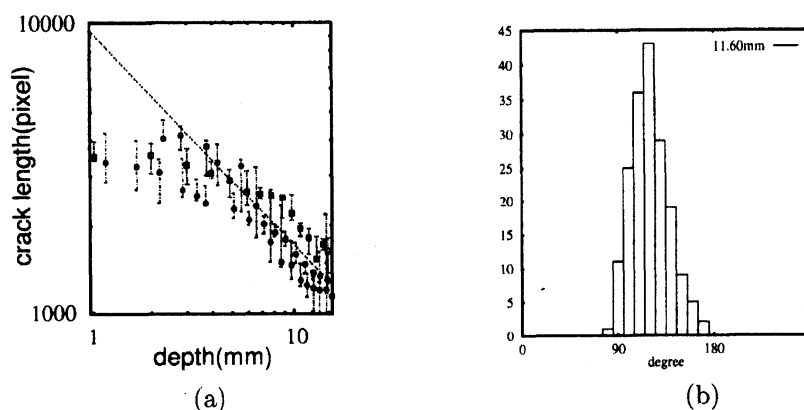


図 4: (a) 亀裂長の深さ依存性. 直線は深い領域をフィットしたもので, 傾き -0.79 . (b) 三点交差における亀裂間角度分布.

れているが, タイプ II は水=デンプン系以外では報告がない. 本論文では, このタイプ II に焦点を当てる.

サンプル内部の亀裂構造は, 手による破壊や X 線トモグラフィによってもその構造を可視化できるが, ここでは樹脂固化研磨法を用いた. 樹脂固化研磨法とは, サンプルが完全に乾燥した後, 可視化のためにインクを入れたエポキシ樹脂 (STYCAST 1266) によってサンプルを固化し, 旋盤によって表面を順次削ることによって断面の亀裂構造を可視化する方法である. 断面画像は, スキャナによって 512×512 ピクセル $\times$ 256 グレyscale で記録した. 試料にはコーンスターチ (ナカライテスク) を使用し, タイプ I の亀裂の数を減らすために, サンプルのアスペクト比をほぼ 1 に選んだ. これは, タイプ I の亀裂間間隔がサンプルの厚さに線形に比例すること [16, 17] を考慮した結果である. 実際, この幾何学的条件では, タイプ I の亀裂は主に容器と混合物の間に行ける. 典型的な断面を図 3 に示す. 垂直断面では, 表面から内部に行くにしたがって亀裂間隔が大きくなっていることが示されている (図 3(a)). このことは, 水平断面に見られる多角形構

