放射性セシウムを含む一般廃棄物焼却飛灰の セメント固型化処理に関する研究

杉橋 直行¹・馬場 勇介²・遠藤 和人³

¹正会員 清水建設株式会社 土木技術本部 (〒104-8370 東京都中央区京橋二丁目16-1)

E-mail: n-sugihashi@shimz.co.jp

²正会員 BASFジャパン株式会社 機能性材料統括本部 建設化学品事業部 茅ヶ崎技術開発センター
(〒253-0071 神奈川県茅ヶ崎市萩園2722)

E-mail: yusuke.baba@basf.com

³正会員 独立行政法人国立環境研究所 資源循環・廃棄物研究センター
(〒305-8506 茨城県つくば市小野川16-2)

E-mail: k-endo@nies.go.jp

本研究は、清掃センターなどから排出される放射性セシウムを含む焼却飛灰を対象とし、これをセメントと混合し固型化したセメント固型化物について、その基本物性および施工方法や埋立て処分の際の安全性に資する基礎データを得ることを目的として実施した。その結果、セメント固型化物のフレッシュ性および一軸圧縮強さは、概ね一般的なコンクリートの配合の考え方が適用できることを明らかにした。また、一軸圧縮強さと放射性セシウム溶出量には線形関係が認められ、一軸圧縮強さを増大させることが溶出抑制に対して効果的であるとともに、一軸圧縮強さによって放射性セシウムの溶出量や溶出率を予測できる可能性があることを示した。このような配合や物性の関係から、放射性セシウムを含む焼却飛灰のセメント固型化処理の配合設計手法を提案した。

Key Words : incineration fly ash, radioactive substance, radiocesium, cement solidification, elution

1. はじめに

東日本大震災に伴う原子力発電所の事故により、市町村の清掃センターから排出される焼却灰に高濃度の放射性物質が含まれる場合があることが明らかになった。放射性セシウムが8,000 Bq/kgを超える焼却灰については、通常行われていた焼却灰の埋立て処分ができず、現在、各施設内で一時保管されているのが現状である。

こうした焼却灰の処分方法としては、「8,000 Bq/kg を超え 100,000 Bq/kg 以下の焼却灰等の処分方法に関する方針について(平成 23 年 8 月 31 日)」¹⁾(以降、環境省通達と呼ぶ)が環境省より通達されている。これによると焼却灰の処分方法には、(1) 隔離層設置による埋立て、(2) 容器による埋立て、(3) 屋根付き処分場での埋立ての 3 つの方法が示されている。しかしいずれの場合も、焼却灰を固型化することは変わらず、焼却灰固型化物は雨水が侵入してもその接触溶出を抑制できるものとしている。この焼却灰固型化物の詳細な仕様は示されていないが、(1)の隔離層(厚さ 30 cm 程度以上の土壌)設置によ

る埋立ての詳細として、焼却灰固型化物 1 m³当たり 150 kg 以上のセメントが混合され、その一軸圧縮強さが 0.98 MPa 以上ある場合は、隔離層の透水係数の規定を、それ以外の場合よりも緩和している。すなわち、隔離層は雨水の浸入を防止するために透水係数 1.0×10^{-6} cm/s 以下のベントナイトなどの粘土とすることを基本としているが、焼却灰固型化物が前述の条件を満足する場合には、この仕様の隔離層の設置範囲は焼却灰固型化物の上面だけに低減して良いことが示されている。

これまで、一般廃棄物焼却灰の固型化は、おもに重金属溶出抑制を目的としたものであり、セメント固化、アスファルト固化、熔融固化などがある²⁾。とくにセメント固化については重金属類の溶出を微量に抑える固化技術³⁾なども提案されている。一方、放射性物質を含む廃棄物については、原子力発電施設から発生する廃棄物を対象として、セメント固化して放射性物質の溶出を抑制させる手法について検討がなされてきた⁴⁾⁵⁾。近年では、模擬焼却灰を用いた川戸らの基礎的な研究⁶⁾、東日本大震災以降に実際の清掃センターから排出された焼却灰を

用いたケースでは、著者らの研究^{7,8)}や、椎名らの天然鉱物由来の微粉末を添加して放射性セシウムの溶出抑制を図った研究⁹⁾などがある。また、セメント固化以外では、焼却灰中セシウムのジオポリマー化による不溶化処理などに関する研究¹⁰⁾もある。

しかし、環境省通達に準じて焼却灰をセメント固型化処理する場合、1 m³当たり 150 kg 以上のセメントと焼却灰、水をどのように練り混ぜれば、材料分離せずに均一で施工性が良いのか、あるいは一軸圧縮強さが 0.98 MPa 程度になるまでの材齢や強さの発現性状、さらに放射性物質の溶出の抑制程度などの様々な物性は十分に明らかになっていない。

そこで本研究では、放射性セシウムを含むと想定される焼却飛灰を対象に、セメントと練り混ぜ（以降、セメント固型化と呼ぶ）、その諸物性などを検討した。本研究は、環境省通達で示される 1 m³当たり 150 kg 以上のセメントが混合され、その一軸圧縮強さが 0.98 MPa 以上ある焼却飛灰固型化物を念頭に、セメント固型化物の施工性や基本物性を把握し、埋立て時の安全性に資する基礎データを得ることを目的として実施したものである。

2. 検討概要

検討は、原子力発電所事故以降に清掃センターで一時保管されている放射性セシウムを含む焼却飛灰（キレート処理飛灰）を対象として行った。焼却日の異なる 3 ロットの飛灰の物理化学特性、セシウム濃度を測定し、まず焼却飛灰そのものの特性を把握した。これら 3 ロットの焼却飛灰を用いて室内でセメント固型化試験を実施し、セメントの種類やセメントと水、焼却飛灰の単位量（以降、配合と呼ぶ）を変えて、その硬化前の性状（以降、フレッシュ性状と呼ぶ）と硬化後の物性（以降、硬化物性と呼ぶ）を試験し、配合と各種物性の関係を整理した。

さらに環境省令放射能対処特措法施行規則において、「連続する 3 ヶ月間平均のセシウム 134 (¹³⁴Cs) 濃度、セシウム 137 (¹³⁷Cs) 濃度をそれぞれ 60 Bq/L, 90 Bq/L で除した値の和が 1 を超過しない」¹¹⁾を目安として排水処理を行うことが示されていることから、ここではこれを満足するセメント固型化物を製造するためには、どのように材料や配合を選定すべきかについても検討を行うこととした。

3. 焼却飛灰の物性試験

(1) 試験目的と焼却飛灰のサンプリング

フレコンバッグに入れられて一時保管中の焼却飛灰から、焼却日の異なる 3 袋を任意に選定してサンプルとした。焼却飛灰は焼却日が 2011 年 11 月 24 日、同 12 月 15

日および 2012 年 1 月 26 日のものを対象とした（以降、順に Ash1, Ash2, Ash3 と呼ぶ）。Ash1 の焼却前のごみ組成分析を行った結果、紙布類 53.24 % が最も多く、厨芥類 19.53 %、ビニール、合成樹脂、ゴム皮革類 13.94 % と続き、放射性セシウムを多く含むと想像される木、竹、わら類¹²⁾は 11.19 % と比較的少ない量であった。試験に用いた 3 ロットの焼却飛灰は、全てキレート処理されてフレコンバッグに封入保管された処理飛灰である。写真-1 に示すとおり、飛灰は一部が固化した状態で、一般的にイメージされる粉末状の焼却飛灰とは状態が異なり、粒状のものも認められた。これは、ガス態のダイオキシンや放射性セシウムをバグフィルターで捕捉するために吹き込まれている消石灰による影響と考えられる。

