

論文 気泡の空間分布構造の距離に関する特徴量と気泡間隔係数との対応

古東 秀文*1・室谷 卓実*2・五十嵐 心一*3・吉川 峻生*4

要旨: セメントペースト中に分布している気泡を点過程としてとらえ、気泡間の距離に着目した。点過程における最近傍距離関数から得られた特性値と従来の気泡間隔係数の対応を明らかにし、気泡構造評価に点過程統計量を導入することの有用性について検討を行った。その結果、最近傍距離関数をもとに実際の空間分布を特徴づける距離として定義した気泡間隔特性値が、Powers の定義した気泡間隔係数と極めて強い相関性を有しており、またそれぞれの値もほぼ一致することが確認された。これにより、従来用いられてきた気泡間隔係数を点過程統計量から簡単に推定できる可能性が示唆された。

キーワード: 画像解析, 気泡, 最近傍距離関数, メディアン距離, 気泡間隔係数

1. はじめに

コンクリートへの気泡の連行は、ワーカビリティや耐凍害性の改善など、コンクリートの物性改善において重要な役割を果たす。所定量の空気連行の確認はフレッシュコンクリートにてエアメーターにより行われるが、実際に耐凍害性に関して重要なのは、空気量よりも気泡間隔係数である。これは気泡の周囲の毛細管空隙を含む任意のセメントペースト領域が、最寄りの気泡によって保護されるとする保護領域の考え方に基づいており、一般には気泡間隔係数が $250\mu\text{m}$ 以下になるようにすれば、凍害に対してすぐれた抵抗性を有すると判断される。このときの気泡間隔係数は T. C. Powers の提案に基づき、ASTM C 457 に規定される方法によって求めることになっている。この規定は何回かの改訂がなされたようであるが、基本的には全線分長に対する対象物を横切った線分長（弦長）の線分比、もしくは面内に規則配置された全点数のうち対象物上に載った点数の比が対象物の体積率に等しいという 1 次のステレオロジー量に関する基本関係式を、それぞれリニアトラバース法およびポイントカウント法として用いている。実際の計測においては、顕微鏡観察により所定のトラバース長を走査したり、必要断面数を確保したりすることが求められ、その労力としての負担は大きい。

1980 年代に入り、画像解析法が一般化されるにともない、旧来の手順の簡便化を可能とする多くの手法が提案されるようになり^{2) 3)}、一方で改訂された ASTM C 457 の規定の中にもパーソナルコンピューターを使用した画像取得が記述されるようになった。しかし、評価に必要な観測領域は旧来と同様のままのようである。したがって、目視による顕微鏡観察に基づく手順に比べれば労力は全体として大幅に軽減されたが、必要とされるトラバ

ース長や観察視野数は依然として大きいままである。よって現在では、マイクロスコープと可動ステージを組み合わせた自動解析装置も開発されて久しいが、簡単に実施できる試験として一般的に普及しているとは言い難い面がある。

一方、画像解析技術の導入とその後の画像取得機器の発展により画像取得が容易になるにつれて、従来の ASTM C 457 の評価対象以外の画像中の詳細情報に着目されるようになっている。ASTM C 457 では気泡頻度と平均径が評価対象であって、気泡径分布の詳細を求めることは、気泡間隔係数の計算上はこれを必要としない。しかし、例えば、坂田らは⁴⁾、2 次元断面に現れる気泡径分布が現代では比較的容易に得られることを利用し、気泡間隔係数が同程度であっても気泡径分布は大きく異なることがあることを指摘している。

一方、画像取得とその画像中の様々な特徴の解析が容易になっていく過程にて、気泡間隔そのものを再考することとなされてきた。ASTM C 457 にて定義される気泡間隔係数は、気泡がすべて同一寸法の球であって、それが規則的な立方格子点に配置された状態を仮定し、セメントペーストの任意の点が最寄りの気泡表面から最も遠い位置にあるときの平均距離を表す。したがって、実際のコンクリート中の気泡間隔を直接表した距離ではなく、また気泡径も実際とは異なる。これに対して、同一寸法球の気泡だけでなく、寸法の異なる気泡がランダムに分布する状態を考慮できるようにして、より現実の分布に近い状態での気泡間隔の評価を行うための数値解析法が提案されてきた。例えば Snyder⁵⁾はいくつかの気泡間隔に関する評価式を比較し、気泡を粒子として表現し、気泡径分布も考慮できる Lu and Torquato 式が有用であると述べている。