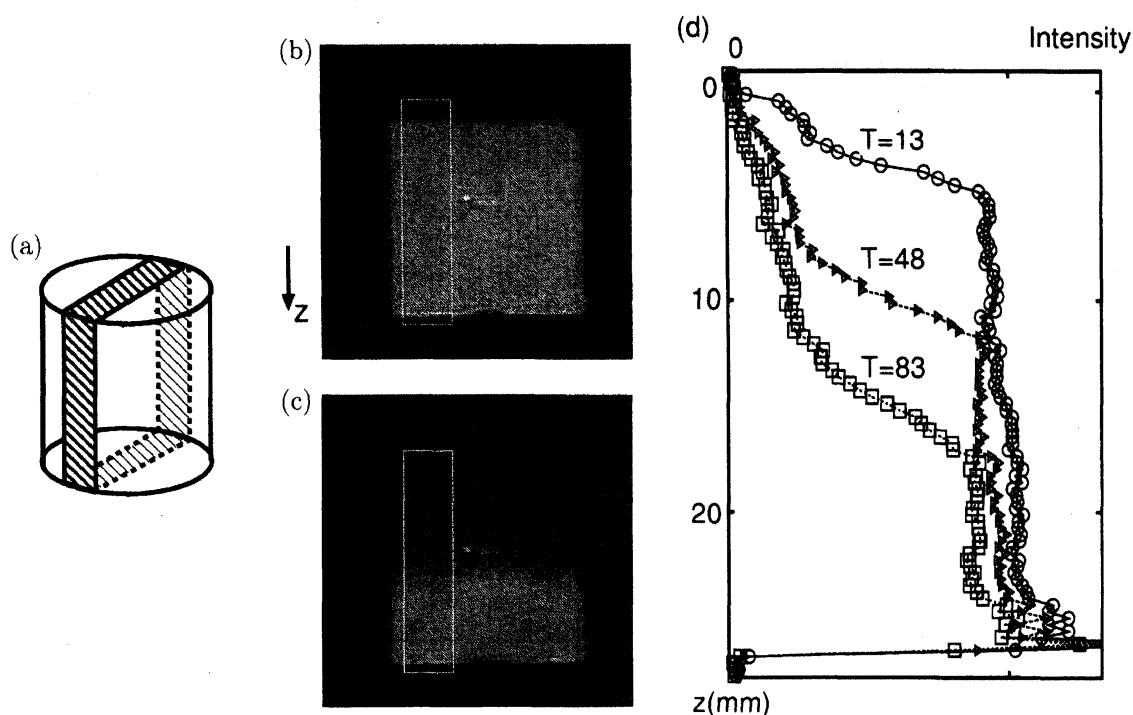


図 5: MR による含水量の垂直分布. (a) 積算領域の模式図. ステージ 3 開始から, (b) 4.7 時間後 ($T=4$) および, (c) 98 時間後 ($T=84$) のシグナル強度. 領域の大きさは $40\text{mm} \times 40\text{mm}$. (d) (b)(c) の中に描かれている矩形領域について水平方向に平均したシグナル強度の垂直分布. 三つの曲線はそれぞれ 15.2 時間後 ($T=13$), 56 時間後 ($T=48$), 97 時間後 ($T=83$) での測定データ.

造のセルサイズの変化にも表れている (図 3(b) および (c)). この傾向を定量化するため, 表面から深さ z における亀裂長 L を測定した. ここで, ある断面における亀裂長 L は, その断面画像を二値化および骨格化 (skeletonization) して残ったピクセルの総数と定義した. 図 4(a) は L を z の関数としてプロットしたものである. $L(z)$ はほぼ単調減少であり [20], 深い領域では, べき則 $L(z) \propto z^{-0.79 \pm 0.4}$ に乗っているとみることもできる. 多角形セルは同形同サイズであるという幾何学的な関係を仮定すると, 角柱構造の平均的な太さ b は L に反比例するので, 図 4(a) は, 角柱が内部に行くにしたがって太くなっていることを表している. なお, 亀裂間角度は 120° 近辺に単峰である (図 4(b)) [21] [22].

3 動的な振舞い — 含水量ダイナミクス

亀裂生成の要因を明らかにするために, 応力集中の原因となる含水量分布の実時間測定を行った. 予備的な実験の結果から, 乾燥過程は次の三つ段階を踏むことが分かっている. ステージ 1: 含水量はゆっくりと一様に減衰する. ステージ 2: 含水量の突然の変化とともに, タイプ I の亀裂が生成される. 亀裂以外の含水量は一様である. ステージ 3: ゆっくりと含水量が減衰するが, 分布は一様ではなく, 「フロント」が存在する. このフロントは, 後述するように, サンプルの表面から内部に向かって進行する. タイプ II の亀裂はこのときに形成されていると考えられる. 以下, このステージ 3 に着目する. サンプルの温度を $25 \pm 1^\circ\text{C}$ に固定し, MRI を用いて, 主に水の陽子に応答するシグナルの積算を, 垂直および水平断面についてステージ 3 の開始から 88 セッ

ト (1 セットあたり 70 分) 行った [23]. 垂直および水平断面画像を得るためのシグナルの積算領域の厚さは、各々 6mm および 2mm である. 図 5 にステージ 3 での典型的なスナップショットを示す. シグナルの強度は、含水量分布を反映していると考えられる. 垂直断面画像には、各時刻での含水量分布のフロントが描き出されている (図 5(b) および (c)). 図 5(d) は、水平方向に平均することによって得られる含水量の垂直方向分布の時間発展を描いてある. 次の 3 点に注目してほしい. (1) 含水量フロントは、速度を下げながら内部に進行している. (2) フロントの上部に、含水量分布が下に凸な — つまり、含水量を $c(z, t)$ とすると $d^2c/dz^2 > 0$ となるような — 領域が存在する. (3) 含水量のフロントの傾きは深さおよび時間とともに滑らかになる.

図 6 はステージ 3 開始から 97 時間後 (積算 1 セット (70 分) を $T=1$ として、 $T=83$) におけるスナップショットである. 垂直断面図 (a) の中の記号は、S は表面、B は底面を示し、記号 (b)(c)(d) は、図 6 の同じ記号で示された水平断面画像の計測位置を、矩形領域は積算領域を示している. S/N 比を向上させるため、同一位置の 7 枚の水平画像の時間平均を取っている. フロントの後部、および直上において多角形セルパターンが観測されている ((b) および (c)) が、このパターンは X 線トモグラフィや、樹脂固化研磨法によって得られる亀裂のパターンと定性的に一致している. 一方、フロントの前部における含水量の水平方向の分布は一様である (d). 異なる時刻では、フロントの位置と多角形セルパターンのサイズは変わるが、同様の構造が見受けられる.

