

# 論文 X線イメージングによるモルタル中の水分移動の可視化と挙動分析に関する基礎研究

藤牧 哲也\*1・松田 明\*2・丸山 一平\*3・渋谷 和俊\*4

**要旨:** 本論文では、X線 CT スキャナを用いた多孔体の吸水過程の可視化の手法を確立するとともに、モルタルのフライアッシュの有無、細骨材の違いによる吸水速度の変化について検討を行った。X線 CT スキャナから求めた液水浸入距離と時間の平方根の関係は他の論文のように比例する結果が得られ、X線 CT スキャナで吸水過程を計測することは可能であることが確認された。モルタルの吸水では、吸水が進むと徐々に速度が低下する結果が得られた。これは C-S-H の膨張により有効流路径が縮小したことによるものと推測された。

**キーワード:** 水分移動, モルタル, X線 CT, 福島第一原子力発電所, C-S-H

## 1. はじめに

2011年3月11日の東北地方太平洋沖地震に起因する、福島第一原子力発電所の事故処理を始めとして、原子力発電所の計画的な廃炉戦略の確立が求められている。福島第一原子力発電所の廃炉への取組は、2011年12月に政府によって策定された、「東京電力(株)福島第一原子力発電所1~4号機の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ」(以下、中長期ロードマップと称する。)の下で進められている。

福島第一原子力発電所の事故後間もない時期は、差し迫った課題として汚染水対策や使用済み燃料プールからの燃料取り出し等が最優先に進められてきた。しかし、事故後7年以上が経過した現在では、それらの短期的な対応については一定の見通しができつつある状況であると言える。現在、短期的視点から中長期的視点に移行しつつある中で、廃炉事業の継続性や中長期的な課題への対応を検討する事が求められる<sup>2)</sup>。

原子力損害賠償・廃炉等支援機構(NDF)が、政府の中長期ロードマップに確固とした技術的根拠を与え、その円滑・着実な実行や改訂に資することを目的として「東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所の廃炉のための技術戦略プラン」(以下、戦略プランと称する。)を2015年以降毎年取りまとめてきた。戦略プランにおいて、NDFが取り組むべき中長期的な廃炉戦略として、燃料デブリ取り出しと廃棄物対策の2点を主要課題に挙げている。これらの中長期的な廃炉戦略を計画するに当たって、放射能による汚染機構を理解した除染方法の選択、部位・核種ごとの汚染分布情報、廃棄物量及び濃度の推計の判断に資する科学的な知見を得ることが必要とされる。

原子力発電所の廃炉の際に排出される固体廃棄物の一

つとして、建屋解体に伴うコンクリートが挙げられる。原子力発電所建屋のコンクリートは、セシウム(Cs)やストロンチウム(Sr)等の放射性物質(核種)を含んだ液水が浸透することによって汚染されている事が予想される。固体廃棄物についての基本的な考えとして、汚染された廃棄物としての処理量を可能な限り低減する事が重要とされており、そのために核種を含んだ液水がコンクリート中にどの程度浸入しているかを推定し、汚染されたコンクリートとしてみなされる範囲を推定する事が必要である。

核種を含む液水の浸透に伴うコンクリートの汚染機構の解明に当たっては、核種の吸着・浸透・溶出の挙動と液水の浸透挙動を分離して捉え、それぞれの挙動に影響を及ぼす要因について解明し、得られた基礎的知見を総合して複雑な汚染機構の解明を目指す必要がある。核種の汚染分布については、イメージングプレートを用いた判別定量について検討が行われている<sup>3)</sup>。そこで本検討では、液水の浸透挙動についての分析を行う。

## 2. 既往の研究

### 2.1 セメント硬化体中の液水移動理論

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<sup>4)</sup>。

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

ここで、 $P$ は毛管張力(N/m<sup>2</sup>)、 $\gamma$ は液体の表面張力(N/m)、 $\theta$ 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(定常流)、管内平均流速(体積速度)は次の式(2)で表される。