焼却飛灰の物性として密度、含水比、吸水率、粒度分布、化学組成、600 °C 強熱減量（2 時間）を測定した。密度、含水比、吸水率、粒度分布、強熱減量はセメント固型化する際の施工性などを支配するフレッシュ性状に影響があることから、これを把握することを目的として実施した。また、焼却飛灰の化学組成によっては異常膨張やセメント水和の急激な促進、遅延などが懸念されるため、それらの原因を検討することを目的として化学組成分析を実施した。

(2) 試験方法

焼却飛灰の密度は JIS R 5201 「セメントの物理試験方法」に、粒度分布は JIS A 1102 「骨材のふるい分け試験方法」に準拠して求めた。含水比は、105 °C、24 時間炉乾燥における質量減量値から、吸水率は 75 μm 以上の焼却飛灰について JIS A 1109 「細骨材の密度および吸水率試験方法」に準じて求めた。化学組成は、Ash1～3 を 105 °C にて炉乾燥後、ディスク型ミルにて微粉碎を行い、加圧成型法にて測定用試料を作製した後、理学電機工業社製 波長分散型蛍光 X 線分析装置 RIX3100 を用いて半定量（オーダー）分析を行った。焼却飛灰の放射性セシウム ¹³⁴Cs および ¹³⁷Cs は、NaI シンチレーションスペクトロメーターにより測定した。

写真-1 焼却飛灰の外観

(3) 試験結果

焼却飛灰の密度, 含水比, 吸水率の試験結果を表-1に示す. 焼却飛灰の密度は既往の研究⁹⁾では 2.3 g/cm^3 程度とされており, ほぼ同等の値となった.

ふるい分け試験結果を図-1に示す. また, 図中には参考として, JIS A 5308「レディーミクストコンクリート(附属書 A)」で規定される砂の粒度範囲も併記した. 焼却飛灰は砂(粒径 15 mm 以上)よりも粗い部分が 20% 以上ある一方で, $75 \mu\text{m}$ 以下の微粒子が多いことがわかる. 元の焼却飛灰としては微粒子が多いものの, 消石灰によって固化して団粒化した部分が比較的大きな粒径で残っていると考えられる. Ash3 のように粒径 10 mm 以上が 20% 程度もある灰もあり, 実施工時に計量ビンから排出できないことも想定される. 実施工では, 日々の灰の物理的品質が一定で無いため, 粉碎などの前処理を実施して計量ビンに投入する必要があることがわかった.

焼却飛灰をホバートミキサにより 60 秒ミキシングする前後の 10 mm と 5 mm ふるい残分割合を図-2に示す. ミキシング後は Ash1 が最も細くなっており, 灰によって破碎性が異なることがわかる.

化学組成の分析結果を表-2に示す. 代表的な酸化物を含有すると仮定した値を記しており, 0.1% 以上含有する成分を示した. Ig.loss は 600°C 強熱減量である.

全ての焼却飛灰で塩化物の割合が多く $20\sim 25\%$ 程度含まれている. 次に CaO , Na_2O , K_2O , SO_3 が多くそれぞれ $10\sim 20\%$ 程度含まれている. 焼却飛灰の化学組成を調査した既往の研究⁹⁾と比較すると, 塩化物は同程度であるものの Ca と Si , Al が少なく, S が非常に多く,

表-1 焼却飛灰の物理特性

	Ash1	Ash2	Ash3
密度 (g/cm^3)	2.39	2.35	2.41
含水比 (%)	11.6	12.9	10.4
吸水率 (%)	18.2	10.4	15.7

図-1 焼却飛灰の粒度分布

Na と K が比較的多い結果となった. 塩化物や硫黄分が比較的多いことから, セメントの凝結が促進される可能性も推察された. 一方, 灰による違いは Ash2 の SO_3 含有量が他の灰に比して少ないこと, Ash3 の ZnO , PbO 含有量が他に比して多いのが特徴である. 放射性セシウム濃度は表-3に示すとおり Ash1, Ash2 が $8,000 \text{ Bq/kg}$ を超えており, セメント固型化が必要な焼却飛灰に該当していた.

図-2 ミキシング前後の焼却飛灰の粒度

表-2 化学組成の分析結果

	Ash1 (Mass%)	Ash2 (Mass%)	Ash3 (Mass%)
ig.loss	7.00	4.75	5.65
Cl	21.43	25.96	22.99
CaO	19.86	19.62	18.66
Na_2O	12.88	15.31	15.34
K_2O	10.09	11.04	9.42
SO_3	11.11	6.82	10.61
SiO_2	7.27	7.05	6.56
Al_2O_3	3.88	4.00	3.50
Fe_2O_3	1.61	0.73	2.23
MgO	1.44	1.37	1.29
TiO_2	0.81	0.80	0.74
P_2O_5	0.93	0.86	0.76
F	0.12	0.10	0.12
CuO	0.07	0.08	0.11
ZnO	0.97	0.97	1.34
Br	0.12	0.14	0.15
PbO	0.11	0.12	0.19

表-3 放射性セシウム濃度

	Ash1	Ash2	Ash3
$^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ (Bq/kg)	12,900	11,900	5,320

4. セメント固型化物物性試験

(1) 試験方法

セメント固型化物物性試験では、セメント、水、焼却飛灰を練り混ぜ、(1) フレッシュ性状、(2) 一軸圧縮強さ、(3) セシウム溶出量の3つの検討を行った。

フレッシュ性状は、JIS A 1101「コンクリートのスランプ試験方法」を参考に、縮尺が1/2のスランプコーンを用いたミニスランプ試験^{13), 14)}により評価した(後述写真-3 参照)。試料はミニスランプコーンに、ほぼ等しい量の2層に分けて詰め、その各層を突き棒で15回一様に突いた。試料の上面をミニスランプコーンの上端に合わせてならした後、直ちにミニスランプコーンを静かに鉛直に引き上げ、試料の中央部における下がり方を0.5 cm単位で測定し、これをミニスランプとした。

一軸圧縮強さは、 $\phi 5 \text{ cm} \times 10 \text{ cm}$ の円柱供試体を所定材齢まで養生して、JIS A 1216「土の一軸圧縮試験方法」により2 MPa程度まで、それ以上の強度ではJIS A 1108「コンクリートの圧縮強度試験方法」により測定した。

放射性セシウム濃度の測定は、放射能濃度等測定方法ガイドライン¹⁵⁾を参考に、 $\phi 5 \text{ cm} \times 10 \text{ cm}$ の円柱供試体を所定材齢まで養生して、供試体の形状はそのままにJIS K 0058-1「スラグ類の化学物質試験方法—第1部：溶出量試験方法」によって水溶出させた放射性セシウム¹³⁴Cs および ¹³⁷Cs の濃度を NaI シンチレーションスペクトロメーターによりそれぞれ測定した。

(2) 練混ぜ方法

練混ぜは、容量5 Lのホバートミキサを用い、温度 $20 \pm 3^\circ \text{C}$ の恒温の試験室で実施し、練上り温度は $20 \pm 3^\circ \text{C}$ に調整した。練混ぜ、試験手順を図-3に示す。練混ぜ時間は一般的なコンクリート試験などにおける標準的な

図-3 練混ぜ、試験手順

時間を参考に決めたが、結果として今回の研究範囲では、練り玉や分離の無い十分均一な練混ぜを行えることを確認している。

(3) 使用材料

既往の検討^{4), 5), 9)}などを参考に試験に用いる材料を表-4に示すとおりとした。セメントは普通ポルトランドセメントと、焼却飛灰のセメント固型化物の重金属溶出抑制に効果があるとされている⁹⁾高炉セメントB種の2種類、焼却飛灰は前述の3ロットとした。また、混和剤による減水効果や強度増進効果について検討するために、主成分の異なる8種類の減水性混和剤、2種類の早強・急結性混和剤を用いた。

