# 論文 即発ガンマ線分析によるコンクリート中の塩化物イオン濃度分布の 非破壊測定に関する研究

山田耕大\*1·氏家 勲\*2·岡崎慎一郎\*3·松江秀明4)

要旨:本研究は即発 γ 線分析を利用した非破壊でコンクリート内部の塩化物イオン濃度分布を測定する方法 の開発に資するための基礎的な研究である。本研究では所定の塩化物イオン濃度に調整したモルタル板を組 み合わせた供試体を用いて、即発y線分析で計測されるカルシウムと塩化物イオンの計数による即発y線計 数比を指標として用いた供試体表面からの深さの影響を考慮した校正曲線を作成した。その校正曲線を用い て、著者らの既往の研究において課題となった表面濃度の非破壊測定方法および塩化物イオン濃度のピーク が測定対象物の表面にない場合の濃度分布を推定する方法について検討した。 キーワード:中性子,即発ガンマ線分析,校正曲線,非破壊測定

# 1. はじめに

近年、コンクリート構造物における維持管理技術が大 変重要になっており、特に重要な技術としてコンクリー ト構造物の耐久性診断が挙げられる。コンクリート構造 物の劣化現象の中で最も関心が高いものは塩害による鉄 筋腐食であり、塩害による劣化は腐食ひび割れが生じる までは、外観観察のみでは劣化の進行を評価できない。

コンクリート構造物における塩害では、主に外部から コンクリート中へ侵入した塩化物イオンの影響により不 動態皮膜が破壊され、鋼材の腐食時期が著しく早まる。 従って、鋼材が腐食するまでの塩害の進行を評価するに は、鉄筋周辺におけるかぶりコンクリート中の塩化物イ オン濃度の分布状況を知る必要があるが、コア供試体に よる一般的な手法は、試料採取や試験に手間と費用を要 し、さらに構造物に損傷を与え、同じ位置で何度も測定 できない。

本研究は、非破壊で試料調整を必要とせず、比較的短 時間の測定で分析が可能な即発ガンマ線分析(Prompt Gamma-ray Analysis: PGA) を, コンクリート中の塩化物 イオン濃度分布の測定に適用することを目的として基礎 的な検討を行ったものである。既往の研究では<sup>1)</sup>,即発 ガンマ線計数比と塩化物イオン濃度が比例関係にあり, 即発ガンマ線計数比は測定対象物が表面から深くなるほ ど指数関数的に減少すること、および測定対象物全体の 即発ガンマ線計数比は、それぞれの深さにおける即発ガ ンマ線計数比の合計に等しいことを明らかにした。そし て、その影響を考慮した校正曲線およびそれを用いて非 破壊で塩化物イオン濃度分布を推定する方法を提案した。 しかしながら、提案した推定方法において、供試体表面

の塩化物イオン濃度を既知の値としているが、表面濃度 の測定方法については具体的には提案していない。また、 中性化や雨水による影響で表面に塩化物イオン濃度のピ ークがない分布に関して、この推定方法を用いることは 困難であった。

そこで本研究では、既往の研究と同様に、即発ガンマ 線計数比が深さに依存する影響を考慮した校正曲線を作 成した。そして、即発ガンマ線計数比と塩化物イオン濃 度の比例関係を利用し,非破壊で表面濃度を測定する方 法を提案した。さらに、中性化や雨水の影響を受けた測 定対象物についても対応できるように,表面部分の濃度 が低く、ピークが奥に存在するような分布形状を持つ場 合について検討を行った。

### 実験概要

# (1) 即発ガンマ線分析

即発ガンマ線分析は、熱中性子が対象物中に含まれる 元素の原子核に捕獲された際に放出される特徴的な高エ ネルギーガンマ線、つまり即発ガンマ線を、放射線検出 器を用いて測定する分析方法である<sup>2)</sup>。

今回の実験は,日本原子力研究開発機構の研究用原子 炉 JRR-3 に設置されている即発ガンマ線分析装置を用い て行った。分析装置の体系図を図-1 に示す。炉心から の熱中性子を中性子ガイド管により導くことによって中 性子をビーム状で用いることができる。ビーム形状は約  $2.0 \times 2.0 \text{ cm}^2$  であり、中性子束は約  $10^8$  (n/cm<sup>2</sup>/s) である。 中性子ビームは直径 5mm の円形に絞って使用した。中 性子ビームの照射により試料から放出される即発ガンマ 線を、ビーム入射方向に対して垂直方向に設置された高

| *1 | 愛媛大学大学院  | 理工学研究科    |        | (正会員)  |
|----|----------|-----------|--------|--------|
| *2 | 愛媛大学大学院  | 理工学研究科教授  | 博士(工学) | (正会員)  |
| *3 | 愛媛大学大学院  | 理工学研究科助教  | 博士(工学) | (正会員)  |
| *4 | 日本原子力研究開 | 発機構 量子ビー♪ | ふ応用研究部 | 門 理学博士 |