\*1 名古屋大学 工学部環境土木・建築学科 (学生会員)

\*2 名古屋大学 環境学研究科都市環境学専攻 (学生会員)

\*3 名古屋大学 環境学研究科都市環境学専攻 教授・博士(工学) (正会員)

\*4 株式会社太平洋コンサルタント ソリューション営業部 (正会員)

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

ここで、 $Q$  は管内平均流速( $\text{m}^3/\text{s}$ )、 $\eta$  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液水浸入距離  $L$  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 Washburn の式と呼ばれ、高さ 5 mm の直線単管や<sup>5)</sup>、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<sup>6)</sup>。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、円形チューブが最も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 Washburn の式から外れる事が報告されている<sup>7)</sup>。

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と呼ばれる<sup>8)</sup>。水の場合、毛管長は 2.7 mm 程度であり<sup>8)</sup>、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<sup>9)</sup>。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. 液水移動測定手法

### 2.2.1. 長さの異なる供試体を用いた測定

セメント硬化体中の液水移動の挙動を把握するに当たり、液水の浸入距離と時間の関係を取得する必要がある。既存の測定手法として、あらかじめ長さの異なる供試体を複数用意する、または一つの供試体を吸水後に割裂することで、液水浸入距離を取得する方法が用いられている。Sakai ら<sup>9)</sup>は、異なる長さにスライスしたコンクリート供試体について一面からの吸水試験を実施し、各供試体において吸水面の対面に液水が到達するまでの時間を計測する事で、液水浸入距離と時間の関係を取得している。吸水面の対面に、水に触れると変色する塩化コバルト紙を設置し、ビデオカメラで観察する事で吸水面の対面への液水の到達を判定している。Washburn の法則の通り、供試体厚さ(液水浸入距離)と時間の平方根は概ね線形関係を示す結果が得られている。

### 2.2.2. 質量変化による測定

吸水過程における供試体の質量変化を測定する事によって、液水移動の挙動を得る例もある。Wu らは、コンクリート供試体について、垂直上方への一次元吸水試験を

行い、経時的な水分吸収量を電子天秤を用いて測定する事により、吸水面の単位面積当たりの累積吸水量と時間の平方根との関係を得ている<sup>10)</sup>。液水浸入距離の場合と同様、概ね線形関係にあるが、吸水が進むにつれて吸水速度が低下し線形から逸れていくという結果が確認されている。片面吸水試験で累積吸水と時間の平方根が直線関係を示す為にはいくつかの条件を満たす必要がある。条件は以下の通りである<sup>11)</sup>。

- a) 試料は一定の断面を有する。
  - b) 吸水面の水が自由水である。
  - c) 水の流れが厳密に一次元である。
  - d) サンプルの初期含水量が均一である。
  - e) 重力の影響がごく僅かである。
  - f) サンプルが均質である。
  - g) 試料は試験中に微細構造の変化を受けない。
- a) ~ d) については実験室実験では通常十分に制御することが可能である為問題でない。e) についてもセメント硬化体中の空隙が十分小さいことからほとんど無視できる。f) について、コンクリートのブリーディングによる分離や、炭酸化による有効流路径の変化<sup>12)</sup>が起こると均質とはいえなくなる。しかしこの研究においてはそれらの条件は制御されており、影響は少ないと言える。g) の微細構造の変化は、乾燥と湿潤がセメント硬化体の微細構造変化を引き起こす事は報告されているため<sup>13)</sup>、この影響が最も大きいと推察される。吸水試験時におけるセメント硬化体の再湿潤による水和物の膨潤については更に検討を行う必要がある。

## 3. 実験手法の確立

従来の手法では非破壊で試験体内部の水分分布を測定することは難しく、局所的な部分でしか計測できなかった。そのため、供試体を破壊することなく内部の水分分布を可視化すること、透過画像から液水浸入距離及び吸水量を算出することを目標として、X 線 Computed Radiography (CR) 観察による吸水過程における液水の挙動についての非破壊測定手法の確立について検討する。