(4) フレッシュ性状

a) 目標性能と試験方法の検討

焼却飛灰のセメント固型化のフレッシュ性状については、その基準や規定が無いことから、実施工を考慮し、施工性の観点などから要求性能を検討した。実施工では、写真-2のとおり100 Lのパン型ミキサを使用し、練混ぜ後、フレコンバッグにミキサから直接排出し、それを仮置きすることを想定した。これらの実施工の想定条件から、セメント固型化時のフレッシュ性状としては、(1)

表-4 使用材料

種類		記号	物理的・化学的性質
練混ぜ水：上水道水		W	-
セメント	普通ポルトランドセメント	N	密度：3.16 g/cm ³
	高炉セメントB種	BB	密度：3.04 g/cm ³
焼却飛灰		Ash1	焼却日：2011.11.24 密度：2.39 g/cm ³ Cs：12,900 Bq/kg
		Ash2	焼却日：2011.12.15 密度：2.35 g/cm ³ Cs：11,900 Bq/kg
		Ash3	焼却日：2012.1.26 密度：2.41 g/cm ³ Cs：5,320 Bq/kg
混和剤	減水剤（超遅延剤）	OC	オキシカルボン酸化合物
	AE減水剤	LS	リグニンスルホン酸化合物（粉末）
	AE減水剤（高機能タイプ）	PC1	ポリカルボン酸 エーテル系化合物
	高性能減水剤 （超高強度コンクリート用）	PC2	
	高性能AE減水剤	PC3	
	高性能減水剤	NS	ナルタリン スルホン酸系化合物
		MS	メラミン スルホン酸系化合物
		PAE	PAE化合物
	早強剤	CL	塩化カルシウム（粉末）
	急結剤	AL	水溶性アルミニウム塩

ミキサで均一に練り混ぜられる, (2) 排出時に詰まらない, (3) フレコンバッグに材料分離なく均一に充填できる, (4) 運搬, 仮置き時にフレコンバッグの形状を保持, 自立する事などがの性能が要求されると考えた.

一般のコンクリート工事では, コンクリートのフレッシュ性状の確認試験として JIS A 1101 に示されるスランブ試験が用いられている. スランブ試験は間接的に単位水量や強度を管理する試験であり, 本セメント固型化物のフレッシュ性状の確認試験としても適切と考えられた. しかし, 焼却飛灰のセメント固型化物はその構成材料の粒度分布から, コンクリートよりもモルタルあるいはペーストに近く, かつ, 放射性セシウムを含むサンプルであることから, なるべく少量での試験が適切と判断した. また, 一般のモルタルフロー試験では写真-3 のような状態を呈するセメント固型化物のフレッシュ性状の測定には適さないと考えた. 以上より, セメント固型化物のフレッシュ性状の管理試験として, スランブ試験よりも少量の試料で試験可能な, 写真-3 に示すミニスランブ試験を適用することとした. ミニスランブの異なるセメント固型化物をフレコンバッグに封入した後, フレコンバッグを部分的に剥がした表面状況を写真-4 に示す. ミニスランブ 6 cm 程度であれば, 写真-4 に示すように比較的均質なセメント固型化物を製造できることが明らかになった. なお, フレコンバッグ上部へのミニスランブ 3 cm 程度以下のセメント固型化物の封入は, 下部の封入後, 材齢 3 日で実施した. 下部の強度がある程度発現した後に封入したことから, 上部载荷による下部表面状況への影響はほとんどないと考えている. 写真-4 のとおり, ミニスランブが 3 cm 程度以下の場合, 表面も不均一で, ミキサ内での練り混ぜ時に部分的な塊ができ

るなど, 均一な練混ぜも困難で, ミキサからの排出時に閉塞することもあった. 以上のことから, セメント固型化物のフレッシュ性状としてミニスランブで 6 cm 程度を目標性能に設定した. 以降では, ミニスランブ 6 cm 程度を中心としたセメント固型化物についての検討結果を示す.

b) 試験配合

試験に供した全 23 配合の一覧を表-5 に示す.

c) 試験結果

普通ポルトランドセメント (単位セメント量 350~600 kg/m³) を使用した場合の単位水量とミニスランブの関係を図-4 に示す.

ミニスランブで適切にワーカビリティが測定できなかったのは, 配合 I-1 (Ash1, W=595 kg/m³), I-13 (Ash2, W=404 kg/m³) であった. 配合 I-1 は J₁₄ 漏斗 (JSCE-F 541-2010) の流下時間で 2.3 秒で, 配合 I-13 はミニスランブ試験のスランブフローで 26.5 cm とほぼグラウト状を呈していた.

写真-4 表面状況

表-5 試験配合一覧

No.	W/C	灰 ロット	セメ ント 種類	単位量 (kg/m ³)		
				W	C	Ash
Iー 1	1.00	Ash1	N	595	595	518
Iー 2				407	407	1109
Iー 3				357	357	1266
Iー 4	1.14			408		1146
Iー 5	0.89			407	458	1071
Iー 6	0.93			377	408	1180
Iー 7	1.08			437	407	1037
Iー 8	1.00			400	400	1129
Iー 9	0.80		500		1052	
Iー 10	0.67		600		976	
Iー 11	0.80		500		1052	
Iー 12	0.67		600		976	
Iー 13	1.00	Ash2	N	404	404	1100
Iー 14	0.93			374		1170
Iー 15	0.80			340	425	1232
Iー 16				310	388	1331
Iー 17	1.00		BB	340	425	1232
Iー 18	1.00	Ash3	N	409	409	1113
Iー 19	0.93			379		1185
Iー 20	0.80			380	475	1128
Iー 21				350	438	1232
Iー 22				330	413	1299
Iー 23			BB	380	475	1128

写真-2 セメント固型化の実施工

写真-3 ミニスランブ試験^{13,14)}

図-4 より、単位セメント量によらず、ミニスランブは焼却飛灰のロットと単位水量によって決まることがわかる。

焼却飛灰のロットの影響のうち、粒度の影響を確認するために、灰を5mmふるいにかけて、5mm以下の灰だけを使用した場合のミニスランブを図-5 に示す。5mm以下の灰を使用すると、灰のロットにかかわらずミニスランブは小さくなるものの、それほど大きな変化はなく、灰の粒度がミニスランブに与える影響は比較的小さいと考えられた。図-4 に示されるとおり、同じミニスランブを得るために必要な単位水量は、Ash2 が小さく、Ash3, Ash1 の順に多くなる。これは表-1 に示される灰の吸水率の小さい順と同じで、ミニスランブに与える灰ロットの影響は、灰の吸水率の影響を受けている可能性が高いと考えた。

セメント種類を普通ポルトランドセメントから高炉セメント B 種に変更した場合のミニスランブの変化を図-6 に示す。灰のロットや水セメント比 (W/C) にかかわらずセメントの種類を変えても、ミニスランブはほとんど変わらなかった。図-4, 6 から、セメント種類や単位セメント量によらず灰のロットが決まれば、単位水量でミニスランブが決まることがわかった。単位水量が増すとスランブが直線的に増していく図-4 の関係はコンクリートでも一般的に認められる関係である。

