

廃棄物焼却におけるストロンチウムの挙動と溶出特性

由井 和子^{*}、竹内 幸生[†]、山本 貴士、倉持 秀敏、大迫 政浩

【要 約】 福島県およびその近県の一般廃棄物焼却施設6施設、除染廃棄物の仮設焼却・溶融施設3施設において2011年7月～2016年1月にかけて焼却・溶融残渣を採取し、各試料について公定法により⁹⁰Sr濃度を測定した。一部の焼却灰試料に関しては、放射性Cs、安定Sr、安定Csおよび非放射性的の主要元素について含有量測定と溶出試験（環告13号試験）を実施した。¹³⁷Csと⁹⁰Srの濃度比（⁹⁰Sr/¹³⁷Cs）はおよそ1/100～1/10000であり東日本の土壌と近い値であった。飛灰中と主灰中の⁹⁰Sr濃度は同程度（飛灰濃度／主灰濃度の比で0.3～2）であり⁹⁰Srの飛灰への濃縮は少なかったため、⁹⁰Srは焼却炉内でガス態になりやすいと推察された。灰からの安定Srの溶出率は主灰からは2.1%以下、飛灰からは36%以下であった。灰試料からの安定Srの溶出率はMg以外の他のアルカリ土類金属の溶出率と正の相関があったため、アルカリ土類金属の溶出率が高い条件では⁹⁰Srの溶出率も高い可能性があることが示された。

キーワード：放射性ストロンチウム、廃棄物、焼却、焼却灰、溶出試験

1. はじめに

2011年3月の福島第一原子力発電所（FDNPP）の事故により様々な放射性核種が環境中に放出された。同年8月に公布された放射性物質汚染対処特措法は、事故により放出された放射性核種のうち、放出量が多く半減期の比較的長いセシウム134（¹³⁴Cs）とセシウム137（¹³⁷Cs）を対象としている。事故後8年以上経過し、福島第一原発により近い帰還困難区域等での一部の復興事業に伴う除染や家屋解体により生じる廃棄物の処理が必要になるが、放射性Cs以外の半減期の長い核種の濃度や挙動の把握も進めてゆく必要がある。例えば、ストロンチウム90（⁹⁰Sr）は半減期が28.8年と¹³⁷Cs（半減期30.2年）にはほぼ等しく、大気への放出量は放射性Csの1/100程度¹⁾、土壌への沈着量は¹³⁷Csの1/1000程度²⁾と見積もられており、放射性Csに次いで地表への放出・蓄積量の多い核種である。一方で、放射性Srの大部分を占める⁹⁰Srは壊変過程でγ線を放出せず、放射性Csの測定に用いられるγ線スペクトロメトリでは測定できないためか、⁹⁰Srの測定事例は少ない。

廃棄物の焼却・溶融によって生じる残渣（燃えがらである主灰、ばいじんである飛灰など）および排ガス中の放射性Srに関して、これまでに⁹⁰Srの濃度や安定ストロンチウム（Sr）の溶出率が測定されている。具体的には、環境省

が福島県内の一般廃棄物焼却施設で2012年2月に実施した調査によると、飛灰中濃度が9.7 Bq/kg（⁸⁹Srと⁹⁰Srの和）、主灰中濃度が13.9 Bq/kg（同、迅速判定法による）であり、排ガスからは不検出であった³⁾。国立環境研究所では、放射性Srの廃棄物焼却における挙動や焼却灰中の濃度の地域差について考察するため、東日本各地の一般廃棄物および災害廃棄物焼却・溶融施設の焼却灰に含まれる⁹⁰Sr濃度について調査した^{4,5)}。また、キレート処理等を施す前の焼却主灰・飛灰を採取して、安定Srの溶出率（環境庁告示第13号の方法に準じて測定）を測定した^{6,7)}。また、一般廃棄物の焼却主灰・飛灰および、下水汚泥焼却灰（125 μm以下に粉碎）に対する安定Srの逐次溶出試験を実施しており、一般廃棄物の焼却主灰・飛灰では安定Srのおよそ15%程度が水溶性画分、40%がイオン交換態もしくは炭酸塩態、20%が酸化物態、残りの20-30%が残留態であり、主灰と飛灰で明確な違いは見られなかった。下水汚泥焼却灰では15%程度が水溶性画分、40%が炭酸塩態、残りが残留物態であった⁸⁾。他機関による研究では、下水汚泥焼却灰からの安定Sr溶出率⁹⁾が報告されており、粉碎しない灰からの溶出率は低かった。廃棄物ではないが、短寿命の放射性Csおよび放射性Srを添加した土壌の加熱試験（常温～800℃まで）では、加熱温度

2019年12月4日受付 2020年6月17日受理

* Corresponding author: E-mail: yui.kazuko@nies.go.jp

国立研究開発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）

†現所属：福島県環境創造センター 研究部（〒963-7700 福島県田村郡三春町深作10-2）

の上昇とともに放射性Srの溶出率は増加するという報告¹⁰⁾がある。震災以前に実施された調査では、一般廃棄物の焼却主灰（ボイラー灰等も含む可能性がある）及び飛灰からの安定Sr溶出率（環境庁告示第13号の方法に準じて測定）¹¹⁾及び、産廃焼却炉電気集じん機灰からの安定Sr溶出率が測定されている¹²⁾。以上のように、各種廃棄物等の焼却・溶融残渣における放射性Srの濃度や、安定Srの溶出性とおおよその存在形態に関する情報が得られているが、廃棄物に関する既報⁴⁻⁷⁾では数値データ等の詳細は示していなかった。また⁹⁰Srの挙動と廃棄物の種類の関係や、⁹⁰Srとそれ以外の元素の挙動の類似性や相違点に関する情報は、Srの挙動の理解を深めるうえで必要であるが、これまで十分に検討がなされていなかった。本報文では、これまで学会等で個別に報告⁴⁻⁷⁾してきた⁹⁰Sr濃度の測定結果や安定Srの溶出率測定の結果について総括するとともに、同じ灰試料に対して実施した安定Sr、安定Csおよび主要構成元素の含有量分析と溶出率の測定の結果を追加して、⁹⁰Srおよび安定Srとそれ以外の金属の挙動との比較を行い、炉内における⁹⁰Srの挙動や焼却主灰・飛灰からの溶出挙動の特徴、他の元素との類似性について考察した結果について報告する。

2. 方法

(1) 試料

福島県およびその近県の一般廃棄物焼却施設6施設、除染廃棄物の仮設焼却・溶融施設3施設において焼却・溶融残渣21試料（焼却主灰9、焼却飛灰9、溶融飛灰3）を採取した。詳細をTable 1にまとめた。9施設の炉形式は、ストーカ式7、流動床式ガス化溶融1、シャフト式ガス化溶融1であった。採取時期は2011年7月～2016年1月であった。焼却主灰はおもに空冷式のものであったが、一部の施設で水冷式のものであった。焼却飛灰はおもにキレート処理等を行う前の状態で採取した。主灰と飛灰は原則として同一施設について同一日に採取した。

(2) ⁹⁰Sr濃度の測定

8施設の焼却・溶融の残渣試料18検体（主灰8、飛灰7、溶融飛灰（流動床式ガス化2、シャフト式ガス化1））について、公定法¹³⁾に準拠して⁹⁰Sr濃度を測定した。公定法ではおもに発煙硝酸法を用いた。前処理として、主灰は篩かけを行って5 mmより大きな画分を取り除いた。各灰試料を乳鉢で粉碎し、105℃で8～12時間乾燥（8時間以上で重量変動がなくなるまで）したものを分析に用いた。各検体の20～80 gにSr担体（安定Sr）を50 mg添加し、王水、過酸化水素を用いて酸分解した。少量の塩酸と純水を加えてろ過したろ液に水酸化ナトリウムを加えてpHを10以上とし、炭酸ナトリウムを加えて加熱し、炭酸塩沈殿を生成させ、

Cs等を除いた。この操作を繰り返した。傾斜法および遠心分離により回収した炭酸塩沈殿に塩酸（1+1）を加えて溶解し、シュウ酸を加えた後にアンモニア水（1+1）を加えてpHを4.0～4.2に調整し、シュウ酸塩沈殿を生成させ、Fe等を除いた。この操作を繰り返した。シュウ酸塩沈殿をろ紙（5C）でろ過後、シュウ酸アンモニウム溶液（0.2 w/v%）で洗浄し、600℃で一晩灰化した。次に、焼却灰は多量のCaを含むため公定法のルーチンに加えてCa除去の操作を行った。灰化物を塩酸（1+1）で溶解してろ紙（5C）でろ過し、ろ液に水酸化ナトリウムを加えてpHを13.5に調整し、水酸化物沈殿を生成させた。傾斜法及び遠心分離により上澄みと水酸化物沈殿に分け、沈殿を温水酸化ナトリウム溶液で洗浄して溶液中にSrを回収し、Ca等を除いた。その後は公定法に従って、洗浄液を上澄みと合わせ、炭酸ナトリウムを加えて一晩静置し、炭酸塩沈殿を生成させた。炭酸塩沈殿をガラスフィルター（1G4）でろ過し、硝酸で溶解した。この溶液に発煙硝酸（比重1.52）を加え、硝酸塩沈殿を生成させ、ろ紙（5C）でろ過した。沈殿を発煙硝酸（比重1.45）で洗浄後、少量の純水で溶解して乾固させ、これに純水、酢酸（7+13）、酢酸アンモニウム（46 w/v%）、バリウム担体溶液（Ba 10 mg）を加えて加熱した。これにクロム酸カリウム（30 w/v%）を加えて加熱し、クロム酸バリウムの沈殿を生成させ、Ra等を除いた。沈殿をろ紙（5C）でろ過し、沈殿を温酢酸アンモニウム（0.6 w/v%）で洗浄し、洗浄液はろ液と合わせた。ろ液にアンモニア水、炭酸アンモニウム（飽和）を加えて加熱し沈殿を生成させた。沈殿をガラスフィルター（1G4）でろ過し、アンモニア水（1+100）で洗浄した後、沈殿を少量の塩酸（1+1）で溶解し、純水で洗い込み20 mLとした。これに塩化鉄（III）溶液（Fe 5 mg）、塩化アンモニウム、フェノールフタレイン溶液を加え、加熱して二酸化炭素を除き、溶液が赤色を呈するまでアンモニア水を加えて水酸化鉄（III）を沈殿させた。沈殿を加熱熟成させた。ろ紙（5A）で速やかにろ過して水酸化鉄（III）沈殿と共に⁹⁰Yを除去し（この時の日時を「スカベンジング日時」とした）、沈殿を温アンモニア水（1+500）で洗浄し、洗浄液はろ液に合わせた。ろ液を定容し、その一部を分取してSr担体の回収率を求めた。定容後のろ液は、スカベンジングから2週間以上静置し、⁹⁰Srと放射平衡に達した⁹⁰Yを溶液から水酸化鉄（III）共沈法により沈殿させて測定試料とし（この時の日時を「ミルキング日時」とした）、測定試料中の⁹⁰Yのβ線を計測して⁹⁰Yの計数率を求め、この値から⁹⁰Sr濃度を算出した。β線の測定には、低バックグラウンドα/β線測定装置（LB4200またはS5XLB、CANBERRA社製）を用いた。β線の計測時間は100分程度とした。一部の試料（F-4とF-5）の分析にはイオン交換法を用いた。⁹⁰Srの量 A_{90} （Bq）は式（1）より算出した。

$$A_{90} \pm \Delta A_{90} = (n_0 \pm \Delta n_0) \times (100/E) \times (1/60) \times (100/Y) \dots \dots \dots (1)$$