### 3.1 供試体概要

本検討では、福島原子力発電所第 3 号機の 1 階部分に使用されている、一般構造用コンクリートの調査をもとに、普通ポルトランドセメントのみを使用したモルタル供試体と普通ポルトランドセメントにフライアッシュを 15% 置換したモルタル供試体を作製した<sup>14)</sup>。細骨材は石灰石粉砂と福島第一原子力発電所の現場骨材の 2 種類を用意した。表-1、表-2 に使用材料、及び調合をそれぞれ示す。モルタルの練混ぜ及び型枠への打設を行った後、40 °C 環境下で 3 ヶ月間封緘養生を行った。その後、供試体を 20×20×50 mm の寸法に切り出し、実験を行った。

表-1 使用材料

材料名	記号	種類	メーカー
セメント	OPC	普通ポルトランドセメント	太平洋セメント(株)
フライアッシュ	FA	JIS II種品	(株)ジェイパック
細骨材*	LS	石灰石砕砂(0.15mm以下の微粒分除く)	奥多摩工業(株)
	S1	現場骨材(川砂, 微粒分含む)	宮城県阿武隈川産

※ 最大粒径はいずれも 2.5mm

表-2 モルタル調合表

調合名	W/P	S/P	FA 置換率 (%)	4L 練の計量値 (g)					
				W	p**1		LS	S1	AE 剤**2
					OPC	FA			
OPC-LS	0.55	2.39	0	1136	2064	—	4936	—	53.3
OPC-S1					—	—	4936	16.0	
FAC-LS			15		1756	308	4936	—	160.0
FAC-S1					—	—	4936	80.0	

※1 二水石膏を添加し、粉体 (P) 中のトータル SO<sub>3</sub> 量を 2.5% に調整したものを使用。

※2 AE 剤はヴィンソル (山宗化学社製) を 100 倍に希釈して使用。AE 剤量は目標空気量 7.0±1.0% となるように添加 (AE 剤の計測量は 100 倍液の量で表記)。

### 3.2 実験概要

実験手法の確立には OPC-LS を用いた。OPC-LS の供試体をあらかじめ 105 °C 炉中で十分に乾燥させ、封緘状態で 20±2 °C の室温まで冷却後、供試体の 1 面 (20×20 mm の面) を除く 5 面をアルミ粘着テープを用いて封緘し、図-1 のように供試体下面からの吸水試験を実施した。吸水時の水の温度及び室温は 20±2 °C であり、水は水道水を用いた。X 線 CT スキャナ内部に吸水用の水と供試体を設置し、吸水過程の供試体の透過画像を吸水開始後 24 時間経過時点まで断続的に取得した。各過程における透過画像撮影の直後、供試体を取り出して電子天秤を用いて質量を測定し、透過画像から算出される吸水量と実際の吸水量の相関を調査した。時間経過で浸漬高さは減少したが吸水面は常に吸水液に浸っていた。

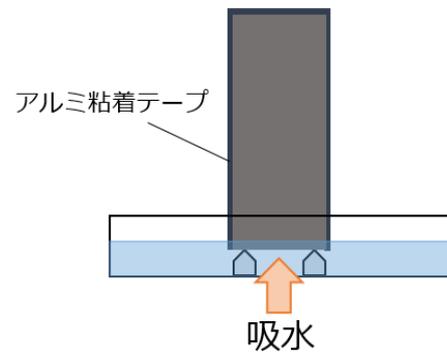


図-1 吸水のイメージ画像

X 線 CR 観察には、マイクロフォーカス X 線 CT スキャナを用いた。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 mm、SRD (X 線焦点からサンプルまでの距離) を 350 mm、送りライン数 (高さ方向に読み込みスキップするライン数) 4 line、アベレージ数 10 回とし、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 の石英をモルタル供試体と同時に撮影し、リファレンスとして用いることで、異なる供試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。走査時間は 104 秒であった。このようにして取得された画像サイズは横 1024 pixel、縦 1258 pixel で 1