純度ゲルマニウム (High Purity Germanium : HPGe) 検 出器を用いて検出する。なお,将来的には既往の研究 のように<sup>3)</sup>,オンサイトで実構造物での塩化物イオン 濃度の計測に使用できる中性子源と検出器で検討する 予定である。

# (2) 即発ガンマ線計数比

本研究では塩化物イオンを定量分析するために内標 準法を採用し、セメントに多く含まれているカルシウ ムを内標元素とし、即発ガンマ線計数比Rを指標に用い た。測定の際に着目した即発ガンマ線エネルギーの大き さは、塩化物イオンが 1951keV、カルシウムが 1942keV である。即発ガンマ線分析においては試料に含まれる骨 材量を調整しなくても、骨材が多い場合にはセメント量 が少ないので、カルシウムのピークの計数が減少し、セ メント中に含まれる塩化物イオンのピークの計数も減少 する。したがって、カルシウムと塩化物イオンの即発ガ ンマ線計数比で評価すれば、骨材量の影響を排除するこ とができる。ただし、石灰石系の骨材を用いている場合 には、塩化物イオンのみのピークで評価することになる ので,照射位置を変えてデータを多く取得する必要があ ると考えられる。図-2は着目したエネルギー周辺の濃 度が異なるコンクリートの即発ガンマ線スペクトルを示 す。 塩化物イオン濃度が高くなるにつれて, エネルギー の大きさ1951keVと1959keVの塩化物イオンの計数が増 加している。しかしながら,エネルギーの大きさが 1942keV におけるカルシウムの計数はほとんど変化して いない。カルシウムの計数の変化は試料に含まれるセメ ント量の違いによるものである。

## (3) 測定試料

実験では、モルタル板を組み合わせた供試体とコンク リートコア供試体を測定試料とした。モルタル板は30× 30mm,厚さが5mm,3mm,2mm,の3種類,水セメン ト比は40%,セメント砂比は1:1とし、セメントには 普通ポルトランドセメントを、細骨材にはカルシウムを 含まない硅砂を使用した。モルタル板は塩化物イオンの



即発ガンマ線スペクトル

質量がセメントの質量に対して 0~10%の範囲で所定の 濃度となるようにフレッシュモルタル中に塩化ナトリウ ムを添加してそれぞれ作成した。尚,これらのモルタル 板において調整した塩化物イオン濃度を設定値と呼ぶ。

コンクリートコア供試体は,海上のブイを固定するた めのアンカーとして約 10 年間用いられているコンクリ ートブロックの表面に対し垂直に切削して円柱供試体を 採取したものである。その供試体の側面に中性子を照射 することで得られる即発ガンマ線計数比は,即発ガンマ 線計数比と塩化物イオン濃度との比例関係を利用して塩 化物イオン濃度に換算することができる。この方法によ って得られた 5mm 間隔の塩化物イオン濃度分布は,後 述の推定結果との比較に用いた。モルタル板供試体とコ ンクリートコア供試体は気乾状態で使用した。

## (4) 校正曲線の作成

即発ガンマ線計数比が供試体に含まれている塩化物イ オンの深さに依存して指数関数的に減少することを考慮



図-3 校正曲線作成用のモルタル板供試体の一例

し、測定から得られた即発ガンマ線計数比を回帰して求 められる校正曲線を利用すれば、任意の深さにおける塩 化物イオン濃度を求めることができる。

校正曲線を作成するための測定試料は、図-3 に示す ように、厚さ 5mm のモルタル板を 5 枚組み合わせた供 試体(厚さ 25mm)と厚さ 2mm, 3mm, 5mm×4枚,の モルタル板を組み合わせた供試体(厚さ 25mm)である。 各供試体は塩化物イオンを含むモルタル板1枚とその他 は塩化物イオンを含まないモルタル板で構成されており, 塩化物イオンを含むモルタル板の位置を移動させて測定 する。尚、図-3の例で示す 5/10-3rd は、10wt%の塩化 物イオンを含む厚さ 5mm のモルタル板が 3 枚目に存在 することを表している。また、塩化物イオンを含んだモ ルタル板の厚さが 5mmの場合と 2mmの場合で校正曲線 を比較した結果を図-4 に示す。校正曲線は、測定によ って得られた即発ガンマ線計数比を最小二乗法によって 次式で回帰すれば得られる。

