

表C.2.7 各排ガス処理プロセスでのばいじん除去率(%)

	排ガス冷却器	バグフィルター	触媒装置 活性炭吸着設備
A		94<	—
B-1	-80	98<	—
B-2	-233		
C-1	-22	79	-39
C-2	17	90<	—

表C.2.8 各排ガス処理プロセスでのクロム除去率(%)

	排ガス冷却器	バグフィルター	触媒装置 活性炭吸着設備
A		75<	—
B-1	-363	95<	—
B-2	-1520		
C-1	—	—	—
C-2	—	—	—

“—”は、定量下限値の関係で、除去率が算出できない場合を指す。

斜線部分は前後のばいじんを測定していないため、除去率が算出できない場合を指す。

まず、表C.2.6において、各サンプリングポイントでのクロム濃度は、多くの箇所で、定量下限以下となり、触媒装置、および活性炭吸着設備前後でのクロムの挙動は、把握できなかった。バグフィルター前後での濃度変化としては、施設Aにおいて、 $0.20\text{mg}/\text{m}^3_{\text{N}}$ が、 $0.05\text{mg}/\text{m}^3_{\text{N}}$ 未満まで除去されており、表C.2.8から、少なくとも75%以上除去されていることが示された。施設Bでは、 $0.37\text{mg}/\text{m}^3_{\text{N}}$ が、 $0.02\text{mg}/\text{m}^3_{\text{N}}$ 未満まで除去されており、少なくとも95%以上除去されているといえる。施設Cにおいては、バグフィルター前のクロム濃度は $0.03\sim 0.05\text{mg}/\text{m}^3_{\text{N}}$ と低く、定量下限の関係から除去率は求められなかったが、施設A、施設Bと同様に高度に除去されているものと考えられる。

クロムに関しては、表C.2.6に示す、バグフィルター前後の温度域 $130\sim 196^{\circ}\text{C}$ において、そのほとんどが固体で存在すると推定されるため³²⁾、ばいじんに含まれていると考えられる。そのため、バグフィルターでは、ばいじんとともに高度除去されていることが示唆された。

また、施設Bにおいては、排ガス冷却器として熱交換器が採用されており、その前後における排ガス中のクロムを測定したが、再燃焼炉後のクロム濃度は、 $0.05\sim 0.08\text{mg}/\text{m}^3_{\text{N}}$ であり、バグフィルター前では、 $0.37\sim 0.81\text{mg}/\text{m}^3_{\text{N}}$ まで増加した。表C.2.8からこの部分の除去率は、1回目で-363%、2回目で-1520%であり、熱交換器部分でクロムが増加していることが示された。表C.2.7において、この部分でのばいじんの除去率をみると、-233～-80%となり、ばいじんも増加していた。この原因としては、次の3つの可能性が考えられる。①再燃焼炉出口では約 800°C の状態、気体で存在していた低沸点のNa等の元素が、温度低下に伴ってばいじん上に凝縮し増加した、②過去の火葬で、熱交換器部分に堆積したばいじんが、飛散し熱交換器後段にオーバーフローした。③熱交換器の材質の一部が剥離し、飛散した。

この場合、ばいじん中のクロム濃度が堆積分についても一定であると仮定すると、ばいじんの増加割合に比べ、クロムの増加割合は小さくなるか、ほぼ同じ値となるはずである。しかし現実には、熱交換器部分でのクロムの増加割合の方が高くなっていた。火葬炉にお

ける熱交換器の材質としては、主燃焼炉における棺桶を支持する架台と同様に、耐熱性に優れたステンレス鋼が主に使用されている。ステンレスには、12%以上のクロムが含まれることが知られている³³⁾。したがって、熱交換器部分でのクロムの増加には、過去に堆積したばいじんが飛散していることに加え、熱交換器部分材質のステンレス表面の一部が剥離し、排ガス処理後段に飛散し、集じん灰のクロム源の一部となっていることが主要因であると考えられた。

熱交換器は、その導入により排ガス処理が省スペースとなるが、ダイオキシン類が熱交換器部分で再合成されることが明らかになっており。それに加え、熱交換器が集じん灰へのクロムの供給源となっている可能性が示されたため、熱交換器の導入には注意する必要がある。