ここで、 n_0 と Δn_0 はミルクング時における ^{90}Y の正味の計数率と標準偏差 (cpm)、 E は ^{90}Y の計数効率(%)、 Y はSr担体の回収率(%)である。 n_0 はミルクングにより得られた測定試料の計数率 n_1 (cpm) から式 (2)より計算した。

$$(n_0 \pm \Delta n_0) = (n_1 \pm \Delta n_1) \times \exp(0.693 \times (t_1/64.10)) \times (100/y) \times \frac{1}{1 - \exp(-0.693 \times (t_2/64.10))} \dots \dots \dots (2)$$

ここで、 t_1 はミルクング日時から測定開始日時までの時間(h)、 t_2 はスカベンジング日時からミルクング日時までの時間(h)、 y はイットリウム担体の回収率(水酸化鉄(III)共沈法では100%)、64.10は ^{90}Y の半減期(h)である。

Sr担体の回収率 Y は式(3)より計算した。

$$Y = \left(\frac{W_2}{W_1 + W_3 \times M \times 10} \right) \times 100 \dots \dots \dots (3)$$

W_1 は検体に加えた安定Srの量(mg)、 W_2 はスカベンジングの際に回収された安定Srの量(mg)、 W_3 は担体Sr添加前の灰試料の安定Sr含有量(灰中%)、 M は供試料の量(g)である。 W_2 はスカベンジング処理後のろ液を少量分取

して誘導結合プラズマ発光分光分析法(ICP-OES)を用いて測定して求めた。ICP-OESの測定にはSPS3520UV(SIIナノテクノロジー製)を使用した。 W_3 は粉碎後の灰試料から1gを分取し、硝酸および過酸化水素水を用いて酸分解した後に希釈して、ICP-OESにより測定して求めた。

(3) ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 濃度の測定

焼却・溶融の残渣試料21検体について、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 濃度を原則として γ 線スペクトロメトリ¹⁴⁾で測定した。測定機器はSEIKO EG&G社製の食品・環境放射能測定装置SEG-EMSを使用し、ゲルマニウム半導体検出器はORTEC社製のGEM-20-70、GEM-30-70、GMX-40-83のいずれかであった。ただし1試料のみ、日立アロカ社製のNaI(Tl)シンチレーション検出器CAN-OSP-NaIによる測定値を用いた。測定に供した量はTable 2に示した。

(4) 主要無機元素の含有量の測定

全ての試料について、ストロンチウムとセシウムの安定同位体(Sr、Cs)および、非放射性的の無機元素(カリウム(K)、

Table 1. Facilities investigated type of waste and ash, and analysis performed

No.	Type of furnace	Type of waste	Type of ash	Type of ash cooling	Date of sampling	Content analysis		Date of leaching test
						^{90}Sr	Inorganic elements ^d	
A-1	Stoker	MSW + Vegetation ^a 35%	BA	Air cool	2012/4/25	○	○HF	
A-2			FA	Air cool	2012/4/25		○	
A-3		MSW	BA	Air cool	2011/12/28	○	○HF	
A-4			FA	Air cool	2011/12/28	○	○	
B-1	Shaft-type gasification-melting	MSW	MFA	Air cool	2012/12/21	○	○	
C-1	Stoker	MSW	FA	Air cool	2011/7/27	○	○	
D-1	Stoker	DW	BA	Air cool	2015/8/4	○	○HF	2016/10/31
D-2			FA	Air cool	2015/8/4	○	○	2016/10/28
E-1	Fluidized-bed gasification-melting	MSW + Vegetation ^a 50%	Solidified-MFA	Air cool with chelate & cement solidification ^c	2013/1/8	○	○	
E-2			MFA	Air cool	2013/1/8	○	○	
F-1	Stoker	MSW + DW 7%	BA	Air cool	2013/2/21	○	○HF	
F-2		MSW + DW 12%	BA	Air cool	2013/2/20	○	○HF	
F-3			FA	Air cool	2013/2/20	○	○	
F-4		MSW + DW 10%	BA	Air cool	2012/12/13	○	○HF	2016/10/27
F-5			FA	Air cool	2012/12/13	○	○	2016/10/25
G-1	Stoker	MSW + Cooler ash 2.5%	BA	Air cool	2012/3/15	○	○HF	2016/10/24
G-2			FA	Air cool	2012/3/15	○	○HF	2016/10/21
H-1	Stoker	Disaster waste ^b (wood 50% + mixed waste 50%)	BA	Water cool	2013/11/7	○	○HF	2016/10/20
H-2			FA	Air cool	2013/11/7	○	○HF	2016/10/18
I-1	Stoker	DW 52% + Disaster waste ^b (demolition wood 31% + mixed waste 17%)	BA	Air cool	2016/1/14		○HF	2016/11/7
I-2			FA	Air cool	2016/1/14		○	2016/11/4

Abbreviations: MSW: municipal solid waste; DW: decontamination waste, mainly composed of soil and vegetation; cooler ash: ash from incinerator flue gas cooling system; Disaster waste: combustible materials in tsunami and earthquake debris, house demolition waste and household cleanup waste; BA: bottom ash; FA: fly ash; MFA: melted fly ash. ^a 'Vegetation' includes fallen or trimmed leaves, grass, twigs, etc., collected after the FDNPP accident, which had been separated and sequestered due to high radioactivity. ^b Wood in the disaster waste came from house demolition and earthquake and tsunami debris, and mixed waste comprises other combustible materials, including plastics, clothes, and paper. ^c Cement: 10% of the ash, chelate solution: 28% of the ash. ^d "○HF" refers to the alkali fusion with hydrofluoric acid treatment, and "○" refers to the alkali fusion without hydrofluoric acid treatment.

Table 2. Radioactive and stable Sr and Cs content in ash

No.	Type of ash	Water content %	⁹⁰ Sr content				r-Cs content				⁹⁰ Sr/ ¹³⁷ Cs Bq/Bq
			Amount g	Recovery %	Stable Sr mg/kg	⁹⁰ Sr Bq/kg	Amount g	¹³⁴ Cs Bq/kg	¹³⁷ Cs Bq/kg	r-Cs Bq/kg	
A-1	BA	2.1	70.2	75.1	270	3.81±0.20	101.5	1242±41	1849±29	3091	0.002
A-2	FA	-	-	-	-	-	250.1	15450±2600	20250±1990	35700	-
A-3	BA	0.6	80.0	79.7	320	3.11±0.15	70.5	1590±51	2026±47	3616	0.002
A-4	FA	1.4	50.0	75.3	224	4.14±0.24	66.1	9381±174	11572±159	20953	0.0004
B-1	MFA	6.9	70.3	76.3	160	1.42±0.13	42.5, 42.9	1797±25	3138±22	4935	0.0005
C-1	FA	18.5	40.1	77.3	220	6.80±0.35	102.0	6311±72	7134±40	13445	0.001
D-1	BA	0	20.1	72.2	90	29.05±0.96	72.9	15513±52	62368±101	77881	0.0004
D-2	FA	<0.1	20.1	79.8	240	53.94±1.23	65.6	19162±57	75987±135	95149	0.0009
E-1	Solidified MFA	8.6	70.3	84.7	330	6.95±0.24	125.5	3787±73	6833±95	10620	0.0009
E-2	MFA	3.8	70.4	80.7	360	7.74±0.26	47.7, 49.3	4325±60	7450±76	11775	0.001
F-1	BA	0	80.2	75.6	300	6.50±0.23	115.4	659±17	1150±23	1809	0.006
F-2	BA	0	80.0	76.2	280	6.09±0.22	106.7	927±21	1730±29	2657	0.004
F-3	FA	1.2	40.0	76.5	225	7.75±0.35	56.4	9910±90	18400±128	28310	0.0004
F-4	BA	<0.1	10.7	91.9	300	9.2±1.1	104.0	1480±26	2540±36	4020	0.004
F-5	FA	0.2	10.9	93.7	240	11.0±1.2	100.1	25000±109	44400±153	69400	0.0002
G-1	BA	0.03	50.0	82.5	404	7.23±0.29	95.4	662±26	926±32	1588	0.008
G-2	FA	0.8	50.0	80.9	220	2.71±0.20	62.0	6050±95	8050±118	14100	0.0003
H-1	BA	31	80.0	72.5	145	3.19±0.16	168.8	225±10	514±16	739	0.006
H-2	FA	0.6	40.0	62.7	199	3.49±0.28	84.5	1140±26	2670±40	3810	0.001
I-1	BA	<0.1	-	-	-	-	95.5	7500±83	35100±182	42600	-
I-2	FA	1.4	-	-	-	-	67.1	17100±232	79600±507	96700	-

Radioactive decay is corrected to sampling date. ⁹⁰Sr radioactivity was determined using the ion-exchange column method (F4, F5) or fuming nitric acid method (other than F4 and F5). "Amount" denotes the amount used in the analysis. ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs radioactivity in facilities D and F - I were the dry content calculated from the radioactivity and water content of non-dried samples, and those of the other facilities and all ⁹⁰Sr values were the raw values for dried samples. The values after ± refer to the uncertainty obtained in the β or γ-ray measurements. r-Cs is the sum of ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs radioactivity. In B-1 and E-2, ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs were the averaged values from two ash specimens. The uncertainty was obtained from the uncertainty of each data item using error propagation law. ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs radioactivity for the A-2 specimen was determined using an NaI(Tl) detector. "Recovery" refers to the recovery of stable Sr in the whole procedure of ⁹⁰Sr content analysis. The water content of specimens in Facilities D and F - I were determined in the r-Cs analysis, and those of other samples were identified before the ⁹⁰Sr analysis.

