

論文 細孔構造に立脚したコンクリートの拡散性状のモデル化に関する 一提案

加藤佳孝^{*1}・塚原絵万^{*2}・魚本健人^{*3}

要旨: 本研究は、コンクリート全体の拡散性状を、構成要素（セメントペースト、遷移帶）の細孔構造を考慮してシミュレートする手法の提案を行ったものである。この時、必要となる細孔情報は水銀圧入式ポロシメータの測定結果を体積頻度に基づく方法により変換し、実際の細孔径分布とする方法を提案した。さらに、見かけの拡散係数を算出する際に設定した細孔領域の拡散係数とコンクリートの見かけの拡散係数を比較することにより、ひび割れ内の拡散係数の最大値を設定することが可能であることを示した（本研究で対象としたコンクリートの場合約80倍と試算された）。

キーワード: 細孔構造、インクボトル効果、拡散性状、構成要素、ひび割れ

1. はじめに

コンクリート構造物の耐久性能が重要視され、これまでに多くの実験および解析的検討がなされている。コンクリートの耐久性は、主に硬化体の細孔構造に支配されており、両者の関係を材料条件や環境条件の基に体系化することが重要な課題である。現状では、セメント硬化体の内部組織構造を測定する方法として、水銀圧入方式¹⁾が広く用いられている。この基本的原理は、硬化体の表面から水銀を圧入し、その圧力と流入量から細孔径分布を把握するものである。また、従来、インクボトル効果により測定結果は実際の細孔径分布を示さず、結果として使用可能な情報としては、総細孔量やしきい細孔径といわれている²⁾。

本研究では、水銀圧入方式により測定される細孔径分布を体積頻度に基づく方法により変換することにより、実際の細孔径分布とする方法を提案する。さらに、得られた細孔径分布より遷移帶の細孔量を算出し、最終的に細孔構造に基づいてコンクリートの拡散性状を表現すること

とを目的とした。

2. インクボトル効果に対する解析的検討

本章では、圧入方式により得られる細孔径分布の結果と解析的検討から、インクボトル効果を除去した細孔径分布の算出方法に関する提案を行う。解析的検討は、以下に示す手順とした。まず、 $10 \times 10 \times 10$ (3次元空間で合計1000要素)要素内にモンテカルロシミュレーションに基づいた乱数発生により1~1000までの番号付けを行う。この番号は、圧入される順番を示しており、表面(1面浸透)から番号の小さい順に圧入していく。解析回数は100回行い、結果はその平均値を用いている。解析結果を図-1に示す。図の横軸は圧入が終了した番号の割合を示し、縦軸は実際に圧入された割合(占有割合)を示し、凡例の「実際」は1番から順に占有された状態を示している(両者の関係が正比例)。初期は殆ど圧入されておらず、圧入割合が0.3付近から急激に増加し、0.5付近において圧入割合と占有割合がほぼ等しくなり、実際の状態

*1 国土交通省国土技術政策総合研究所 総合技術政策研究センター

建設マネジメント技術研究室研究員 博(工)(正会員)

*2 東京大学大学院

工学系研究科社会基盤工学専攻

工修(正会員)

*3 東京大学教授

国際・産学共同研究センター

工博(正会員)