(4) 残骨灰、集じん灰中の水銀、および六価クロム

残骨灰、集じん灰は、施設 A~C の 3 施設全てにおいて採取し、評価試料とした。以下に灰のキャラクタリゼーション、および各元素の溶出量、含有量試験結果について述べる。水銀は残骨灰に関してはこれまでの調査結果から問題ないとされたため、本調査では集じん灰のみを対象とした。なお、土壤汚染対策法に基づいた環境省告示 19 号にて規定される I. 含有量試験、II. 含有量、III. 含有量基準は、それぞれ 1N 塩酸、あるいはアルカリ緩衝液による抽出試験、抽出試験による抽出量、抽出量に対する基準として定められているが、特に II. 含有量に関しては本来の全含有量とは異なり混同を避けるため、以下では 19 号含有量と記載する。

(a) 火葬灰のキャラクタリゼーション

火葬灰のキャラクタリゼーションとして、蛍光 X 線分析、ICP 発光分析、Hg の加熱気化分析の結果を、表 C.2.9 に示す。

表より残骨灰の主成分は、Ca、P、Na、Fe、Si、Al、Mg 等であった。基本的には骨の成分は主成分がヒドロキシアパタイト ($\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$)³⁴⁾ であることから、Ca、P の濃度がそれぞれ 13~35%、6~12% と高濃度に含まれていた。

また、集じん灰の主成分としては、Na、K 等のアルカリ金属、S、Cl 等、低沸点の塩類が多く含まれていた。また、Zn、Pb、Cd 等の重金属は、残骨灰よりも集じん灰に多く含まれていた。

Cr に関しては、施設 A~C の残骨灰で順に、646、1301、297mg/kg であり、施設 B、C の集じん灰で順に、3789mg/kg、1142mg/kg となり集じん灰に多く含まれる傾向であった。Hg に関しては、残骨灰には 0.44~1.17mg/kg であり低濃度であったが、集じん灰では、3.81~

11mg/kgと残骨灰の10倍程度高く、特に施設Cでは高い傾向にあった。

表 C.2.9 火葬灰の分析結果 (mg/kg)

	施設A		施設B		施設C		測定方法
	残骨灰	集じん灰	残骨灰	集じん灰	残骨灰	集じん灰	
O	478338	N.A.	432906	340236	439805	387187	XRF
Ca	139860	N.A.	269860	5401	347114	22636	XRF
Al	125687	N.A.	73291	2106	1439	9924	XRF
Si	80625	N.A.	8695	4490	6392	128719	XRF
P	63431	N.A.	116312	8555	121333	7017	XRF
Na	33030	N.A.	30221	134260	23209	77138	XRF
C	19194	N.A.	23269	37136	24411	46469	XRF
Mg	18753	N.A.	9014	785	4898	5511	XRF
K	14610	N.A.	15966	169934	7480	117780	XRF
Fe	11342	N.A.	10187	102917	2142	7464	ICP-AES
Ti	6830	N.A.	4341	1585	1791	4121	XRF
F	1947	N.A.	1579	N.D.	N.D.	N.D.	XRF
S	1771	N.A.	1668	60130	904	31373	XRF
Ni	977	N.A.	2024	2308	503	215	ICP-AES
Cr	646	N.A.	1301	3789	297	1142	ICP-AES
Ba	641	N.A.	423	N.D.	N.D.	N.D.	XRF
Sr	511	N.A.	158	36	127	113	XRF
Cl	423	N.A.	592	196431	825	145510	XRF
Mn	238	N.A.	240	1112	66	297	ICP-AES
Zn	87	N.A.	355	11396	152	5519	ICP-AES
Cu	54	N.A.	726	652	122	227	ICP-AES
Pb	<10	N.A.	47	1090	<10	283	ICP-AES
Cd	<10	N.A.	<10	137	<10	68	ICP-AES
Ag	N.D.	N.A.	N.D.	483	N.D.	276	XRF
Br	N.D.	N.A.	N.D.	479	N.D.	532	XRF
Mo	N.D.	N.A.	N.D.	214	N.D.	32	XRF
Rb	N.D.	N.A.	N.D.	229	N.D.	174	XRF
Sb	N.D.	N.A.	N.D.	742	N.D.	343	XRF
Hg	0.44	N.A.	0.74	3.81	1.17	11	加熱気化

