

分担研究報告書 1

火葬場からの
ダイオキシン類排出実態調査

分担研究者
大下和徹（京都大学）

厚生労働科学研究費補助金（厚生労働科学特別研究事業）
分担研究報告書
火葬場からのダイオキシン類排出実態調査

分担研究者 大下和徹 京都大学大学院工学研究科都市環境工学専攻 助教

研究要旨

わが国全体のダイオキシン類排出量は減少傾向にあるが、10年前に求めた排出原単位を用いている火葬炉からの排出量はむしろ増加傾向を示している。「ダイオキシン類排出抑制ガイドライン」の効果を検証し、最新の排出量を見積るためには、再度実態調査を実施し排出原単位の見直しが必要である。また、現在では燃焼過程から排出される臭素化ダイオキシン類が新たな問題とされてきている。

そこで本研究では、対象施設として代表的な4箇所の火葬炉を選定し、塩素化ダイオキシン類および臭素化ダイオキシン類について測定を行い、現状のわが国の火葬場からのダイオキシン類排出量を見直すとともに、臭素化ダイオキシン類の寄与を算定することを目的とした。

火葬炉における排ガス中ダイオキシン類の濃度は、毒性等量の算術平均で $0.42\text{ng-TEQ}/\text{m}^3_{\text{N}}$ であった。またデータは全て排出抑制ガイドラインにおける新設炉、既設炉における指針値を下回っていた。また、臭素化ダイオキシン類は、1施設で $0.031\sim 0.045\text{ng}/\text{m}^3_{\text{N}}$ であり、同施設の塩素化ダイオキシン類に比較して $1/1000\sim 1/200$ 程度の値であった他は全て検出下限値以下であった。したがって臭素化ダイオキシン類の寄与は十分に低いものと考えられた。

本研究の調査結果から、ダイオキシン類の排出原単位の算術平均値は $1,000\text{ng-TEQ}/\text{人}$ と算出され、10年前の調査結果に比較して、約 $1/5$ となっており「ダイオキシン類排出抑制ガイドライン」による効果がうかがえた。

また、平成17年度の火葬炉からの排出インベントリーを試算した結果、現在の報告値： $2.4\sim 5.3\text{g-TEQ}/\text{年}$ に比較して、 $0.13\sim 1.1\text{g-TEQ}/\text{年}$ まで低減されている結果となった。また将来予測では、死亡者数が増加したとしても、2020年で $0.17\sim 1.4\text{ng-TEQ}/\text{年}$ 、2040年で $0.20\sim 1.7\text{ng-TEQ}/\text{年}$ 程度までの増加に抑えられると試算された。今後、より多くの火葬場での調査を行って、排出インベントリーの精度を高める必要がある。

A. 研究目的

わが国の火葬率は、平成18年度で約99.7%であり¹⁾、かつ死亡人口が年々増加していることから²⁾、火葬数は増大傾向にある。火葬場から排出される排ガスや集じん灰、残骨灰等は、宗教上の観点から大気汚染防止法や廃棄物処理法などの対象外であるが、安全・安心な火葬を続けていくためには、火葬炉から排出される有害物質に関する実態調査およびその排出抑制対策が必要となる。

従来、国内外を問わず、火葬場から排出される排ガス、集じん灰や残骨灰等の実態についてはほとんど調査されてこなかったが、約10年前にダイオキシン類が大きな社会問題となった際、平成9・10年度厚生科学研究事業において、主任研究者らは、火葬場から排出される塩素化ダイオキシン類の実態調査を行った^{3)、4)}。これらの調査では、全国の火葬場から施設規模、建設および改造年代、炉構造、排ガス処理方式、使用燃料などを考慮して27施設を選定し、ダイオキシン類の排出濃度を測定し実態を明らかにした。その結果、火葬炉排ガス中ダイオキシン類の酸素12%換算濃度の毒性等量は0.074~29.2ng-TEQ/m³_Nの範囲で、毒性等量の算術平均値は2.9ng-TEQ/m³_Nであることを示し、また、排出原単位として、1回の火葬において排出されるダイオキシン類の量（算術平均値4,800ng-TEQ/人）を明らかにし、これら調査結果および統計値から火葬炉からのダイオキシン類排出量を算定した⁴⁾。これらにより、平成12年には火葬炉からの「ダイオキシン類排出抑制ガイドライン」⁹⁾が定められたうえ、排出原単位は、日本におけるダイオキシン類の排出インベントリーの算出に用いられている⁶⁾。

「ダイオキシン類対策特別措置法」の効果によってわが国全体のダイオキシン類排出量は急減したが、10年前に求めた排出原単位を用いている火葬炉からの排出量だけはむしろ増加傾向を示している⁶⁾。「ダイオキシン類排出抑制ガイドライン」の効果を検証し、最新の排出量を見積るためには、再度実態調査を実施し排出原単位の見直しが必要である。また、現在では燃焼過程から排出される臭素化ダイオキシン類が新たな問題とされており、副葬品や棺などが同時に燃焼される火葬炉において、臭素化物の寄与についても調査しておく必要がある。わが国における火葬炉からのダイオキシン類に関するデータは、主任研究者らが平成9年以前に独自に測定したデータ⁷⁾、および平成9・10年度に実施した厚生科学研究において測定したデータ^{3)、4)、8)、9)}があるのみであり、排出実態調査はそれ以外全くといってよいほど行われていない。平成12年度以降においてはガイドラインが設定されたため、それぞれの自治体などでは測定例があると推測されるが、公表されている報告例はほとんどない。海外においても、火葬炉から排出されるダイオキシン類に関する研究は非常に少ないが、ドイツ政府の大気汚染防止技術小委員会のワーキンググループではダイオキシン類の排出濃度が0.1~14.4ng-TEQ/m³_Nの範囲にあることが報告されている¹⁰⁾。この他にO.Hutzingerらが測定したデータとして8.0ng-TEQ/m³_Nが報告されるのみである¹¹⁾。以上のような背景の下で、本研究では、対象施設として代表的な4箇所の火葬炉を選定し、塩素化ダイオキシン類および臭素化ダイオキシン類について測定を行い、火葬場のデータを集めることによって、現状のわが国の火葬場からのダイオキシン類排出量を見直すとともに、臭素化ダイオキシン類の寄与を算定することを目的とした。

具体的には、排ガスについては排ガスサンプリングを行い、そのダイオキシン類、および臭素化ダイオキシン類濃度を調べ、得られた統計値を用いて、排出量、排出原単位を明らかにした。また同時にガスサンプル以外の残骨灰および集じん灰についても実態調査を行った。

B. 研究方法

1. 対象施設

本年度の調査対象とした火葬場は4施設であり、その火葬場の一覧を表B.1.1に示した。以下施設名については、施設A、施設B、施設C、および施設Dで記述する。4施設の全てが、主燃焼室1室に対し、再燃焼室1室を有しており、排気方式も排風機による強制排気方式であるが、施設D以外は、排気系列が2炉1系列となっている。集じん機は、施設A、および施設Bがバグフィルターであり、それぞれの後段に触媒装置、活性炭吸着設備を有している。施設C、施設Dではともに集じん機を有しない。

表 B. 1. 1 対象とした火葬炉と測定対象

火葬炉	施設A		施設B		施設C		施設D	
再燃焼炉	有		有		有		有	
主燃焼室：再燃焼室	1:1		1:1		1:1		1:1	
集じん機	バグフィルター		バグフィルター		なし		なし	
集じん機後段の排ガス処理	触媒装置		活性炭吸着設備		なし		なし	
排気方式（炉：系列）	強制（2:1）		強制（2:1）		強制（2:1）		強制（1:1）	
燃料	都市ガス 13A		都市ガス 13A		灯油		灯油	
実験番号	A-1	A-2	B-1	B-2	C-1	C-2	D-1	D-2
火葬日	2008/2/27	2008/2/27	2008/2/28	2008/2/28	2008/3/11	2008/3/12	2008/3/13	2008/3/17
火葬開始時間	11:17	13:30	11:02	13:11	12:57	13:20	12:35	13:37
火葬終了時間	11:59	14:16	12:10	14:12	14:08	14:26	14:05	14:48
火葬時間	0:42	0:46	1:08	1:01	1:11	1:06	1:30	1:11
火葬遺体数	1	1	1	1	1	1	1	1
年齢	81歳	83歳	69歳	87歳	84歳	65歳	74歳	90歳
性別	女性	男性	男性	男性	女性	男性	女性	女性