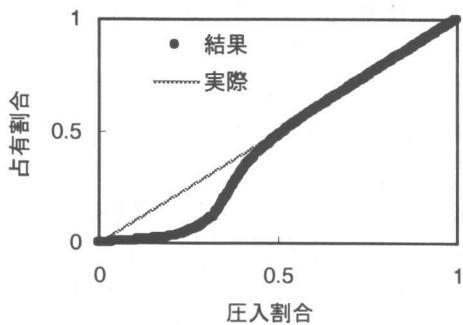


図-1 解析結果（圧入割合と占有割合の関係）

を表現することが可能となっていることがわかる。解析では、要素の大きさに関する規定は設けておらず、単純に何番目に入るという番号付けのみを行っている。ここで、図-1に示した解析結果を用いて水銀圧入方式による測定結果を変換する。この時、解析結果を忠実に再現するために、圧入割合と占有割合間の相関係数が最も高くなるような範囲に区分し近似曲線を得た（式(1)参照： x が圧入割合、 y が占有割合）。本研究では、範囲に関する検討は対象外とした。セメント硬化体への適用に際し、式(1)の妥当性を検証するためのケーススタディーを実施した。検討結果の一例を図-2に示す。凡例の「実際」が想定した細孔径分布、「ポロシ」が測定原理に基づいて解析した結果、「変換」が提案する方法により求めた結果である。図より、式(1)を用いて変換することにより実際の細孔径分布をある程度把握することが可能であることがわかる。

$$\begin{aligned}
 y &= 0.11x & (x = 0 - 0.11) \\
 y &= 0.0043e^{9.41x} & (x = 0.11 - 0.23) \\
 y &= 0.0023e^{12.4x} & (x = 0.23 - 0.34) \\
 y &= 2.54x - 0.70 & (x = 0.34 - 0.42) \\
 y &= 0.65 \ln(x) + 0.93 & (x = 0.42 - 0.72) \\
 y &= x & (x = 0.72 - 1)
 \end{aligned} \quad (1)$$

図-3に変換前後の結果を示す（図中△、○印）。測定対象は、水セメント比 0.5、28 日水中養生後のセメントペースト試験体（CP と略記：普通ポルトランドセメント）であり、水銀圧入式ポロシメータを用いて測定した。なお、水銀圧入

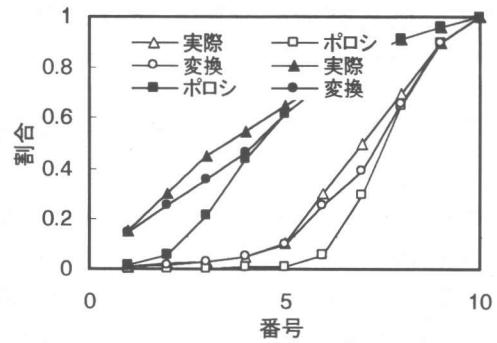


図-2 ケーススタディーの一例

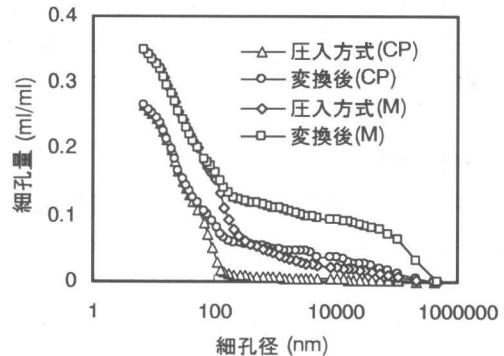


図-3 変換結果の一例（W/C=0.5, 28 日材齢）

式ポロシメータの測定精度に関する問題は本研究では対象とせず、得られた結果が真実であるとし変換を行っている。図より細孔径が大きい範囲において（圧入圧力が小さい）、変換後の細孔量が増加していることがわかる。従来、骨材界面に存在する遷移帶領域は、セメントペーストに比して粗大な空隙に富む領域と認識されている。圧入方式による測定結果の場合、図-3に示したように粗大領域の細孔径分布が実際とは大きく異なるため、特に、遷移帶領域の判定を行う際に、その精度に影響を及ぼすものと考えられる。図-3に、水セメント比 0.5、28 日水中養生後のモルタル試験体（M と略記）の細骨材実績率割合 0.8（S/C=2.5 程度）の変換前後の結果を示す（図中◇、□印）。なお、モルタルの細孔量は測定結果をモルタル中のセメントペースト割合で除すことにより、細骨材量の影響を排除している。セメントペーストの結果と同様に、