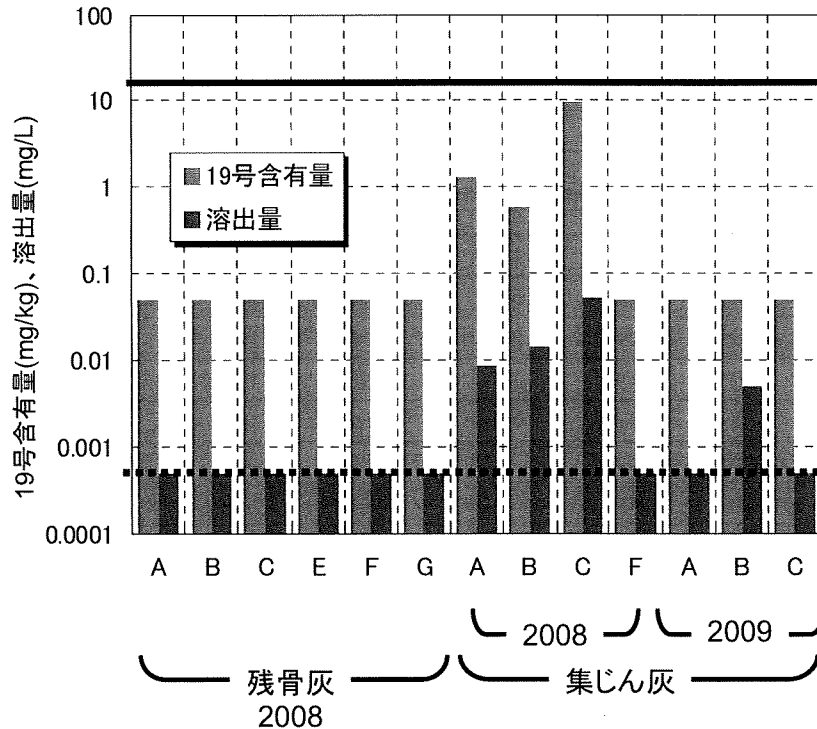
(b) 水銀

表 C.2.10、および図 C.2.3 にそれぞれのサンプルについて、水銀の溶出量、含有量試験の結果を 2008 調査結果¹²⁾ とともに示した。まず、残骨灰中の水銀の 19 号含有量は、2008 調査結果よりすべて 0.05mg/kg 未満であった。ただし、この含有量は土壌汚染対策法で規定されている方法によるもので 1N 塩酸により溶出する量を示している。集じん灰中の水銀

表 C.2.10 残骨灰、集じん灰中水銀の 19 号含有量、溶出量試験結果

	19号含有量(mg/kg)		溶出量(mg/L)	
	残骨灰	集じん灰	残骨灰	集じん灰
2008-A	<0.05	1.3	<0.0005	0.0085
2008-B	<0.05	0.57	<0.0005	0.014
2008-C	<0.05	9.7	<0.0005	0.053
2008-D	—	—	—	—
2008-E	<0.05	—	<0.0005	—
2008-F	<0.05	<0.05	<0.0005	<0.0005
2008-G	<0.05	—	<0.0005	—
2009-A	—	<0.05	—	<0.0005
2009-B	—	<0.05	—	0.005
2009-C	—	<0.05	—	<0.0005

※「土壤汚染対策法施行規則」環境省令第29号(平成14年)による
水銀の含有量基準:15mg/kg、溶出量基準:0.0005mg/L



※定量下限値以下の値は、定量下限値として図示。

※実線:19号含有量基準値、破線:溶出量基準値

図 C.2.3 残骨灰、集じん灰中水銀の 19 号含有量、溶出量試験結果

の 19 号含有量は、2008-F 集じん灰、2009-A~C 集じん灰では、0.05mg/kg 未満であったが、2008-A~C 集じん灰においては 0.57~9.7mg/kg であった。土壤汚染対策法における水銀の含有量基準は 15mg/kg であることから、残骨灰については全く問題ない。集じん灰について

