論文　中性子画像とX線画像によるモルタル吸水試験の比較評価

藤牧　哲也[*1]・丸山　一平[*2]・大竹　淑恵[*3]・水田　真紀[*4]

要旨：本論文では，透過性の高い2種類の放射線，中性子とX線を用いてモルタルの吸水試験を行い，その過程の可視化をするとともに放射線の違いによる差異について検討を行った。どちらの方法でも吸水過程を可視化ができることが確認された。中性子はX線と比べて水素原子とモルタル中の原子（CaやSi）に対する減衰の差が大きくより鮮明に可視化された。また，得られた吸水画像の輝度値から吸水量を算出し，実際の質量変化と比較し線形の関係にあることが確認された。その際の減衰係数は中性子試験では唯一性があったもののX線CRでは試験体によって値が変化するという結果が得られた。

キーワード：中性子，X線CR，水分移動，RANS，モルタル

1. はじめに

コンクリートの物性変化にはコンクリート内の水分分布が大きくかかわってくる。水分移動や水和反応，乾燥収縮に至るまで水分の働きを無視することができない。そのため，今までも様々な水分移動の実験がなされてきた。質量変化を計測して水分浸透を測定する方法[1)]や，吸水面から対面に溶液が達するまでの時間を測定する方法[2)]，試験体を層に分解し部分ごとの含水率を測定する方法[3)]などが報告されている。一方で，コンクリート中の成分に対し水素原子に対しての感度が高い中性子が注目されるようになり，非破壊で水分分布ならびに水分の動的な移動を可視化できる手法として，面的に画像を取得するラジオグラフィ（Neutron Radiography，NR）ならびに立体的に3次元情報に分解するトモグラフィ（Neutron Computed Tomography，N-CT）が確立されている。

また，物質を透過する性質が強い放射線としてX線についても，原子に特有の相互作用もあるものの一般的には密度差に応じたコントラストが得られることが知られている。医療分野ではレントゲンとして知られているように，物質を透過してそれを画像（X-ray computed radiography，X線CR）として得ることができ，そのコントラストで物質内部の状態を明らかにすることができる。材料の分野でも微細構造を非破壊で可視化する方法として用いられている[4)]。

本報告では高い透過力をもつ中性子とX線の2種類の放射線による水分移動の可視化の比較を行い，それぞれの特徴について分析した。

2. 既往の研究

2.1 多孔体中の溶液移動理論

微細空隙を有する多孔体であるセメント硬化体中への液水浸入に寄与する駆動力として，毛管張力が挙げられる。Washburnは，断面が円形の単純なチューブにおける毛管張力を式（1）によって表している[5)]。

$$P = 2\gamma\cos\theta / r \quad (1)$$

ここで，Pは毛管張力（N/m^2），γは液体の表面張力（N/m），θは接触角（°），rは有効流路径（m）を表す。

また，粘性を有する液体が管径一定の円管を安定して一定速度で流れる場合，管内平均流速はHagen-Poiseulleの式と呼ばれる式（2）で表される。

$$Q = \frac{\pi P r^4}{8\eta L} \quad (2)$$

ここで，Qは管内平均流速（m^3/s），ηは液体の粘性係数（Pa s），Lは液水浸入距離（m）である。

式（1）（2）より，円形チューブにおける毛管張力を駆動力とした液状水浸入距離Lは式（3）で表される。

$$L = \sqrt{\frac{\gamma r\cos\theta}{2\eta}\, t} \quad (3)$$

ここでtは時間（s）を表す。

以上より，液水浸入距離Lは時間tの平方根に比例する（以下$\sqrt{t}$則とする）事がわかる。式(3)はLucas-Washburnの式と呼ばれ，高さ5 nmの直線単管や[6)]，コンクリートへの吸水においても適用が報告されている[7)]。セメント硬化体中の空隙構造は円形のチューブとは形状が異なるが，空隙を何らかの単純形状とみなす場合，円形チューブが適していると考えられる。また，吸水時間が数百時間を越えると液水移動の挙動はLucas-Washburnの式から外れる事が報告されている[8)]。