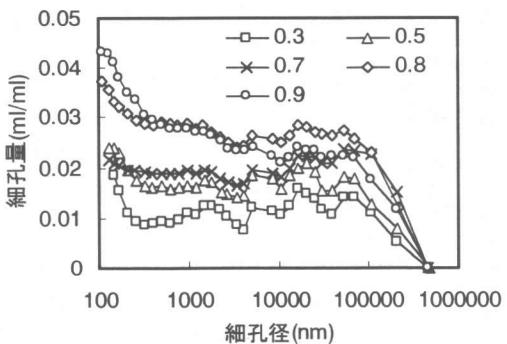


図-4 遷移帯の累積細孔量変化

細孔径が大きい範囲において変換後の細孔量が増加している。また、セメントペーストとモルタルの細孔量を比較すると、変換後の粗大径における累積細孔量変化の差が明確となっていることと、約100nm以下の累積細孔量の変化がほぼ等しいことがわかる。これは、圧入方式では把握が困難である粗大径に存在する細孔量を、本手法を用いることで把握することが可能となったためと考えられる。そこで、遷移帯領域の累積細孔量の変化を把握するために、100nm以上を対象としてモルタルの細孔量からセメントペーストの細孔量を差し引いた結果を図-4に示す。凡例中の数字は細骨材実績率割合を示す。細骨材量の増加に伴い、累積細孔量も概ね増加していることがわかる。さらに、図-5に細骨材実績率割合と遷移帯細孔量の関係を示す。なお、累積細孔量変化は常に増加傾向となるはずであるが、モルタルからセメントペーストを差し引くという算出方法により、減少する場合が存在している。そこで、遷移帯の細孔量としては、簡易的に遷移帯細孔径範囲内（細孔量がほぼ一定値をとる範囲）における平均値とした。図から明らかな様に、細骨材量の増加に伴う遷移帯細孔量の増加傾向を容易に把握することができる。細孔径の分布が類似している対象を比較する場合は、圧入方式による測定結果を用いることも妥当であると考えられる。しかし、セメントペーストと遷移帯に代表されるような細孔径

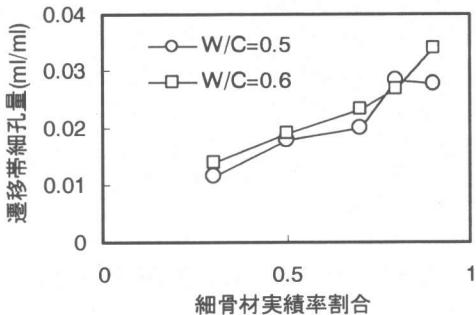


図-5 細骨材量と遷移帯細孔量の関係

分布の状態が異なる場合には、本手法を用いることにより両者を正当に比較することが必要である。

3. 構成要素の細孔量に着目したコンクリートの拡散性状のモデル化

コンクリートの拡散性状をモデル化するためには、本研究では、コンクリートをセメントペースト、遷移帯、骨材の3成分とし、各要素の細孔情報に基づきモデル化を試みる。また、コンクリート中のセメントペーストは、セメントペースト単体で作成した場合と同一品質であるとする。対象としたコンクリートの配合を表-1に示す。

表-1 対象とした配合（28日水中養生）

W/C (%)	s/a (%)	単位量(kg/m ³)			
		W	C	S	G
50	47	184	368	803	929

3.1 構成要素毎の拡散性状

セメントペーストの拡散性状を細孔情報に基づいた形で表現する方法は以下の通りとした。セメント粒子は図-6に示すように、水セメント比から決定される水とセメントの割合を粒子毎に満足し（図中灰色：セメント粒子、白色：水），この1つのユニットが規則正しく配置され、セメント粒子は限られたユニット内をフレッシュ