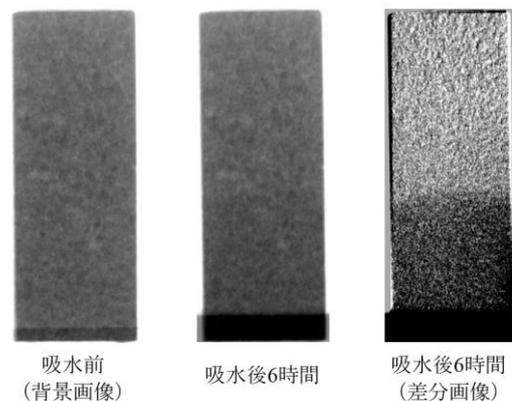


図-2 差分処理を行った画像

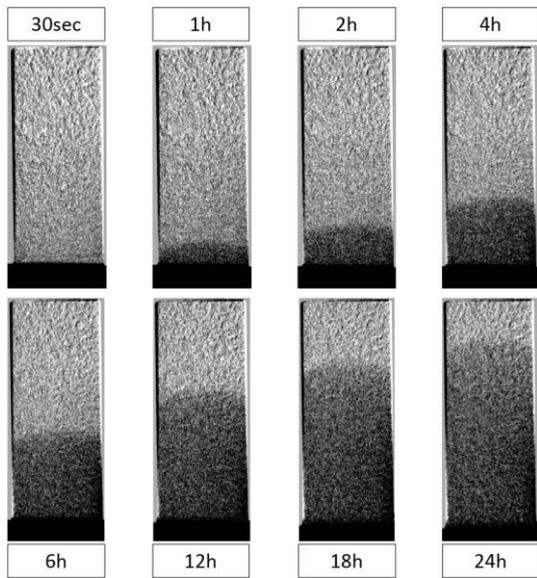


図-3 吸水過程における差分画像

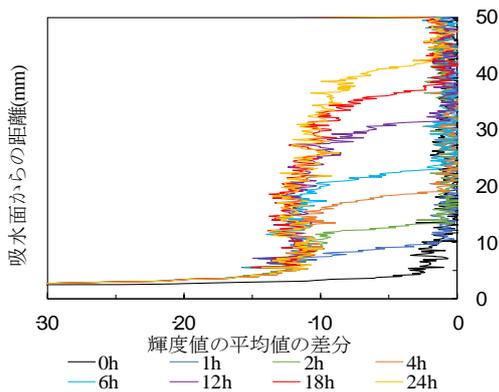


図-4 輝度値の平均値の経時変化

pixel は 0.088 mm であった。

取得した透過画像について、吸水前の供試体の透過画像を背景画像とし、各吸水過程での透過画像との背景差分を取得する事で、モルタル中の液水の可視化を試みた。そうして得られた差分画像について、画像のグレースケールを数値化することで、各吸水過程における液水浸入距離および吸水量の算出を試みた。差分処理及び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 を用いた<sup>15)</sup>。

### 3.3 実験結果

図-2 に吸水前の供試体の X 線透過画像、吸水後 6 時間経過後の供試体の X 線透過画像及び吸水前の供試体の透過画像を背景画像として差分処理を行った画像をそれぞれ示す。吸水後 6 時間の透過画像を見る限りでは、モルタル中の液水分布を明確に目視する事は難しいが、差分画像では肉眼で容易に液水分布を認識することが可能となった。図-3 に各吸水過程における差分画像を示す。