*1 金沢大学大学院 自然科学研究科環境デザイン学専攻 (学生会員)

*2 金沢大学大学院 自然科学研究科環境デザイン学専攻 (学生会員)

*3 金沢大学 理工学域環境デザイン学類教授 博(工) (正会員)

*4 金沢大学 理工学域環境デザイン学類 (学生会員)

以上のように、気泡の連行に関しては、気泡の空間分布に関わる特性値としての気泡間隔もしくは任意のセメントペーストから気泡までの距離が重要であり、これを簡単に求めることができれば、コンクリートの耐凍害性の理解、および混和剤開発において有用なものと思われる。このような空間内に分布した粒子の分布構造を定量的に評価しようとする要請に対して、近年積極的に導入が検討されている手法の一つとして、空間に分布する粒子を点で代表させ、その分布を定量的に評価する点過程理論⁹⁾がある。粒子寸法を考えないことにより定式化が粒子を対象とする場合よりも簡略化され、また、確率に裏付けられた値としてその特性値の理解も容易である。これを適用すれば、気泡は2次元平面にランダムに分散した点として表され、気泡間隔に対応する点間の距離や気泡間隔係数に対応する点の周囲の任意点から点までの距離などが、容易に求められる。なお、この理論においては、気泡径を点の属性値とする定式化もなされているので、必要に応じて気泡寸法を考慮することも可能である。

本研究においては、気泡分布における距離に着目することにして、セメントペースト中に分布している気泡を点過程としてとらえ、その空間分布における統計量、特に距離に関する確率関数である最近傍距離関数を求める。そして、この関数における確率分布の特性値と従来の気泡間隔係数の対応を明らかにし、気泡構造評価に点過程統計量を導入することの有用性について論ずることを目的とする。

2. 実験概要

2.1 使用材料および配合

セメントには普通ポルトランドセメント（密度 3.15g/cm^3 、比表面積 $3310\text{cm}^2/\text{g}$ ）を使用した。セメントペーストの水セメント比を 0.40 および 0.45 とし、それぞれに対して AE 減水剤および AE 助剤の使用量を変化させて、空気量を変化させた。作製したセメントペーストの配合および名称を表-1 に示す。

2.2 試料の作成と画像解析

JIS R 5201 に準じてセメントペーストを練り混ぜ、市販の小型エアメーターを用いて、フレッシュ状態の空気量の測定を行った。空気量の測定後、 $40\text{mm} \times 40\text{mm} \times 160\text{mm}$ のセメントペースト角柱供試体を作製した。供試体は打ち込み後 24 時間にて脱型し、水中養生 (20°C) を行った。材齢 7 日にて供試体から厚さ 10mm 程度の板状試料を切り出し、耐水研磨紙を用いて断面の研磨を丁寧に行った。研磨終了後、試料を 50°C の乾燥炉に入れ、 $10 \sim 15$ 分間程度乾燥させた。その後、研磨面に黒色インクを塗布した。黒色インクの乾燥後、炭酸カルシウム微粉

表-1 各試料の名称および混和剤量

水セメント比	名称	AE減水剤量 (C × %)	AE助剤量 (C × %)
0.4	Ref	—	—
	AE0.05	0.05	—
	AE0.10	0.10	—
	AE0.25	0.25	—
	AE0.50	0.50	—
	AE0.25-助剤0.01	0.25	0.01
	AE0.25-助剤0.02	0.25	0.02
0.45	Ref	—	—
	AE0.25	0.25	—
	AE0.50	0.50	—
	AE0.25-助剤0.01	0.25	0.01
	AE0.25-助剤0.02	0.25	0.02

末（粒径範囲 $12 \sim 13\mu\text{m}$ ）を充填し、スライドガラスを用いて上から押し付けるようにして余分な炭酸カルシウム微粉末を除去した。そして気泡部分が白色、セメントペースト部が黒色となるようにし、気泡とセメントペーストの識別が可能となるように断面を処理した。その後、市販のフラットベッドスキャナを用いて断面の画像を取得した。このとき 画像の解像度は 1200dpi とし、1 画素は約 $21.2\mu\text{m}$ に相当する。1 試料に対して 10 断面の画像を取得した。また、デジタルマイクロスコープを用いて高倍率での気泡観察も行った。