は基準値以下であったが、施設によっては超える場合もありうる濃度であった。

溶出量についても、2008 調査結果から、残骨灰はすべて 0.0005mg/L 未満であり、土壤環境基準(0.0005mg/L)を下回っていたが、2008-A~C 集じん灰、および 2009-B 集じん灰において、0.005 ~ 0.053mg/L であり、土壤環境基準を上回っていた。特に 2008-C 集じん灰については最も溶出量が高く基準の 100 倍以上であった。これは 2008-C 集じん灰の水銀の 19 号含有量が最も高かったことから容易に推測できることであるが、2008-A~B 集じん灰、および 2009-B 集じん灰についてはこの傾向は見られず、19 号含有量と溶出量の間には必ずしも比例関係があるわけではなかった。

以上の傾向は、2007 調査において、残骨灰計 4 検体、集じん灰計 2 検体について調査した結果¹¹⁾と同様の結果であり、特に、集じん灰中水銀の溶出量が基準を大きく超えることがあり、注意が必要であることが確認された。

(c) 六価クロム

表 C.2.11、および図 C.2.4 にそれぞれのサンプルについて、六価クロムの溶出量、19 号含有量試験の結果を、2008 年調査結果¹²⁾とともに示した。まず、19 号含有量に関しては 16 検体中、2008-B 残骨灰、2008-B 集じん灰、2008-G 残骨灰、2009-C 残骨灰の 4 サンプルにおいて、19 号含有量基準(250mg/kg)を超過するケースが見られた。また全体として、施設により大きく濃度は異なるが、同じ施設においては集じん灰の方が高くなる傾向が見られた。

溶出量に関しては、2009-A 残骨灰を除く全ての残骨灰、集じん灰において、土壤汚染対策法により規定されている溶出量基準(0.05mg/L)の 1.4 ~ 1,900 倍の濃度が検出された。

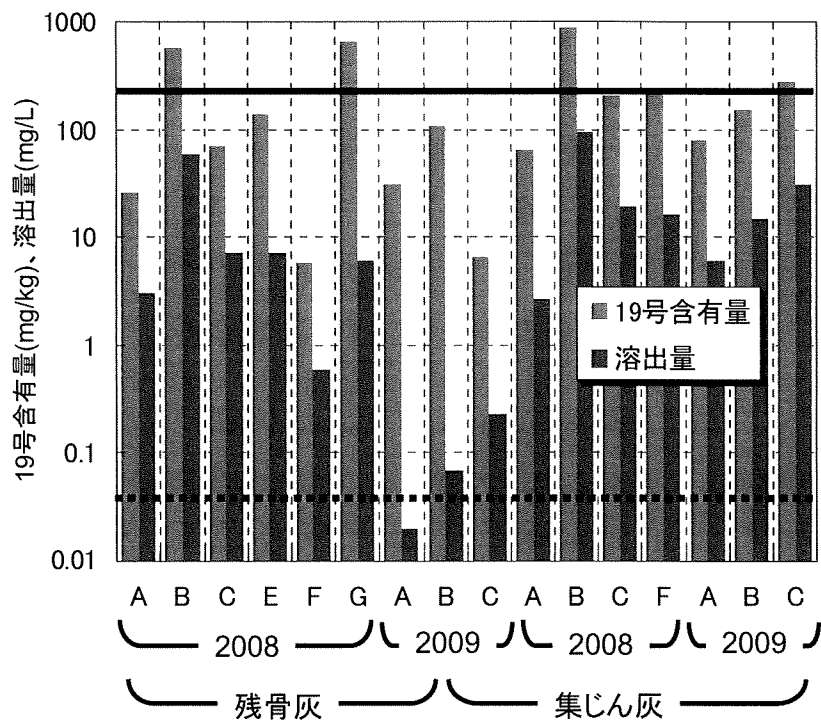
以上の傾向は、2007 調査において、残骨灰 4 検体、集じん灰 2 検体について調査した結果⁷⁾と同様の結果であり、六価クロムの観点からは、残骨灰、集じん灰について、その取扱に注意する必要性が有り、地下水汚染等を考慮すると、最終処分時においても留意しなければならないことが確認された。また、2009 の 6 つのサンプルで、溶出試験後の溶出液について pH を測定したが、残骨灰で 12~12.7、集じん灰で、5.9~11 の範囲であった。