液水浸入の駆動力に関して重力の影響も考えられる。毛管張力が支配的となる有効流路径の上限の閾値は毛管長κ（mm）と呼ばれ式（4）で表わされる[9)]。

*1 国立大学法人　名古屋大学　大学院環境学研究科　（学生会員）
*2 国立大学法人　名古屋大学　大学院環境学研究科　教授　博士（工学）　（正会員）
*3 国立研究開発法人理化学研究所　中性子ビーム技術開発チーム　チームリーダー　博士（理学）
*4 国立研究開発法人理化学研究所　中性子ビーム技術開発チーム　研究員　博士（工学）　（正会員）

$$\kappa = \sqrt{\frac{\gamma}{\rho\, g}} \qquad (4)$$

ここで，γ は溶液の表面張力（mN/ m），ρ は溶液の密度（g/ cm^3），g は重力加速度（m/ s^2）である。

水の場合，毛管長は 2.7 mm 程度であり [9]，管径がそれ以下となる場合には毛管効果が支配的となり，重力の影響は無視できる [7]。セメント硬化体の空隙は粗大な空気泡を除き，いずれの空隙径も 2 mm 以下の領域に分布しているため，セメント硬化体中への液水移動に関しては，毛管張力が支配的に働いていると考えられる。

2.2 放射線ラジオグラフィ

ラジオグラフィとは，物体を放射線が透過した際にその透過量の大きさの差異によってコントラストのある画像を取得する可視化手法の 1 つである。その放射線と相互作用の関係は次の式（5）で表される（たとえば [10][14]）。

$$I = I_0\, e^{-\mu\, d} \qquad (5)$$

ここで，I は物体を通って減衰した放射線強度，I_0 は物体に入射した放射線強度，μ は減衰係数（cm^{-1}），d は物体の厚さ（cm）を表す。

ラジオグラフィに主に使用される放射線は中性子と X 線であるが，元素に対する相互作用の性質は異なる。そのため，μ は照射する放射線の線質と照射される物体を構成する元素によって変化する [11]。**図－1** に各原子に対する密度あたりの減衰係数，質量減衰係数（cm^2/ g）を示す。X 線は原子番号の大きさに比例して減衰量が大きくなっていることがわかる。一方で中性子の質量減衰係数をみると傾向がみられない。これは，X 線は核の構成に影響を受けず常に同じように減衰するが，中性子は原子核に直接作用するため核の構造によって作用が変化するからである。また，H や Li といった原子番号の小さい原子に対しての減衰が特に大きいことが知られる。そのため，X 線とは異なり，中性子は水やプラスチックに対して選択的に観察することができる [12]。

2.3 中性子ラジオグラフィ装置

本検討では理研陽子加速器小型中性子源 RANS（**図－2**）を使用した。RANS では陽子線形加速器を用いて陽子ビームを 7 MeV まで加速させ，それを中性子ターゲットであるベリリウムに照射し ^{9}Be（p, n）反応により中性子を発生させている [13]。使用している加速器では陽子の平均電流が最大 100 μA であり，その際に発生する総中性子量は 10^{12} n/sec 程度と見積もられる。発生した中性子はポリエチレンブロックを利用した減速体で熱中性子ビームとして取りだされる。ターゲットであるベリリウムや減速材であるポリエチレンは遮蔽材であるホウ素ポリエチレンや鉛に囲まれていてターゲットステーションを構成している。ターゲットステーションから下流

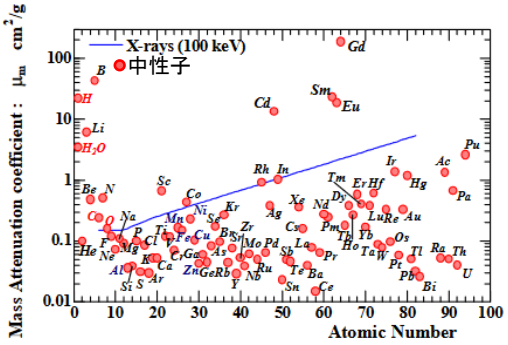
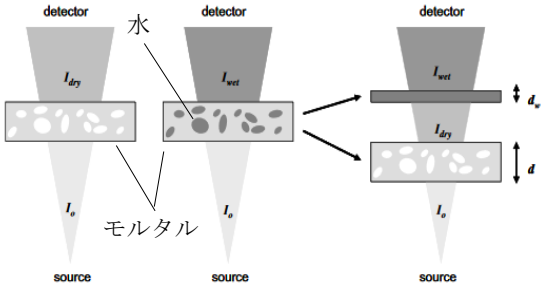


図-1　各原子に対する質量減衰係数 [11]

図－2　理研陽子加速器小型中性子源 RANS



図－3　X 線 CR による測定イメージ図 [10]