単位水量によりミニスランブが決まることが確認されたことから、さらにコンクリートで減水作用が認められ

る各種混和剤について、その効果を確認することとした。

表-5 の配合 I-20 で混和剤の種類と使用量を変えてミニスランブ試験を行った。混和剤の種類とミニスランブの関係を図-7 に示す。図中の数値は混和剤の使用量 (単位セメント量+単位焼却飛灰量に対する百分率 %, 以降、 $P \times \%$ と示す) を表している。対比の混和剤無使用 (PL) と比較して、OC はミニスランブが増大し、その効果が認められたが、その他の混和剤を使用した場合、逆にミニスランブが低下する傾向を示した。これは、焼却飛灰に 20 %程度含有する塩化物イオンが、混和剤の分散効果を低下させてしまうためであると考えられる¹⁶⁾。

図-8 に OC の減水効果を示す。図中の記号および数値は、混和剤の種類とその使用量を表している。OC を $P \times 1.0 \%$ 使用した場合、PL の単位水量 380 kg/m^3 から 30 kg/m^3 減じた 350 kg/m^3 の条件で PL と同等のミニスランブ

図-6 セメント種類とミニスランブ

図-4 単位水量とミニスランブ (セメント : N)

図-7 混和剤の種類とミニスランブ

図-5 焼却飛灰の粒度とミニスランブ (セメント : N)

図-8 OC の減水効果

となり8%程度の減水効果が認められた。一方、単位水量をさらに減じた 330 kg/m^3 の条件では、OCの使用量を $P \times 2.0\%$ に増大しても同等のミニスランブは得られなかった。また、早強性を付与できる混和剤 CL を併用した場合には、無使用と比較してミニスランブがやや低下する傾向にあることがわかった。OCのみに8%程度の減水効果が認められた理由は明確ではないが、主成分であるオキシカルボン酸化合物の吸着や錯塩形成¹⁷⁾が影響しているものと推察される。オキシカルボン酸化合物のセメント分散メカニズムは、セメントへの吸着およびそれに伴うゼータ電位の低下によって説明されているが^{18), 19)}、その吸着はポリカルボン酸エーテル系化合物と比較して粘土鉱物などの影響を受けにくいことが報告²⁰⁾されており、焼却飛灰を用いた系についても何らかの流動性阻害物質の影響を受けにくかったものと考えられる。また、吸着だけでなく錯塩形成によって、流動性への阻害物質の溶出を抑制した可能性もあると考えている。

以上より、セメント固型化物のフレッシュ性状は単位水量で決定し、オキシカルボン酸を主成分とする混和剤だけに減水効果が認められることが確認できた。また早強性を有する混和剤を使用した場合、ミニスランブはやや低下することもわかった。

(5) 一軸圧縮強さ

a) 要求性能の整理

前述の環境省通達では、最終処分時に透水係数の低いベントナイトなどの土壌（透水係数 $k = 1.0 \times 10^{-6} \text{ cm/s}$ 以下）で構成される厚さ30 cm以上の隔離層の設置範囲を低減できる条件として、焼却飛灰のセメント固型化物の一軸圧縮強さが0.98 MPa以上であることとしている。このこ

とからここではまず、一軸圧縮強さが0.98 MPa以上となる条件を検討することとした。しかしながら、一軸圧縮強さ0.98 MPa程度以下の領域の検討では、試験精度も低く、ばらつきも懸念され、配合の影響などを厳密に検討しづらいことが課題であった。さらに、寒冷地における実施工を考慮した場合に、一般的なコンクリートと同様に初期凍害による強度発現の停止などが懸念された。初期凍害は、土木学会コンクリート標準示方書では5 N/mm²以上の圧縮強度（以降、圧縮強度は単位をMPaで表記し、一軸圧縮強さと呼ぶ）になるまで5℃以上の環境で養生すれば防止することが可能であるとされている。

以上より、本検討では5 MPa程度以上の一軸圧縮強さを発現するまでの強度特性について配合、養生温度、材齢の影響などの検討を行うこととした。

b) 試験配合と試験条件

試験に供した全配合の一覧を表-6に示す。配合No.のI-があるものは前出表-5の配合であり、II-は単位セメント量、セメント水比が一軸圧縮強さに与える影響把握などを目的として、ここで新たに検討した配合であることを示す。図-3に示す方法で練り混ぜたセメント固型化物を $\phi 5 \text{ cm} \times 10 \text{ cm}$ の円柱型枠内に打ち込んでから直ちに $20 \pm 3^\circ \text{C}$ と $5 \pm 3^\circ \text{C}$ の室内で所定の材齢まで封緘養生した。

c) 試験結果

一般的に、コンクリートではセメント水比 (C/W) と一軸圧縮強さには線形の関係がある。ここではまず、セメント固型化物についてその関係を整理し図-9に示す。C/W が1~1.5 (W/C で1~0.67) の範囲で、一般的なコンクリートと同様に、焼却飛灰のセメント固型化物でもC/W と一軸圧縮強さがおおよそ線形の関係にあることが確認できた。また、高炉セメントB種の材齢14日の一軸圧縮強さ (σ_{14}) と普通ポルトランドセメントの σ_7 を比較すると、同程度になっている。一般的なコンクリートにおける普通ポルトランドセメントと高炉セメントB種の一軸圧縮強さの発現の相違と同程度であることから、セメント種類による一軸圧縮強さの発現に焼却飛灰が特別な影響を与えていないと考えられる。

表-6 試験配合一覧

No.	W/C	C/W	灰 ロット	セメ ント 種類	単位量 (kg/m ³)		
					W	C	Ash
Iー 8	1.00	1.00	Ash1	N	400	400	1129
Iー 9	0.80	1.25			400	500	1052
Iー 10	0.67	1.50			400	600	976
Iー 11	0.80	1.25		BB	400	500	1052
Iー 12	0.67	1.50			400	600	976
Iー 15	0.80	1.25	Ash2	N	340	425	1232
Iー 17				BB		425	1232
IIー 1	6.80	0.15			340	50	1513
IIー 2	2.27	0.44				150	1436
IIー 3	1.36	0.74				250	1358
IIー 4	3.40	0.29				100	1476
IIー 5	2.10	0.48			315	150	1495
IIー 6	1.00	1.00		N	380	380	1205
IIー 7					350	350	1299
Iー 20					380	475	1128
Iー 21					350	438	1232
Iー 22					330	413	1299
Iー 23	0.80	1.25		BB	380	475	1128
IIー 8			ー	N	400	500	0
IIー 9				BB	400	500	0

図-9 C/W と一軸圧縮強さ

高炉セメント B 種を用いて水セメント比を 0.8 で一定として、焼却飛灰のロットを変えた場合の一軸圧縮強さを図-10 に示す。焼却飛灰のロットによって Ash3 のように初期の一軸圧縮強さの発現が遅れる場合もあるが、材齢 28 日まで養生すれば 5 MPa 程度の一軸圧縮強さを確保できることがわかった。焼却飛灰によって、一軸圧縮強さの発現性状が異なることから、所定の一軸圧縮強さを確保する材齢をどう設計するかが重要となることが分かった。温度と養生期間の影響を把握するために、積算温度により一軸圧縮強さを整理することとした。積算温度 M ($^{\circ}\text{D}$) は一般のコンクリートで用いられる次の式(1)で算定した。

$$M = (T + 10) \cdot D \quad (1)$$

ここで、 T : 平均養生温度 ($^{\circ}\text{C}$)、 D : 材齢 (日)