2.3 画像解析

2.2 にて取得した画像に対して、ノイズ除去等の処理を行って解析用の 2 値画像とした。このとき、AE 剤にて連行される気泡径の範囲はおおよそ $30 \sim 250\mu\text{m}$ であること⁷⁾、およびステレオロジーの観点から多くの微細な粒子がすべて大きな球の端面の切断による円形断面とは考えられないことから、画像分解能の $30\mu\text{m}$ 以下の微細な白色部分は気泡以外の表面凹凸部であると判断し、これを除去した。残された白色部を気泡であると考え、この 2 値画像に対して気泡の面積率を画像解析により求め、ステレオロジーの考え方にに基づきこれを気泡体積率とした。さらに、個々の気泡の重心座標 $x_i (i = 1, \dots, n)$ を画像解析ソフトウェアの機能を用いて求め、これを位置ベクトル x_i とみなして、2次元断面内の点過程 $X = \{x_i; i = 1, \dots, n\}$ とした。

2.4 点過程統計量⁹⁾

点過程 X に対して、以下の特性値および関数値を求めた。

(1) 点密度

点過程によって得られる関数値や特性値の計算において基本となるパラメータとして点密度 $\hat{\lambda}_p$ がある。点密度は単位面積あたりの点の個数を表し、式[1]により定義される。

$$\hat{\lambda}_p = \frac{N_p(W)}{A(W)} \quad [1]$$

表-2 画像から得られた気泡の情報

水セメント比	0.40							0.45				
名称	Ref	AE0.05	AE0.10	AE0.25	AE0.50	AE0.25 -助剤0.01	AE0.25 -助剤0.02	Ref	AE0.25	AE0.50	AE0.25 -助剤0.01	AE0.25 -助剤0.02
平均気泡径 (μm)	123	135	138	120	118	100	126	134	117	122	96	129
空気量 (%)	2.4	3.3	3.4	4.9	6.4	6.0	8.5	3.5	4.9	6.2	5.8	9.5
硬化後の気泡体積率 (%)	1.0	1.9	2.1	3.5	4.4	3.7	7.3	1.2	3.0	3.7	3.5	6.9
気泡体積率の変動係数	0.13	0.15	0.05	0.06	0.12	0.04	0.06	0.11	0.08	0.09	0.10	0.09
空気量と気泡体積率の差	1.4	1.4	1.3	1.4	2.0	2.3	1.2	2.3	1.9	2.5	2.3	2.6
残存率 (%)	41.7	56.6	63.1	72.2	69.0	62.0	85.9	34.2	62.1	59.9	60.1	72.9

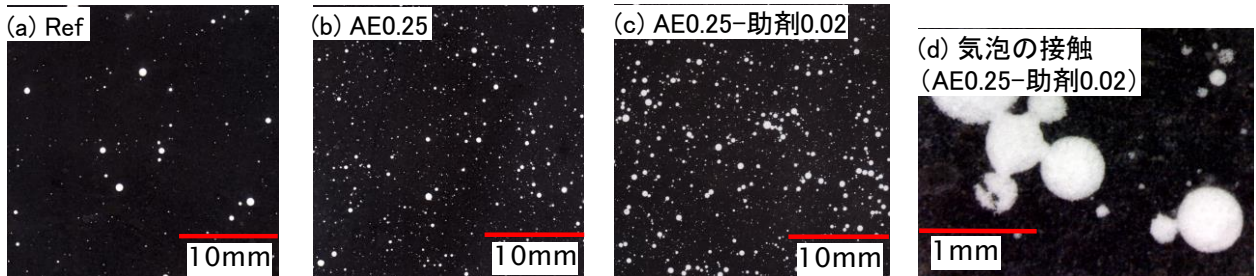


図-1 セメントペースト中の気泡の画像 (W/C=0.40)