側はオープンスペースとなっており測定対象，方法に応じて検出器を設置することができる。

2.4 X 線 CR による吸水量の算出

X 線 CT 装置の検出器では検出した放射線強度をグレースケールとして可視化させている。よって式（5）は

$$GSV = GSV_0\, e^{-\mu\, d} \qquad (6)$$

と表現することができる [14]。ここで，GSV はグレースケールを表す。吸水前後のモルタルは**図－3** のように表すことができる。すなわち，**図－3** 左の図は乾燥しているモルタルを，**図－3** 中央の図は吸水した後のモルタルをそれぞれ測定している。左の図は式（6）を用いて，

$$GSV_{dry} = GSV_{air}\, e^{-\mu_{mor}\, d_{mor}} \qquad (7)$$

と表せる。ここで GSV_{dry} は乾燥したモルタルを通過した後のグレースケール，GSV_{air} は空気中を通過した後のグ

レースケール，μ_{mor} はモルタルの減衰係数（cm^{-1}），d_{mor} はモルタルの厚さ（cm）である。同様に真ん中の図は，

$$GSV_{wet} = GSV_{air}\, e^{-\mu_{wet}\, d_{wet}} \quad (8)$$

と表せる。ここで，GSV_{wet} は吸水したモルタルを通過した後のグレースケール，μ_{wet} は吸水したモルタルの減衰係数（cm^{-1}），d_{wet} は吸水したモルタルの厚さ（cm）である。また，モルタルの吸水を右の図のようにとらえると次の式（9）と考えられる。

$$GSV_{wet} = (GSV_{air}\, e^{-\mu_{mor}\, d_{mor}})\, e^{-\mu_w\, d_w} \quad (9)$$

ここで，μ_w は水の減衰係数（cm^{-1}），d_w は吸水された水の厚さ（cm）である。

また，水の厚さ d_w は式（10）[10)14)]で表すことができる。

$$d_w = \Delta C_w \frac{d}{\rho_w} \quad (10)$$

ここで，ΔC_w は単位体積当たりの含水量（g/cm^3），d は試験体の厚さ（cm），ρ_w は水の密度（g/cm^3）を表す。

式（6）（8）（9）よりモルタルが吸水した水量は次の式で算出することができる。

$$\Delta C_w = -\frac{\rho_w}{\mu_w\, d} \ln \frac{GSV_{wet}}{GSV_{dry}} \quad (11)$$

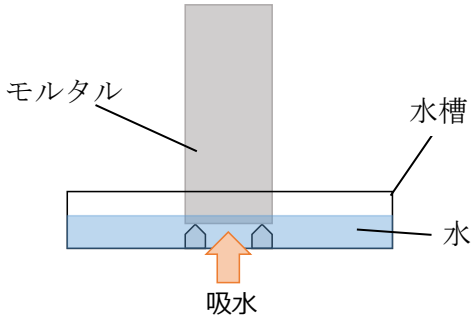
3. 実験概要

3.1 試験体概要

試験体は細骨材セメント比を 2 で，W/C= 0.55 と 0.40 のモルタルを作成した。セメントには普通ポルトランドセメントを，細骨材にはケイ砂を使用した。練り混ぜには自転・公転ミキサーを使用した。はじめに水セメント比が 0.40 になるように水とセメントを配合し 1000 rpm で 2 分間練り混ぜた。その後，残りの水と細骨材を入れ再び 1000 rpm で 1 分 30 秒間練り混ぜを行った。水セメント比 0.55 のものはブリージングが収まるまで練返しを 30 分にごとに計 3 回，0.40 のものはブリージングが発生しなかったため，練返しなしで 20×20×300 mm の型枠に打設した。打設後は，20±1 ℃の恒温室で保管した。7 日後に脱型を行い 21 日間水中養生を行った。その後，20×20×100 mm の寸法に切断し 105 ℃の炉で 5 日間乾燥させて絶乾状態にしたものを試験体とした。吸水の測定前に室温まで冷却した。また，試験体はそれぞれの実験に対して用意した。

3.2 中性子による吸水試験

中性子による吸水試験は理研陽子加速器小型中性子源 RANS を使用した。試験体を**図－4** のような吸水装置で吸水させた後，15，60，190，360，1440，1800 分で撮影を行った。撮影のたびに試験体を吸水装置から取り出し質量を測定した後，検出器の前に設置した。本検討ではターゲットステーションからビームがでる開口を φ140 mm，開口から検出器までの距離を 2100 mm にして実験