 $R = ac \cdot e^{-bh}$  (1) ここで, R は即発ガンマ線計数比(-), c は塩化物イオン 濃度(%), h は供試体表面からの深さ(mm)であり, 表面か ら各モルタル板の厚さの中心までの距離である。 $a \ge b$ は回帰係数である。係数a は h=0 (供試体表面) での即 発ガンマ線計数比と塩化物イオン濃度の比例関係の勾配 である。係数b に関しては,中性子の減衰によって即発 ガンマ線計数比が減少する際の勾配であり,理論上塩化 物イオン濃度とは関係なく一定となる。

#### (5) 表面濃度の非破壊測定

実構造物の表面に対して垂直にコンクリートコア供 試体を採取し,表面から所定の位置の側面に中性子を照 射すれば,任意の深さにおける塩化物イオン濃度を測定 することが既往の研究より明らかとなっている<sup>4)</sup>。本研 究ではコア供試体などを採取せずに非破壊で実構造物で の測定に適用するため,表面部分のみが測定範囲となる ように斜めから照射すれば表面濃度は非破壊で測定でき ると考えた。

また,表面を削り取って採取された厚さ 2mm 程度の 破片と 2g 程度の粉末試料の即発ガンマ線計数を測定し た。これらの測定結果は,同じ形状のセメントペースト 試料,すなわち 2mm の破片および 2g の粉体を用いて得 られた即発ガンマ線計数比と塩化物イオン濃度の比例関 係から塩化物イオン濃度に換算した。

#### (6) 供試体内部の非破壊測定

供試体内部の濃度分布を非破壊測定によって推定す るためには、どの程度の深さまで測定できるのかを知る 必要がある。即発ガンマ線計数比の減少は中性子の減衰 によるもので、中性子は減衰しながらコンクリートを透 過していく。しかし、計測される即発ガンマ線計数比は



表-1 供試体内部の推定に用いた供試体の一覧

| 卅弐件々 | 位置   |      |     |      |      |  |  |
|------|------|------|-----|------|------|--|--|
| 供武冲石 | 1st  | 2nd  | 3rd | 4th  | 5th  |  |  |
| Α    | 0.5% | 2%   | 3%  | 1.5% | 1%   |  |  |
| В    | 2%   | 3%   | 2%  | 1%   | 0.5% |  |  |
| С    | 1%   | 1.5% | 3%  | 1%   | 0.5% |  |  |

塩化物イオンの位置が深くなるほど誤差が大きくなり, 定量的な測定は困難となる。そこで本研究では,塩化物 イオンを含んだモルタル板の前に塩化物イオンを含まな いモルタル板の枚数を増やしながら測定し,塩化物イオ ン濃度と即発ガンマ線計数比が比例関係を保っている位 置までを測定範囲と定めた。今回の測定条件ではモルタ ル板5枚、つまり,表面から25mmまでを測定範囲とし た。供試体内部の塩化物イオン濃度分布の測定方法は, 供試体の前に塩化物イオンを含まない0wt%のモルタル 板を5枚並べて測定し,そして0wt%のモルタル板を1 枚ずつ抜き,それを供試体の後ろに並べて測定する。測 定に用いた供試体の一覧を表-1に示す。

## 実験結果および考察

### (1) モルタル板の厚さによる校正曲線への影響

図-4 は塩化物イオンが含まれるモルタル板の位置が 表面から深くなるにつれて即発ガンマ線計数比がどのよ うに減少するのかを表した校正曲線であり,塩化物イオ ン濃度が4wt%のモルタル板に関して厚さが5mmおよび 2mmの場合について示す。表面部分(*h=0*)について相 違が見られるが,これは供試体全体に含まれる塩化物イ オン量の違いによるものである。これら2本の直線の傾 きを見ても分かるように,塩化物イオンを含むモルタル 板の位置に対する即発ガンマ線計数比の減少はほぼ同程



度であり、モルタル板の厚さによる校正曲線への影響は ほとんどないと言える。また、本論文では示してないが、 他の濃度についても同じ結果が得られた。したがって、 モルタル板の厚さに関わらず同じように校正曲線を引く ことができる。すなわち、塩化物イオン濃度分布を推定 する際、より詳細な分布を知りたければ、より薄いモル タル板で校正曲線を得ればよい。