ナトリウム (Na)、カルシウム (Ca)、マグネシウム (Mg)、ケイ素 (Si)、アルミニウム (Al)、鉄 (Fe) および重金属の含有量をアルカリ溶融法により測定した。ケイ素分が少ない飛灰 (Table 1 中で○と表記があるサンプル) に関しては、105℃で8時間以上乾燥した灰試料 0.3 gを白金るつぼ中でホウ酸リチウム (LiBO₂、添川理化学、純度 99.9%) 2 gと混合し、マッフル炉を用いて 900℃・1時間加熱してホウ酸塩に溶解させた後に空冷し、70℃程度に加温した状態で 5M 硝酸を数 ml ずつるつぼに添加して固体を硝酸に溶解した。溶液はビーカーに回収した。硝酸の全使用量は約 10 mLであった。ビーカー内に茶色の沈殿が生じた場合は 1M 塩酸を添加して沈殿を溶解させた。るつぼの内容物を全てビーカーに移した後、超純水で 100 mL に定容したものを検液とした。ケイ素分が多い試料 (Table 1 中で○HFと記載) に関しては、上記の操作の前処理として、主灰に関しては篩による分級を行って 5 mm より大きい画分を除き、105℃で8時間以上乾燥し、乳鉢で粉碎し、次いで主灰・飛灰とも、試料 0.6 gを白金るつぼ中に分取し、超純水を加えて加湿し、硝酸 (61%) とフッ化水素酸 (50%) 各 2 mL を添加し、ホットプレート上で 140℃までゆっくり昇

温して蒸発乾固する操作を行った。得られた固体全量に対して上記のアルカリ溶融の操作を行い、検液 100 mL を得た。検液中の金属元素の濃度は、ICP 発光分析法 (ICP-OES、720、Agilent社製、Csと重金属以外で使用) または ICP 質量分析法 (ICP-MS、7500cx、Agilent社製、Csと重金属に使用) により定量した。検液の濃度とアルカリ溶融に供したサンプル量から、灰における各元素の含有量を算出した。各灰試料に対して、原則として3回のアルカリ溶融の操作と ICP 分析による定量を実施した。

(5) 溶出試験

5施設の焼却主灰・飛灰 (全 10 検体) について、環境庁告示第 13 号の方法に準拠して溶出試験を行った。試料を 105℃で 8~12 時間乾燥した後、飛灰は有姿、主灰は粉砕・篩分けにより 0.5~5 mm に調整したものを供試料とした。灰試料 10 g に対し溶媒 (超純水) を液固比が 10 となるように容器に封入後、6 時間 200 rpm で水平振とうして溶出した。溶出後に遠心分離 (遠心加速度 3000 G で 20 分間) し、孔径 1 μm のメンブレンフィルターを用いてろ過を行い、溶出液を得た。ろ過直後に溶出液を分取して pH と電気

伝導度 (EC) を Eutech 社の Cyberscan PC6000 を用いて測定した。溶出試験は各灰について 3 回以上実施し、それぞれについて溶出率を式 (4) から算出した。

$$\text{溶出率} = \frac{(\text{溶出液中の元素の濃度}) \times (\text{溶出液の量})}{(\text{灰試料中の元素含有量}) \times (\text{灰試料の量})} \dots\dots\dots (4)$$

灰試料中の ^{90}Sr 濃度は低く、溶出液中の ^{90}Sr 濃度の測定は困難と考えられたため、溶出試験では安定 Sr の濃度を測定して溶出率を求めた。また安定 Sr の他、放射性セシウム (^{137}Cs 、 ^{134}Cs) とセシウムの安定同位体 (Cs)、K、Na、Ca、Mg、Si、Al、Fe、重金属等についても同様に、溶出液中の濃度を測定して溶出率を求めた。 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 濃度は、灰試料 (溶出試験用)、溶出液とも γ 線スペクトロメトリー¹⁴⁾ で測定した。ゲルマニウム半導体検出器は、灰試料は GWL450-15-5 (ORTEC 社製)、液体試料は GEM-65、GWL450-15-5、GMX-60、LO-AX (ORTEC 社製)、GC2518 (Canberra 社製) のいずれかであった。非放射性の元素は、ICP-OES 法 (Cs と重金属を除く元素)、ICP-MS 法 (Cs と重金属) を用いて定量した。溶出試験は 2016 年 10 月 18 日～11 月 7 日にかけて実施した。液温は約 20℃ であった。溶出液は、元素分析用の供試料には硝酸 (61%) を検液に対して 1 vol% 相当添加し、放射能測定用の供試料とともに冷蔵保管した。灰試料は、採取から溶出試験までの間は室温に保たれた屋内で密封して保管した。

3. 結果と考察

(1) 放射性ストロンチウムの濃度

焼却残渣試料の放射性ストロンチウム濃度 (採取日時に減衰補正した値) の測定結果を放射性セシウム濃度の γ 線スペクトロメトリーによる測定結果とともに Table 2 に示す。 ^{90}Sr 濃度は 1.42～53.94 Bq/kg、 ^{137}Cs 濃度は 514～79600 Bq/kg (いずれも試料採取日に減衰補正した値)^{4,5)} であった。 ^{90}Sr と ^{137}Cs の濃度比 ($^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$) は 10^{-2} ～ 10^{-4} であった。これは東日本の土壌における濃度比の 10^{-3} ～ 10^{-4} に近い値であるため、両核種の土壌沈着量の違いを反映したものと考えられる。なお、濃度比 $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ は特に主灰で ^{137}Cs 濃度が低いときに大きくなる傾向がみられた。焼却灰中の安定 Sr 濃度は、 ^{90}Sr 分析の際の測定値は 90～404 mg/kg、後にアルカリ溶融法で測定した値 (Appendix 1 に記載) は 168～448 mg/kg であり、既報¹⁵⁻¹⁷⁾ の一般廃棄物の焼却灰中の安定 Sr 濃度と同程度であった。アルカリ溶融法による安定 Cs 濃度 (Appendix 1) は 0.84～5.22 mg/kg であった。 ^{90}Sr と ^{137}Cs の比放射能がそれぞれ 5.10×10^{12} Bq/g、 3.21×10^{12} Bq/g であることから¹⁸⁾、焼却灰中の安定 Sr 濃度に対する ^{90}Sr 重量濃度の比はおおよそ 10^{-11} 、安定 Cs 濃度に対する ^{137}Cs 重量濃度の比はおおよそ

10^{-6} と求められた。

なお、焼却灰における金属含有量の測定値は、分析の誤差の他に、灰の不均一性による変動を含むことが考えられる。 ^{90}Sr 濃度は各検体につき 1 回しか測定していないため灰の不均一性の情報は得られないが、放射性セシウムに関しては、同一施設の灰について溶出試験の際に再測定した値 (Table 3 に記載) があり、 ^{137}Cs 濃度の差 (1 回目と 2 回目の値の差をそれらの平均値で割った値) は最大 24%、平均 12% であったため、放射性セシウム濃度はおよそ 1～2 割の不均一性による変動幅を含むと考えられる。同様に、安定 Sr 含有量は、酸分解法による値とアルカリ溶融法による値 (Appendix 1) の差が最大 60%、平均 16%、主灰に限ると平均 28% であったため、灰の不均一性または分析法の違いにより 1～3 割の変動幅を含むと算出された。なお、灰を乾燥・粉碎した後に複数回に分けてそれぞれアルカリ溶融を実施した結果 (Appendix 1) では、安定 Sr 含有量と安定 Cs 含有量の相対標準偏差 (標本標準偏差を平均値で割った値) は平均してそれぞれ 3%、6% であったため、灰の粉碎後は分析ごとのばらつきは少ないものと考えられる。

(2) 飛灰濃度と主灰濃度

既往研究^{8,19-21)} より一般廃棄物の焼却では放射性 Cs は飛灰に濃縮されることが知られている。一般に、元素の飛灰への移行経路には、炉内でガス態化合物となって揮発し、排ガス冷却過程で凝縮・固化するものと、炉底灰の一部が混入する経路が考えられるが、一般廃棄物中の ^{137}Cs の場合は、燃焼の際に Cs の多くがガス態の化合物を生成するため飛灰移行率が高いと考えられている。 ^{90}Sr と ^{137}Cs の飛灰への濃縮傾向について比較するために、Fig. 1 に同日同施設から採取した主灰・飛灰について、 ^{90}Sr および ^{137}Cs の飛灰中濃度と主灰中濃度の比を示す。 ^{137}Cs の飛灰/主灰濃度比は 1～17 であり、特に一般廃棄物や災害廃棄物の焼却において飛灰への濃縮傾向が顕著であったが、 ^{90}Sr の濃度比は 0.3～2 であり、 ^{137}Cs と比べて飛灰への濃縮が少なく、また施設や廃棄物の種類による違いも明確でなかった。飛灰への濃縮が少ないことから、 ^{90}Sr は廃棄物の焼却においてガス態にはなりにくいと推察された。なお、Fig. 1 中には安定同位体の濃度比も示しているが、安定 Sr と ^{90}Sr では飛灰/主灰濃度比はほぼ同じであったが、いくつかの施設では、安定 Cs と ^{137}Cs では安定 Cs のほうが濃度比が小さく飛灰への濃縮が少ない傾向がみられた。この原因は明らかではないが、安定 Cs と ^{137}Cs では物理化学的性質はほぼ同じと考えられるため、測定方法に起因する差、すなわち放射性 Cs 濃度は非破壊測定であるものの、安定 Cs 濃度はアルカリ溶融法で測定したため溶融時の揮散によって実際より低い値となった可能性や、試料の不均一性による誤差の可能性が考えられるが、廃棄物中の安

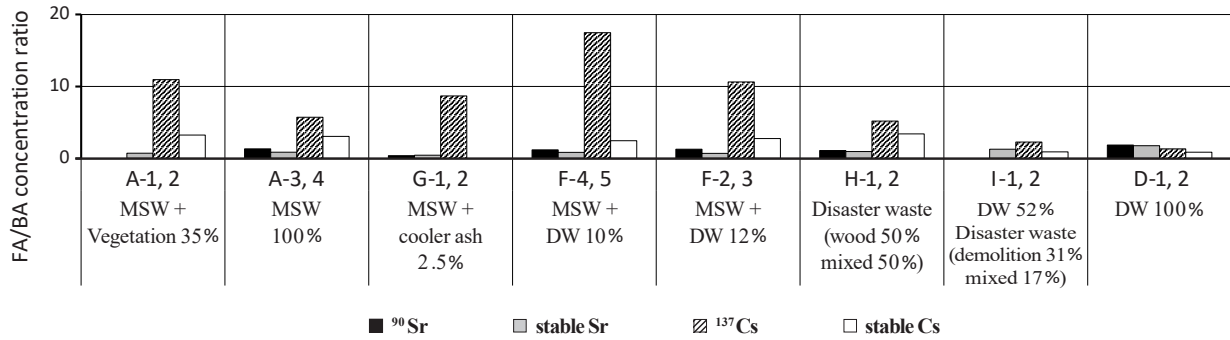


Fig. 1. Ratio of the concentration in the FAs and BAs of stable and radioactive Sr and Cs