積算温度と一軸圧縮強さの関係を図-11 に示す。積算温度が大きくなれば一軸圧縮強さも大きくなるが、一般的なコンクリートと相違してその関係に線形性が無く、特に 5°C で養生した場合明らかに線形となっていない。また、いずれの W/C でも、積算温度 80°D 程度で養生温度 5°C の方が養生温度 20°C よりも一軸圧縮強さが大きくなっている。一般的なコンクリートの既往の研究²⁾では、養生温度を 60°C として初期強度発現を大きくすると、養生温度を 20°C とした場合よりも長期強度は小さくなる事例もある。セメント固型化物の一軸圧縮強さに対する温度の影響は今後さらに検討が必要である。

最も一軸圧縮強さの発現が早い Ash2 で、単位水量を 340 kg/m^3 一定として、単位セメント量を変えた場合の一

軸圧縮強さを図-12 に示す。単位セメント量が増えると一軸圧縮強さの発現が早くなることが確認できる。前述のとおり、最終処分時の隔離層低減条件の一つである焼却灰固化物 1 m^3 当たり 150 kg 以上のセメントが混合される条件の場合、図-12 に示されるとおり材齢 7 日で 1.45 MPa となり、もう一つの隔離層低減の条件である 0.98 MPa 以上の一軸圧縮強さも満足する。すなわち、灰のロットによる影響は大きいものの、セメント固型化物 1 m^3 当たり 150 kg 以上のセメントが混合されることで、一軸圧縮強さ 0.98 MPa 以上についても満足できる場合があることがわかった。一方で、セメントが 1 m^3 当たり 100 kg しか混合されない場合、一軸圧縮強さは材齢 7 日で 0.86 MPa であり、 0.98 MPa 以上の条件を満足することが出来なかった。単位セメント量 150 kg/m^3 程度が、材齢 7 日で一軸圧縮強さを 0.98 MPa 以上得るための単位セメント量の一つの目安と考えられる。また、単位セメント量 50 kg/m^3 程度でも、材齢 87 日には一軸圧縮強さは 1.70 MPa に達し、所定の強さを確保する材齢の設計が単位セメント量の設計に大きく影響することがわかる。さらに、単位セメント量 150 kg/m^3 のケースで OC を P×1 % 使用した場合、図-8 のケースと同様に 8 % 程度の減水効果 (単位水量を 340 kg/m^3 から 315 kg/m^3 に 25 kg/m^3 低減) が得られたが、一方で図-12 に示すように、一軸圧縮強さの発現はやや遅くなる傾向が認められた。

W/C=0.8 のセメントペースト (焼却飛灰を配合しない) の一軸圧縮強さを図-13 に示す。材齢 7 日で高炉セメント B 種で 8 MPa 、普通ポルトランドセメントで 11 MPa

図-10 灰のロットと一軸圧縮強さ

図-12 単位セメント量と一軸圧縮強さ (Ash2)

図-11 積算温度と一軸圧縮強さ

図-13 セメントペーストの一軸圧縮強さ

程度の一軸圧縮強さである。このことから、 $W/C=0.8$ のセメント固型化物では、材齢7日でセメントペーストの一軸圧縮強さの1割程度を引き出せれば、目標の0.98 MPa以上の一軸圧縮強さを発現できるといえる。

高炉セメント B 種を使用した場合、 $W/C=0.8$ のセメント固型化物のセメントペーストに対する一軸圧縮強さ比を図-14 に示す。セメント固型化物はペーストよりも、初期に一軸圧縮強さが発現しにくい傾向があるものの、材齢と共にペーストに近い一軸圧縮強さを発現する傾向がわかる。

配合 I-20 で混和剤のうち早強性混和剤である CL と AL を使用した場合と使用しない場合 (PL) の一軸圧縮強さを図-15 に示す。材齢 21 日で PL と比較した場合、早強性混和剤の使用量を増やすと、一軸圧縮強さも大きくなり、特に CL を P×3 % 使用した場合に一軸圧縮強さは PL の 184 % 程度になり、その効果が大きかった。

図-16 および図-17 に、図-15 で高い効果が認められた CL を使用した場合の、 C/W と一軸圧縮強さの関係を示す。評価材齢は、1 日および 169 日とした。いずれの C/W の配合においても、CL を P×3 % (CL3.0) 用いることで PL と比較して一軸圧縮強さが増進する傾向が認められた。また、その効果は OC を併用し単位水量を 380

kg/m^3 から 350 kg/m^3 に減じた OC1.0+CL3.0 の場合、より顕著に認められた。

(6) 放射性セシウムの溶出量

a) 要求性能の整理と試験目的

セメント固型化物を埋め立てた最終処分場からの放流水の規定として、経口摂取を考慮して定められた「実用発電用原子炉の設置、運転などに関する規則の規定に基づく線量限度などを定める告示」²²⁾で示される濃度限度でもある「連続する 3 ヶ月間平均のセシウム 134 (^{134}Cs) 濃度、セシウム 137 (^{137}Cs) 濃度をそれぞれ 60 Bq/L, 90 Bq/L で除した値の和が 1 を超過しない」¹¹⁾を目安として排水処理を行うことが示されている。このようなことから、ここではセメント固型化によりどの程度の濃度の ^{134}Cs , ^{137}Cs が溶出するか、セメント固型化の配合などによって溶出量がどのように変わるかを試験した。

b) 試験配合と試験条件

試験に供した全 12 配合の一覧を表-7 に示す。配合 No. に I-、II- があるものはそれぞれ前出表-5, 6 の配合で、III- は焼却飛灰ロット、単位水量がセシウムの溶出に与える影響把握などを目的として、ここで新たに検討した配合であることを示す。図-3 に示す方法で練り混ぜたセメント固型化物を $\phi 5\text{ cm} \times 10\text{ cm}$ の円柱型枠内に打ち込んでから、直ちに $20 \pm 3^\circ\text{C}$ の室内で封緘養生し、脱型後に JIS K 0058-1「スラグ類の化学物質試験方法—第 1 部：溶出量試験方法」によって水溶出させた放射性セシ

図-14 セメントペーストに対する一軸圧縮強さ比

図-15 早強性混和剤の種類と一軸圧縮強さ

図-16 C/W と一軸圧縮強さ(材齢 1 日)

図-17 C/W と一軸圧縮強さ(材齢 169 日)

表-7 試験配合一覧

No.	W/C	灰 ロット	セメ ント 種類	単位量 (kg/m ³)		
				W	C	Ash
I-11	0.80	Ash1	BB	400	500	1052
I-12	0.67				600	976
III-1	0.70	Ash2	BB	340	500	1050
II-1	6.80				50	1513
II-2	2.27				150	1436
II-3	1.36				250	1358
I-17	0.80				425	1232
III-2	6.30				50	1572
II-5	2.10				150	1495
I-20	0.80	Ash3	N	380	475	1128
I-23	0.80		BB	380	475	1128
III-3	0.70			350	500	1050

図-18 焼却飛灰の放射性セシウム濃度とその溶出量

図-19 焼却飛灰のセメント固型化によるCs溶出低減効果

ウム ^{134}Cs および ^{137}Cs の濃度を NaI シンチレーションスペクトロメーターにより測定した。

c) 試験結果

焼却飛灰別に灰そのものの $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 濃度と、焼却飛灰を水溶出 (JIS K 0058-1「スラグ類の化学物質試験方法—第1部：溶出量試験方法」) に準じ、焼却飛灰の10倍質量の水を用いて、毎分約200回転で6時間振とうして溶出)させた際の、 $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 濃度を図-18に示す。

溶出試験によって採取した検液 (焼却飛灰質量の10倍量の水) の $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 濃度は約320~850 Bq/Lであり、この値を10倍して、焼却飛灰からの $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 溶出率に換算すると、50~70%程度 $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ が溶出する傾向