#### (2) 誤差関数に従う濃度分布を有する供試体の推定

所定の塩化物イオン濃度に調整した厚さ 2mm のモル タル板を 25 枚組み合わせることによって,誤差関数に従 う塩化物イオン濃度分布を有する厚さ 50mm の供試体を 作成し,測定した。誤差関数に従う分布を持つ供試体で あれば,既往の研究で提案した推定方法がどの程度の精 度で推定できるのかを考察するためである。推定には, 著者らが提案したフィックの拡散方程式に基づく誤差関 数を利用した手法を用いた。その手順は以下のようであ る。

まず,これから推定する塩化物イオン濃度分布におい て,濃度が 0wt%と見なせる位置(以下,浸透深さ)を 仮定する。なお,浸透深さは誤差関数に2を入力したと きと見なす。そして,濃度が既知の表面部と浸透深さの 間の分布を,誤差関数で仮定する。仮定された濃度分布 において,所定の位置の塩化物イオン濃度から,式(1)を 用いて即発ガンマ線計数比を計算する。それぞれの位置 での即発ガンマ線計数比を合計し,測定によって得られ ている供試体全体の即発ガンマ線計数比と比較する。即 発ガンマ線計数比の合計が実測値より大きい場合は浸透 深さを小さく,実測値より小さい場合は浸透深さを大き くそれぞれ仮定し直して,計算された即発ガンマ線計数 比の合計が実測値と一致するまで繰り返す。

図-5に厚さ2mmのモルタル板によって得られた校正 曲線を用いて推定した結果を示す。推定された濃度分布 はモルタル供試体の分布と非常によく一致しており,測

#### 表-2 表面濃度の測定結果

| Ŧ | ミルタル | ·板供試体   | コンクリートコア供試体 |     |         |  |
|---|------|---------|-------------|-----|---------|--|
| Ζ | 角度   | 濃度(wt%) | Ζ           | 角度  | 濃度(wt%) |  |
| 1 | 0°   | 0.997   | 1           | 0°  | 1.057   |  |
| 2 | 15°  | 1.188   | 2           | 15° | 0.983   |  |
| 3 | 30°  | 1.392   | 破片          |     | 1.015   |  |
| 4 | 45°  | 1.626   | 粉末          |     | 0.901   |  |



定された即発ガンマ線計数比が 2.194 であるのに対し, 推定結果から求めた計数比の合計値が 2.200 とほぼ一致 している。よって, 誤差関数に従うような分布を持つ測 定対象物であれば, 塩化物イオン濃度分布が高精度で推 定できることがわかった。

### (3) 表面濃度の測定結果

図-6に中性子の照射角度,表-2にモルタル板供試体 およびコンクリートコア供試体の表面における塩化物イ オン濃度の測定結果を示す。モルタル板供試体について は、図-6に示すように1枚目に塩化物イオン濃度1%の モルタル板を配置しており,照射角度が表面と平行にな るほど表面濃度が正確に測定されていることがわかる。 コンクリートコア供試体については,どの測定結果もよ く一致している。以上の結果から、②のように表面と平 行に近い角度で中性子を照射すれば,非破壊で最も簡単 に測定対象物の正確な表面濃度を測定することができる と言える。また,供試体の表面を破片もしくは粉体で削 り取って測定する方法でも表面濃度を明らかにすること ができる。

## (4) 濃度のピークが表面にない分布の推定

表-3に、供試体 A を例にそれぞれの測定過程における モルタル板の配置および即発ガンマ線計数比を示す。推 定は測定範囲の限界位置、つまり5枚目のモルタル板に おいて行われる。過程 I の場合、すなわち測定対象物の 前に 0wt%のモルタル板を5枚並べた場合、供試体(モ ルタル板で言うと6枚目以降)は測定範囲外であるので、 即発ガンマ線計数比は正確な値を示さない。本論文では、



表-3 供試体 A の各測定過程における測定結果

この値をノイズと呼ぶ。本研究では、このノイズをそれ ぞれの測定過程において線形的に分配してその影響を検 討する。すなわち、過程II (0wt%のモルタル板が4枚) のとき、即発ガンマ線計数比は供試体の1st とノイズに よるものであるので、このときのノイズはモルタル板供 試体の2nd以降の4枚によるものと考え、過程Iにおけ る即発ガンマ線計数比の4/5 として過程IIで得られた即 発ガンマ線計数比から差し引く。そして、残った値が供 試体の1st による即発ガンマ線計数比であり、校正曲線