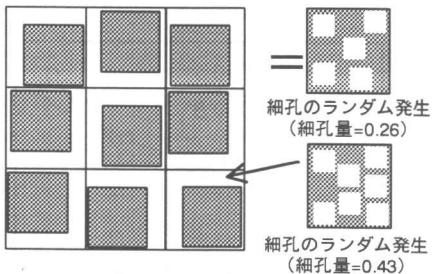


図-6 セメントペーストの細孔構造モデル化

時に動くことができる。その後、水和反応の進行とともに水和生成物を図中白色の領域に生成する。なお、内部生成物の細孔量は0と仮定する。ここで、水セメント比0.5、28日水中養生後の普通セメントペーストの水銀圧入方による測定結果は0.26 (ml/ml)であった。この場合、細孔構造をモデル化する際によく用いられるのは、細孔を細孔量 = 0.26 (ml/ml)となるようにランダムに発生させる(図中右上図参照)方法だが、ここでは、フレッシュ時にセメント粒子が存在していると決定された領域(図中灰色の領域)は細孔が存在しないとし、フレッシュ時に水であった領域の細孔が1 (ml/ml) → 0.43 (ml/ml)に変化したとする。これは、硬化体内に存在する細孔は、ある制約条件の基(本研究では、フレッシュ時におけるセメント粒子の配置を制約条件とした)にランダム発生されることが妥当であると考えたことによる。続いて拡散性状は、まず細孔領域のみを対象として見かけの拡散係数を求め、その後、図-6左図に示すセメント粒子部分には拡散係数を0、細孔領域には算出された見かけの拡散係数を用いることにより、セメントペースト全体の見かけの拡散係数を算出することにより求める。この時、拡散係数は細孔径に依存する係数では無いため、細孔領域の拡散係数のみを設定する。本研究では、具体的な拡散物質を限定せず0.1(cm²/day)と仮定した。見かけの拡散係数は、全体の濃度変化の平均に対して式(2)で表現される1次元の拡散方程式の理論解を近似させることにより算出した。なお、解析には、式(3)に示すFickの第2法則に基づ

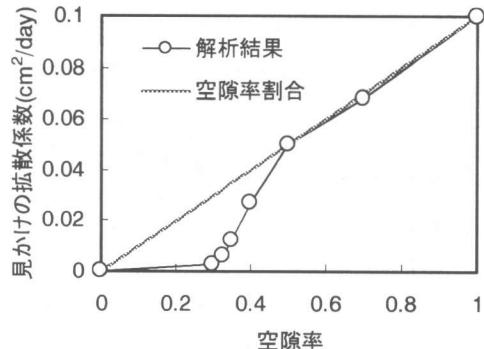


図-7 空隙率と見かけの拡散係数の関係

づく2次元拡散方程式および初期・境界条件を用いた。

$$c(x,t) = 1 - \operatorname{erf} \frac{x}{2\sqrt{Dt}} \quad (2)$$

ここに、c: 濃度、x: 境界面からの距離、D: 見かけの拡散係数、t: 時間

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \left(\frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 c}{\partial y^2} \right)$$

$$\text{初期条件: } c(x,y,0) = 0 \quad (3)$$

$$\text{境界条件: } c(x,0,t) = 1$$

まず、細孔領域のみを対象とした見かけの拡散係数を算出する。図-7に細孔をランダム発生させた場合の空隙率と見かけの拡散係数の関係を示す。なお、解析は2次元で行っているため空隙率と見かけの拡散係数の関係は現実の3次元空間における関係とは厳密には異なる。解析結果によれば、空隙率0.3付近を境として全体としての流れが出現することがわかる。ここで、セメントペースト(W/C=0.5、材齢28日)の細孔量は0.26 (ml/ml)であり、解析結果を参考すれば見かけの拡散係数は"0"となる。しかし、現実的に考えれば前述条件の拡散試験結果は既往の研究においても数多く報告されており、拡散しないという報告は無い。つまり、セメントペーストの細孔構造を図-6で示したようにモデル化することが妥当であることがわかる。解析の結果、細孔領域(細孔量0.43 (ml/ml)の場合)の見かけの拡散係数は0.033 (cm²/day)と計算さ