全国の火葬場調査を行ったデータは厚生省が、平成11年度にダイオキシン類排出抑制ガイドラインを作成時に、火葬実績のある1,558施設について行ったもの⁹⁾が最新であり、このデータにより本研究で選定した施設の位置づけを行った。着目した項目は、炉数、建設年度、主燃焼室に対する再燃焼室の比、集じん機の種類の4つである。図B.1.1に平成11年度による調査結果を円グラフとして示し、今回選定した火葬炉(施設A～D)が該当するカテゴリーを記した。

1施設あたりの炉数は、3～10基の間に位置し、中規模の施設を中心に選定した。炉の建設年度に関しては、比較的古いC、Dと新しいA、Bを同数選定した。またこれによ

り、集じん機の有無について2つにグループ分けされた。再燃焼炉と主燃焼炉の比率は、全て75%以上を占める1:1に相当するものを選定した。

したがって、本研究で選定した4施設は、建設年度、集じん機について2施設ずつの2グループに分けられ、他の位置づけとしては平均的な位置づけにあることが言える。

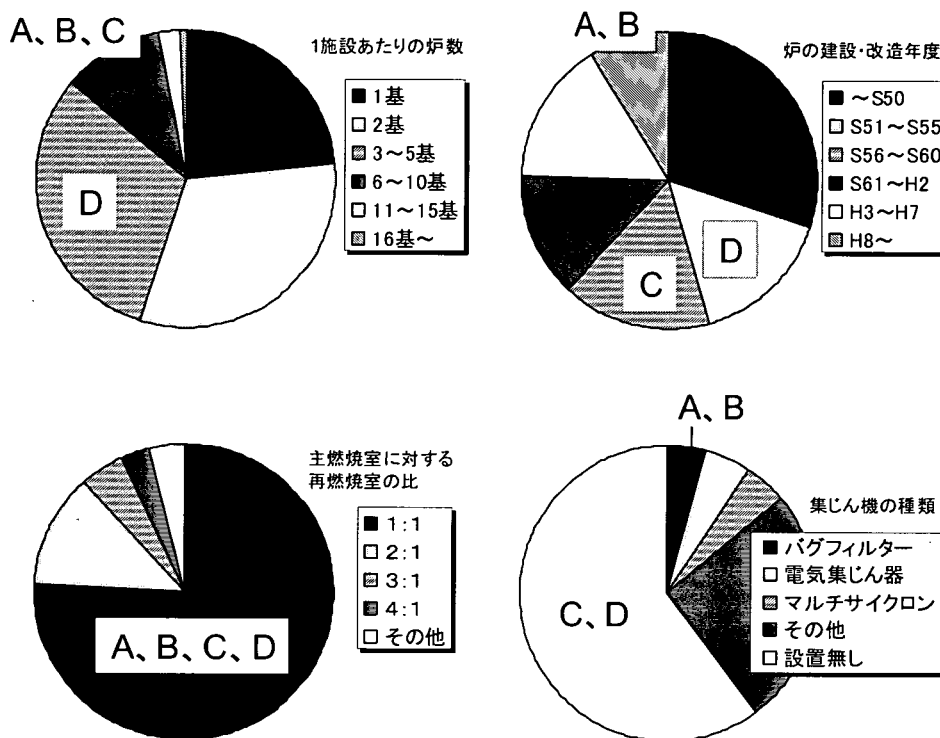


図 B. 1. 1 我が国の火葬炉の構成 (平成 11 年度厚生省調査より)

2. 測定項目および測定方法

4箇所の火葬場を対象に、1箇所の火葬場で2回の排ガスサンプリングを行った。排ガスサンプリングは基本的に同一日に実施したが、火葬場の火葬スケジュールや天候により、施設C、施設Dでは2日に分けて1回ずつサンプリングを行った(表B.1.1)。排ガスサンプリングは、全ての火葬場で排風機の後段、排気塔の前段にある測定孔に行った。

表 B. 2. 1 測定項目および方法

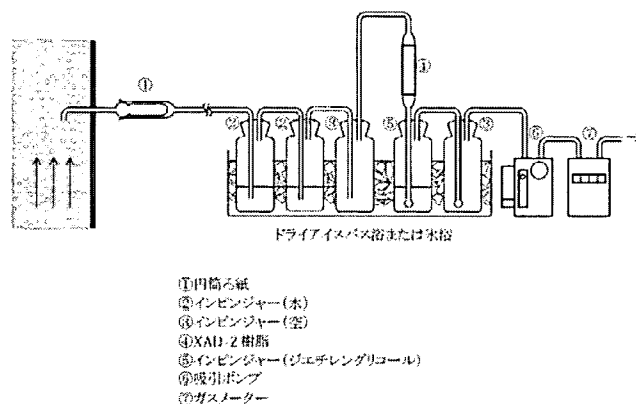
対象	測定項目	測定方法
排ガス	排ガス温度	JIS Z 8808 熱電対による連続測定
	排ガス流速	JIS Z 8808 ピトー管法
	水分	JIS Z 8808 吸収法
	ばいじん濃度	JIS Z 8808 円形ろ紙または円筒ろ紙法
	CO	JIS K 0098 赤外線吸収法(連続分析)
	O ₂	JIS K 0301 ジルコニア方式(連続分析)
	NO _x	JIS K 0104 化学発光方式(連続分析)
	ダイオキシン類	JIS K 0311 ガスクロマトグラフ-質量分析法
	臭素化ダイオキシン類	環境省暫定調査方法 ガスクロマトグラフ-質量分析法
残骨灰、集じん灰	ダイオキシン類	環境省告示80号に規定される方法
	臭素化ダイオキシン類	環境省暫定調査方法 ガスクロマトグラフ-質量分析法

測定項目、および測定方法の一覧を表B.2.1に示した。本研究においては、ダイオキシン類以外に、臭素化ダイオキシン類、ばいじん、一酸化炭素、酸素、窒素酸化物の濃度を測定した。排ガス中のダイオキシン類の測定は、JIS K 0311「排ガス中のダイオキシン類の測定方法」に準拠し行い、臭素化ダイオキシン類の測定は、環境省の暫定調査方法に準拠して行った¹²⁾。サンプリング時間は一工程の燃焼時間の内、主燃焼バーナの点火時から、消火時までとし統一した。施設Dを除く全ての火葬場では、排気系列が2炉1系列となっているが、2炉同時に稼働させず、どちらか一方の炉のみの稼働とした。一酸化炭素、酸素、窒素酸化物は連続分析計により測定した。また、あらかじめ、サンプリングポイントにおける排ガス中水分、流速を測定し、排ガス流量（湿り、乾き）を求めるとともに、排ガス温度を熱電対により測定した。

全ての火葬場で、2回目の排ガスサンプリング終了の約1時間後に、残骨灰（収骨後に残った灰の一部）を採取し、さらに、施設A、施設Bでは集じん灰（集じん機で捕集された灰）を採取した。これらの固体サンプル中のダイオキシン類濃度は環境省告示80号に基づいて行うとともに、臭素化ダイオキシン類の測定は、環境省の暫定調査方法に準拠して行った¹²⁾。