定Csと¹³⁷Csの形態に何らかの違いがあつて、挙動が実際に異なっていた可能性も否定できない。一方、Srにおいて同位体による違いが見られなかったことに関しては、安定Srと⁹⁰Srは両方とも試料を酸分解して溶液中の量を定量するため測定法に大きな違いがなかったことや、粉碎後の灰を分取して分析したため試料の不均一性の影響が小さかったためと考えられる。

(3) 焼却主灰・飛灰からの溶出率

各種廃棄物の焼却主灰・飛灰からの安定Sr、安定Csおよび放射性Csの溶出率をTable 3及びFig. 2に示す。安

定Srの溶出率は飛灰で12~36%、主灰で0.22~2.1%と飛灰で高い傾向があり、既往の一般廃棄物の焼却主灰・飛灰¹¹⁾や産業廃棄物の焼却飛灰(電気集じん機灰)からの溶出傾向¹²⁾と類似していた。安定および放射性Csの溶出率も飛灰で高く、既往の一般廃棄物の焼却主灰・飛灰⁸⁾からの溶出率と同様であった。なお飛灰からの溶出率は、Cs(安定、放射性とも)では除染廃棄物が最も小さく、一般廃棄物や災害廃棄物が混合すると溶出率が高い傾向がみられたが、Srの場合は除染廃棄物専焼の飛灰(試料D-2)でも19%の溶出率があるなど、明確な傾向はみられなかった。一方、主灰からのSr溶出率は、除染廃棄物を

Table 3. Leachability of stable Sr and stable and radioactive Cs from selected ash samples

No.	Type of ash	pH (-)	EC (mS/cm)	Content in ash				Concentration in the leachate				Leachability		
				Sr (mg/kg)	Cs (mg/kg)	¹³⁷ Cs amount (g)	¹³⁷ Cs Bq/kg	Sr (mg/kg)	Cs (mg/kg)	¹³⁷ Cs amount (g)	¹³⁷ Cs Bq/kg	Sr (%)	Cs (%)	¹³⁷ Cs (%)
D-1	BA	9.13	0.069	168	4.8	12.7	50078 ± 157	0.038	<0.0002	14.64, 14.17	<2.34	0.22	<0.04	<0.05
D-2	FA	11.1	8.6	294	4.1	24.2	80091 ± 175	5.5	0.0018	14.34, 14.83, 14.29	38 ± 3 (5)	19	0.43	0.48
F-4	BA	11.1	2.8	290	1.4	54.5	2409 ± 23	0.35	0.0013	14.43, 14.31	7.4 ± 1.5 (1)	1.2	0.90	3.1
F-5	FA	10.7	43	243	3.5	27.5	35017 ± 104	2.9	0.27	20.03, 20.54, 19.87	1924 ± 10 (42)	12	77	55
G-1	BA	11.1	4.9	448	<0.18	37.6	1129 ± 5	0.86	0.0014	24.68, 25.44, 25.37	4.7 ± 0.5 (1)	1.9	—	4.2
G-2	FA	12.0	52	204	2.2	30.7	8306 ± 55	7.4	0.13	25.88, 25.74, 26.43	338 ± 5 (44)	36	58	41
H-1	BA	11.1	1.6	243	1.5	78.8	461 ± 8	0.50	0.0023	42.36 (42.77)	1.7 ± 0.4	2.1	1.5	3.7
H-2	FA	12.4	34	234	5.2	44.7	2729 ± 22	7.0	0.39	36.45, 35.15, 36.9	203 ± 4 (4)	30	76	74
I-1	BA	10.3	0.32	227	3.6	57.1	44097 ± 148	0.072	<0.0002	15.11, 15.04, 15.46	2.2 ± 0.4 (1)	0.32	<0.06	0.050
I-2	FA	11.2	24	290	3.2	53.6	84356 ± 102	6.9	0.15	15.00, 14.76, 14.79	2466 ± 18 (47)	24	48	29

Decay of radioactivity is corrected to sampling date. Content of ¹³⁷Cs in the ash samples was obtained from a single measurement, and the values after ± refer to the uncertainty obtained in each γ-ray measurement. Concentration of ¹³⁷Cs in the leachates is the arithmetic mean value from 1-3 measurements, and the uncertainties were evaluated from the uncertainties of raw data using Gauss's error propagation law. Values in brackets refer to corrected sample standard deviations. In the D-1 leachate, the measured two ¹³⁷Cs values were both below the detection limit; and for H-1, only 1 of 3 measurements exceeded the detection limit. Content of non-radioactive species in the F-5 and I-2 ash was obtained from single measurements, and the others were the mean values of 3 measurements. The concentrations and leachabilities of non-radioactive elements are listed in Tables S1 and S2. All analysis and leaching tests were performed using dried ash specimens.

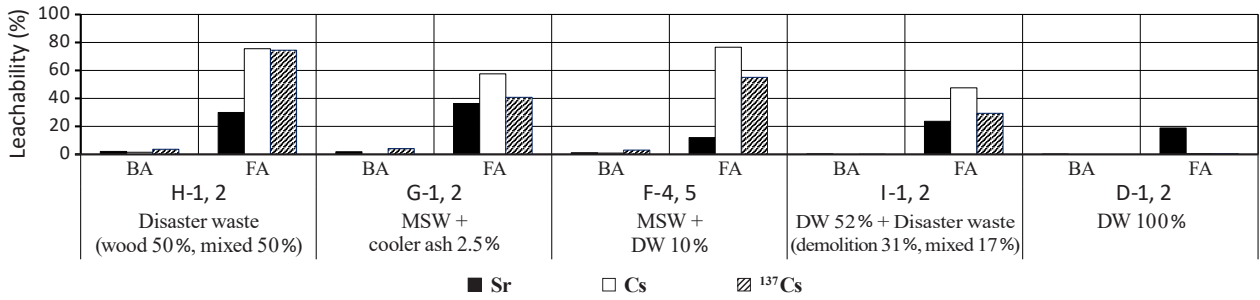


Fig. 2. Leachability of Sr and Cs from ash samples

50%以上混焼した灰 (D-1、I-1) で溶出率が低かった。除染廃棄物を混焼した主灰 (D-1、I-1) は、pHがそれぞれ約9、10と比較的低く、電気伝導度 (EC) も低い値であり、溶出する成分が少ない様子が伺えた。それ以外の主灰および飛灰の溶出液のpHは11~12であり、特に飛灰溶出液は高アルカリ性であった。¹³⁷Csと安定Csの溶出率は、一部の飛灰で安定Csの方が¹³⁷Csよりも溶出率が高い傾向がみられたが、概ね同じであり、既報⁸⁾では放射性Csと安定Csで溶出率に差は無かったため、今回みられた差は分析方法の違いによるものと考えられる。得ら

れた安定Srの溶出率と焼却灰中の⁹⁰Sr放射能濃度から溶出液の⁹⁰Sr放射能濃度を見積もったところ、飛灰では0.1~1.0 Bq/L、主灰では0.007~0.01 Bq/L (液固比L/S=10の場合)と試算された。

(4) 他の金属元素との飛灰への濃縮傾向の相関について

Fig. 3、Fig. 4に非放射性の無機元素の飛灰中と主灰中の含有量 (濃度と同義) の比 (以後、飛灰/主灰濃度比と記す) を⁹⁰Srまたは¹³⁷Csの飛灰/主灰濃度比に対してプロットしたものを示す。無機元素の含有量の分析結果と

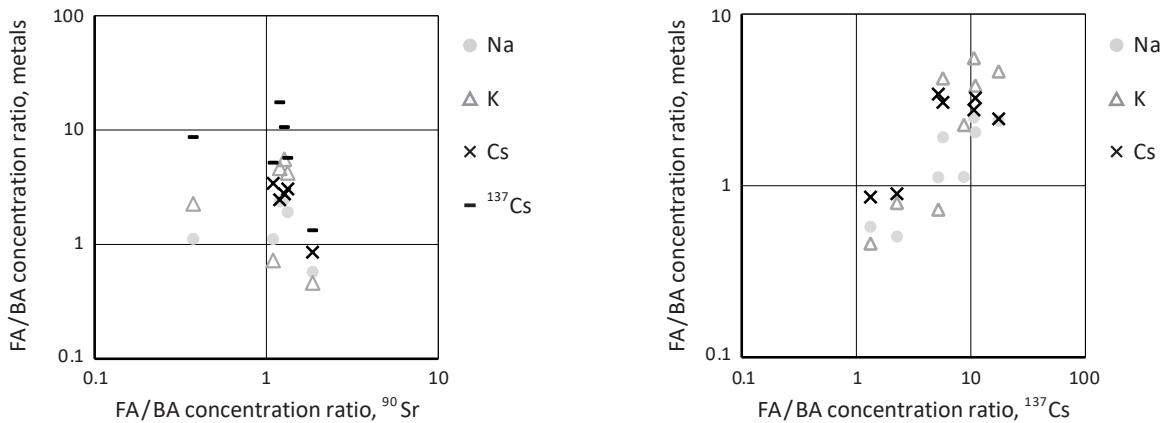


Fig. 3. Ratios of FA/BA concentrations of alkali metals compared to ⁹⁰Sr and ¹³⁷Cs

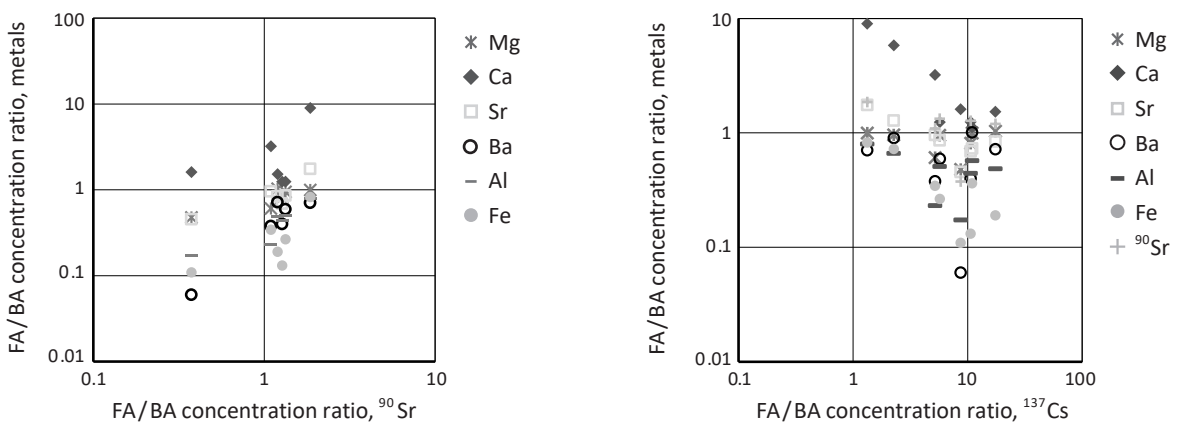


Fig. 4. Ratios of FA/BA concentrations of alkaline earth metals, Al and Fe compared to ⁹⁰Sr and ¹³⁷Cs