を用いて塩化物イオン濃度に換算される。過程Ⅲ(0wt% のモルタル板が3枚)のとき、即発ガンマ線計数比は供 試体の2ndまでとノイズによるものである。ここで、校 正曲線を用いてモルタル板供試体の1stの位置(表面か ら17.5mm)における即発ガンマ線計数比を求め、測定



値から引く。また、この場合のノイズは、同様に考えて 過程 I におけるそれの 3/5 として差し引き、残りの値を 塩化物イオン濃度に換算する。過程IV(0wt%のモルタル 板が2枚)のとき、校正曲線を用いて1st および2nd さ らにノイズ(過程 I の 2/5)の値を引き、濃度に換算す る。過程V(0wt%のモルタル板が1枚)および過程VI

(0wt%のモルタル板が0枚)のときも同様にして推定す る。図-7,8,9にそれぞれ供試体A,供試体B,供試 体Cの推定結果を示す。どの供試体の推定結果を見ても 過程VIまでの段階で濃度分布は比較的対応した結果とな っているが,濃度は全体的に過小評価となっており,そ の結果,過程VIで5thの塩化物イオン濃度を推定する際 に差し引きで残った値が大きくなり、実際では生じない 分布となってしまう。従って,今回の測定条件では4枚 目までを推定値とする。図-10はコンクリートコア供試 体の推定結果と中性子を側面から照射して得られた測定 結果を示す。推定結果はモルタル板の場合と同様に、濃 度は過小評価しているが,分布のピーク位置を捉えてお り,ある程度の精度で分布形状を評価していると言える。 なお,推定精度を高めるためにノイズの評価方法を今後 も検討していく必要があると考えている。

# 4. 結語

本研究の結果をまとめると次のようである。

モルタル板の厚さに関わらず、同様に校正曲線を得ることができるので、塩化物イオン濃度分布を推定する際、より詳細な分布を得たい場合には、薄いモルタル板を用いて校正曲線を設定すればよい。

- ② 誤差関数に従うような分布を持つ測定対象物の場合には、誤差関数を用いて測定値と比較しながら浸透深さを仮定することにより、塩化物イオン濃度分布をよい精度で推定できる。
- ③ 中性子の照射角度を対象物の表面とほぼ平行にして測定すると、表面濃度を非破壊で測定することが可能である。
- ④ 対象物の前に 0wt%のモルタル板を並べて測定し、 得られた即発ガンマ線計数比からノイズ等の余分 な値を除き、校正曲線を用いて測定範囲の限界位置 における塩化物イオン濃度を推定すれば、表面に濃 度のピークがない分布の場合に、濃度は過小評価す るが、分布形状は比較的よく把握することができた。

謝辞:本研究は科学研究費補助金(萌芽的研究,課題番号:19656108,代表者:氏家勲 愛媛大学大学院教授)に よるものである。さらに本実験は日本原子力研究開発機構の施設共用制度にて行った。また日本原子力研究開発 機構の関谷祐二氏および住重試験検査(株)坂根仁氏に 多大なご協力を頂いた。ここに記して謝意を表します。

## 参考文献

- 山田耕大ほか:コンクリート中の塩化物イオン濃度 分布の非破壊測定に対する即発ガンマ線分析の適 用性について、コンクリート工学年次論文集, Vol.30, No.2, pp.757-762, 2008
- 米沢仲四郎:原子炉中性子による即発γ線分析,分 析化学,51, pp.61-96,2002.
- H.H Saleh and R.A. Livingston: Experimental evaluation of a portable neutron-based gammaspectroscopy system for chloride measurements in reinforced concrete, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol.244, No.2, pp.397-371, 2000.2
- 4) 荒居祐基ほか:コンクリート中の塩化物イオン濃度の測定(I)-即発ガンマ線分析の適用-,土木学会第 62 回年次学術講演会講演概要集 (CD-ROM), pp.93-94, 2007.9
- 5) 松江秀明,坂根仁:中性子即発ガンマ線分析法を用 いたコンクリート防波堤の塩化物イオン濃度の非 破壊分析,コンクリートテクノ, Vol.27, No.2, pp.9-12, 2008.2
- Glenn F. Knoll (木村逸郎,阪井英次共訳):放射線ハンドブック(第3版),日刊工業新聞社,2001