3. 排ガス採取方法

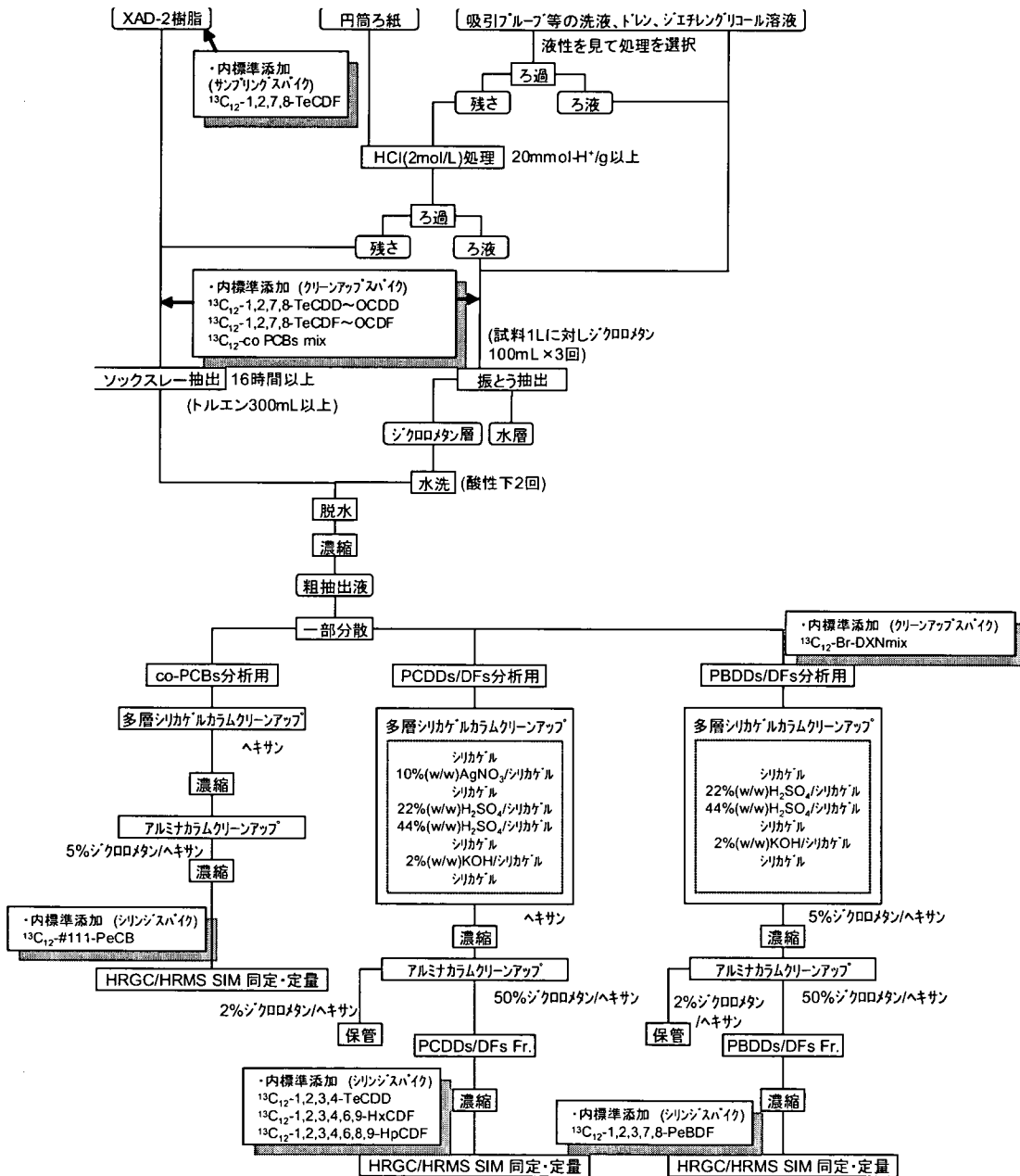
排ガス中のダイオキシン類、臭素化ダイオキシン類はフィルタ捕集部（円筒ろ紙）、液体捕集部（インピンジャー）と吸着捕集部（XAD-2樹脂）から構成される捕集装置により、各部をアルミホイルで遮光し、捕集した。捕集装置の概略図を図B.3.1に示した。試料採取後、それぞれの捕集液、捕集剤は密栓し、遮光した。なお採取器材、接続チューブは適量のメタノール、およびジクロロメタンで洗浄し、洗液とした。



図B.3.1 排ガス中ダイオキシン類、臭素化ダイオキシン類捕集装置

4. ダイオキシン類、臭素化ダイオキシン類の分析

前処理方法については、図B.4.1に排ガスサンプルにおけるフローを、図B.4.2に集じん灰、残骨灰におけるフローを示した。これらのフローにしたがって前処理を行い、GC-MS への注入方法はオンカラム注入法で行った。



図B.4.1 排ガス中ダイオキシン類、臭素化ダイオキシン類前処理方法のフローチャート

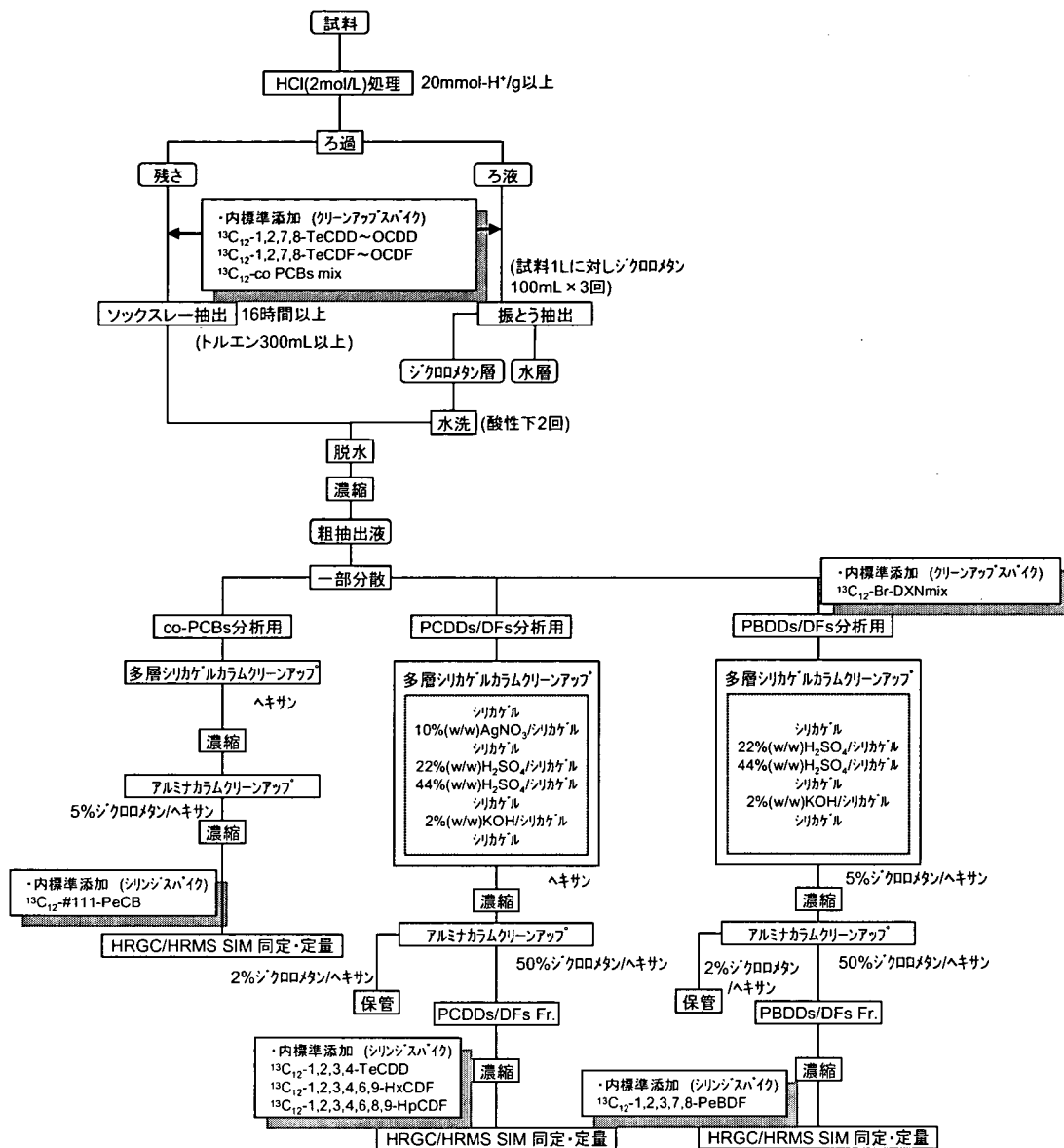


図 B. 4. 2 灰中ダイオキシン類、臭素化ダイオキシン類前処理方法のフローチャート

分析は、ガスクロマトグラフ質量分析計 (GC-MS) にてSIM(Select Ion Monitoring) 法により行った。ダイオキシン類のうち、表 B.4.1 に PCDDs/DFs の分析条件、表 B.4.2 に co-PCBs の分析条件を示し、表 B.4.3 に臭素化ダイオキシン類の分析条件を示した。

まず、ダイオキシン類、臭素化ダイオキシン類の同定、および定量は各 PCDDs/DFs、co-PCBs のイオン強度の強い M⁺、(M+2)⁺、(M+4)⁺ のイオン、あるいは PBDDs/DFs のイオン強度の強い (M+2)⁺、(M+4)⁺、(M+6)⁺ のイオン内、各塩化物、臭化物について測定対象物質と、¹³C₁₂-内標準物質についてそれぞれ2つをモニターし、全ての異性体の溶出する位置に相当するピークで、各2つのイオンの面積比率が標準物質とほぼ同じで、塩素原子、あるいは臭素原子の同位体存在比から推定されるイオン強度比に対して±15%以内、検出下限の3倍以下の濃度では±25%のものを PCDDs/DFs、co-PCBs、PBDDs/DFs とし