飛灰/主灰濃度比の値はAppendix 1とAppendix 2に示す。またAppendix 2には⁹⁰Sr、¹³⁷Csと非放射性元素の濃度比の相関係数も示した。Figs. 3 & 4およびAppendix 2より、⁹⁰Srの飛灰/主灰濃度比は同じアルカリ土類金属である安定Sr、Mg、BaおよびFe、Alと正の相関があり(鉄以外は相関係数>0.8)、アルカリ金属とは相関が見られないが(Na、Kとの相関係数の絶対値<0.1)、¹³⁷Csの濃度比はKおよびNaと相関がみられるため、一般廃棄物の灰¹⁵⁾と同様に、炉内で揮発しやすい元素であるアルカリ金属同士、揮発しにくい元素であるそれ以外の金属同士の間に関連があると考えられる。なお⁹⁰SrとCaの濃度比にも相関がみられるが、飛灰中のCaには酸性ガス中和のための消石灰吹き込み分も含まれるため、炉内の挙動が同じかどうか今回のデータのみから判断するのは難しい。なお今回の解析では、特定の廃棄物で傾向が異なるなどの違いはみられなかった。

または¹³⁷Csの溶出率に対してプロットしたものを示す。溶出液の分析結果と溶出率の値はAppendix 3、Appendix 4に、安定Srまたは¹³⁷Csとその他の元素の溶出率の相関係数をAppendix 4に示す。Srの溶出率はMg以外のアルカリ土類金属元素の溶出率と強い相関があり(相関係数>0.9)、アルカリ金属とは除染廃棄物専焼(D-2)の場合を除くと正の相関がみられた。¹³⁷Csの溶出率はアルカリ金属元素の溶出率と強い相関がみられた(相関係数>0.86)。両者ともAl、Feとの顕著な相関はみられなかった(相関係数の絶対値<0.5)ため、Srはアルミノシリケートや鉄化合物とともに溶出するわけではなく、溶出性が比較的高い何らかの化合物として溶出していると考えられる。

(5) 他の金属元素との溶出率の相関について

Fig. 5、Fig. 6に非放射性の無機元素の溶出率を安定Sr

5. まとめ

福島県とその近県における廃棄物処理施設の灰を採取し、⁹⁰Srの含有量と安定Srの溶出特性について化学分析および溶出試験を用いて調査した。焼却残渣中の⁹⁰Sr濃度は1.4~54 Bq/kgであり、⁹⁰Srと¹³⁷Csの濃度比(Bq/Bq)は $2 \times 10^{-4} \sim 8 \times 10^{-3}$ であり、土壌と同様に⁹⁰Srは¹³⁷Csの

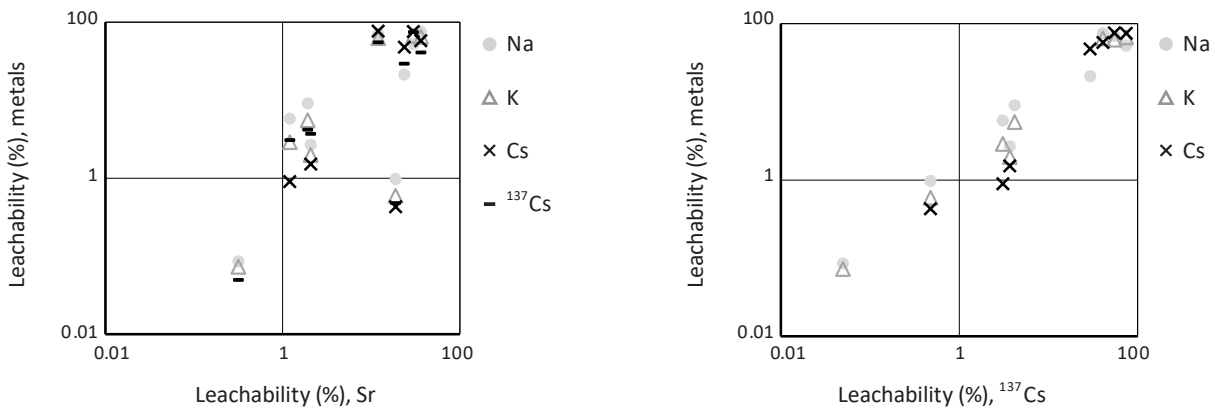


Fig. 5. Leachability of alkali metals compared to Sr and ¹³⁷Cs

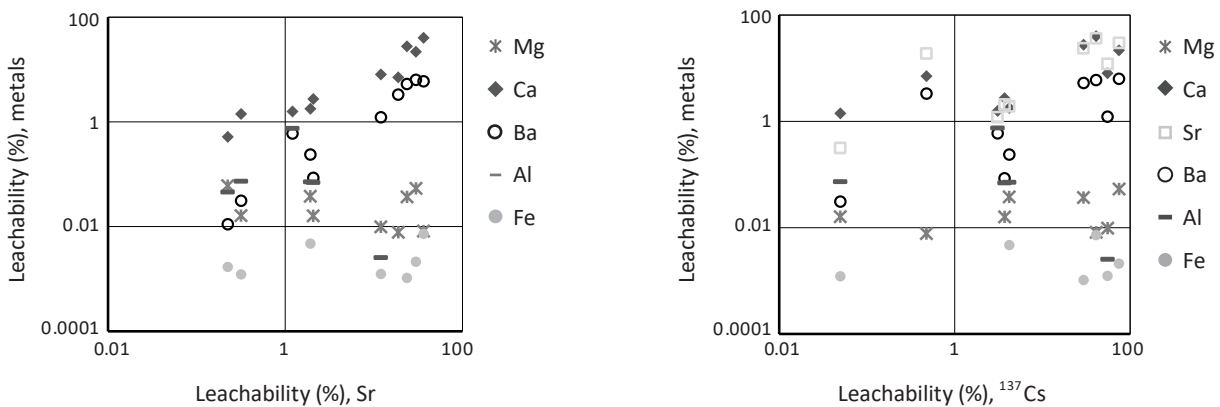


Fig. 6. Leachability of alkaline earth metals, Al, and Fe against Sr and ¹³⁷Cs

1/100～1/10000であった。濃度比は特に主灰で大きい傾向がみられた。 ^{90}Sr と安定Srの重量濃度比は約 10^{-11} であり、 ^{90}Sr の安定Srに対する割合は極めて低いと考えられる。飛灰への濃縮割合を示す飛灰濃度/主灰濃度の比は、 ^{90}Sr では0.3～2であり、 ^{137}Cs と比べて飛灰への濃縮が少ないことが分かった。施設や廃棄物の種類による違いは明確ではなかった。環告13号試験による溶出率の測定では、安定Srは主灰からは最大2%、飛灰からは最大36%溶出するという結果が得られた。 ^{137}Cs と比べて溶出率は低い傾向にあるが、Al、Fe等と比べると飛灰からの溶出率が高いことが明らかになった。

^{90}Sr および安定Srと他の元素の挙動の関係を調べた結果、 ^{90}Sr 、安定Srとも飛灰—主灰間の分配挙動は同じアルカリ金属であるMg、Baや、炉内でガス態化合物を作らないAl、Feと正の相関があり、アルカリ金属とは異なることが示された。溶出率に関しては、安定Srは他のアルカリ土類金属、アルカリ金属と正の相関がみられた。安定Srと ^{90}Sr が同様の溶出率を持つとすると、特にアルカリ土類金属の溶出率が高い条件では ^{90}Sr の溶出率も高くなる可能性が高いことが示された。

実際の廃棄物処理においては、焼却灰から放射性Csを分離する目的で水洗浄や加熱揮散等の技術が適用される場合があるが、Srの溶出率はCsより低く、またSrは飛灰に濃縮されにくい傾向にあるため、これらの技術によりSrは分離されにくいことに注意する必要がある。中間貯蔵施設において飛灰洗浄が検討されている²²⁾が、飛灰の水洗浄を行う場合はSrの一部は洗浄液へ溶出すると予想されるため、洗浄液の処理には注意する必要がある、特に飛灰中のSr濃度が高い場合には、洗浄用の設備と洗浄液の管理・保管における対策の必要性も検討する必要がある。また、今回の測定より得られた安定Srの溶出率と灰試料中の ^{90}Sr 濃度から溶出液中の ^{90}Sr 濃度を試算すると、主灰の溶出液では0.007～0.01 Bq/L、飛灰の溶出液中は0.1～1.0 Bq/L(液固比L/S=10の場合)と推定された。飛灰の埋立を想定すると、L/Sが小さくなる埋立初期の浸出液では ^{90}Sr 濃度はさらに高くなることが予想され、またキレート等の薬剤による処理を行う場合や、浸出液のpHに変化があった場合は ^{90}Sr の濃度が変化する可能性も考えられる。放射性Csと違って ^{90}Sr の焼却残渣からの溶出濃度には明確な基準がないが、飛灰溶出液は、 ^{90}Sr 濃度が一桁高くなると、例えば実用原子力施設における放出口における排水基準である告示濃度限度30 Bq/L²³⁻²⁵⁾を目安にすると、それに近づくことから、埋立処分等を実施する場合においても濃度の高い飛灰の管理には注意が必要である。

謝 辞

放射性Srの測定にあたり一般財団法人九州環境管理協会、株式会社同位体研究所、株式会社島津テクノリサーチのご協力を頂きました。放射性Csの測定では千村和彦氏にご協力を頂きました。灰試料および溶出液の化学分析においては高田恭子氏、平山充宏氏にご協力を頂きました。調査・分析にご協力頂きました各施設の関係者の皆様と各機関の皆様に、ここに記して感謝申し上げます。