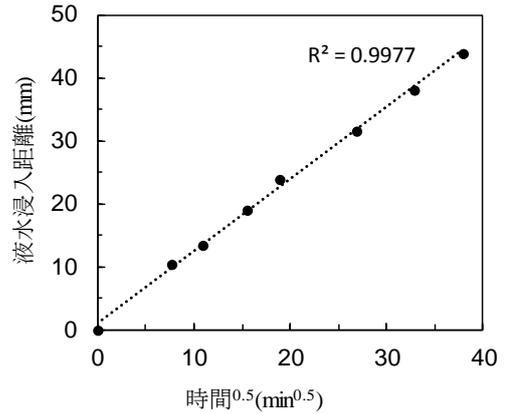


図-5 液水浸入距離と時間の平方根

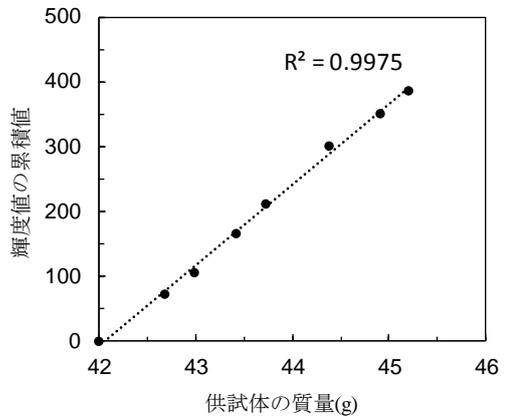


図-6 輝度値の変化量と供試体の質量

時間経過に伴って吸水面から上方に向かって液水の浸透が進展していく様子が確認される。

次に差分画像の供試体部分の水平方向の輝度値の平均値を鉛直方向に対してプロットした結果を図-4 に示す。差分画像の輝度値は、吸水時点の画像の輝度値の平均値から吸水直後の画像の輝度値の平均値を引いて求めた。液水の浸透が進んでいない上部ではいずれの供試体でも吸水直後の差分画像の輝度値のグラフと一致している。液水が浸透していると見られる部分は密度が高いため輝度値が低くなり、吸水直後の輝度値のグラフから乖離していく。吸水直後の輝度値から乖離する境界点の吸水面からの距離を液水浸入距離と定め、各吸水過程の液水浸入距離を時間の平方根に対してプロットし図-5 に示した。概ね線形関係が得られたことから、X 線イメージングを用いた液水移動の測定結果は妥当であり、この測定手法を用いて有用なデータを取得できると言える。

続いて、各吸水過程における輝度値の積算値と供試体の質量変化の関係を図-6 に示す。積算値は各吸水過程の差分画像の輝度値を液水浸入距離まで足しあわせた値である。X 線透過画像は、物体の密度や厚さに影響される X 線の透過量が元画像の輝度値に反映される事から、

供試体の寸法が変化せず質量変化が液水の流入に限定される本実験では、供試体の質量変化と輝度値の積算値は線形関係にあると推察された。図-6 から事前の推察どおり線形関係が得られたといえる。その為今後の測定では、吸水前の供試体の質量と吸水終了時の供試体の質量のみ測定し、吸水終了時の吸水量とその際の透過画像の吸水部分の輝度値の積算の比率を取得すれば、各吸水過程の吸水量について透過画像の輝度値の積算から算出する事が可能となる。

#### 4. 液水移動の挙動分析

##### 4.1 実験概要

表-2 に示す OPC と一部を FA に置換した OPC の 2 種類のセメントと 2 種類の細骨材を組み合わせた計 4 種類の試験体を用いた。初期養生条件及び寸法は 3 章と同様である。吸水試験実施前の供試体を 105 °C 炉中に静置し供試体の質量変化がなくなるまで十分に乾燥させた後、吸水試験を実施した。

吸水試験時の供試体、水、雰囲気温度は 20 °C で試験を行った。測定は室温 20±2 °C の室内に設置された X 線 CT スキャナ内部に吸水用の水道水と供試体を設置し、吸水過程の供試体の透過画像を吸水開始後 24 時間経過時点まで断続的に取得した。