表 B. 4. 1 PCDDs/DFs の分析条件

分析機器名	Waters/MICROMASS社製 ガスクロマトグラフ-質量分析計		
	AutoSpec-Ultima	GC部	Agilent Technologies HP-6890
GC部操作条件			
分離カラム(1)	SP-2331(SUPERCO) fused silica capillary column 60m × 0.32mm(id), 0.20 μm		
カラム温度(1)	160°C	220°C	260°C
	(1min)	(6°C/min)	(0min) (3°C/min) (30min)
分離カラム(2)	DB-17HT(Agilent Technologies/J&W) fused capillary column 30m × 0.32mm(id), 0.15 μm		
カラム温度(2)	130°C	200°C	250°C → 300°C
	(1min)	(20°C/min)	(0min) (3°C/min) (30min) (5°C/min) (3min)
オンカラム注入法			
MS部操作条件			
イオン化方法	EI		
イオン化電圧	35~40V		
イオン化電流	500 μA		
加速電圧	8kV		
インターフェース温度	295°C		
イオン源温度	290°C		
分解能	M/ΔM>10,000(10% valley)		
設定質量数			
	M+	(M+2)+	(M+4)+
TeCDDs	319.8965	321.8936	
PeCDDs	353.8576	355.8546	357.8517
HxCDDs		389.8157	391.8127
HpCDDs		423.7768	425.7737
OCDD		457.7377	459.7348
TeCDFs	303.9016	305.8987	
PeCDFs		339.8597	341.8567
HxCDFs		373.8208	375.8178
HpCDFs	405.7847	407.7818	409.7789
OCDF		441.7428	443.7399
¹³ C ₁₂ -TeCDDs	331.9368	333.9339	
¹³ C ₁₂ -PeCDD	365.8978	367.8949	369.8919
¹³ C ₁₂ -HxCDDs		401.8559	403.853
¹³ C ₁₂ -HpCDD		435.8169	437.814
¹³ C ₁₂ -OCDD		469.7779	471.775
¹³ C ₁₂ -TeCDF	315.9419	317.9389	
¹³ C ₁₂ -PeCDFs		351.9	353.897
¹³ C ₁₂ -HxCDFs		385.861	387.858
¹³ C ₁₂ -HpCDFs		419.822	421.8191
¹³ C ₁₂ -OCDF		453.7831	455.7801

表 B. 4. 2 co-PCBs の分析条件

分析機器名(1)	Waters/MICROMASS社製 ガスクロマトグラフ-質量分析計		
	AutoSpec-Ultima	GC部	Agilent Technologies HP-6890
分析機器名(2)	日本電子 ガスクロマトグラフ-質量分析計		
	JMS-700(Mstation)	GC部	Agilent Technologies HP-6890
GC部操作条件			
分離カラム	HT8-PCB(SGE) fused silica capillary column 60m × 0.25mm(id)		
カラム温度	120°C	180°C	260°C → 300°C
	(1min)	(20°C/min)	(0min) (2°C/min) (0min) (5°C/min) (4min)
オンカラム注入法			
MS部操作条件			
イオン化方法	EI		
イオン化電圧	30~40V		
イオン化電流	500 μA		
加速電圧	8kV		
インターフェース温度	290~300°C		
イオン源温度	280~300°C		
分解能	M/ΔM>10,000(10% valley)		
設定質量数			
	M+	(M+2)+	(M+4)+
TeCBs	289.9224	291.9195	
PeCBs		325.8805	327.8776
HxCBs		359.8415	361.8386
HpCBs		393.8025	395.7996
¹³ C ₁₂ -TeCB	301.9626	303.9597	
¹³ C ₁₂ -PeCBs		337.9207	339.9178
¹³ C ₁₂ -HxCB		371.8817	373.8788
¹³ C ₁₂ -HpCB		405.8428	407.8398

表 B. 4. 3 PBDDs/DFs の分析条件

分析機器名	Waters/MICROMASS社製 ガスクロマトグラフ-質量分析計				
	AutoSpec-Ultima	GC部	Agilent Technologies HP-6890		
GC部操作条件					
分離カラム	DB-5MS(Agilent Technologies/J&W) fused silica capillary column				
	15m × 0.25mm(id), 0.10 μm				
カラム温度	120°C	→	240°C	→	300°C
	(1min)	(20°C/min)	(0min)	(10°C/min)	(13min)
オンカラム注入法					
MS部操作条件					
イオン化方法	EI				
イオン化電圧	35V				
イオン化電流	500 μA				
加速電圧	8kV				
インターフェース温度	330°C				
イオン源温度	300°C				
分解能	M/ΔM>10,000(10% valley)				
設定質量数	(M+2)+	(M+4)+	(M+6)+	(M+8)+	
TeBDDs	497.6926	499.6906	501.6887		
PeBDDs	575.6031	577.6011	579.5992		
HxBDDs		655.5117	657.5098		
HpBDDs			735.4203	737.4183	
OBDD			813.3308	815.3289	
TeBDFs	481.6976	483.6957	485.6938		
PeBDFs	559.6081	561.6062	563.6043		
HxBDFs		639.5168	641.5148		
HpBDFs			719.4253	721.4234	
OBDF			797.3359	799.3339	
¹³ C ₁₂ -TeBDDs	509.7328	511.7309	513.729		
¹³ C ₁₂ -PeBDD	587.6432	589.6412	591.6391		
¹³ C ₁₂ -HxBDDs		667.5517	669.5496		
¹³ C ₁₂ -OBDD			825.3707	827.3686	
¹³ C ₁₂ -TeBDF	493.7379	495.7360	497.7341		
¹³ C ₁₂ -PeBDFs	571.6484	573.6465	575.6446		

て同定した。これに加えて、PCDDs/DFsの2,3,7,8-塩素置換体異性体については対応する内標準物質とクロマトグラム上の保持時間が一致するものをPCDDs/DFsとして同定した。

同定した各PCDDs/DFs、co-PCBs、PBDDs/DFsを、検量線より求めた相対感度係数を用いて、内標準物質の添加量を基準に内標準法によりS/N 3以上のピークについてピーク面積で定量した。またPCDDs/Fsについては、カラムにより異性体の分離特性があるため、2種類のカラムを使用し、各異性体によりそれぞれ最適な分離が得られたカラムの方の値を採用した。同定、定量に用いた標準物質はWellington Laboratories製(関東化学株式会社調製品)で表B.4.4、表B.4.5に示した。また、本研究における試料の検出・定量下限値を表B.4.6に示した。

表 B. 4. 4 ダイオキシン類の分析に用いた標準物質

標準物質		
TeCDDs	2,3,7,8-TeCDD	
PeCDD	1,2,3,7,8-PeCDD	
HxCDDs	1,2,3,4,7,8-HxCDD	
	1,2,3,6,7,8-HxCDD	
	1,2,3,7,8,9-HxCDD	
HpCDD	1,2,3,4,6,7,8-HpCDD	
OCDD	OCDD	
TeCDFs	2,3,7,8-TeCDF	
PeCDFs	1,2,3,7,8-PeCDF	
	2,3,4,7,8-PeCDF	
HxCDFs	1,2,3,4,7,8-HxCDF	
	1,2,3,6,7,8-HxCDF	
	1,2,3,7,8,9-HxCDF	
	2,3,4,6,7,8-HxCDF	
HpCDFs	1,2,3,4,6,7,8-HpCDF	
	1,2,3,4,7,8,9-HpCDF	
OCDF	OCDF	
内標準物質		
¹³ C ₁₂ -TeCDDs	¹³ C ₁₂ -1,3,6,8-TeCDDs	アルミナラム分画確認用
	¹³ C ₁₂ -2,3,7,8-TeCDDs	
	¹³ C ₁₂ -1,2,3,4-TeCDDs	シリジンスパイク
¹³ C ₁₂ -PeCDDs	¹³ C ₁₂ -1,2,3,7,8-PeCDDs	
¹³ C ₁₂ -HxCDDs	¹³ C ₁₂ -1,2,3,4,7,8-HxCDDs	
	¹³ C ₁₂ -1,2,3,6,7,8-HxCDDs	
	¹³ C ₁₂ -1,2,3,7,8,9-HxCDDs	
¹³ C ₁₂ -HpCDDs	¹³ C ₁₂ -1,2,3,4,6,7,8-HpCDDs	
¹³ C ₁₂ -OCDD	¹³ C ₁₂ -OCDD	
¹³ C ₁₂ -TeCDFs	¹³ C ₁₂ -1,3,6,8-TeCDFs	アルミナラム分画確認用
	¹³ C ₁₂ -1,2,7,8-TeCDFs	サンプリングスパイク
	¹³ C ₁₂ -2,3,7,8-TeCDFs	
¹³ C ₁₂ -PeCDFs	¹³ C ₁₂ -1,2,3,7,8-PeCDFs	
	¹³ C ₁₂ -2,3,4,7,8-PeCDFs	
	¹³ C ₁₂ -HxCDFs	¹³ C ₁₂ -1,2,3,4,7,8-HxCDFs
¹³ C ₁₂ -HxCDFs	¹³ C ₁₂ -1,2,3,6,7,8-HxCDFs	
	¹³ C ₁₂ -1,2,3,4,6,9-HxCDFs	シリジンスパイク
	¹³ C ₁₂ -1,2,3,7,8,9-HxCDFs	
	¹³ C ₁₂ -2,3,4,6,7,8-HxCDFs	
¹³ C ₁₂ -HpCDFs	¹³ C ₁₂ -1,2,3,4,6,7,8-HpCDFs	
	¹³ C ₁₂ -1,2,3,4,6,8,9-HpCDFs	シリジンスパイク
	¹³ C ₁₂ -1,2,3,4,7,8,9-HpCDFs	
¹³ C ₁₂ -OCDF	¹³ C ₁₂ -OCDF	