図-20 単位焼却飛灰量と ^{137}Cs 溶出量

図-21 1m³あたりの ^{137}Cs 量と ^{137}Cs 溶出量

にあった (図-19)。

焼却飛灰のセメント固型化処理による $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ の溶出低減効果の一例を図-19に示す。焼却飛灰単味の場合、 $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ は、50~70%程度溶出するのに対し、焼却飛灰を W/C=0.8 の条件でセメント固型化処理した場合、 $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ の溶出率を概ね20%程度以下に低減できている。また本研究の範囲では、セメントの種類による差異は認められなかった。ここで、図-19に示すとおり ^{137}Cs の溶出率は $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ に対しておよそ50~60%程度を占めており、 ^{137}Cs で評価しても $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ の傾向と同一であることが確認できた。 ^{137}Cs の半減期は30年程度、 ^{134}Cs の半減期は2年程度で、 ^{137}Cs の影響は長期にわたる。このため、以降については長期の影響を懸念し ^{137}Cs 単味で検討した結果を示すこととした。なお、以降の検討範囲で、 ^{137}Cs で検討した結果と $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ で検討した結果の傾向は、概ね一致することも確認している。

単位焼却飛灰量と ^{137}Cs 溶出量の関係を図-20に示す。検出下限以下のデータはゼロとしてプロットした (以降、全て同様にプロットし、回帰は検出下限以下のデータを除外したデータについて実施した)。単位焼却飛灰量の増大に伴い ^{137}Cs 溶出量は増大する傾向が図-20よりわかる。また、焼却飛灰のロットによって、同等の単位量であっても、溶出量は異なる傾向にあった。

表-3に示すとおり焼却飛灰はロットによって含有する ^{137}Cs 濃度が異なることから、横軸を1m³あたりの ^{137}Cs 量で整理したものを図-21に示す。焼却飛灰のロッ

ト毎では、 1 m^3 あたりの ^{137}Cs 量が増大するとともに溶出量も増大する傾向にあり、また、飛灰のロットの影響としては、前述のとおり、焼却飛灰のロットによって同一 W/C の条件であってもセメント固型化物の一軸圧縮強さの発現が異なることもあり、一軸圧縮強さの発現が遅い Ash3 ほど溶出しやすく、一軸圧縮強さの発現が早い Ash2 は溶出しにくいことが認められた。

図-22 に単位セメント量と ^{137}Cs 溶出量の関係を示す。単位セメント量の増大に伴い ^{137}Cs 溶出量は減少する傾向にあり、図-20 と相反の関係にあることが認められた。焼却飛灰のセメント固型化物は、水、セメントおよび焼却飛灰から構成されていることから、流動性を同一、言い換えれば単位水量を一定とした場合、焼却飛灰の単位量の増大に伴いセメント量は減少することになる。つまり、図-20 と図-22 は同様の意味を示しており、 ^{137}Cs の溶出量は、 ^{137}Cs の由来源である単位焼却飛灰量と一軸圧縮強さの支配的要因である単位セメント量の比の影響を受けているものと推察される。

そこで、単位焼却飛灰量と単位セメント量の比 (Ash/C) を横軸にとって ^{137}Cs 溶出量との関係を整理したものを図-23 に示す。横軸を対数表記とした場合、両者には焼却飛灰のロット毎に線形性が認められた。これより、例えば Ash2-BB で半減期が 2 年の ^{134}Cs を考慮する必要がない長期の検討ケースでは、排水処理規定の ^{137}Cs で 90 Bq/L 以下を満足させる Ash/C は、7.52 以下となり、さらに Ash/C を 2.55 以下とすることで、 ^{137}Cs 溶出

量を検出下限以下 (20 Bq/L 程度未満) とすることができるとわかった。

焼却飛灰のセメント固型化物の配合や一軸圧縮強さの要求事項については、環境省の通達によると、隔離層設置を低減できる条件は、セメント固型化物 1 m^3 当たり 150 kg 以上のセメントが混合され、その一軸圧縮強さが 0.98 MPa 以上とされている。この焼却飛灰セメント固型化物の配合を ^{137}Cs 溶出量の観点から設計する場合、単位セメント量だけでなく、上述のとおり Ash/C を ^{137}Cs 溶出量に関する一つの配合設計指標として用いることができる可能性があると考えられる。

図-24 に焼却飛灰の体積率と ^{137}Cs 溶出量の関係を示す。なお、体積率 100 %に相当する値は、焼却飛灰自体を JIS K 0058-1「スラグ類の化学物質試験方法 第1部：溶出量試験方法」によって測定した溶出量の値を用いた。

基本的には、焼却飛灰体積に密度を乗じた値が単位焼却飛灰量であることから、傾向としては図-20 と同様となるが、Ash2-BB のケースなどでは、図-20 に示していない体積率 100 %までの範囲で、焼却飛灰の体積率と ^{137}Cs 溶出量には線形の比例関係が認められ、焼却飛灰体積率が增大すれば、それに伴って ^{137}Cs 溶出量も直線的に増大することが明らかとなった。

図-25 に一軸圧縮強さと ^{137}Cs 溶出量の関係を示す。焼却飛灰のロット毎にみると、何れも一軸圧縮強さが増大するとともに ^{137}Cs 溶出量が減少する傾向にあり、これらには比例関係が認められた。この縦軸を溶出率で整理

図-22 単位セメント量と ^{137}Cs 溶出量

図-24 焼却飛灰の体積率と ^{137}Cs 溶出量

図-23 Ash/C と ^{137}Cs 溶出量

図-25 一軸圧縮強さと ^{137}Cs 溶出量

したもの（溶出量と溶出率の関係は図-26 に示す）を図-27 に示す。焼却飛灰のロットやセメントの種類によらず一軸圧縮強さと ^{137}Cs 溶出率には高い線形性が認められた。図-25 より、Ash2-BB のケースでは、 ^{137}Cs 濃度 90 Bq/L 以下を満足させるためには、一軸圧縮強さを 7.51 MPa 以上とする必要があり、また、一軸圧縮強さを 12.3 MPa より大きくすることで、 ^{137}Cs 溶出量を検出下限以下（20 Bq/L 程度未満）にできることがわかった。これらの一軸圧縮強さを得る W/C は、図-28 より材齢 1 ヶ月の場合、それぞれ 1.147 (C/W=0.87), 0.713 (C/W=1.40) であった。

セメント固型化により ^{137}Cs の溶出が抑制されるメカニズムとしては、大きく二つ(1) 水和生成物によるセメント固型化物の空隙の緻密化、連続性の消失による ^{137}Cs の移流拡散低減、(2) セメント固型化物への ^{137}Cs の固定化（ここでは、セメント固型化物細孔溶液中の ^{137}Cs が水和生成物などの固相表面に濃縮する現象および固相の一部を形成する現象など ^{137}Cs が固体に留まること全般を示す）に分けて考えられる。

筆者らが別途実施したフライアッシュを使用したモルタルの研究^{23), 24)}では、空隙率と一軸圧縮強さに高い相関が認められ、さらに固定化しないとされる放射性核種のトリチウムの実効拡散係数、透水係数にも高い相関²⁵⁾が認められている。空隙率が小さく緻密であれば一軸圧縮強さは大きく実効拡散係数と透水係数は小さくなっていく。

図-26 ^{137}Cs 溶出量と ^{137}Cs 溶出率

図-27 一軸圧縮強さと ^{137}Cs 溶出率

る。本研究では一軸圧縮強さが大きいと ^{137}Cs の溶出が抑制されていることから、メカニズム(1) 空隙の緻密化、連続性の消失により ^{137}Cs の溶出が抑制されたと推察できる。