3 章の手法を用いて、取得した透過画像からモルタル中の液水の可視化、各吸水過程における液水浸入距離および吸水量の算出を行った。

##### 4.2 実験結果

20 °C 下で吸水試験を実施したサンプルについて、図-7 に液水浸入距離と時間の平方根の関係を示す。

液水浸入距離は全てのサンプルで概ね時間の平方根との線形関係が得られた。ただし吸水が進むと徐々に吸水速度が低下し、僅かに線形から逸脱していく様子が見られた。過去の研究<sup>10)</sup>でも同様の傾向が報告されており、共通の要因が存在していると推察される。

OPC-LS, OPC-S1 は FAC-LS, FAC-S1 のサンプルに比べていずれも吸水速度、吸水量が大きい傾向が確認された。セメントにフライアッシュを添加して硬化体を作成することで、ポゾラン反応が進み水和物の生成による緻密化が起こることは良く知られている<sup>16)</sup>。セメント硬化体の緻密化は Washburn の式における有効流路径  $r$  すなわちセメント硬化体中の吸水経路が小さくなることに相当すると考えられ、これにより吸水速度が低下したと推察できる。

骨材種の違いについては、石灰石に比べて現場骨材を用いたサンプルでは僅かにではあるが吸水速度、吸水量が小さいことが確認された。現場骨材は粘土鉱物も含有されているため、石灰石と現場骨材では骨材自体の吸水

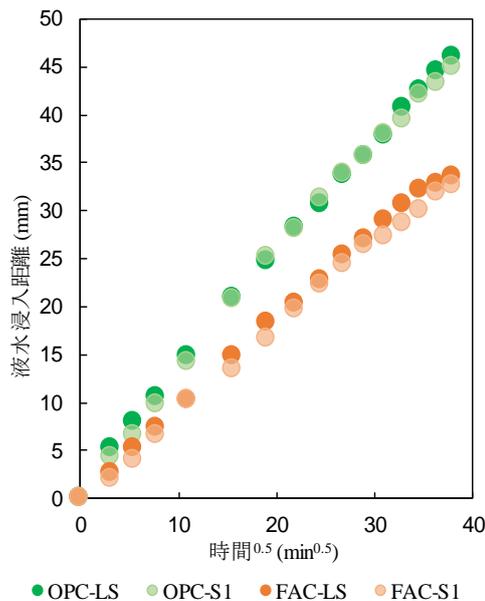


図-7 液水浸入距離と時間の平方根

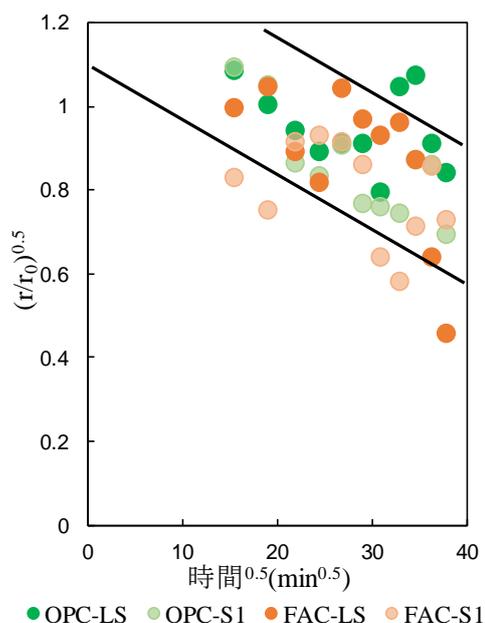


図-8 初期流路径と有効流路径の比の平方根と時間の平方根

率が異なる可能性が考えられる。

#### 5. 考察

X 線イメージングを用いたモルタル供試体中の液水移動の測定結果から、いずれのサンプルにおいても吸水開始から時間が経過すると、吸水速度が低下し Washburn の式から逸脱する傾向が見られた。このような挙動を示す要因について検討を行う。片面吸水試験で累積吸水量または液水浸入距離と時間の平方根が直線関係を示す為には 1 章で挙げた 7 つの条件を満たす必要がある。この内、