図－4　吸水装置イメージ図

を行った。ターゲットステーションの下流側には，中性子イメージングでコンクリート測定の実績のある中性子イメージインテンシファイアを検出器として使用した。

画像の撮影では試験体を置かず，ビームを出していない状態（以後，ダーク）と出している状態（以後，ダイレクト）と，試験体を置いた状態でビームを出したもの（以後，サンプル）をそれぞれ取得した。その画像に対し処理を行うことで，モルタル内の水分の可視化を試みた。各画像でノイズ処理行いその後，ダイレクト・サンプルからそのダーク画像を除しダークの影響を除いた。最後にサンプルをダイレクトで除することで画像内の中性子ビームの強度を平坦化することで吸水結果の画像を得た。取得した画像に対して，画像のグレースケールを数値化することで各吸水時間での吸水の高さの算出を試みた。また，グレースケールの変化と質量の変化の関係を確認した。各画像処理やグレースケールの数値化にはオープンソースの画像解析ソフトウェア ImageJ[15)] を用いた。

3.3 X 線 CR による吸水試験

X 線 CR 観察にはマイクロフォーカス CT システムを用いた。本検討では，管電圧を 100 kV，管電流を 110 μA，SDD（X 線源から検出器までの距離）を 500.00 mm，SRD（X 線焦点から試験体までの距離）を 300.00 mm，送りライン数を 4 line，アベレージ数を 10 とし，厚さ 0.4 mm の Cu フィルターを用いて撮影を行った。また，厚さ 3 mm の鉄と，厚さ 16 mm の石英をモルタル試験体と同時に撮影し，リファレンスとして用いることで異なる試験体を撮影した場合でも比較できるように画像のグレースケールを基準化した。中性子での測定と同じように各測定時間のたびに吸水装置から試験体を取り出し CT 装置内のテーブルに設置し測定を行った。吸水試験は室温 20±2 ℃の室内で行った。

取得した透過画像に対して，吸水前の試験体の画像を背景画像とし，吸水後の試験体の画像と背景差分を取得することでモルタル中の水分の可視化を試みた。そうして得られた差分画像について，中性子での測定と同じよ

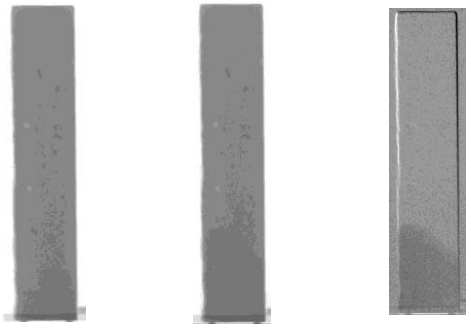
うにグレースケールを数値化することで各吸水時間での吸水高さおよび吸水量の算出を試みた。先ほどと同様に画像解析ソフトウェア ImageJ[15]を用いた。

4 実験結果

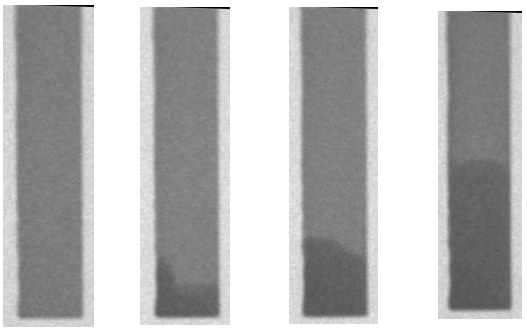
図－5 に X 線 CR で撮影した吸水前の画像と吸水後の画像，その差分画像を示す。吸水 3 時間後の画像では下部で少し色が変わっているものの，目視で判断するには難しい。しかし，差分画像をとることで吸水部分が明確に表される。**図－6, 7** に 0.55 の中性子によって得られたモルタルの画像と X 線 CR によって得られた差分画像を示す。どちらも時間が経過することで吸水の浸透が確認できる。一方，吸水初期の段階で左側から急激に吸水される現象が確認できる。この面は打設面であったことから，練返しの回数が足りず材料分離が起きてしまったのではないかと考えられた。左側の部分と右側の部分で異なる影響が生じているため，打設の底面であり均一性の高いと考えられる右半分の領域に着目して，水分移動速度について分析することにした。