ここに $N_p(W)$: 視野 W 中の点の個数

$A(W)$: 視野 W の面積

(2) 最近傍距離関数⁶⁾

最近傍距離関数は点過程の要素である任意の点 $x_i (x_i \in X)$ から距離 r 離れた位置に最近傍点 $x_j (x_j \in X, x_i \neq x_j)$ が存在する確率を表す。式[2]によりこれを求めた。

$$\hat{G}(r) = \frac{\sum_{i=1}^N 1(s_i \leq r) \cdot 1(s_i \leq b_i) \cdot w(s_i)}{\sum_{i=1}^N 1(s_i \leq b_i) \cdot w(s_i)} \quad [2]$$

ここに s_i : 最近傍距離

b_i : 各点から画像縁までの最短距離

また, $w(s_i)$ はエッジ補正係数であり, 前述の s_i を半径とする領域だけ縮退させた観察領域面積の逆数であり, 観察視野 W の辺長を x, y とすると, 式[3]により与えられる。

$$w(s_i) = \{(x - 2s_i) \cdot (y - 2s_i)\}^{-1} \quad [3]$$

(3) 気泡間隔係数

ASTM C 457 に従って, セメントペースト供試体中に分散した気泡であることを考慮して, 気泡間隔係数 $\bar{L}$ を[4]式により求めた。

$$\bar{L} = \frac{3}{\alpha} \left[1.4^3 \sqrt{\frac{P}{A} + 1} - 1 \right] \quad [4]$$

ここに $\bar{L}$: 気泡間隔係数 (mm)

α : 気泡の比表面積 (mm^2/mm^3)

P : ペースト容積比 (%)

A : 硬化コンクリートの空気量 (%)

なお, 本研究においては画像解析により取得した2値化画像から得られる結果から, 気泡の比表面積 α を以下の式により求めた³⁾。

$$\alpha = \sqrt{\frac{6\pi}{\bar{a}}} \quad [5]$$

ここに $\bar{a}$: 気泡面積の平均値

3. 結果および考察

3.1 供試体の空気量

表-2 にセメントペースト供試体のフレッシュ時の空気量と画像により求めた空気量を一覧にして示す。フレッシュ時の空気量と画像解析により求めた気泡体積率の間には1~3%程度の差が生じた。このような差異は1画素程度の微細な空気泡を除去したこと, および打ち込みから締固めの過程にて失われた空気量が原因と考えられる。しかし, 前述の手順にて除去した微細な白色部分が全体の空気量に占める割合は多くはないことを考えると, これは締固めの過程において失われた空気量によるところが大きいと判断される。また, フレッシュ時の空気量の測定値に対する硬化後の画像解析から求めた気泡体積率の割合を残存率として求めた結果をみると, 混和剤を使用していないエントラップトエアだけを含むセメントペーストでは残存率は30~40%程度であるが, AE減水剤を用いた供試体では, 空気残存率は60%程度以上となった。これより, エントラップトエアはエントレインドエアに比べて打ち込みから締固めの際に失われやすいと考えられる。

図-1 に水セメント比0.40の気泡画像の例を示す。AE減水剤およびAE助剤の添加にともない, 気泡の個数が増加することが目視でも明瞭に認識できる。また, 供試体によっては図-1 (d) のように気泡が接触したものも確認された。