2009-A 残骨灰のみ溶出量基準を満たしていたが、その原因については、XAFS の解析結果からは、灰中に六価クロムが生成しているものの、表 C.2.9 から元素中の Si、Al の割合が高く、溶出が物理的に阻害されていると推測された。

表 C.2.11 残骨灰、集じん灰中六価クロムの19号含有量、溶出量試験結果

	19号含有量(mg/kg)		溶出量 (mg/L)	
	残骨灰	集じん灰	残骨灰	集じん灰
2008-A	26	66	3	2.7
2008-B	580	880	60	96
2008-C	70	210	7.2	19
2008-D	—	—	—	—
2008-E	140	—	7.1	—
2008-F	5.7	230	0.58	16
2008-G	670	—	5.9	—
2009-A	31	80	<0.02	6
2009-B	110	150	0.07	15
2009-C	6.5	280	0.23	31

※「土壤汚染対策法施行規則」環境省令第29号(平成14年)による
六価クロムの19号含有量基準:250mg/kg、溶出量基準:0.05mg/L



※実線:19号含有量基準値、破線:溶出量基準値

図 C.2.4 残骨灰、集じん灰中六価クロムの19号含有量、溶出量試験結果

(d) 模擬火葬灰を用いた加熱実験

ステンレス架台が火葬灰中のクロム源であるという報告があるため¹⁰⁾、ステンレス粉を含む模擬火葬灰の加熱実験を行い、加熱後のサンプルについて、含有量試験、溶出量試験を実施し、加熱温度ごとの19号含有量の抽出率、溶出量の溶出率として、図C.2.5に示し

た。

まず、19号含有量抽出率に関しては、ステンレス混合模擬灰について、700°Cのときに約0.5%、800°Cのときに約0.9%、1000°Cのときに約0.2%のCrが溶出し、加熱温度によってわずかに差が見られた。しかし、いずれの条件においても溶出したクロムは最大で約0.9%であり、加熱処理による大きな溶出性の増加は見られなかった。ここで、Crの抽出率を抽出量に換算すると、約3.9-15.6mg/kgであり、試料中に1wt%含まれている場合でも加熱処理によって基準値(250mg/kg)を超える溶出性を示すことはなかった。

次に、溶出量溶出率に関しては、700°Cのときに約0.2%、800°Cのときに約0.5%、1000°Cのときに約0.0024%のCrが溶出し、19号含有量の時とほぼ同様の傾向を示し、加熱温度によってわずかに差が見られた。Crの溶出率を検液濃度に換算すると、700°Cのとき0.33mg/L、800°Cのときに0.83mg/L、1000°Cのときに約0.004mg/Lとなった。700°C、800°Cの時は、基準値(0.05mg/L)を、実火葬灰程ではないが、大きく上回った。したがって、溶出量に注意が必要であり、これはこれまでの知見と一致するものであった。

厳密な火葬灰との組成は異なるためはっきりとはいえないが、模擬火葬灰では、ステンレスをクロム源として19号含有量よりも、溶出量が超過し、実灰と同様の傾向が見られ、ステンレスが、クロム源の一つであることが示唆された。特に、700~800°C程度の温度が溶出量が高くなり1000°Cでは溶出量が低下したが、主燃焼室の温度は1000°C以上になるケースが多いため、より詳細な検討が必要である。

(e) 六価クロム対策について

六価クロムに対する対策としては、六価クロムを生成させないように燃焼温度、あるいは酸素濃度を下げることが考えられるが、我が国の火葬の習慣上、あるいはダイオキシン類生成の観点から燃焼制御による対策は非現実的である。また、残骨灰とステンレス材、