吸水高さの算出については，以下のとおりとした。画像の試験体の右側の部分で水平方向の輝度値の平均を鉛直高さ方向にプロットすると**図－8** のようになる。溶液が浸透している部分は放射線の減衰が大きくなるため輝度値が低くなる。400 ピクセル以下の領域では，吸水前と比較して吸水後に傾きが変わりはじめ輝度値の低くなっている領域が確認できる。吸水前のグラフから吸水後のグラフが剥離した高さを吸水高さと定め，吸水開始からの各時間における吸水高さを算出した。**図－9, 10** に 0.55 と 0.40 の吸水高さと吸水時間の平方根の関係を示す。どちらの試験体も中性子での測定と X 線 CR での測定で結果がほとんど一致した。0.40 では CR の結果が吸水初期では少し高いがこれは左側の吸水が早くなってしまった部分の影響を受けてし まったためと考えられる。また，吸水開始から 24 時間の時点では 0.55 のほうが吸水高さが大きく，空隙が大きいほど粘性の影響が小さく，高く吸水する一般的な水セメント比の関係が示された。$\sqrt{t}$則から逸脱している傾向は，表面から水分の蒸発が起きている可能性，ならびに吸水時に C-S-H が湿潤により膨張し，空隙が小さくなった（式（3）において平均的なrが減少した）ため[16]と考えられる。

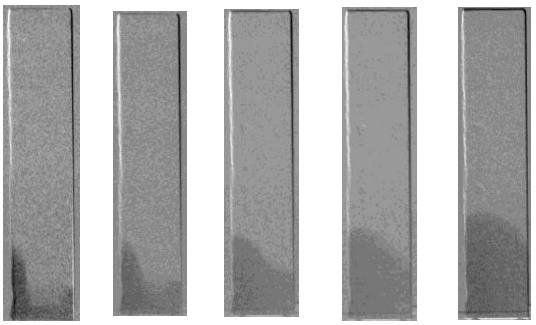
次に輝度値と吸水量の関係を示す。中性子では質量の増分とその時の試験体の輝度値の合計の比較を（**図－11**），X 線 CR では式（11）によって得られた質量増分と質量測定から得られた増分値の比較（**図－12**）を行った。**図－11** では中性子で得られた画像の輝度値の増分と質量の増分がおおそよ線形である結果が得られた。0.40 の