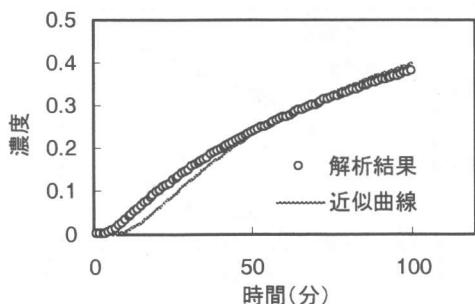


図-8 セメントペースト全体の拡散性状の一例

れた。続いて、この見かけの拡散係数を用いてセメントペースト全体の見かけの拡散係数を算出する。図-8 に濃度の経時変化の一例を示す。同図には、式(2)を用いて近似した結果も併せて載せてある。これにより、セメントペースト全体の見かけの拡散係数は $0.0026 \text{ (cm}^2/\text{day)}$ と計算された。

遷移帯の拡散性状は、遷移帯を前述した細孔領域と同一と捉え、空隙率に基づき細孔をランダム発生させ、見かけの拡散係数を算出した。

細骨材周りの遷移帯空隙率の算出方法は既報の通りとした³⁾。なお、遷移帯空隙率算出の際に遷移帯細孔量を用いるが、この値は 2 章で算出した値を用いている。ここで、遷移帯の空隙率は細骨材径に依存して変化するが³⁾、本研究では、コンクリートの拡散性状を把握することを主目的としているため、簡易的に細骨材の粒度分布に基づき平均遷移帯空隙率を求めた。平均遷移帯空隙率は約 0.38 であり、図-7 の関係から細骨材周りの遷移帯見かけの拡散係数は $0.021 \text{ (cm}^2/\text{day)}$ と設定することができる。

粗骨材周りの遷移帯空隙率算出にあたり、既報³⁾による Wall effect の影響とブリーディングによる影響を考慮した。粗骨材周りの遷移帯空隙率を、細骨材径 1.4mm における空隙率算出結果³⁾と既往の研究の観察結果⁴⁾がほぼ同一であることから、空隙率を 0.52 と設定した。空隙率が設定されると見かけの拡散係数は図-6 より $0.052 \text{ (cm}^2/\text{day)}$ となる。また、粗骨材周辺に形成

される遷移帯の厚さは、上面 : $27\mu\text{m}$ (Wall effect のみ)、下面 : $55\mu\text{m}$ (Wall effect + ブリーディングによる厚さ)、左右面 : $41\mu\text{m}$ (Wall effect + ブリーディングによる厚さの半分) とした。

3.2 コンクリートの拡散性状

前節で求めた構成要素毎の拡散係数を用いて、コンクリート全体の拡散性状をシミュレートする。解析手法は、前節と同様に 2 次元拡散解析とした。ここで、1 要素の大きさを遷移帯の厚さに合わせた場合、コンクリート全体を解析することは要素数が多くなり困難となる。そこで、2 次元要素である骨材領域の周囲に 1 次元要素である遷移帯（遷移帯厚さは考慮する）を張り付ける概念をプログラムに反映させる手法を採用した。材料の配置は、配合に応じた骨材量をモンテカルロシミュレーションに基づいた乱数発生により配置し、骨材以外の領域をセメントペーストとすることにより一般化させる方法を採用した⁵⁾。浸透の方向としては、構造物の耐久性を考えた場合その殆どが打設方向に対して垂直の方向からの物質の浸透であると考えられることを考慮し、この方向を採用した。また、粗骨材の大きさは平均粒径を用い 9mm (3×3) とし、細骨材の大きさは簡易的に 3mm (1×1) とした。

図-9 に浸透面からの距離が 30mm における濃度分布の平均値の経時変化を示す。なお、図には遷移帯の影響を把握するために、遷移帯の有無に関する計算した結果を記載してある。遷移帶有の結果に対して、遷移帶無の結果は顕著に拡散速度が小さくなっていることがわかる。例えば、開放面からの物質の供給が定常的にあり、物質の濃度が 0.1 となった時に有害であるという場合が存在するとすれば、遷移帯が存在しなければ約 16 年耐えることができるのに対して、遷移帯が存在すると約 4 年しか耐えられないという結果となった。