含水量の z 方向の分布のフロントより後ろの部分で、(樹脂固化研磨法によって可視化された) 亀裂パターンと同様のパターンが形成されていることから、亀裂が (A) フロントの部分で形成され、(B) 水分輸送に重要な役割を果たしていることが示唆される. ただし、反応強度が表しているのは含水量であり、応力や歪をあらわしているのではない. したがって、亀裂そのものを可視化しているわけではないことに注意しなければならない.

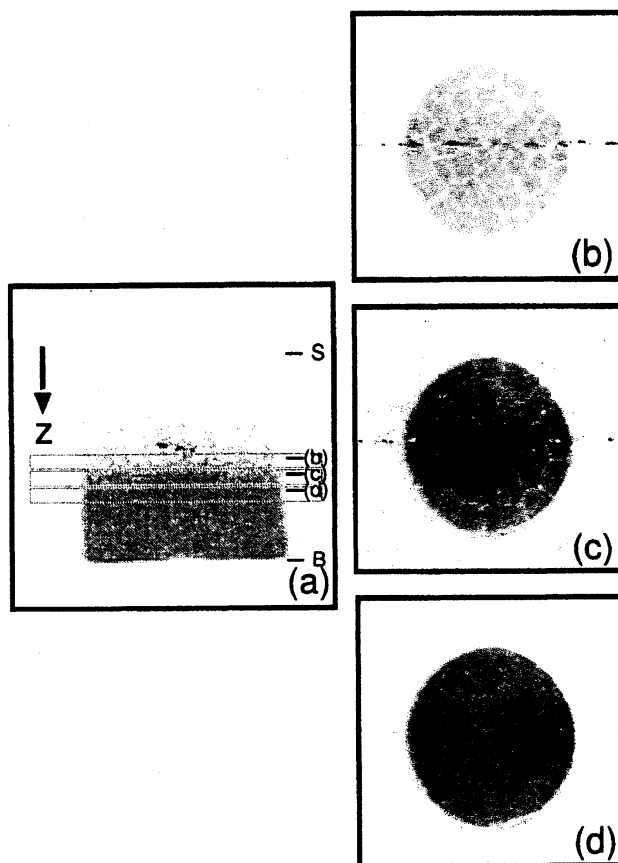


図 6: ステージ 3 開始後 97 時間後 ($T=83$) での含水量分布. (a) 垂直分布. 記号については本文参照. (b)(c)(d) は水平分布.

4 水の輸送過程

実験によって得られたデータを解釈し、亀裂・応力・含水量分布の関係と水分輸送のメカニズムを考察する. まず、亀裂 L と応力 σ および駆動要因である含水量分布 c の依存関係に着目し

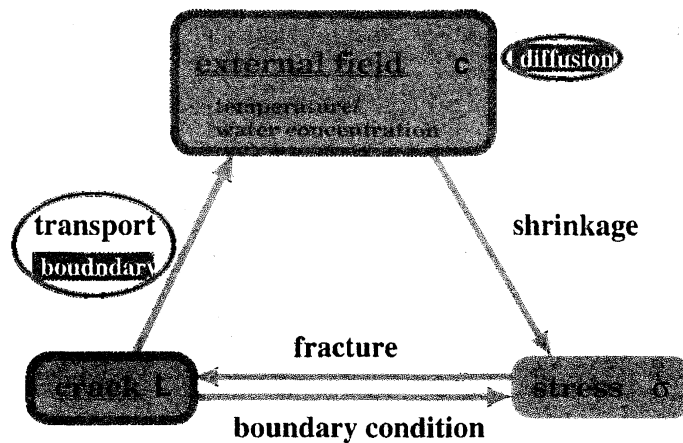


図 7: 乾燥破壊の三つの要因.

よう(図7). 一般の破壊現象と同様に, 亀裂と応力は互いの決定要因であり, それぞれ時間および空間で決まる状態変数(あるいは境界条件)として解かなければならない. 加えて, ガラス板の冷却実験のように, 外場がよく制御された準二次元系の場合と異なり, 本実験(あるいは柱状節理)のような三次元的な現象では, 駆動要因である外場も一つの状態変数として解く必要がある. 特に, 図5および図6から示唆されたように, 亀裂が排水孔としての役割を果たしているならば, 応力の主駆動要因である含水量分布が亀裂によって変化させられるわけであるから, 含水量分布を独立に解くことが出来ない.