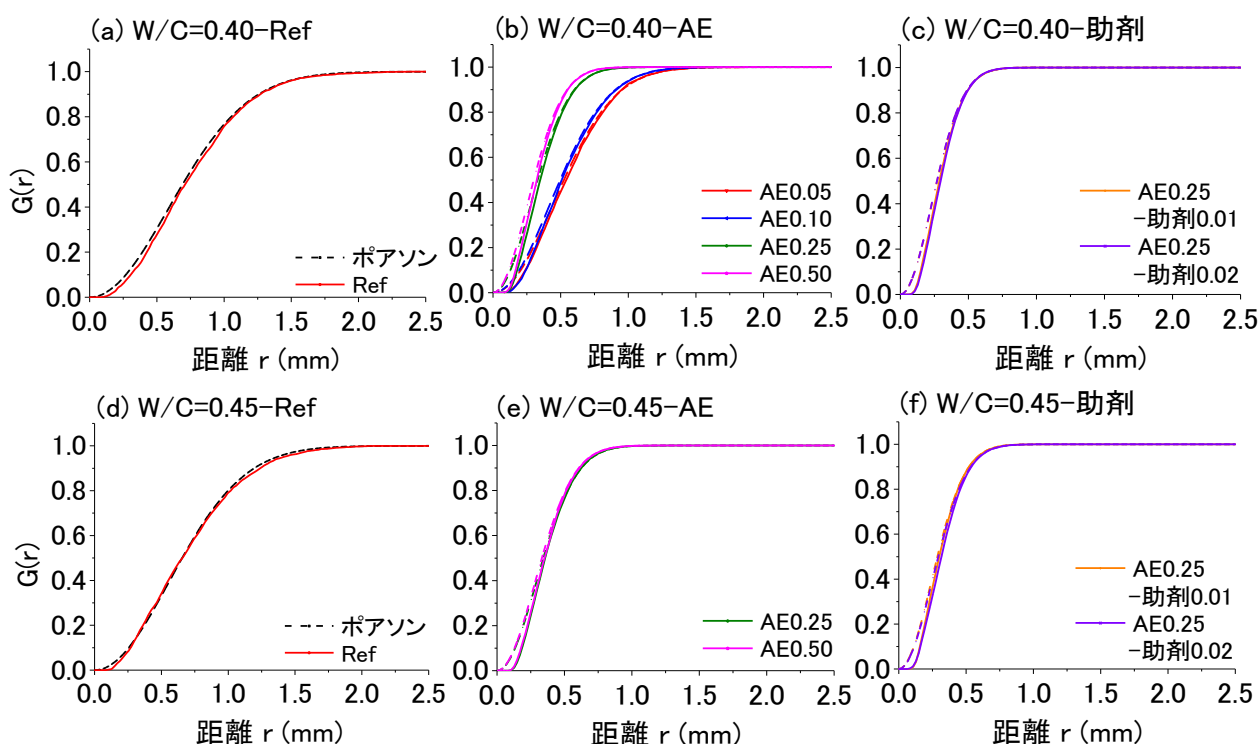


図-2 セメントペースト中の気泡の最近傍距離関数

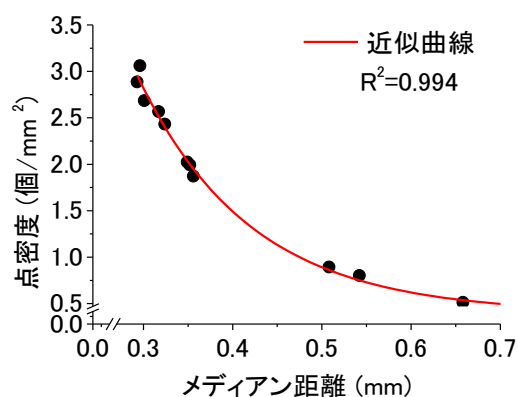


図-3 点密度とメディアン距離の関係

3.2 最近傍距離関数

図-2 にセメントペースト中の気泡の最近傍距離関数をそれぞれ示す。図中の破線は、完全なランダムに気泡が分散している場合（ポアソン分布）の最近傍距離関数を示している。水セメント比 0.40 の場合（図-2 (a), (b), (c)），AE 減水剤，AE 助剤により空気量を大きく変化させたとしても，気泡の最近傍距離関数はポアソン分布の場合の最近傍距離関数と一致し，2 値画像内において気泡がほぼランダムに分散していることを示している。また，空気量の増加にともない最近傍距離関数値が 1 となる距離が小さくなっていく。これは，空気量の増加にともない，独立して存在する気泡が多くなり，気泡間隔が小さくなっていることを示している。水セメント比が 0.45 の場合についても（図-2 (d), (e), (f)），水セメ

ント比 0.40 と同様に気泡はランダムに分布している。また，空気量の増加にともない収束距離が小さくなっていく傾向も，水セメント比が 0.40 の場合と同様である。

3.3 メディアン距離と点密度の関係

最近傍距離関数は気泡を点で表したとき，任意の点から最も近い他点を見出す確率を，距離を確率変数として累積確率分布として表したものである。この確率分布の代表値として第 2 四分位点（メディアン）に相当する距離をメディアン距離 R_{50} とし，これをランダムに分散した気泡間距離を代表する特性値として用いることにする。