これまでの結果を表-2 に纏める。表中の S-TZ, A-TZ は細骨材周囲、粗骨材周囲の遷移帯を示す。また、各要素の拡散係数をコンクリート全

体の見かけの拡散係数で除した結果も記載した。既往の研究⁶⁾によれば、コンクリートの見かけの拡散係数は空隙量と屈曲度（細孔構造に依存するものを抽出）を用いて表現されている。ここで、本研究で仮定した細孔領域（=0.1 (cm²/day)）は、空隙量=1 (ml/ml)、屈曲度=1 の状態に相当する。現在、ひび割れを有する鉄筋コンクリートの拡散性状の把握が重要視され、ひび割れ部の取り扱い方法に関して関心が集まっている。ひび割れ部の空間情報は、空隙量=1(ml/ml)、屈曲度 ≥ 1 であり、コンクリートの屈曲度と比べた場合、極めて”1”に近い状態であると考えられる。つまり、本研究の結果よりひび割れ内の拡散係数の最大値は、コンクリート全体の見かけの拡散係数の約 80 倍と設定することが可能となる。

4. おわりに

本研究では、コンクリート全体の拡散性状を、構成要素の細孔構造に依存させてシミュレートする手法を提案した。この時、必要となる細孔情報は水銀圧入式ポロシメータの測定結果を用いているが、従来、インクボトル効果があるとの指摘があった。これに対して、体積頻度に基づく方法により測定結果を変換し実際の細孔径分布とする方法を提案した。さらに、見かけの拡散係数を算出する際に設定した細孔領域の拡散係数とコンクリートの見かけの拡散係数を比較することにより、ひび割れ内の拡散係数の最大値を設定することが可能であることを示した。

本研究は、コンクリートの拡散性状をシミュレートする手法の提案を行ったものであり、現時点では実現象との整合性を行っていない。今後、実験結果との整合性をとり、提案した手法が妥当であることを検証していくことが必要不可欠である。

謝辞：本研究を実施するにあたり東京大学魚本研究室の皆様に多大なご支援を頂きました。ここに感謝の意を表します。

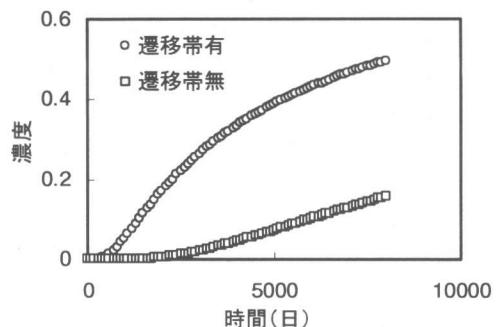


図-9 濃度の経時変化の一例（深さ 30mm）

表-2 拡散係数算出結果

	拡散係数(cm ² /day)	拡散/Con拡散
細孔領域	0.1	83.3
細孔領域(CP)	0.033	27.5
CP全体	0.0026	2.2
細孔領域(S-TZ)	0.021	17.5
細孔領域(A-TZ)	0.052	43.3
Con全体	0.0012	1.0
Con全体-遷移帶無	0.00028	0.23

参考文献

- 1) コンクリートの試験・分析マニュアル、コンクリートの長期耐久性に関する研究委員会、日本コンクリート工学協会、2000
- 2) 後藤孝治：セメント水和反応の強度発現のモデル化に関する研究、東京大学博士論文、1996
- 3) 加藤佳孝、魚本健人：数値解析による骨材表面に存在する遷移帯特性の評価に関する研究、土木学会論文集 V, No.641, V-46, 2000
- 4) Zimbelman, R. : A contribution to the problem of cement-aggregate bond, Cement and Concrete Research, Vol.15, pp.801-808, 1985
- 5) 加藤佳孝、魚本健人：遷移帯の特性に着目した物質移動現象のモデル化に関する一考察、コンクリート工学年次論文報告集, Vol.22, No.2, pp.733-738, 2000
- 6) 氏家勲：コンクリートの透気係数の定量的検討と密実性評価への適用に関する研究、博士論文、1994