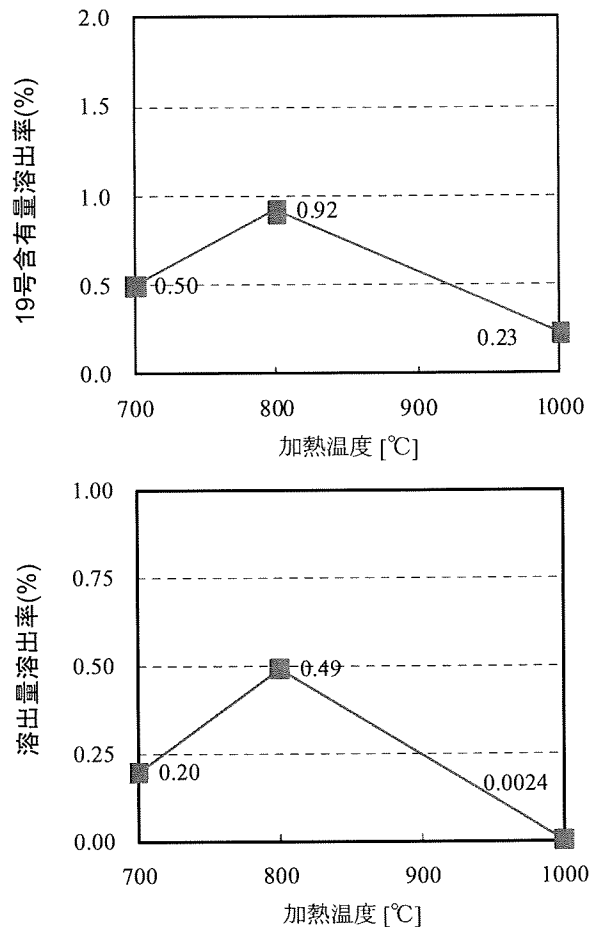


図 C.2.5 ステンレス含有模擬火葬灰の19号含有量溶出率、および溶出量溶出率

耐火物の直接接触が回避できるような構造的な対策も考えられるが、炉構造の根本的な見直しが必要であり困難であると考えられる。

さらに、江口によると、ステンレス製架台を用いない火葬炉において、残骨灰、集じん灰の六価クロム溶出量を評価した結果、灰の溶出量は7.0、および3.4mg/Lで、溶出基準値の50倍以上超過していたという報告がある¹⁰⁾。すなわち、模擬火葬灰の加熱実験からはステンレス製架台が六価クロムと成り得ると推測されたが、ステンレス製架台がなくとも、溶出量基準の達成は難しいといえる。ステンレス製架台以外のクロムの由来としては、炉内耐火物や熱電対など、比較的対策を取り易い火葬炉内の材質に加え、副葬品などの可能性が考えられ、ステンレス製架台ほどではないが、残骨灰、集じん灰中のクロムに影響をおよぼしていると考えられた。

したがって、今後、クロムを火葬炉材質から徹底的に排除したケースにおける、灰中の六価クロムの19号含有量や溶出量について調査していかなければならないが、この場合においても、含有量基準、溶出量基準を超過してしまう可能性もある。したがって、今後、バグフィルター等による集じんをしっかりと行い火葬炉外への大気への排出を抑制し、不溶化処理等、別途灰の処理を検討することも必要と考えられる。

3. アマルガム充填物の採取、ヒアリング、および治療時のデータ収集

現在、歯科において、アマルガム充填はあまり行われておらず、また過去に充填されたものに関しても、近年コンポジットレジン充填に転換しつつある。このため、要抜去であり、かつアマルガムの充填された歯は少なかった。このため2年の研究期間で集積されたのは、計24検体のデータにとどまった。表C.3.1に歯科アマルガム充填物の採取、ヒアリング、データ収集結果および水銀濃度測定結果を示した。表より、対象者の年齢は17～87歳であり、性別は男性16人、女性8人であった。歯種は奥歯が中心であり、咬合面のアマルガムを中心に採取された結果となった。充填時期は患者のヒアリングによるため、2名が不明であったが、約半年～45年前に充填されたものであった。重量は10～340mg(算術平均127mg)であった。

水銀濃度(重量%)の測定結果はN.D～53.0%となった。3番、および18番のサンプルについては極端に小さな値であり、サンプリング時からほとんど水銀が含まれていなかった例外的なサンプルであると考えられる。このサンプルを除くと算術平均の水銀濃度は43.4%となる。あらかじめ作成した銀スズアマルガム作成直後の水銀濃度は平均45.9%であったが、2.7%程度の濃度の減少があった。また、測定値とサンプル重量から求められる、アマルガム充填歯1本あたりに含まれる水銀量は0～135mg/本となり、3番、および18番のサンプルを除いた算術平均は56.5mg/本となった。