表-3 に点過程として求めた各配合における気泡パラメータを一覧にして示す。また，図-3 に点密度とメディアン距離の関係を示す。なお，図-3 には，水セメント比が 0.40 と 0.45 の結果を合わせて示してある。この結果より，点密度とメディアン距離の間には，双曲線で近似できるような関係が存在することがわかる。気泡量が増大して点密度が増すことにより点間隔は小さくなるためメディアン距離は減少していくが，点密度がある程度大きくなるとメディアン距離の変化が小さくなる傾向が認められ，気泡自体が点ではなく自分自身の寸法を持つこと，および気泡間隔が狭くなってくると，気泡は他の気泡の存在の影響を受ける場合があるためと考えられる。例えば，空気量を増大させても平均気泡径には大きな変化は認められないが，図-1 (d) に示したように気泡同士が極端に近づき，接触状態になると気泡の合一⁸⁾によりメディアン距離にその特徴が表れにくくなる可能性

表-3 画像で得られた点過程での気泡パラメータ

水セメント比	0.40							0.45				
名称	Ref	AE0.05	AE0.10	AE0.25	AE0.50	AE0.25- 助剤0.01	AE0.25- 助剤0.02	Ref	AE0.25	AE0.50	AE0.25+ 助剤0.01	AE0.25+ 助剤0.02
点密度 (個/mm ²)	0.46	0.80	0.89	2.02	2.43	2.89	3.06	0.51	1.87	1.99	2.69	2.57
R50 (μ m)	710	542	508	349	324	293	296	658	356	352	301	317
L' (μ m)	648	474	439	289	265	243	233	591	298	291	253	253
気泡間隔係数 (μ m)	558	451	432	298	276	250	251	540	307	301	258	273
L'-気泡間隔係数	90	24	7	9	11	7	18	51	9	10	6	21

が考えられる。

3.4 メディアン距離 R_{50} と気泡間隔係数 $\bar{L}$ との関係

本研究にて定義したメディアン距離は、気泡の中心間距離の特性値であり、気泡寸法は考慮していない。一方、気泡間隔係数はセメントペーストマトリックスの任意の点から最も近い気泡表面までの距離の最遠距離という意味を持つ。そこでメディアン距離 R_{50} に対して平均気泡径 D の1/2、すなわち平均気泡半径を差し引いた値を求め、これを気泡間隔特性値 L' として定義する (式[6])。

$$L' = R_{50} - D/2 \quad [6]$$

ここに、 R_{50} ：メディアン距離

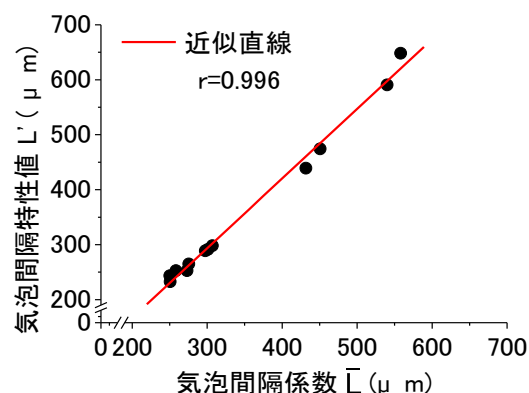
D ：平均気泡径

表-3 に式[6]にて求めた気泡間隔特性値 L' と式[4]により求めた気泡間隔係数 $\bar{L}$ を示す。また、図-4 に気泡間隔特性値 L' と気泡間隔係数 $\bar{L}$ の関係を示す。気泡間隔特性値 L' は気泡間隔係数 $\bar{L}$ との間に直線で近似できる極めて高い相関性が見られる。また、気泡間隔係数 $\bar{L}$ は気泡間隔特性値 L' より小さな値を示しているが、その差は大きくなく、両者はほぼ一致している。

3.5 気泡間隔特性値 L' と気泡間隔係数 $\bar{L}$ の幾何学的対応

前述のように気泡間隔特性値 L' と気泡間隔係数 $\bar{L}$ の間にはきわめて良好な相関性が存在し、その絶対値もほぼ一致している。このことは、従来用いられてきた気泡間隔係数が点過程統計量から簡単に推定できる可能性を示唆するものである。以下において気泡間隔特性値 L' と気泡間隔係数 $\bar{L}$ の対応に関する考察を試みる。