標準物質		
#81	344'5-T4CB	※
#77	33'44'-T4CB	※
#105	233'44'-P5CB	※※
#114	2344'5-P5CB	※※
#118	23'44'5-P5CB	※※
#123	2'344'5-P5CB	※※
#126	33'44'5-P5CB	※
#156	233'44'5-H6CB	※※
#157	233'44'5'-H6CB	※※
#167	23'44'55'-H6CB	※※
#169	33'44'55'-H6CB	※
#170	22'344'55'-H7CB	※※※
#180	22'33'44'5-H7CB	※※※
#189	233'44'55'-H7CB	※※※

内標準物質		
#81	¹³ C ₁₂ -344'5-T4CB	※
#77	¹³ C ₁₂ -33'44'-T4CB	※
#105	¹³ C ₁₂ -233'44'-P5CB	※※
#114	¹³ C ₁₂ -2344'5-P5CB	※※
#118	¹³ C ₁₂ -23'44'5-P5CB	※※
#123	¹³ C ₁₂ -2'344'5-P5CB	※※
#126	¹³ C ₁₂ -33'44'5-P5CB	※
#156	¹³ C ₁₂ -233'44'5-H6CB	※※
#157	¹³ C ₁₂ -233'44'5'-H6CB	※※
#167	¹³ C ₁₂ -23'44'55'-H6CB	※※
#169	¹³ C ₁₂ -33'44'55'-H6CB	※
#170	¹³ C ₁₂ -22'344'55'-H7CB	※※※
#180	¹³ C ₁₂ -22'33'44'5-H7CB	※※※
#189	¹³ C ₁₂ -233'44'55'-H7CB	※※※
#111	¹³ C ₁₂ -233'55'-H5CB	シリジンスパイク
※	non-ortho-PCBs	
※※	mono-ortho-PCBs	
※※※	di-ortho-PCBs	

表 B. 4. 5 臭素化ダイオキシン類の分析に用いた標準物質

標準物質	
TeBDD	2,3,7,8-TeBDD
PeBDD	1,2,3,7,8-PeBDD
HxBDDs	1,2,3,4,7,8-HxBDD
	1,2,3,6,7,8-HxBDD
	1,2,3,7,8,9-HxBDD
OBDD	OBDD
TeBDF	2,3,7,8-TeBDF
PeBDFs	1,2,3,7,8-PeBDF
	2,3,4,7,8-PeBDF
HxBDF	1,2,3,4,7,8-HxBDF
HpBDF	1,2,3,4,6,7,8-HpBDF
OBDF	OBDF
内標準物質	
¹³ C ₁₂ -TeBDD	¹³ C ₁₂ -2,3,7,8-TeBDDs
¹³ C ₁₂ -PeBDD	¹³ C ₁₂ -1,2,3,7,8-PeBDDs
¹³ C ₁₂ -HxBDD	¹³ C ₁₂ -1,2,3,4,7,8-HxBDDs
¹³ C ₁₂ -HpBDD	¹³ C ₁₂ -1,2,3,4,6,7,8-HpBDDs
¹³ C ₁₂ -OBDD	¹³ C ₁₂ -OBDD
¹³ C ₁₂ -TeBDF	¹³ C ₁₂ -2,3,7,8-TeBDDs
¹³ C ₁₂ -PeBDFs	¹³ C ₁₂ -1,2,3,7,8-PeBDFs シリンスパイク
	¹³ C ₁₂ -2,3,4,7,8-PeBDFs

表 B. 4. 6 検出、定量限界

項目		排ガス:ng/m ³ _N		残骨灰、集じん灰:ng/g	
		定量下限値	検出下限値	定量下限値	検出下限値
		(実測濃度)	(実測濃度)	(実測濃度)	(実測濃度)
PCDDs/Fs	4-5塩素化物	0.008	0.002	0.0008	0.0002
	6-7塩素化物	0.02	0.005	0.002	0.0005
	8塩素化物	0.04	0.01	0.004	0.001
co-PCBs		0.02	0.005	0.002	0.0005
PBDDs/Fs	4臭素化物	0.08	0.02	0.004	0.0008
	5臭素化物	0.4	0.1	0.02	0.004
	6臭素化物	0.8	0.2	0.04	0.008
	7臭素化物	4	0.8	0.04	0.008
	8臭素化物	8	2	0.4	0.08

C. 研究結果、および考察

研究結果を示す前に、ダイオキシン類の毒性等価係数(TEF)の扱いについて触れる。ダイオキシン類対策特別措置法施行規則においては、毒性等価係数としてWHOが1998年に定めた毒性等価係数WHO1998-TEFが採用されており、本研究も、WHO1998-TEFを採用することとした。

ただし、2007年にWHOにより毒性等価係数の見直しがなされWHO2007-TEFが決定されており、日本においても、WHO2007-TEFを取り入れたダイオキシン類対策特別措置法施行規則の改正が2007年6月に行われ、改正された施行規則が、2008年4月から施行される予定である¹³⁾。したがって、本研究で得られたダイオキシン類の毒性換算濃度は、今後の研究においてWHO2007-TEFにより見直さなければならない。

調査結果の一覧を表C.1に示した。排ガス組成としてはばいじん濃度、CO(平均値)、NOx(平均値)についてはすべてO₂12%換算値で示した。ばいじん濃度は、集じん機が設置されている施設A、Bにおいては、0.03 g/m³_N以下であり低く保たれていたが、集じん機のない施設Cでは、0.14～0.17g/m³_Nであり、比較的高い値を示した。ただし、施設Dにおいても集じん機は設置されていなかったが、0.041～0.064 g/m³_Nであり、比較的低い値を示した。したがって、ばいじん濃度に関しては、集じん機がなくても炉構造などにより変化してくるものと推測された。またCOに関しては、施設Aでは30ppm以下であり、低く保たれていたが、施設B、施設C、および施設Dにおいては35～360ppmであり、各実験で大きく変動した。COに関しては、炉構造に加えて、御遺体の状況や燃焼状況が大きく影響するものと考えられる。NOxに関しては、すべての施設で50～130ppmであり大きな差は見られなかった。

また、ダイオキシン類、臭素化ダイオキシン類に関しては、実測濃度、毒性等量、同族体、異性体について、以下で詳細に考察する。

1. 排ガス中のダイオキシン類濃度

各施設における、ダイオキシン類濃度と、その毒性等量を図C.1.1に示す。排ガス中のダイオキシン類濃度は、酸素12%換算濃度で4.7～75ng/m³_N、毒性等量で0.00012～1.2ng-TEQ/m³_Nの範囲であった。