本実験で最も影響が大きいと考えられる要因は g) の微細構造の変化である。セメントの水和反応によって生成されるカルシウムシリケート水和物 (C-S-H) は乾燥によって収縮する事、吸水によって膨潤する事が報告されている<sup>13)</sup>。

吸水に伴う C-S-H の膨潤は、毛管張力の働きで液水が移動する際の通り道となる空隙の縮小を引き起こすと考えられる。その為、吸水が進むにつれて Washburn の式における有効流路径  $r$  が減少し、吸水速度が低下したと推察できる。図-8 に初期流路径 ( $r_0$ ) と有効流路径 ( $r$ ) の比の平方根と時間の平方根の関係を示す。図-7 の各グラフでの最初の 5 点から求めた近時曲線を初期値とした。初期流路径と有効流路径の比の平方根は、実験値と初期値のそれぞれ同じ時間での値とその 2 つ前の値との増分値の比をとった。時間経過で比の値が小さくなっていくことから、有効流路径は減少していることが確認された。

## 6. まとめ

本実験では以下のような知見が得られた。

- ・ X 線 CR 観察を用いて液水浸入距離および吸水量を計測する実験手法を確立できた。
- ・ X 線 CT を用いた実験において、モルタルの吸水時、液水浸入距離と吸水時間の平方根が比例関係にあることが確認された。
- ・ フライアッシュを添加したモルタルは、添加していないものと比べると吸水速度は遅くなった。
- ・ 現場骨材を用いたサンプルは石灰石を用いた場合よりわずかに吸水速度が遅かった。

## 謝辞

本研究は、文部科学省・英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業廃炉加速化プログラム放射性物質によるコンクリート汚染の機構解明と汚染分布推定に関する研究 (代表、丸山一平、名古屋大学) による成果の一部である。

## 参考文献

- 1) 廃炉・汚染水対策チーム事務局: 東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ, 廃炉・汚染水対策関係閣僚等会議, 2018
- 2) 名古屋大学: 放射性物質によるコンクリート汚染の機構解明と汚染分布推定に関する研究, 平成 29 年度英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業報告書, 2018.3
- 3) 大澤紀久, 山田一夫, 竹内幸生, 五十嵐豪: イメー

ジングプレートを用いた Cs-137 と Sr-90 の判別量の基礎実験, コンクリート工学論文集, 40 巻, pp63-68, 2018

- 4) Washburn, E. W.: The dynamics of capillary flow, Physical Review, Vol. 17, pp.273-283, Mar.1921.
- 5) Haneveld. J. and et al: Capillary filling of sub-10nm nanochannels, Journal of Applied Physics, Vol.104, pp.14309-14314, July.2008
- 6) 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
- 7) Hanžiča, L. and, Ilić, R.: Relationship between liquid sorptivity and capillarity in concrete, Cement and Concrete Research, Vol.33, pp.1385-1388, Sep.2003
- 8) 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) 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
- 10) 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
- 11) Hall. C. and Hoff. W. D.: Water Transport in Brick, Stone and Concrete 2nd ed, CRC Press, 2011
- 12) 佐伯竜彦, 大賀宏行, 長滝重義: 中性化によるコンクリートの微細組織の変化, 土木学会論文集, 420 号, pp.33-42, 1990.8
- 13) Ippai. 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
- 14) 野村顕雄, 田中宏志, 白阪靖人: 福島原子力発電所第 3 号機工事報告, コンクリートジャーナル, 12 巻, pp.72-81, 1974.
- 15) Rasband, W.S., ImageJ, U. S. National Institutes of Health, Bethesda, Maryland, USA, <https://imagej.nih.gov/ij/>, 1997-2018
- 16) 小早川真, 羽原俊祐: フライアッシュのポズラン反応による硬化体の空隙・組織の変化, コンクリート工学年次論文集, 23 号, pp.97-102, 2001