そこで, 水分輸送について考察しよう. 多孔性物質中の含水量分布の時間発展は, 水・水蒸気・熱の輸送, 相変化(蒸発)などの諸過程が複雑に絡み合ったものであり, 標準的な理論は物質に依存した多くの係数を含む[24]. ここでは, 水=デンプン混合系が作るバルクな多孔質内の輸送と, 亀裂を通っての排水(drainage)効果によるものを考えてみよう. 前者は非一様不飽和多孔性物質中の水の移動であり, 一般には温度勾配と含水量勾配に依存するが, ここでは温度一定と考え, 拡張されたダルシー則を当てはめると, 水の体積分率 $c(x, y, z, t)$ は, 拡散係数 D を持つリチャードソンの拡散方程式に従うと考えられる[24]. 一方, 後者は各時刻で生成されている亀裂の空間的配置や, 亀裂面での境界条件を決める亀裂外部での水蒸気圧に依存する. MRの断面画像に見られるセル構造が亀裂を表しているとするれば, 亀裂によって作られた空隙部分の含水量は混合物内よりも少なく, 亀裂からの蒸発は比例係数(蒸発抵抗と空気密度の積)を λ , 亀裂の外側の水蒸気圧を c_0 とすると単位面積あたり $\lambda(c - c_0)$ で表される.

ここで, 深さ z と $z + dz$ の間のスライスで含水量を水平面内で平均した平均含水量分布 $c(z, t)$ の発展に着目しよう. 深さ z での type II の亀裂の長さを L_{II} とすると, スライス上の亀裂からの蒸発は $\lambda L_{II}(c - c_0)$ と考えられる. したがって, $c(z, t)$ の時間変化は,

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(D \frac{\partial c}{\partial z} \right) + \lambda L_{II}(c - c_0)$$

と書ける. 右辺第一項は水=デンプン混合物内の水の拡散であり, 右辺第二項は亀裂からの水の排水を表す. 拡散係数 D と亀裂外水蒸気圧 c_0 は一般に定数ではなく, 前者は含水量 c の関数, 後者は亀裂先端からの距離と表面からの深さの関数であると考えられる. この水分輸送方程式は, 亀裂の時空間パターン $L_{II}(z, t)$ が与えられなければ解けないが, まず二つの極端な場合を考えて

みよう。 $D \gg \lambda$ ならば、右辺第一項が支配的になり、水分の輸送はバルクな多孔質内の拡散が大部分を受け持つ。したがって、含水量は拡散方程式に従う。この場合、図 5(d) に示された含水量分布の凸性は拡散係数 $D(c)$ に起因すると考えられる。逆に $D \ll \lambda$ ならば、排水孔としての亀裂からの蒸発が支配的になる。 c_0 が定数であるとすれば、フロントのすぐ背後に外気と同じ環境があるのだから、破壊領域がフロントにあるならば、応力の分布は亀裂の位置に対していつも一定値を保つ様な定常進行解が考えられる。これは自己駆動亀裂 (self driven crack) [25] であり、亀裂の長さ L_{II} は深さによらないことが予想される。実際には、含水量パターンにセル構造が表れていること (図 6)、また観測された亀裂パターンで L_{II} は表面からの距離とともに減衰していること (図 4(a)) から、含水量 c に依存した拡散係数 $D(c)$ 、または、深さ z に依存した亀裂外水蒸気圧 $c_0(z)$ 、あるいはそれらの効果の複合によって含水量分布が時間発展していると予想される。

含水量 c と亀裂長 L_{II} との閉じた形で発展則を得るためには、 L_{II} すなわち亀裂の発展則を決めなければならない。破壊過程が準静的であれば、グリフィスの進展条件を用いることができるが、弾性エネルギーは亀裂の幾何学的な形状や応力分布に依存するので、その見積りには数値計算との併用が適当と思われる [26]。

5 おわりに

水=デンプン系の乾燥過程で、三次元的な物質内部を進行する方向性破壊による角柱構造を得た。樹脂固化研磨法によって乾燥後の亀裂パターンを可視化し、表面から内部に向かうにしたがって角柱が太くなっていることを示した。また、MRI を用いて含水量分布の実時間測定を行い、含水量の分布が z 方向にはフロントを持つこと、フロントの後ろで亀裂と同じセルパターンを持つことを示した。亀裂の排水孔としての役割を考慮した含水量分布 $c(z, t)$ の発展モデルを提案した。亀裂 $L_{II}(z, t)$ との閉じた形が得られれば、角柱の太さの深さ依存性に関して理論的な予言がえられ、実験との比較も可能になる。柱状節理の構造に適用することも考えられる。