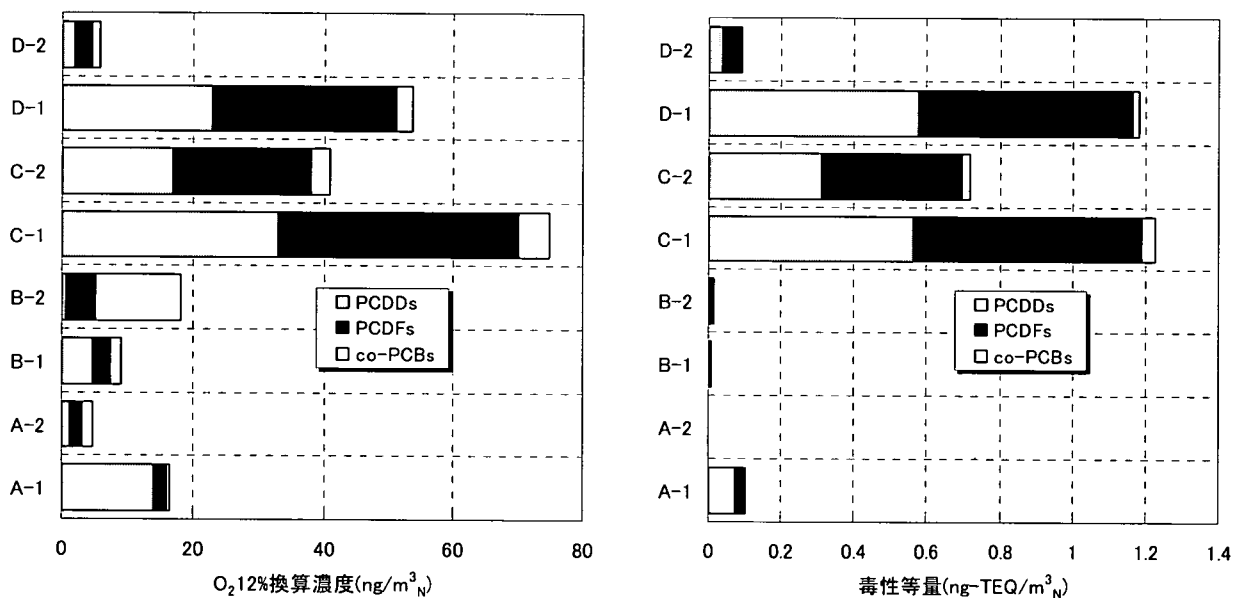
それぞれ算術平均では28ng/m³_N、0.42ng-TEQ/m³_N、中央値で17ng/m³_N、0.10ng-TEQ/m³_N、幾何平均で18ng/m³_N、0.056ng-TEQ/m³_Nとなった。最も高かったのは、施設Cの1回目で75ng/m³_N、1.2ng-TEQ/m³_N、最も低かったのは施設Aの2回目で4.7ng/m³_N、0.00012ng-TEQ/m³_Nであった。

2回の測定で、ともに約0.1ng-TEQ/m³_N以下で、低い値を示していたのは、施設Aと施

設Bであった。これらの施設は平成14年以降に運用開始され、比較的新しく、集じん機としてバグフィルターが設置された上に、施設Aでは触媒装置、施設Bでは活性炭吸着設備が設置されていることによるものと考えられた。平成12年に提示された排出抑制ガイドラインにおける新設炉における指針値は $1.0\text{ng-TEQ}/\text{m}^3_{\text{N}}$ であり⁹⁾、その値を大幅に下回る結果となった。一方、 $1.0\text{ng-TEQ}/\text{m}^3_{\text{N}}$ 以上の比較的高い値が現れたのは、施設Cと施設Dであり、これらの施設は比較的長く、昭和50年代に運用開始され、集じん機が設置されていなかった。ただし、排出抑制ガイドラインにおける既設炉における指針値は $5.0\text{ng-TEQ}/\text{m}^3_{\text{N}}$ であり⁹⁾、その値は大幅に下回っていた。

しかし、施設Dの2回目では、 $0.096\text{ng-TEQ}/\text{m}^3_{\text{N}}$ 程度に抑えられ、1回目と大きく濃度が異なる結果となっており、同じ炉構造であっても御遺体や副葬品により燃焼条件がかなり異なってくることを示唆された。

図C.1.1においてPCDDs、PCDFs、およびco-PCBsの濃度を比較すると、割合としてもばらつきが大きいですが、PCDDsとPCDFsがともに約40%ずつで、残りの20%をco-PCBsが占めるケースが多くみられた。



図C.1.1 排ガス中ダイオキシン類濃度

次に、各サンプルでのPCDDs、PCDFsの同族体分布を図C.1.2に示した。同族体の絶対量として、A-1、B-1でPCDDsの量が、PCDFsよりも高い傾向を示した以外は全て、PCDFsの方が高い傾向であった。また同族体分布の傾向としては、ほとんどの条件で似通った傾向がみられ、PCDFsについては4塩素化のフラン(TeCDFs)の濃度が最も高く、

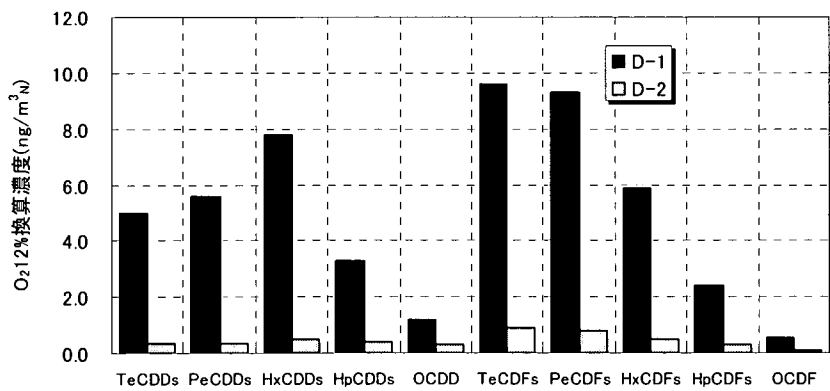
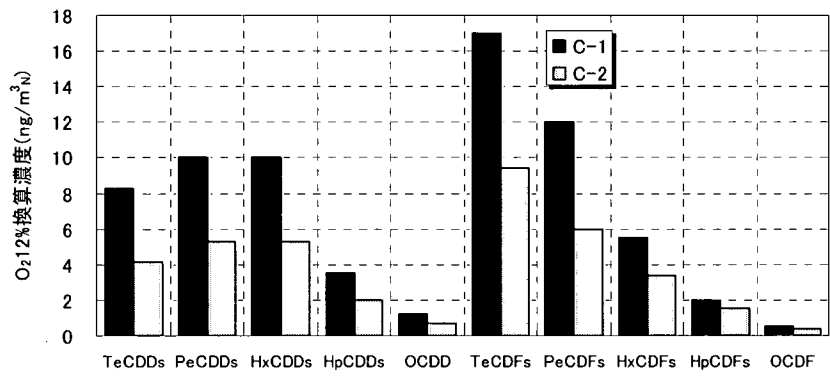
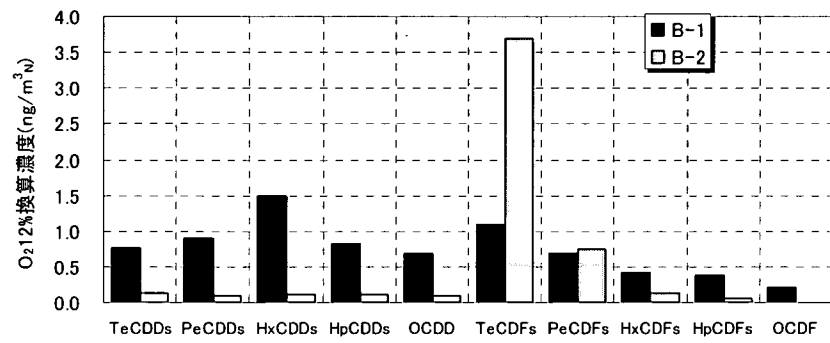
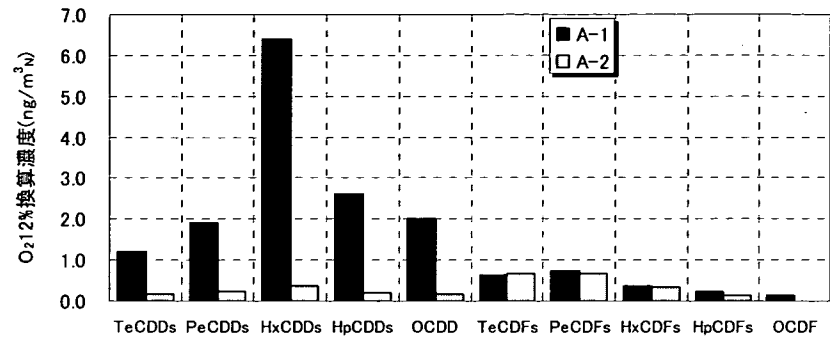