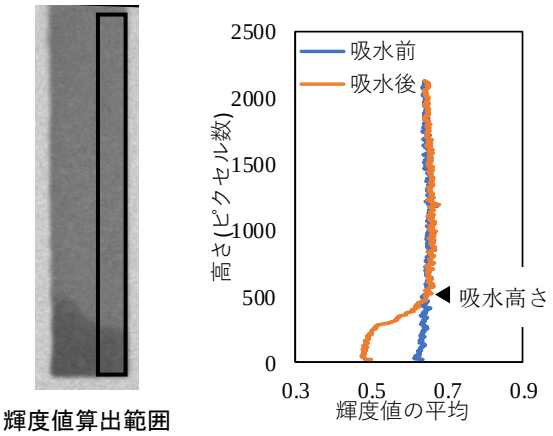
図－5　差分処理を行った X 線 CR 画像



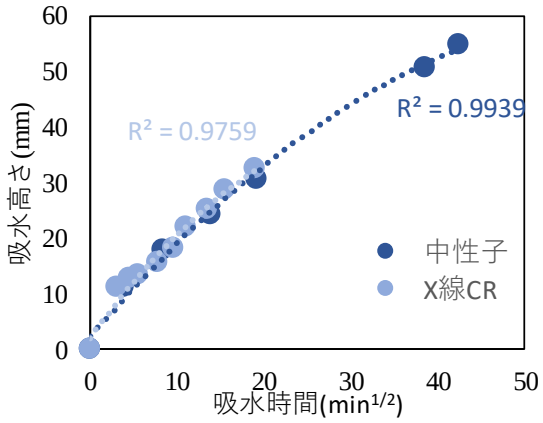
図－6　中性子によって得られた吸水画像
（W/C = 0.55）



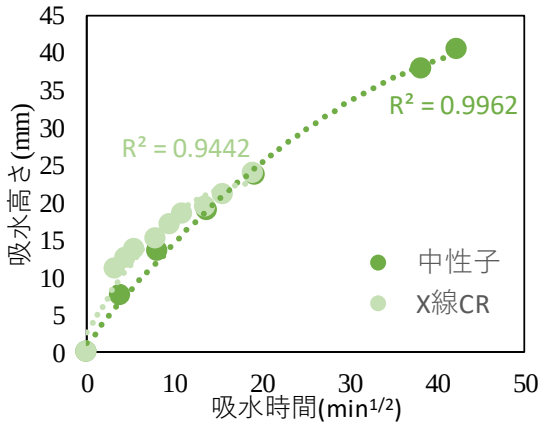
図－7　X 線 CR によって得られた吸水差分画像
（W/C = 0.55）



図－8　輝度値の平均値の鉛直方向の変化



図－9　吸水高さと時間の平方根（W/C =0.55）



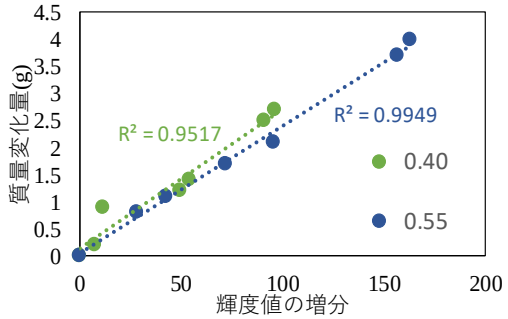
図－10　吸水高さと時間の平方根（W/C =0.40）

近似曲線は外れ値 1 点を除いて書いている。近似直線がほとんど同じ値であることから減衰係数の唯一性が確認された。

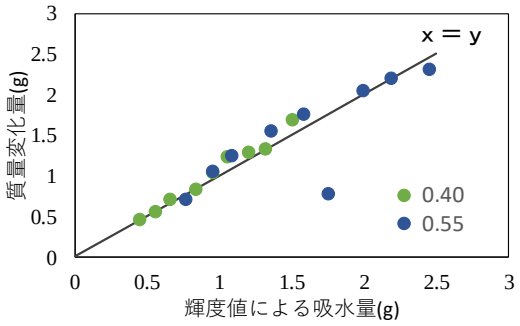
X 線 CR での吸水量の算出では式（11）において，ρ_w には 1.00 g/ cm^3 を，μ_wには質量変化量と輝度値による変化量が近くなるように値をフィッティングして用いた。その 2 つはおおよそ線形の結果が得られ，μ_wは 20 cm^{-1} を用いた。本検討で見られるように輝度値と水分による質量変化の線形性が確認できる範囲においては，2 点の質量と輝度値の関係から水分分布を算出することが可能となることがわかる。一方で，X 線 CR では一定のμ_wを用いて画像の輝度値と質量変化がおおよそ対応している結果が得られた。これにより X 線 CR 画像から吸水量の算出が可能であることがわかる。

5. 考察

吸水試験を，RANS と一般的な市販の X 線 CR 装置を用いて検討を行った。本研究では RANS の空間解像度および中性子の減衰，ならびに X 線 CR 装置における X 線の減衰の観点から，試験体の奥行き方向の厚さを 2 cm とした。これらの範囲において，両者は水分の空間分布を



図－11　質量変化量と輝度値の変化量の関係（中性子）



図－12　質量変化量と輝度値による変化量の関係

適切に評価できた。特に，モルタルの内部の非均一性に起因した一律でない水分移動特性について両者は適切に評価できており，従来の質量やセンサによる評価では取得できない情報を評価できている。また，水分の吸い込み高さについても，表層と内部では異なっており，また内部にも分布が生じる。水分の吸水特性評価においてラジオグラフィを用いた研究が今後，知見の拡大に資することは間違いない。特に近年では，セメント系材料の水分吸収挙動の特異性が指摘されており（図－10 等に見られる時間の二乗根に対して線形性から逸脱していく傾向），メカニズムの解明にはこうした巨視的なデータと微細構造変化などの詳細データの組み合わせでなければ評価は難しいと考えられる。減衰係数を用いて吸水量の定量も，キャリブレーションによって可能であることが明らかになった。RANS の中性子源，X 線源ともに周囲のマトリクスの影響を受けず，減衰係数に唯一性があった。

吸水試験のメカニズムの解明や材料の基本的特性において RANS による中性子源の利用は，京大炉などの研究炉と比べて簡便であり優位性があると考えられる。特に開発中の可搬性のある RANS-2，3 は将来的には，経年変化後の原位置での水分移動特性評価によって，維持保全に不可欠なデータを取得できる可能性がある。RANS では後方散乱中性子を用いる手法を用いてコンクリート