一方、メカニズム(2) の ^{137}Cs の固定化については、 ^{137}Cs の固定化により一軸圧縮強さが大きくなると仮定すれば、本研究結果と端的に整合するものの、 ^{137}Cs の質量的な観点からこの仮定は考えにくい。すなわち、本研究における ^{137}Cs は飛灰 1 kg あたり 10,000 Bq オーダー前後であり、10,000 Bq の ^{137}Cs (原子量 137, 半減期 30.17 年) の質量 m は次の式(2)²⁶⁾で $3.12 \times 10^9 \text{ g}$ と算定される。

$$m = 10,000 \cdot 137 \cdot T_s / (\text{LN}(2) \cdot N_a) \quad (2)$$

ここに、 T_s : 半減期 (秒), N_a : アボガドロ数

仮に飛灰中全ての ^{137}Cs が固定化されても一軸圧縮強さに影響するとは考えにくい極微量でしかない。さらに、一般的に固定化は同一の材料配合であれば、その反応速度により相違はあるものの、長期的には固定化量は一定になるモデルで説明される事が多いが、本研究では材料や配合に関係なく一軸圧縮強さに ^{137}Cs の溶出量が依存しており、このモデルでは説明できない。これらのことを考え合わせると、本研究範囲では、(2) の ^{137}Cs の固定化よりも(1) の ^{137}Cs の移流拡散抑制のメカニズムが支配的であったと推察される。このことは、既往の研究²⁷⁾で示された ^{137}Cs はセメント水和物への交換・吸着性がないために、内部の ^{137}Cs が拡散により溶出するとするメカニズムに整合的である。セメント固型化物に(2) の ^{137}Cs の固定化能力があることを否定するものではなく、ここでは放射化していない Cs などの各種成分が桁違いに存在して²⁸⁾既に固定化されているために、 ^{137}Cs の溶出抑制にあまり寄与していないと推察している。

以上のように ^{137}Cs 溶出のメカニズムの議論は今後さらに検討する必要があるが、筆者らが重要と考えていることは、焼却飛灰のセメント固型化物という質量や体積のスケールでは、 ^{137}Cs の溶出は灰のロットに関係無くセメント固型化物の一軸圧縮強さによって制御が可能であることを示すことができたことにある。焼却飛灰をセメント固型化する際には、その処理量を高めるために、

図-28 セメント水比 (C/W) と一軸圧縮強さ

規定を満足する範囲でできる限り単位水量, 単位セメント量を低減することが有効であるが, ^{137}Cs の溶出抑制の観点からは, 単位セメント量を増大し, 一軸圧縮強さを増大させることが効果的であることが分かった. また, 一軸圧縮強さによって, ^{137}Cs の溶出量や溶出率を予測できる可能性があることが明らかとなった.

5. 配合設計手法の提案

ここまで整理してきた焼却飛灰のセメント固型化に関する配合と物性の関係から, ここではセメント固型化の配合設計手法を図-29のとおり提案する.

(1) 所要のミニスランブはセメント固型化物の収納容器の剛性, 型枠の有無や日処理量, 養生スペース, 温度などの施工性を考慮して設定する必要がある. 一般的にスランブは仕様規定で決定されることが多いが, 焼却飛灰の固型化物には過去の知見がないため, 本論では, 写真-4の知見などから, 所要のミニスランブ (MSL_0) を $MSL_0=6\text{ cm}$ と設定した. (2) 配合試験を行うための暫定的な単位水量 (W_0) を決定する. 本論では, 図-4 から $W_0=350\text{ kg/m}^3$ に暫定した. (3) ^{137}Cs の溶出率は, 埋立処分状況や法令など安全側を考慮して適宜設定する. (4) 所要の一軸圧縮強さ (qu_0) は, 設定した溶出率となるように図-27 から求める. 図-27 は焼却飛灰のロットに依存しないことから, 溶出試験を実施せずに所要の一軸圧縮強さ (qu_0) を求めることができる. 溶出率を 0 % (検出下限相当) に設定した場合, 所要の一軸圧縮強さ (qu_0) は $qu_0=15.1\text{ MPa}$ となり, 溶出率を 10 % と設定するのであれば, $qu_0=10.9\text{ MPa}$ と決定できる. (5) 所定の材齢は, 養生可能期間 (養生スペースや工期などの外的要因で決定) や最終処分地での処分までの工程などから決定する. ここでは, 例えば, 所要の一軸圧縮強さを材齢 28 日で確保すると設定する. (6) セメント量を決めるため, セメント水比を仮に C_0/W_0 に暫定する. たとえば, 溶出率を 0 % にするために qu_0 を 15.1 MPa とした場合の C_0/W_0 は, 図-28 から求めると 1.71 となる. (7) 対象の焼却飛灰の密度を把握した上で, 単位水量を (2) で暫定した W_0 と $W_0\pm 50\text{ kg/m}^3$ の 3 水準, セメント水比を (6) で暫定した C_0/W_0 と $C_0/W_0\pm 0.2$ の 3 水準, 計 9 水準のセメント固型化物の物性試験を実施し, 対象の焼却飛灰について単位水量とミニスランブの関係 (図-4), セメント水比と一軸圧縮強さの関係 (図-28) を新規に作成する. (8) 新規に作成した図-4 から所要の MSL_0 となる単位水量 W_1 , 図-28 から所要の qu_0 となるセメント水比 C_1/W_1 を決定する. ここで, 本論から図-4, 図-28 の線形性が既知であることから, (7) の 3 水準の試験結果から直線を決定し, 仮に目標の MSL_0 や qu_0 が水準の範囲外となっても外挿法により W_1 や C_1/W_1 が設定できる. (9)

図-29 配合設計手法

単位セメント量 C_1 は, (8) で決定した W_1 と C_1/W_1 から算定できる. (10) 対象の焼却飛灰の密度から単位焼却飛灰量が算定できる. このようにして配合設計が可能である. 配合設計を行う上で, 試験により物性取得が必要となるのは,

- ・処分対象の焼却飛灰の密度
- ・単位水量とミニスランブの関係 (図-4)
- ・セメント水比と一軸圧縮強さの関係 (図-28)

である. 図-27 に示される一軸圧縮強さと ^{137}Cs の溶出率の関係は材齢や焼却飛灰のロットに依存しない結果であり, 本関係は種々の焼却飛灰セメント固型化物に対して適用できる可能性があるが, 今後さらにデータの充実を図ることが望ましい.

さらに, セメント固型化物単位体積あたりの焼却飛灰の処分量を増やせれば, 最終処分用地の縮小が可能となり処分費の低減が図れる. この観点から, 例えば OC のような混和剤を使用して, 上記のとおり設計した配合から, さらに単位水量を低減し, 単位体積当たりの焼却飛灰の処分量を増やせば, 処分費の低減が検討できる.

6. まとめ

本研究の範囲内で以下のことが明らかとなった.

- (1) セメント固型化のフレッシュ性状および一軸圧縮強さは焼却飛灰のロットの影響を受ける.
- (2) セメント固型化のミニスランブは単位水量で決まる.