図 C. 1. 2 排ガス中 PCDDs/DFs 濃度の同族体分布

高塩素化物になるほど濃度が低くなる傾向が見られた。PCDDsについては、6塩素化物(HxCDDs)が最も多く、山型の分布を示した。これらは都市ごみ焼却排ガスでも良く見られるパターンであった。平成9・10年度厚生科学研究事業において実施された調査の結果と比較すると⁴⁾、PCDFsの傾向は同様であったが、PCDDsについては、今回と同様のパターンも認められるものの、4塩素化のダイオキシン(TeCDDs)が高く、高塩素化物ほど濃度が低くなるパターンの方が多く見られており、本研究との違いが何に由来するのかはわからなかった。

次にPCDDsとPCDFsの17種、およびco-PCBsの12種の異性体分布を、それぞれ図C.1.3、図C.1.4に示した。

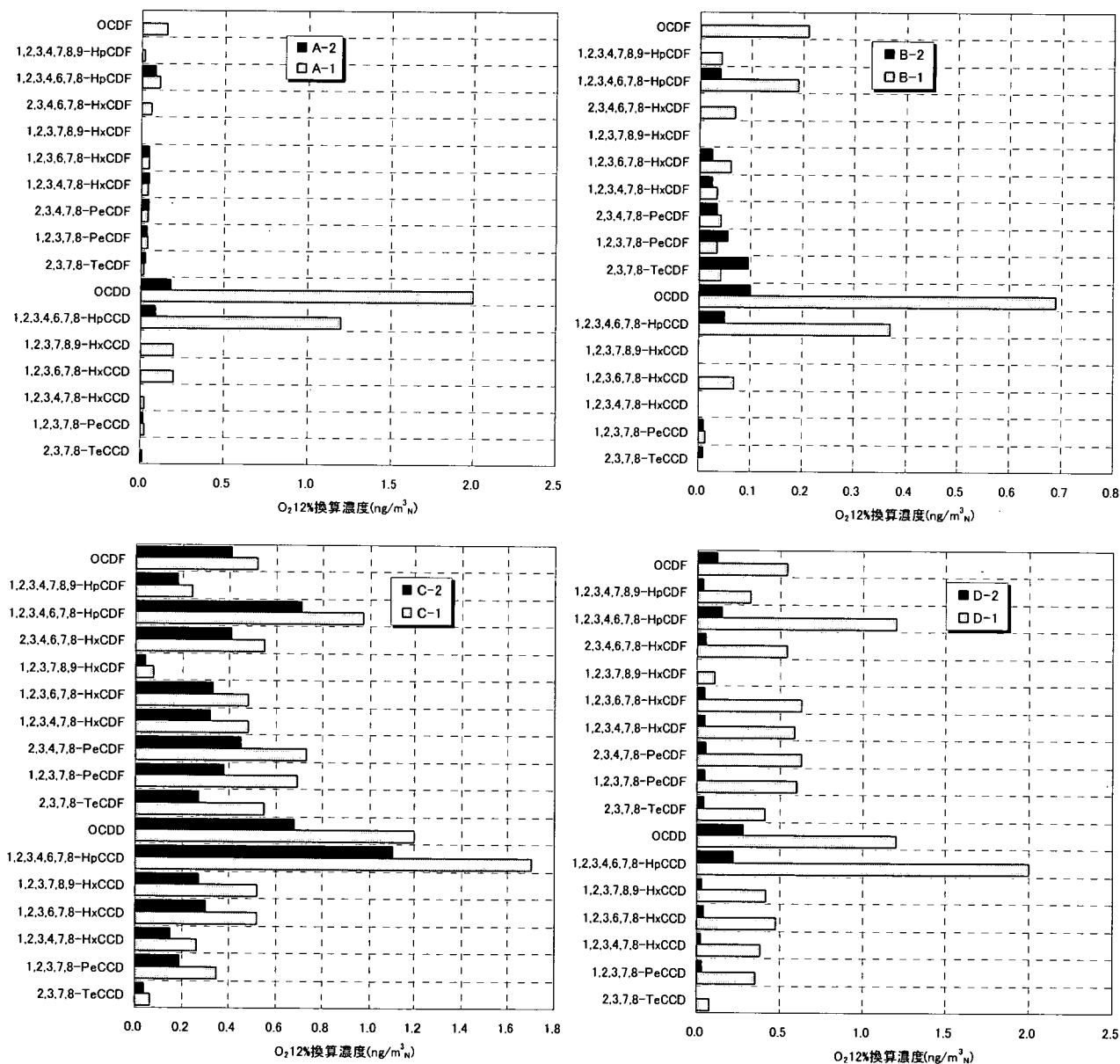


図 C. 1. 3 排ガス中PCDDs/DFs濃度の異性体分布

異性体分布の傾向であるが、PCDDsでは低塩素化物よりも、1,2,3,4,6,7,8-HpCDD、OCDDの濃度が高い傾向にあった。これは、平成9・10年度厚生科学研究事業における調査結果の傾向⁴⁾と同様であった。またPCDFsでも、PCDDsほど顕著ではないが、1,2,3,4,6,7,8-HpCDF、OCDF等の高塩素化物の濃度が高い傾向が見られた。また、施設A、施設Bは集じん機と触媒装置、あるいは活性炭吸着設備を有しているが、集じん機を有していない施設C、Dに比較して、6塩素化物以下の低塩素化物が低くなっている傾向が見られた。co-PCBsの異性体分布に関しては、全てのサンプルで、ノンオルト体であるT4CB(#77)、モノオルト体であるP5CB(#118)、P5CB(#105)が高い傾向が見られた。また集じん機を有しない施設C、Dにおいては、H6CB(#156)が比較的高くなる傾向が見られた。