の表面から最大 300 mm の深さにある水に見立てたアクリルの検出に成功しており[17]，水分分布に関する現場での定期的なデータの取得は研究，実務両者で応用性が高い。一方，放射化の影響の無い X 線 CR 装置は，研究室用の基礎実験として多数の実験を遂行できることに利点がある。

空間解像度と測定範囲，厚さの関係は，エネルギー，コンバーターの制限を受けるため，常にそれらの相関を見ながら実験に適した測定系を構築することが求められ，その観点ではさらなる広領域・高解像度の測定が可能となることが期待される。

6. まとめ

本検討では中性子と X 線 CR を用い吸水試験の可視化を行い，両者を比較検討し，以下のような知見を得た。

- 中性子，X 線ともにモルタル中の水分の分布と移動を可視化することができた。中性子での測定画像の方がより鮮明に水分分布が表示された。
- 中性子と X 線では同一バッチの試験体での再現性を確認した。
- 輝度値の変化と質量の変化量は線形の関係であることを確認し，定量評価に用いられることを確認した。

謝辞

本研究は，基盤研究 A（18H03804）の「処女乾燥下におけるセメント系材料の水分移動メカニズムの解明」の一貫として行った。

参考文献

1) Wu. Z. and et al: Anomalous water absorption in cement-based materials caused by drying shrinkage induced microcracks, Cement and Concrete Research, Vol.115, pp.90-104, Jan.2019
2) Yuya. Sakai, Yuki. Yokoyama and Toshiharu. Kishi: Relationship Among the Permeation Rate of Water into Concrete, the Mix Design, Curing and the Degree of Drying, Journal of Advanced Concrete Technology, Vol.15, pp.595-602, Oct.2017
3) 丸山一平，五十嵐豪，岸直哉：セメント硬化体中の水分移動に関する基礎研究，日本建築学会構造系論文集，76 巻，pp.1737-1744，2011.10
4) Landis, E. N. and Keane, D. T.: X-ray microtomography, Materials Characterization, Vol.61, pp.1305-1316, Dec.2010
5) Washburn, E. W.: The dynamics of capillary flow, Physical Review, Vol. 17, pp.273-283, Mar.1921
6) Haneveld, J. and et al: Capillary filling of sub-10nm nanochannels, Journal of Applied Physics, Vol.104, pp.14309-14314, July.2008
7) 中村兆治，酒井雄也，岸利治：コンクリート中の液状水挙動に与える物理的ならびに化学的性質の影響に関する検討，セメント・コンクリート論文集，66 巻，pp.444-451，2012
8) Hanžiča, L. and Ilić, R.: Relationship between liquid sorptivity and capillarity in concrete, Cement and Concrete Research, Vol.33, pp.1385-1388, Sep.2003
9) 佐藤正記，森谷友昭，高橋時市郎：動的接触角を考慮したインタラクティブな水滴表現法，情報科学技術フォーラム講演論文集，pp.345-346，2012.9
10) Roles, S. and Carmeliet, J.: Analysis of moisture fole in porous materials using microfocus X-ray radiography, International Journal of Heat and Mass Transfer, Vol.49, pp.4762-4772, 2006
11) 中谷信幸：中性子線による熱流体現象の可視化・計測，日本機械学会熱工学コンファレンス 2007 講演論文集，2007
12) 鬼柳善明：中性子と物質の相互作用，RADIOISOTOPES，56 巻，pp.211-217，2007
13) 山田雅子ほか：小型中性子源を使った塗膜下腐食鋼材の非破壊イメージング観察，日本鉄鋼協会学会誌鉄と鋼，100 巻，2014.3
14) Lukovic, M. et al.: Moisture movement in cement-based repair systems monitored by absorption, Heron, Vol.62, pp.21-45, Jan.2017
15) Rasband, W.S., ImageJ, U. S. National Institutes of Health, Bethesda, Maryland, USA, https://imagej.nih.gov/ij/, 1997-2012
16) Ippei. Maruyama: Multi-scale review for possible mechanisms of natural frequency change of reinforced concrete structures under an ordinary drying condition, Journal of Advanced Concrete Technology, Vol.14, pp691-705, Nov.2016
17) 池田義雅，大竹淑恵，水田真紀：後方散乱中性子を利用した道路橋床版内の損傷可視化技術，第 17 回コンクリート構造物の補修，補強，アップグレートシンポジウム論文報告集，pp.285-290，2017.10