図-5 は Powers の気泡間隔係数を求めるために仮定された気泡分布構造を模式的に示したものである。様々な寸法の気泡が存在する実際の空間配置を (図-5 (a))、

図-4 気泡間隔係数 $\bar{L}$ と気泡間隔特性値 L' の関係

一定寸法の気泡が立方体の中心に配置されているような規則的配置を仮定している (図-5 (b))。この配置は一定寸法の気泡が立方体の格子点に規則的に配置されているような配置に言い換えることができる (図-5 (c))。この配置において、気泡表面からセメントペースト中の点に至る最大距離が気泡間隔係数 $\bar{L}$ となる。立方体の1辺の長さは、セメントペーストの割合 P 、気泡体積率 A 、気泡個数 N を用いて $\sqrt[3]{(P+A)/N}$ と表せる³⁾。

これに対して、点過程におけるメディアン距離 R_{50} を用いて空間配置を考えた場合、図-6 のようなランダムに分布した点の内の任意の点から平均的なメディアン距離 R_{50} に相当する距離にて、必ず気泡重心点が見出せる確率が高いことを意味する。これを3次元空間に適用した場合、任意の点から R_{50} を半径とする球上に点を必ず見出さうる分布となる。Powers の仮定した空間配置とメディアン距離を用いた空間分布との対応を模式的に表したものを図-7 に示す。このように本研究では、メディアン

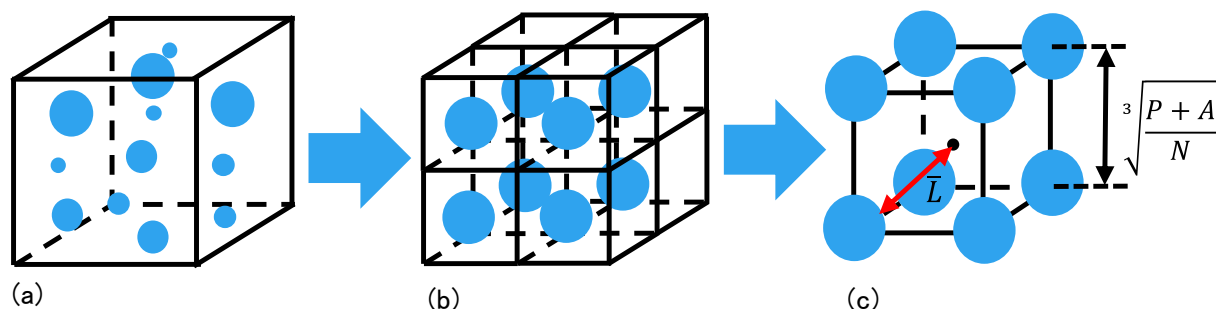


図-5 Powers の気泡間隔係数を求めるための気泡配置

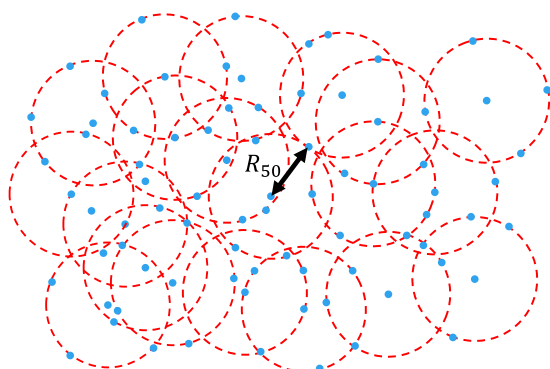


図-6 ランダムな点過程中の R_{50} の模式図

距離 R_{50} が、立方体の対角線の半分とおおよそ一致するような対応関係があることになる。この関係により、本研究で提案した気泡間隔特性値 L' と気泡間隔係数 $\bar{L}$ の値がほぼ一致するような結果が得られたと考えられる。換言すると、ランダムに分布した点過程における最近傍距離関数の平均的な値が気泡間隔係数に対応づけられることを意味している。