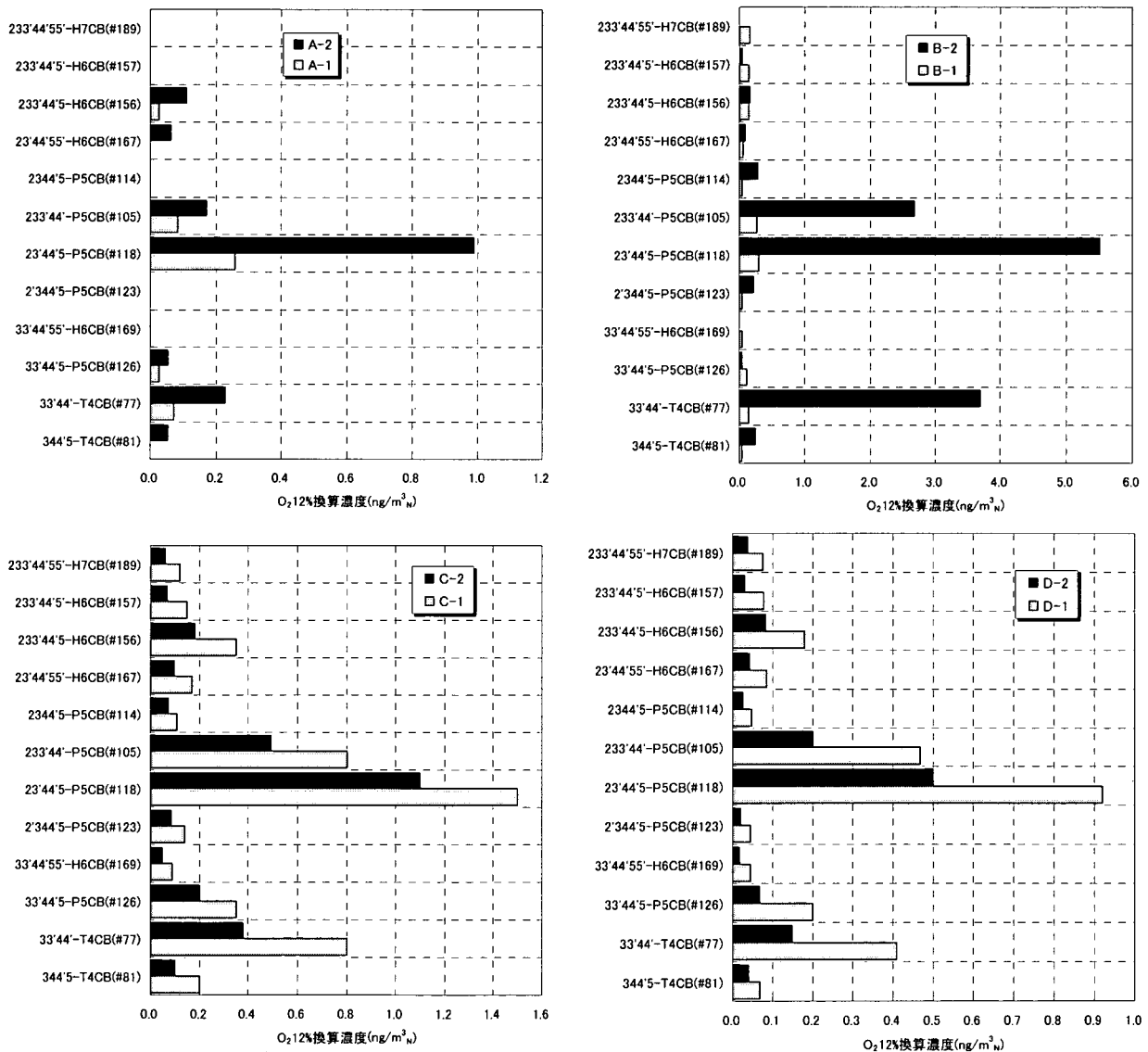


図 C. 1. 4 排ガス中 co-PCBs 濃度の異性体分布

2. 排ガス中の臭素化ダイオキシン類濃度

臭素化ダイオキシン類は、まず表 C.1 より、施設 D で $0.031 \sim 0.045 \text{ ng/m}^3_N$ で、同施設の塩素化ダイオキシン類に比較して $1/1000 \sim 1/200$ 程度の値であり、これらは、4 臭素化物である TeBDFs 由来であった。また、他施設では全て検出下限値以下 (N.D.) であった。江原らは都市ごみ焼却炉における排ガス中 PBDDs/DFs の濃度は、バグフィルタ入口で 1.9 ng/m^3_N 、出口で 0.021 ng/m^3_N 程度であったと報告しており¹⁴⁾、これらの値と比較すると、火葬炉排ガス中の PBDDs/DFs の濃度は、同程度あるいはそれ以下であると考えられる。表 B.4.6 より、塩素化ダイオキシン類よりも検出下限、定量下限値が $10 \sim 200$ 倍程度高くなっているため、結果的に N.D. とされていることにも依存すると考えられるが、全ての同族体で検出下限値と同レベルで検出されたとしても、実測濃度が最大 3.12 ng/m^3_N であり、塩素化ダイオキシン類に比較してその寄与は十分に低いものと考えられた。

3. 残骨灰、集じん灰中のダイオキシン類濃度

残骨灰は 4 施設全て、集じん灰は施設 A、施設 B において採取し、測定した。残骨灰中のダイオキシン類の濃度範囲は、実測濃度で $0.012 \sim 0.184 \text{ ng/g}$ 、毒性等量で $0.00000061 \sim 0.0038 \text{ ng-TEQ/g}$ であった。この値は非常に低いといえ、主燃焼室にて御遺体を完全燃焼せねばならないことから、最終的に残る残骨灰中のダイオキシン類濃度が低くなったものと考えられる。

次に、集じん灰は施設 A において、実測濃度で 530 ng/g 、毒性等量で 15 ng-TEQ/g であり、施設 B において実測濃度で 71 ng/g 、毒性等量で 1.6 ng-TEQ/g であった。

図 C.3.1 に平成 8 年度に厚生省が実施したごみ焼却施設の飛灰中ダイオキシン類毒性等量の度数分布¹⁵⁾を示し、今回の測定値を、対応する濃度範囲にプロットした。ただし、平

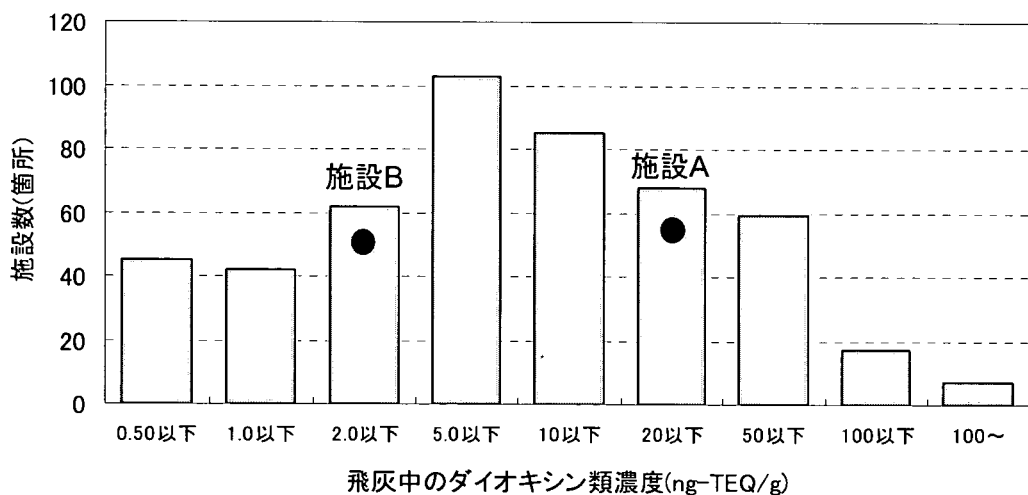
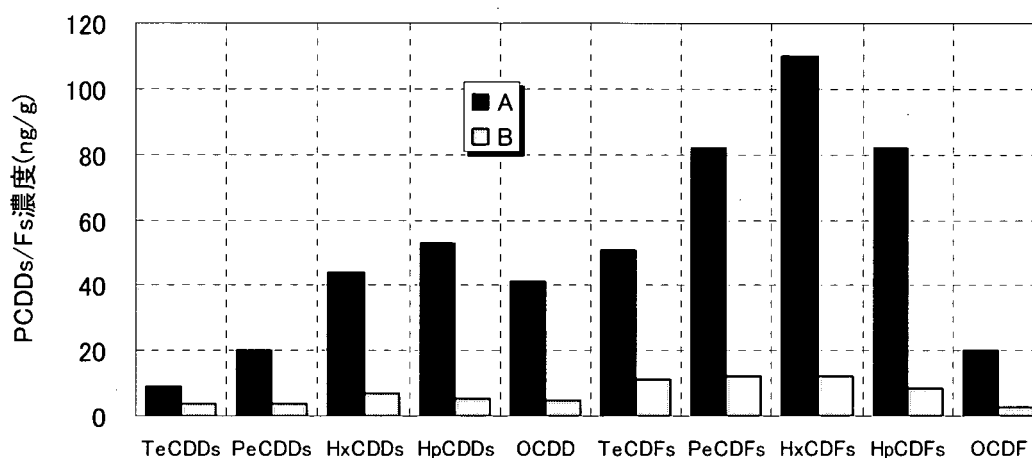


図 C. 3. 1 都市ごみ焼却焼却施設における飛灰中ダイオキシン類濃度度数分布と本研究の比較

成8年度の毒性等量はPCDDs/DFsのみを対象にしていることや、毒性等価係数として1988年にNATO/CCMSが提唱したI-TEFを用いており、本研究における毒性等量とは10～20%程度値が低く見積もられている。したがって厳密な比較はできないが、施設A、Bについては都市ごみ焼却飛灰の濃度範囲にあり、施設Bは比較的低い範囲、施設Aに関しては比較的高い濃度範囲に位置しているといえる。特に施設Aに関しては、CO濃度は非常に低いレベルで保たれていたことから、主燃焼炉、再燃焼炉での温度が高く、集じん機の温度も比較的高温で運転され、冷却、集じんの過程における再合成によるものと考えられた。

集じん灰中PCDDs/DFsの同族体分布を、図C.3.2に示した。施設A、Bともに、PCDFsの濃度がPCDDsよりも高く、PCDDsは6-7塩素化物をピークとする山型、PCDFsについては5-6塩素化物をピークとする山型の分布を示していた。図C.1.2の排ガス中の同族体



図C.3.2 集じん灰中PCDDs/DFs濃度の同族体分布

分布と比較すると、集じん灰中においては、排ガス中に比較して、施設A、BともにPCDDs、PCDFsのピークがわずかに高塩素側にシフトしている傾向が見られた。

集じん灰中のPCDDsとPCDFsの17種、およびco-PCBsの12種の異性体分布を図C.3.3に示した。A、Bの集じん灰はともに、PCDDs/DFsについては、1,2,3,4,6,7,8-HpCDD、OCDD、1,2,3,4,6,7,8-HpCDF、OCDFなどの高塩素化物が高く、この傾向は排ガス中の異性体分布の傾向と同様であった。また、co-PCBsに関しては、ノンオルト体であるT4CB(#77)、P5CB(#126)が高い値を示しており、排ガス中では濃度の高かったモノオルト体のP5CB(#118)、P5CB(#105)は低い値であった。ごみ焼却飛灰において、ダイオキシン類の*de novo*合成実験では、T4CB(#77)、P5CB(#126)が、P5CB(#118)よりも優先的に生成することが報告されており^{16), 17)}、本研究においても集じん灰中で*de novo*合成が生じている