参考文献

- [1] J. Walker, Sci. Am., **255** (1986) 178.
- [2] M. Hirata, Shizen (Japanese), (1967).
- [3] A. Yuse and M. Sano, Nature, **362** (1993) 329.
- [4] O. Ronsin and B. Perrin, Phys. Rev., **E58** (1998) 7878.
- [5] C. Allain and L. Limat, Phys. Rev. Lett., **74** (1995) 2981.
- [6] H. -A. Bahr et al., Fracture Mechanics of Ceramics, **11** (1996) 507.
- [7] Y. Hayakawa, Phys. Rev., **E50** (1994) 1748.
- [8] S. Folley, Philos. Transact., **212** (1694) 170.
- [9] A. Aydin and J. M. DeGraff, Science, **239** (1988) 471.
- [10] A. H. Lachenbruch, Spec. Pap. Geol. Soc. Am., **70** (1962) 69.
- [11] E. A. Jagla and A. G. Rojo, Phys. Rev., **E65** (2002) 026203; E. A. Jagla, Phys. Rev., **E65** (2002) 046147.
- [12] G. Müller, J. Volcano. Geotherm. Res., **86** (1998) 93; G. Müller, J. Geophys. Res., **03** (1998) 15239; G. Müller and T. Dahm, J. Geophys. Res. **105** (2000) 723; G. Müller, J. Struct. Geol., **23** (2001) 45.

- [13] T. Mizuguchi et al., *Bussei Kenkyu* (Japanese), **71** (1999) 684; T. Mizuguchi et al., *Powder and Grains*:2001, (2001) 55.
- [14] A. Toramaru and T. Matsumoto, to be published in *J. Geophysical Research*.
- [15] 亀裂先端の伝播速度は有限なので、タイプ I の亀裂の生成順序は局所的に定義される。二本の亀裂が互いにぶつかり合うこともありうる。
- [16] A. Groisman and E. Kaplan, *Europhysics Letters*, **25** (1994) 415.
- [17] S. Kitsunzaki, *Phys. Rev.*, **E60** (1999) 6449.
- [18] K. Leung, *Phys. Rev. Lett.*, **85** (2000) 662.
- [19] K. A. Shorlin et al., *Phys. Rev.*, **E61** (2000) 6950.
- [20] このアスペクト比であれば、タイプ II の亀裂が形成される前に、タイプ I の亀裂が一、二箇所 (主に容器と混合物の間) で形成される。水分は全ての表面から逃げて行くため、タイプ II の亀裂の内部への進行は、上面からだけでなく、タイプ I の側面や底面からも起こる。そのため、角柱構造の太さは底面近くのサンプル内部で最大値を取ることがある。
- [21] 亀裂間の“角度”の定義には注意を要する。これは、亀裂の断面が必ずしも線分で出来ていないことによる。本論文では、元データを二値化および骨格化 (skeletonization) することによって得られた曲線群を亀裂先端が通過した跡とみなしている。亀裂間角度は次のように定義される。すなわち、曲線群の中の三点バーテックスの周りに半径 r_0 の円を描き、三点バーテックスから伸びている三本の曲線の中の二本の曲線と円とによって囲まれた部分の面積の比率を、その三点バーテックスから伸びる亀裂の間の角度の比と定義する。角度分布のピークの位置と単峰性は、 r_0 を適当な範囲で動かしても変わらない。ちなみに、同様の方法で測定されたタイプ I の亀裂間角度分布は、 90° および 180° 付近で極大を取る双峰性を持つ。
- [22] 多角形の辺の数を測定する場合にも慎重さを要する。他の辺とつながっていない亀裂が多く見られるからである。
- [23] 測定方法の詳細: T. Mizuguchi, et al, submitted to *Phys. Rev. E*.
- [24] 例えば “Porous Media”, F. A. L. Dullien, Academic Press, (1979).
- [25] T. Boeck, H. -A. Bahr, S. Lampenscherf, U. Bahr, *Phys. Rev.* **E59** (1999) 1408; B. I. Yakobson, *Phys. Rev. Lett.* **67** (1991) 1590.
- [26] A. Nishimoto, S. Kitunezaki and T. Mizuguchi, in preparation.