以上のようにセメントペーストの場合、点過程理論を用いて気泡間隔係数の推定は可能なようである。しかし、骨材が存在するモルタルやコンクリートでは、骨材による気泡の空間分布の制限があると推測されるため、気泡間隔特性値 L' はセメントペーストの場合とは異なることも予想される。しかし、そのような場合であってもランダム分布が再現されるならば、点過程特性値を求めることは容易であり、この点については今後の課題としたい。

4. 結論

点過程統計量の一つである最近傍距離関数から得られる特性値と従来の気泡間隔係数の対応を明らかにし、気泡構造評価に点過程統計量を導入することの有用性について評価を行った。本研究にて得られた主な結果は以下の通りである。

- (1) フレッシュ時の空気量と硬化時の気泡体積率では 1～3%程度の差があり、これは打ち込みから締固めの過程にて失われたものと考えられる。また、エントラップトエアのほうがエントレインドエアに比べて残存率が低く、比較的失われやすいと考えられる。
- (2) 最近傍距離関数から気泡はセメントペースト内ではほぼランダム分布に従うことが確認された。
- (3) 最近傍距離関数から得られる特性値としてのメディアン距離は点密度と強い相関性があり、点密度が大きくなると、メディアン距離が小さくなる傾向を示した。また、その変化量は点密度がある程度大きくなると小さくなる傾向が認められた。
- (4) 本研究で定義した気泡間隔特性値 L' と気泡間隔係数

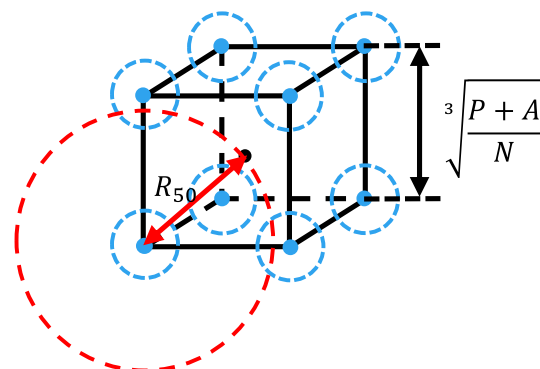


図-7 気泡間隔係数が想定する気泡配置と R_{50} の対応

$\bar{L}$ には直線で近似できる極めて高い相関性がみられ、それぞれの値もほぼ一致することが確認された。

- (5) セメントペーストにおいて、点過程統計量から気泡間隔係数の推定は可能なようである。モルタルやコンクリートは、骨材による気泡の空間分布の制限があると推測されるため、さらなる検討が必要である。

謝辞

本研究の実施にあたり、日本学術振興会科学研究費補助金（基盤研究(C)、課題番号：24560564、研究代表者：五十嵐心一）の交付を受けた。ここに記し謝意を表す。

参考文献

- 1) Powers, T. C. : The Air Requirement of Frost-Resistant Concrete, Proceedings of the Highway Research Board, Vol.29, pp.184-211, 1949
- 2) 鮎田耕一, 桜井宏, 田辺寛一郎 : 硬化コンクリート気泡組織の照度差による画像解析, 土木学会論文集, No.420, Vol.13, pp81-86, 1990
- 3) 小長井宜生, 大橋猛, 根本任宏 : 気泡断面積測定による硬化コンクリートの気泡パラメータ解析理論, 土木試験所月報, No.396, 1986
- 4) 坂田昇, 菅俣匠, 林大介, 橋本学 : コンクリートの気泡組織と耐凍害性の関係に関する考察, コンクリート工学論文集, Vol.23, No.1, pp.35-47, 2012
- 5) Snyder, K. A. : A Numerical Test of Air Void Spacing Equations, Advanced Cement Based Materials, Vol.8, No.1, pp.28-44, 1998
- 6) Stoyan, D. and Kendall, W. S. and Mecke, J. : STOCHASTIC GEOMETRY and its APPLICATIONS, 2nd Edition, JOHN WILEY & SONS Ltd, 1995
- 7) 川村満紀 : 土木材料学, 森北出版株式会社, 1996
- 8) 坂田昇, 菅俣匠, 林大介, 作榮二郎 : コンクリートの凍結融解抵抗性に及ぼすブリーディングの影響に関する一考察, コンクリート工学論文集, Vol.23, No.2, pp.59-69, 2012