文 献

- 1) 経済産業省報道発表:「東京電力株式会社 福島第一原子力発電所の事故に係わる1号機、2号機及び3号機の炉心の状態に関する評価について」平成23年6月6日(平成23年10月20日一部訂正), (http://dl.ndl.go.jp/view/download/digidepo_6017222_po_20110606-1nisa.pdf?contentNo=1&alternativeNo=) 2019年7月閲覧
- 2) 文部科学省:「文部科学省による、①ガンマ線放出核種の分析結果、及び②ストロンチウム89、90の分析結果(第2次分布状況調査)について」, (https://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/7000/6213/24/6213_20120912_rev20130701.pdf) 2019年7月閲覧
- 3) 環境省:「福島県内の焼却施設における放射性ストロンチウム及びプルトニウムの核種分析の結果について」平成24年6月5日(https://www.env.go.jp/jishin/attach/haikihyouka_kentokai/13-mat_6.pdf), 2019年7月閲覧
- 4) 山本貴士, 竹内幸生, 大迫政浩: 焼却灰中ストロンチウム90濃度について. 第5回環境放射能除染研究発表会要旨集, p.79 (2016).
- 5) 山本貴士, 竹内幸生, 大迫政浩: 焼却灰中放射性ストロンチウム濃度の測定. 第26回廃棄物資源循環学会研究発表会予稿集, pp.391-392 (2015).
- 6) 山本貴士, 竹内幸生, 高田恭子, 大迫政浩: 焼却灰からのSr溶出特性. 第6回環境放射能除染研究発表会要旨集, p.70 (2017).
- 7) 山本貴士, 竹内幸生, 高田恭子, 大迫政浩: 焼却灰中のストロンチウムとその溶出について. 第29回廃棄物資源循環学会研究発表会予稿集, pp.395-396 (2018).
- 8) 国立環境研究所:「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)」(http://www.nies.go.jp/fukushima/pdf/techrepo_r4_140414_all.pdf), pp.32-47 2019年7月閲覧
- 9) 石川奈緒, 伊藤 歩, 海田輝之: 埋立処分される下水汚泥焼却灰からのCsおよびSrの溶出特性. 日本原

- 子力学会和文論文誌, **13**(3), 87-93(2014).
- 10) 池上麻衣子, 高瀬雄平, 米谷達成, 米田 稔, 島田洋子, 松井康人, 福谷 哲: 土壌の熱処理によるCs, Srの溶出特性の変化. 土木学会論文集G(環境), **70**(7), III_203-208(2014).
- 11) A. Kida, Y. Noma, T. Imada: Chemical speciation and leaching properties of elements in municipal incinerator ashes. *Waste Manage.*, **16**, 527-536 (1996).
- 12) 藤森英治, 市川賢治, 石原泰智, 浅井勝一, 千葉光一, 原口紘亮: プラズマ分光法による産業廃棄物焼却飛灰溶出液の多元素プロファイリング分析. 環境科学会誌, **13**(3), 369-381(2000).
- 13) 文部科学省: 放射能測定法シリーズ2-放射性ストロンチウム分析法(2003年改訂)
- 14) 文部科学省: 放射能測定法シリーズ7-ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー(1992年改訂)
- 15) 貴田晶子, 野馬幸生, 高延堅三: 焼却炉における元素の挙動とその類似性. 廃棄物学会論文誌, **2**(1), 11-20(1991).
- 16) 辰市祐久, 茂木 敏, 井上 宏: 都市ごみ等に含まれる金属資源の挙動に関する研究(2)-蛍光X線分析及びICP-MSによる希少金属等の分析-. 東京都環境科学研究所年報, 70-75(2012).
- 17) 肴倉宏史, 由井和子, 倉持秀敏, 成岡朋宏, 門木秀幸: ストーカ式都市ごみ焼却施設における各焼却残渣への金属分配挙動調査. 第37回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集, pp.245-247(2016).
- 18) 日本アイソトープ協会: アイソトープ手帳第11版, 丸善(2011) p.129.
- 19) 倉持秀敏: 事故由来放射性物質汚染廃棄物の熱処理に関するこれまでの研究成果, 環境放射能除染学会誌, **2**(2), 71-84(2014).
- 20) H. Fujiwara, H. Kuramochi, T. Maeseto, K. Nomura, Y. Takeuchi, K. Kawamoto, S. Yamasaki, K. Kokubun, M. Osako: Influence of the type of furnace on behavior of radioactive cesium in municipal solid waste thermal treatment. *Waste Manage.*, **81**, 41-52 (2018).
- 21) H. Fujiwara, H. Kuramochi, K. Nomura, T. Maeseto, M. Osako: Behavior of radioactive cesium during incineration of radioactively contaminated wastes from decontamination activities in Fukushima. *J. Environ. Radioact.*, **178-179**, 290-296 (2017).
- 22) 中間貯蔵除去土壌等の減容・再生利用技術開発戦略検討会(第11回)配布資料3-1 環境省 (http://josen.env.go.jp/chukanchozou/facility/effort/investigative_commission/pdf/proceedings_191219_03-01.pdf) (2020/4/22 閲覧)
- 23) 「地下水バイパスの運用目標(排水基準)について」、平成26年2月3日 東京電力株式会社 (https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/osensuitaisaku/committee/takakusyu/pdf/002_05_00.pdf) (2019/11/06 閲覧)
- 24) 「放射性同位元素等による放射線障害防止に関する法律」の告示「放射線を放出する同位元素の数量等を定める件」、別表第2「放射性同位元素の種類が明らかで、かつ一種類である場合の空气中濃度限度等」、第6欄「排液中又は排水中の濃度限度」 (<https://www.nsr.go.jp/data/000045581.pdf>) (2020/06/08 閲覧)
- 25) 「安全・安心を第一に取り組む、福島“汚染水”対策④放射性物質の規制基準はどうなっているの?」経済産業省資源エネルギー庁 (<https://www.enecho.meti.go.jp/about/special/johoteikyo/osensuitaisaku04.html>) (2019/11/06 閲覧)

Original

The Fate of Strontium during Waste Incineration and Leachability from Incineration Residues

YUI Kazuko*, TAKEUCHI Yukio, YAMAMOTO Takashi,
KURAMOCHI Hidetoshi, and OSAKO Masahiro

● **Summary** ● Radioactively-contaminated waste incineration residues were collected from 6 municipal solid waste incineration plants and 3 disaster waste incineration plants in Fukushima Prefecture and nearby from July 2011 to January 2016 to examine the concentration of ^{90}Sr and the leachability of stable strontium from the residues. The wastes examined included municipal solid waste, disaster waste generated from the earthquake and tsunami that struck in March 2011, and decontamination waste consisting of soil and vegetation removed from radioactively-contaminated areas of northeastern Japan. The concentrations and leachabilities of radiocesium, stable strontium, and non-radioactive major-constituent elements were also determined for selected residues. The concentration ratios of ^{90}Sr to ^{137}Cs ($^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$, Bq/Bq) were approximately 0.01 to 0.0001, close to the ratios in soil in contaminated areas. Unlike ^{137}Cs and ^{134}Cs , ^{90}Sr was not markedly concentrated in fly ash. Leachabilities of stable (i.e., non-radioactive) Sr from bottom ash was below 2.1%, whereas that from fly ash reached 36%. The leachability of stable Sr was correlated with those of other alkaline earth metals, suggesting that leachability of Sr can be high if the leachability of other alkaline earth metals from the same ash sample are high.

Key Words: radioactive strontium, waste, incineration, ash, leaching test

Received December 4, 2019; Accepted June 17, 2020

*Corresponding author: Address: National Institute for Environmental Studies, Center for Material Cycles and Waste Management,
16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305-8506, Japan
E-mail: yui.kazuko@nies.go.jp

Appendix 1. Metal content in the waste incineration or melting residues (unit: mg/kg, dry-base)