- (3) セメント固型化物の一軸圧縮強さはセメント水比によって決まり、材齢（養生期間）に伴い大きくなる。
- (4) オキシカルボン酸を主成分とする混和剤の減水効果が高く、塩化カルシウムは一軸圧縮強さの発現を促進する効果が高い。
- (5) セメント固型化物の放射性セシウムの溶出率は一軸圧縮強さと線形の関係があり、一軸圧縮強さを大きくすれば、放射性セシウムの溶出率を小さくできる。
- (6) 養生日数や灰のロットに依存せず、一軸圧縮強さを 15.1 MPa 以上とすれば ^{137}Cs 溶出率を 0 % 相当にすることが可能である。

以上の材料、配合と諸物性の関係を整理、把握し、セメント固型化物の配合設計手法を提案した。

謝辞：本研究にあたり、多大なご尽力ご協力を頂きました西川洋二様ならびに関係各所の方々に深く謝意を表します。

参考文献

- 1) 環境省：8,000 Bq/kg を超え 100,000 Bq/kg 以下の焼却灰等の処分方法に関する方針について，2011.8.31.
- 2) 福永勲：ごみ焼却灰の処理処分に関する問題点とその対策，環境技術，Vol. 21, No. 4, pp. 219-229, 1992.
- 3) 鈴木和将，藤井隆史，綾野克紀，小野芳朗：セメント系材料を用いた都市ごみ焼却飛灰の固化技術に関する研究，廃棄物資源循環学会論文誌，Vol. 20, No. 5, pp. 320-331, 2009.
- 4) 満木泰郎：低レベル放射性廃棄物の固体処理技術，日本原子力学会誌，Vol. 22, No. 11, pp. 29-33, 1980.11.
- 5) 満木泰郎：放射性廃棄物の処理・処分へのコンクリート材料の適用，コンクリート工学，Vol. 29, No. 2, pp. 5-12, 1991.2.
- 6) 川戸善実，富岡修，高橋邦明，目黒義弘，坂本浩幸，芳賀和子：焼却飛灰のセメント固化試験 I—模擬焼却灰の基本的固化特性—，JAEA-Technology, 2010-013, 日本原子力研究開発機構，2010.7.
- 7) 西川洋二，高垣哲也，杉橋直行，東利博，遠藤和人：放射性物質を含む焼却飛灰のセメント固型化処理に関する実証業務，土木学会第 67 回年次学術講演会講演概要集，CS10-014, pp. 27-28, 2012.9.
- 8) 馬場勇介，矢口稔，西川洋二，杉橋直行：放射性セシウムを含有する焼却飛灰のセメント固化に関する研究，土木学会第 68 回年次学術講演会講演概要集，VI-286, pp. 571-572, 2013.9.
- 9) 椎名貴快，石渡寛之，石山宏二，岩永克也，久田真，緑川猛彦：天然鉱物由来微粉末を添加した飛灰セメント固型化物の放射性セシウム溶出抑制，土木学会第 68 回年次学術講演会講演概要集，CS5-013, pp. 25-26, 2013.9.
- 10) 中村尊郁，高岡昌輝，大下和徹，塩田憲司：都市ごみ焼却飛灰中セシウムのジオポリマー化による不溶化処理，第 23 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集，2013.7.
- 11) 環境省令：放射能対処特措法施行規則第二十六条第 2 項第二号ホ，pp. 42-43, 104, 2011.12.14.
- 12) (独) 国立環境研究所 資源循環・廃棄物研究センター：放射性物質の挙動からみた適正な廃棄物処理処分（技術資料 第四版），平成 26 年 4 月 14 日改訂版，pp.2-4, 2014.
- 13) 河井徹，橋田浩，黒田泰弘，井上秀之：高流動コンクリートのレオロジー特性に関する基礎的研究（その 1：モルタルの特性），日本建築学会大会学術講演概要集，pp. 1117-1118, 1993.9.
- 14) 河井徹，橋田浩：高流動コンクリートのレオロジー特性に関する基礎的研究，コンクリート工学年次論文報告集，Vol. 16, No. 1, pp. 125-130, 1994.
- 15) 環境省：第五部 放射能濃度等測定方法ガイドライン，pp. 62-63, 平成 25 年 3 月第 2 版，2013.
- 16) 鈴木哲郎，清宮理，山路徹，竹中寛，酒井貴洋，田中亮一：海水・海砂を用いた自己充填コンクリート用高性能 AE 減水剤(増粘剤一液タイプ)の開発，土木学会第 67 回年次学術講演会講演概要集，V-591, pp. 1181-1182, 2012.9.
- 17) 笠井芳夫，坂井悦郎編著：新セメント・コンクリート用混和材料，pp. 237-245, 技術書院，2007.1.
- 18) 鈴木一孝，土田幸宏，伊藤祐敏： C_3S ， C_4AF -セッコウ系ペーストの初期水和におよぼすアニオン型，非イオン型減水剤の作用，セメント技術年報，No. 31, pp. 34-37, 1977.
- 19) 川村政史，笠井芳夫：混和剤を用いたソイルセメントコンクリートの配（調）合・強度に関する実験研究，コンクリート工学年次論文報告集，Vol. 21, No. 2, pp. 187-192, 1999.
- 20) 新大軌，山田航士，伊藤昭則，坂井悦郎：楕円高分子系分散剤およびグルコン酸ナトリウムの吸着挙動に及ぼす粘土鉱物の影響，セメント・コンクリート論文集，No. 65, pp. 2-7, 2011.
- 21) 岡田清：コンクリート工学ハンドブック，p. 368, 朝倉書店，1981.11.
- 22) 経済産業省：実用発電用原子炉の設置，運転などに関する規則の規定に基づく線量限度などを定める告示（平成十三年三月二十一日経済産業省告示第百八十七号）別表第二，2001.3.21.
- 23) 庭瀬一仁，杉橋直行，枝松良展，坂井悦郎：低レベル放射性廃棄物処分施設における異なるフライアッシュを用いたセメント系材料の品質と非破壊試験の適用性に関する検討，コンクリート工学論文集，Vol. 23, No. 1, pp. 13-24, 2012.1.
- 24) 杉橋直行，庭瀬一仁，金子岳夫，枝松良展：低熱ポルトランドセメントとフライアッシュ，膨張材を使用したコンクリートおよびモルタルの材齢 2 年までの諸特性（その 2），第 64 回土木学会年次学術講演会，CS5-027, pp. 187-188, 2008.9.
- 25) 杉橋直行，西川洋二，田中博一，庭瀬一仁，平川芳明：低熱ポルトランドセメントとフライアッシュ，膨張材を使用したコンクリートおよびモルタルの諸特性，第 62 回土木学会年次学術講演会，CS5-036, pp. 231-232, 2007.
- 26) (公社) 日本アイソトープ協会：アイソトープ手帳 11 版，p. 5, 2011.5.
- 27) 寺島泰，青山勲，岩井重久，井上頼輝：セメント固

化体中の ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{60}Co の溶出機構について, 土木学会論文報告集, 第 201 号, pp. 51-60, 1972.5.

会報告書, p. 114, 2014.6

- 28) (公社) 日本コンクリート工学会: 放射性物質の封じ込めとコンクリート材料の安全利用調査研究委員

(2014. 1. 6 受付)

STUDY ON CEMENT SOLIDIFICATION METHOD OF MUNICIPAL SOLID WASTE INCINERATION FLY ASH CONTAMINATED WITH RADIOCESIUM

Naoyuki SUGIHASHI, Yusuke BABA and Kazuto ENDO

We studied fundamental properties, operation methods, and leachability of a cement solidification of municipal solid waste incineration fly ash (MSWI fly ash) contaminated with radiocesium. It was clarified that ordinary cement mix method can be adopted to the cement solidification of the MSWI fly ash. The leachability of the cement solidification MSWI fly ash decreases with increasing of the unconfined compressive strength; it is in a linear relation, so that we can predict the leachability from the compressive strength. From these results, we proposed a cement mix design method of the MSWI fly ash contaminated with the radiocesium.