	Sr	Cs	Na	K	Mg	Ca	Al	Fe	Ba	Rb	Ti	Mn	Zn	Cr	Cu	Pb	Ni	As	Cd	Co	Ga	La	V	Mo	Y	Be	U		
average	345	1.39	28428	23791	15727	146750	69226	44534	732	32	6142	864	681	269	183	42	42	4	<4	31	15	26	121	6	18	6	18	<5	2
RSD (%)	6	1	2	2	2	2	0.6	2	2	0.2	2	1	5	3	3	5	18	2	15	0.3	3	0.4	6	2	2	2	2	-	2
average	251	4.51	58258	91065	15664	163777	39517	16099	739	105	7424	585.3	4356	141	537	697	28	20	25	31	13	22	61	9	12	9	12	<11	1
RSD (%)	0.2	0.4	0.9	2	2	2	1	2	2	0.2	2	2	0.3	2	0.7	0.7	13	4	3	0.7	1	4	0.5	2	0.8	2	0.5	-	3
average	279	1.33	38253	21859	16440	148707	75384	61401	892	25	7947	881	1798	357	2542	352	57	4	<6	63	16	148	89	8	15	8	15	<8	1
RSD (%)	1.2	5	0.8	0.3	2	1	5	7	13	2	8	8	7	13	35	53	35	8	-	17	5	4	1	8	1	8	1	-	-
average	239	4.06	73263	92397	15621	184846	38185	16259	530	95	7742	490	4563	187	467	539	27	16	80	59	12	41	44	9	8	9	8	<13	1
RSD (%)	1.4	-	1.0	2	3	2	1.4	3	2	2	2	1	1	3	2	0.5	5	2	0.8	0.04	4	6	1	0.8	2	-	-	-	2
average	171	2.48	77416	76751	4945	217967	8176	3363	263	82	2674	160	20706	354	4873	2172	67	42	89	12	10	3	12	77	3	3	3	<8	<1
RSD (%)	1.3	11	0.8	0.7	3	0.2	0.7	1	1	3	1	2	0.6	90	1	3	1	1	0.7	2	2	9	2	1	1	0.9	-	-	-
average	224	1.42	32803	44476	9513	214956	21407	6570	413	41	4601	340	4203	232	362	561	32	34	36	25	6	10	20	18	8	8	8	<8	1
RSD (%)	0.5	-	0.4	0.7	0.2	1	2	0.4	6	2	2	1	0.3	3	4	10	40	1	2	2	4	11	1	3	2	2	2	-	3
average	168	4.82	12494	38289	7600	25146	76140	33895	546	n.a.	3018	1120	<175	28	1313	28	12	5	<3	11	n.a.	31	87	2	23	2	23	<0.87	2
RSD (%)	0.4	2	0.4	0.7	0.5	0.4	0.8	1	2	-	1	0.9	-	5	36	2	3	3	-	0.8	-	3	2	16	4	-	4	-	3
average	294	4.13	7208	17641	7571	226070	60703	27933	385	n.a.	2586	1180	<335	45	38	61	17	17	<7	11	n.a.	37	77	3	23	3	23	<2	<3
RSD (%)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
average	415	2.20	39098	56375	17259	198026	40379	27899	1107	60	10676	836	8760	522	4343	1954	115	28	32	50	12	17	61	19	15	15	15	<9	1
RSD (%)	1	-	0.8	0.9	0.8	0.8	0.6	2	1	0.3	0.9	1	1	3	1	1	6	3	3	0.8	3	16	0.5	0.6	2	2	-	-	-
average	406	2.70	42943	50244	18939	182287	44370	27722	1144	65	12043	850	9598	513	4817	2229	111	30	34	57	13	21	70	18	16	16	16	<11	1
RSD (%)	0.3	-	0.2	0.2	1	0.2	0.6	0.5	0.7	2	0.8	0.7	0.2	0.8	1	3	3	3	0.2	0.8	1	27	0.2	2	2	1	-	-	0.8
average	309	0.84	33172	14273	16332	148151	82459	49197	976	18	7874	1752	7210	586	57560	480	148	8	<4	34	15	23	45	12	33	4	3	<5	1
RSD (%)	11	-	13	12	11	12	11	12	12	12	6	14	110	7	145	87	17	2	-	22	1	18	8	22	14	14	-	13	-
average	354	0.85	30668	16819	18913	144154	71727	56998	1452	20	8550	1581	8863	1121	24463	990	558	15	<3	44	14	24	51	18	36	4	1	-	-
RSD (%)	11	-	4	4	4	4	11	17	7	7	6	2	38	101	61	109	113	38	-	16	7	4	7	54	1	7	-	7	-
average	245	2.35	76560	93276	15311	179342	31700	7485	580	94	8054	535	7810	294	787	2032	36	28	53	20	10	13	23	17	11	11	11	<11	1
RSD (%)	0.6	6	0.5	1	2	0.6	0.4	1	2	3	1	0.7	0.9	1	1	2	5	2	0.4	4	0.7	7	3	1	4	-	-	-	-
average	290	1.43	33149	24430	12930	118320	65154	42541	892	n.a.	6743	1218	2615	376	14934	276	233	14	<4	20	n.a.	26	45	12	22	22	<0.89	<2	
RSD (%)	5	6	3	4	0.6	3	8	2	12	2	5	3	16	13	144	3	18	4	-	5	-	5	0.8	10	5	-	-	-	
average	243	3.51	79070	113266	13343	180644	31593	8090	641	n.a.	7240	687	8916	326	1085	2481	35	38	67	23	n.a.	26	22	18	12	12	12	<2	<3
RSD (%)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
average	448	<0.18	46484	26036	15876	132651	103177	58128	9415	n.a.	4787	800	4250	654	744	104	55	7	<4	35	n.a.	202	49	21	15	1	15	1	5
RSD (%)	1	-	0.7	2	2	2	2	6	5	-	10	7	4	3	16	7	8	2	-	6	-	17	0.9	1	7	-	7	-	0.4
average	204	2.24	52163	58887	7586	213431	17821	6361	565	n.a.	3733	202	5457	543	1142	983	22	17	108	15	n.a.	18	16	13	6	6	6	<0.95	<2
RSD (%)	3	3	3	3	3	0.8	2	5	3	-	10	5	0.9	0.8	3	0.8	10	3	2	1	-	2	1	1	1	1	1	-	-
average	243	1.53	21726	17208	9856	87868	66654	43163	451	n.a.	3876	833	721	132	962	294	32	14	<4	15	n.a.	14	82	4	19	4	19	1	<2
RSD (%)	2	3	1	3	0.7	2	8	1	3	-	2	15	6	5	28	42	4	2	-	8	-	4	1	1	1	1	-	-	-
average	234	5.22	24247	12483	5976	282567	20261	14846	170	n.a.	1612	316	3331	62	209	2928	13	50	40	8	n.a.	12	28	4	11	4	11	<6	<2
RSD (%)	2	2	2	2	2	3	2	1	1.4	-	3	3	3	7	3	2	0.6	2	2	37	-	7	2	4	0.9	-	-	-	-
average	227	3.61	18849	34412	9492	34251	64766	33194	506	n.a.	3401	883	266	61	721	90	25	10	<4	11	n.a.	26	87	2	19	2	19	<0.88	2
RSD (%)	0.6	2	3	0.6	1	0.9	1	3	1	-	2	1	0.2	7	31	72	18	6	-	4	-	11	4	7	4	7	4	-	5
average	290	3.24	9518	27319	9116	199433	42703	24040	456	n.a.	2773	911	3542	93	168	762	23	115	51	12	n.a.	23	71	6	16	6	16	<2	<3
RSD (%)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-

The values of content are the arithmetic mean from 1-3 repeated measurements. RSD (%) refers to the relative standard deviation obtained from the corrected standard deviation of the 2-3 measurements divided by the mean values. "n.a." indicates "not available," and "n.d." indicates "not detected" because the value was under the detection limit. In the cases that the number of content values which exceeded the detection limit was no more than 1, RSD (%) were not available and the corresponding cells were vacant.

Appendix 2. FA/BA concentration ratios (unit: none)

	Sr	Cs	Na	K	Mg	Ca	Al	Fe	Ba	Rb	Ti	Mn	Zn	Cr	Cu	Pb	Ni	As	Cd	Co	Ga	La	V	Mo	Y	Be	U
A-2/A-1	0.7	3.2	2.0	3.8	1.0	1.1	0.6	0.4	1.0	3.3	1.2	0.7	6.4	0.5	2.9	16.6	0.7	4.7	n.d.	1.0	0.8	0.9	0.5	1.4	0.7	n.d.	0.8
A-4/A-3	0.9	3.0	1.9	4.2	1.0	1.2	0.5	0.3	0.6	3.9	1.0	0.6	2.5	0.5	0.2	1.5	0.5	3.6	n.d.	0.9	0.8	0.3	0.5	1.2	0.5	n.d.	0.6
F-5/F-4	0.8	2.5	2.4	4.6	1.0	1.5	0.5	0.2	0.7	n.a.	1.1	0.6	3.4	0.9	0.07	9.0	0.2	2.6	n.d.	1.1	n.a.	1.0	0.5	1.6	0.5	n.d.	n.d.
G-2/G-1	0.5	n.d.	1.1	2.3	0.5	1.6	0.2	0.1	0.06	n.a.	0.8	0.3	1.3	0.8	1.5	9.4	0.4	2.6	n.d.	0.4	n.a.	0.1	0.3	0.6	0.4	n.d.	n.d.
F-3/F-2	0.7	2.8	2.5	5.5	0.8	1.2	0.4	0.1	0.4	4.6	0.9	0.3	0.9	0.3	0.03	2.1	0.06	1.8	n.d.	0.4	0.7	0.5	0.5	0.9	0.3	n.d.	0.6
H-2/H-1	1.0	3.4	1.1	0.7	0.6	3.2	0.3	0.3	0.4	n.a.	0.4	0.4	4.6	0.4	0.2	9.9	0.4	3.7	n.d.	0.5	n.a.	0.8	0.3	1.1	0.6	n.d.	n.d.
I-2/I-1	1.3	0.9	0.5	0.8	1.0	5.8	0.7	0.7	0.9	n.a.	0.8	1.0	13.3	1.5	0.2	8.5	0.9	11.6	n.d.	1.0	n.a.	0.9	0.8	2.7	0.8	n.d.	n.d.
D-2/D-1	1.8	0.9	0.6	0.5	1.0	9.0	0.8	0.8	0.7	n.a.	0.9	1.1	n.d.	1.6	0.03	2.2	1.5	3.5	n.d.	1.0	n.a.	1.2	0.9	2.0	1.0	n.d.	n.d.

Correlation coefficient

	Sr	Cs	Na	K	Mg	Ca	Al	Fe	Ba	Rb	Ti	Mn	Zn	Cr	Cu	Pb	Ni	As	Cd	Co	Ga	La	V	Mo	Y	Be	U
⁹⁰ Sr	0.85	-0.93	-0.07	-0.09	0.81	0.65	0.95	0.76	0.86	n.a.	0.23	0.84	0.29	0.41	-0.87	-0.67	0.58	0.34	0.60	n.a.	0.72	0.84	0.86	0.73	n.d.	n.d.	n.d.
¹³⁷ Cs	-0.66	0.51	0.83	0.77	0.08	-0.73	-0.37	-0.74	-0.03	0.03	0.52	-0.52	-0.50	-0.52	0.23	0.34	-0.75	-0.48	0.03	0.41	-0.10	-0.55	-0.43	-0.63	n.d.	n.d.	

FA/BA concentration ratios were calculated from the content of metals in FA (fly ash) divided by the content in BA (bottom ash) in Table S1. "n.a." indicates "not available" because each of both of the concentrations in the FA and BA were not measured, and "n.d." indicates "not detected" because each of both of the concentrations in the FA and BA were under the detection limit. Correlation coefficients of the FA/BA concentration ratios of metals and radioactive species are also indicated.

Appendix 3. Metal concentrations in the leachate from Japanese standard batch leaching test, JLT-13 (L/S=10, 6 hours of leaching time) (unit: mg/L)

	pH	EC (mS/cm)	Sr	Cs	Na	K	Mg	Ca	Al	Fe	Ba	Rb	Ti	Mn	Zn	Cr	Cu	Pb	Ni	As	Cd	Co	Ga	La	V	Mo	Y	Be	U	
D-1	average	9.13	0.069	0.038	<0.0002	<0.6	<2	0.46	13.0	3.5	0.058	6.0E-03	n.a.	7.9E-03	4.4E-03	<0.0004	1.5E-03	<0.0001	<0.0005	<0.001	0.011	<0.004	<0.003	n.a.	<0.0002	0.063	7.7E-03	<0.0002	<0.004	<0.002
	RSD (%)	1	9	15	-	-	14	11	21	103	35	-	-	112	-	-	-	-	-	11	-	-	-	-	16	17	-	-	-	
D-2	average	11.1	8.6	5.5	0.0018	7.0	10.4	0.059	1602	<0.05	<0.01	1.3	n.a.	<0.005	<0.001	0.019	0.052	<0.001	0.028	<0.001	<0.004	<0.003	n.a.	<0.0002	<0.002	0.049	<0.0002	<0.004	<0.002	
	RSD (%)	1	0.6	0.2	2	1	2	87	0.5	-	2	-	-	19	1	-	51	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1	-	-	
F-4	average	11.1	2.8	0.35	0.0013	191	70.4	0.040	186	49	<0.01	0.54	n.a.	<0.005	<0.001	0.16	0.043	5.3E-03	1.9	<0.001	<0.004	<0.003	n.a.	<0.0002	5.2E-03	0.027	<0.0002	<0.004	<0.002	
	RSD (%)	0.8	7	19	11	15	8	-	12	32	-	28	-	55	91	62	154	-	-	-	-	-	-	-	45	48	-	-	-	
F-5	average	10.7	43.1	2.9	0.27	5519	7064	0.13	1450	0.081	0.010	0.79	n.a.	<0.005	<0.001	1.4	1.3	0.019	1.4	<0.001	1.9E-03	<0.004	<0.003	n.a.	<0.0002	<0.002	0.53	<0.0002	<0.004	<0.002
	RSD (%)	0.5	0.4	0.5	0.9	0.6	0.7	26	0.4	3	-	1	-	4	0.8	14	4	-	9	-	-	-	-	-	-	0.7	-	-	-	
G-1	average	11.2	4.9	0.86	0.0014	421	143.5	0.59	236	7.3	0.28	2.2	n.a.	0.056	0.015	0.070	0.85	0.027	0.030	<0.001	<0.004	<0.003	n.a.	4.3E-03	2.2E-03	0.10	<0.0002	<0.004	<0.002	
	RSD (%)	0.8	5.2	35	7	7	5	-	23	75	-	38	-	80	26	68	-	68	-	-	-	-	-	-	12	14	-	-	-	
G-2	average	12.0	52.2	7.4	0.13	3927	3801	0.062	8559	<0.05	0.046	3.4	n.a.	<0.005	<0.001	1.1	1.1	0.58	17	3.4E-03	2.6E-03	6.0E-03	<0.003	n.a.	<0.0002	<0.002	0.35	<0.0002	<0.004	<0.002
	RSD (%)	0.3	0.8	0.5	0.2	0.4	2	0.4	2	5	6	-	-	42	3	3	0.4	2	7	-	-	-	-	-	2	-	-	-	-	
H-1	average	11.1	1.6	0.50	0.0023	58.3	33.8	0.16	240	4.6	<0.01	0.038	n.a.	<0.005	<0.001	<0.0004	0.028	0.3	3.0E-03	<0.001	<0.004	<0.003	n.a.	<0.0002	0.011	0.018	<0.0002	<0.004	<0.002	
	RSD (%)	0.4	3	4	10	4	4	3	4	8	6.2	-	-	8	5	98	-	-	-	-	-	-	-	-	6	4	-	-	-	
H-2	average	12.4	34.2	7.0	0.39	1265	831	0.32	6157	<0.05	0.031	1.1	n.a.	<0.005	<0.001	1.1	0.14	0.023	24	2.2E-03	2.8E-03	<0.004	<0.003	n.a.	<0.0002	<0.002	0.087	<0.0002	<0.004	<0.002
	RSD (%)	0.4	0.3	0.9	1	2	1	2	2	9	1	-	-	3	4	0.9	1	0.7	4	-	-	-	-	-	-	2	-	-	-	
I-1	average	10.3	0.32	0.072	<0.0002	1.6	2.5	0.15	48.4	4.7	0.040	0.016	n.a.	<0.005	2.0E-03	2.5E-03	0.011	6.9E-03	3.9E-03	<0.001	0.01	<0.004	<0.003	n.a.	<0.0002	0.021	9.0E-03	<0.0002	<0.004	<0.002
	RSD (%)	0.5	7	5	-	8	2	11	7	6	27	16	-	20	28	20	11	11	4	-	-	-	-	-	4	11	-	-	-	
I-2	average	11.2	23.6	6.9	0.15	202	583	0.34	5521	<0.05	0.025	2	n.a.	<0.005	<0.001	2.1	0.038	0.026	10	2.0E-03	5.1E-03	<0.004	<0.003	n.a.	<0.0002	<0.002	0.16	<0.0002	<0.004	<0.002
	RSD (%)	0.9	1	0.4	1	2	4	2	2	2	2	-	-	1	4	0.8	2	5	4	-	-	-	-	-	1	-	-	-	-	

The concentration values were the arithmetic mean from 3 leaching tests and RSD (%) refers to the relative standard deviation obtained from the corrected standard deviation of 3 measurements divided by the mean values. "n.a." refers to not available, and "n.d." refers to not detected because the value was under the detection limit. In the cases that the number of concentration values which exceeded the detection limit was no more than 1, RSD (%) were not available and the corresponding cells were vacant.

Appendix 4. Leachability of metal from incineration or melting residues (unit: %)

	Sr	Cs	Na	K	Mg	Ca	Al	Fe	Ba	Rb	Ti	Mn	Zn	Cr	Cu	Pb	Ni	As	Cd	Co	Ga	La	V	Mo	Y	Be	U
D-1	0.22	n.d.	n.d.	n.d.	0.061	0.52	0.046	1.7E-03	0.011	n.a.	2.6E-03	3.9E-03	n.d.	0.056	n.d.	n.d.	n.d.	2.3	n.d.	n.d.	n.a.	n.d.	0.73	5.0	n.d.	n.d.	n.d.
	RSD (%)	n.d.	n.d.	n.d.	14	11	21	102	34	-	-	111	-	-	-	-	-	11	-	-	-	-	14	5	-	-	-
D-2	19	0.43	0.97	0.59	7.8E-03	7.1	n.d.	n.d.	3.3	n.a.	n.d.	n.d.	0.058	1.2	n.d.	0.46	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.a.	n.d.	n.d.	16	n.d.	n.d.	n.d.
	RSD (%)	0.2	2	1	2	87	0.5	-	2	-	-	-	19	1	-	51	-	-	-	-	-	-	-	1	-	-	-
F-4	1.2	0.90	5.8	2.9	n.d.	1.6	0.75	n.d.	0.60	n.a.	n.d.	n.d.	0.062	0.11	2.2E-03	6.8	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.a.	n.d.	0.42	2.4	n.d.	n.d.	n.d.
	RSD (%)	20	12	15	9	-	14	34	22	-	-	62	92	125	154	-	-	-	-	-	-	-	45	59	-	-	-
F-5	12	77	70	62	9.9E-03	8.0	2.6E-03	1.2E-03	1.2	n.a.	n.d.	n.d.	0.15	4.0	0.018	0.56	n.d.	0.051	n.d.	n.d.	n.a.	n.d.	n.d.	29	n.d.	n.d.	n.d.
	RSD (%)	0.5	0.9	0.6	0.7	26	0.4	3	1	-	-	4	0.8	14	4	-	-	9	-	-	-	-	-	1	-	-	-
G-1	1.9	n.d.	9.1	5.5	0.038	1.8	0.071	4.7E-03	0.24	n.a.	0.011	0.018	0.016	1.3	0.041	0.30	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.a.	0.024	0.045	4.7	n.d.	n.d.	n.d.
	RSD (%)	35	-	7	6	-	25	77	41	-	-	77	29	-	73	-	-	-	-	-	-	-	12	13	-	-	-
G-2	36	58	76	65	8.2E-03	40	n.d.	7.3E-03	6.0	n.a.	n.d.	n.d.	1.6	2.0	0.51	18	0.15	0.15	0.057	n.d.	n.a.	n.d.	n.d.	28	n.d.	n.d.	n.d.
	RSD (%)	3	3	3	3	1	-	3	6	-	-	6	2	5	0.5	12	5	-	-	-	-	-	-	1	-	-	-
H-1	2.1	1.5	2.7	2.0	0.016	2.7	0.069	n.d.	0.085	n.a.	n.d.	n.d.	n.d.	0.21	0.37	0.011	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.a.	n.d.	0.13	4.6	n.d.	n.d.	n.d.
	RSD (%)	2	14	3	0.8	2	1	-	3	-	-	-	-	11	28	114	-	-	-	-	-	-	6	3	-	-	-
H-2	30	76	52	67	0.054	22	n.d.	2.1E-03	6.4	n.a.	n.d.	n.d.	0.33	2.3	0.11	8.2	0.17	0.057	n.d.	n.d.	n.a.	n.d.	n.d.	20	n.d.	n.d.	n.d.
	RSD (%)	3	1	4	0.9	3	2	-	10	2	-	3	12	3	2	1	2	-	-	-	-	-	-	6	-	-	-
I-1	0.32	n.d.	0.086	0.073	0.016	1.4	0.073	1.2E-03	0.031	n.a.	n.d.	2.3E-03	0.010	0.18	9.9E-03	0.056	n.d.	0.98	n.d.	n.d.	n.a.	n.d.	0.24	3.8	n.d.	n.d.	n.d.
	RSD (%)	5	-	11	1	10	6.4	5.3	26	15	-	21	31	27	19	49	-	3	-	-	-	-	8.3	13	-	-	-
I-2	24	48	21	n.d.	0.037	28	n.d.	1.0E-03	5.3	n.a.	n.d.	n.d.	0.57	0.41	0.16	14	0.087	0.045	n.d.	n.d.	n.a.	n.d.	n.d.	24	n.d.	n.d.	n.d.
	RSD (%)	0.4	1	1	-	4	2	-	2	-	-	1	4	4	1	2	5	4	-	-	-	-	-	1	-	-	-

Correlation coefficient

	Sr	Cs	Na	K	Mg	Ca	Al	Fe	Ba	Rb	Ti	Mn	Zn	Cr	Cu	Pb	Ni	As	Cd	Co	Ga	La	V	Mo	Y	Be	U
Sr	1.00	0.63	0.70	0.78	-0.12	0.93	-0.27	0.42	0.97	-	-	-	0.79	0.48	0.53	0.77	0.77	-0.74	-	-	-	-	-0.74	0.84	-	-	-
¹³⁷ Cs	0.70	0.96	0.86	0.96	0.39	0.61	-0.33	-0.07	0.67	-	-	-	0.40	0.75	0.10	0.45	0.80	-0.81	-	-	-	-	-0.94	0.76	-	-	-
Cs	0.61	1.00	0.90	0.98	0.41	0.60	-0.57	-0.22	0.57	-	-	-	0.36	0.79	-0.10	0.39	0.87	-0.23	-	-	-	-	1.00	0.83	-	-	-

Leachabilities in this Table are the arithmetic mean of 3 leachability values from repeated leaching tests. Leachability from each leaching test was calculated from the concentration of metals in the leachate and content in the residues. RSD (%) were also evaluated from 3 leachability values. "n.a." refers to "not available" because each or both of the concentrations in the leachate and residue were not measured, and "n.d." refers to "not detected" because each or both of the concentrations in the leachate and residue were under the detection limit. In the cases that the number of leachability was no more than 1, RSD (%) were not available and the corresponding cells were vacant.