表 C.3.1 歯科アマルガム充填物の採取、ヒアリング、および水銀測定結果
(n は水銀の測定回数を示す)

サンプル番号	年齢	性別	歯種	充填時期	重量(mg)	箇所	n	平均水銀量 (w/w%)	アマルガム中の 水銀量 (mg)
1	58	男	右下7	約 20 年前	56	咬合面	3	42.5	23.8
2	57	男	右下8	不明	231	咬合面	2	47.8	110.4
3	50	男	右下7	不明	156	咬合面	4	N.D.	-
4	39	女	左上8	約 10 年前	173	咬合面	2	46.7	80.8
5	46	女	右下8	約 20 年前	64	咬合面	3	44.9	28.7
6	61	男	左上8	約 30 年前	88	咬合面	2	46.7	41.1
7	61	男	右上8	約 30 年前	91	咬合面	3	44.8	40.8
8	37	男	左下5	約 20 年前	57	近心隣接面	2	53.0	30.2
9	37	男	左下6	約 20 年前	126	咬合面	2	45.2	57.0
10	49	女	左下8	約 7 年前	60	咬合面	2	37.3	22.4
11	49	女	左上8	約 7 年前	100	頬側面	2	47.1	47.1
12	66	男	左下6	約 15 年前	150	咬合面	2	43.6	65.4
13	66	男	右下7	約 15 年前	110	咬合面	2	52.9	58.2
14	64	男	左上6	約 45 年前	340	咬合口蓋面	2	39.7	135.0
15	64	男	左上5	約 45 年前	30	咬合面	2	38.0	11.4
16	32	男	右下8	約 15 年前	200	咬合面	2	40.4	80.8
17	87	男	左上7	約 40 年前	40	咬合面	1	35.5	14.2
18	48	女	左下8	約 10 年前	10	咬合面	1	1.5	0.2
19	17	男	左下6	約 5 年前	180	咬合面	2	39.9	71.8
20	34	女	左下8	約 10 年前	60	咬合面	2	47.1	28.3
21	27	女	左下8	約 1 年前	210	咬合面	2	41.3	86.6
22	44	女	右上8	約 25 年前	130	咬合面	2	39.8	51.7
23	66	男	右上8	約 15 年前	110	咬合面	2	39.4	43.3
24	35	男	左下7	約 15 年前	280	咬合面	2	40.4	113.0

(N.D.:Not Detected)

ここで、ヒアリングにおけるおおよその充填時期と、採取したアマルガムの重量との関係を図C.3.1に、そのうち水銀量との関係を図C.3.2に示した。なお、これらのグラフに用いたデータは、初期充填時として、アマルガムをあらかじめ作成し、試充填した際の4回の測定値をプロットし、表C.3.1において、充填時期が不明な2番、3番、咬合面以外の充填である8番、11番、14番、極端に水銀濃度の低かった18番を除いたデータとした。

これらの図において、充填時期により、アマルガム、およびその中の水銀量が減少する傾向がわずかに見られた。図から予測されるアマルガム充填物の初期重量は、回帰直線の切片にあたり、206mgと予測される。また、同様に充填水銀の初期重量は回帰直線の切片

から91mgと予測される。これはMillsの用いた値0.6 g-Hgの約15%程度にあたり、日本においてはアマルガム処置歯1本あたりの水銀の量はイギリスよりも少ない。また回帰直線の傾きは、1年あたりに減少するアマルガムおよび水銀の重量を示しており、1日あたりに換算すると、アマルガムは12 $\mu\text{g}/\text{day}$ 、水銀は5.5 $\mu\text{g}/\text{day}$ と試算された。

Skareらは、アマルガム中水銀の1日あたりの水銀の減少量は、2.0 $\mu\text{g}/\text{day}$ としており³⁵⁾、Clarksonらも、アマルガムからは水銀蒸気として、3～17 $\mu\text{g}/\text{day}$ が体内に取り込まれているとしている³⁶⁾。研究の結果では、これらの報告とほぼ同オーダーの値が得られた。すなわち火葬場から排出される水銀排出量の推計値について、排ガス実測値に基づいた推

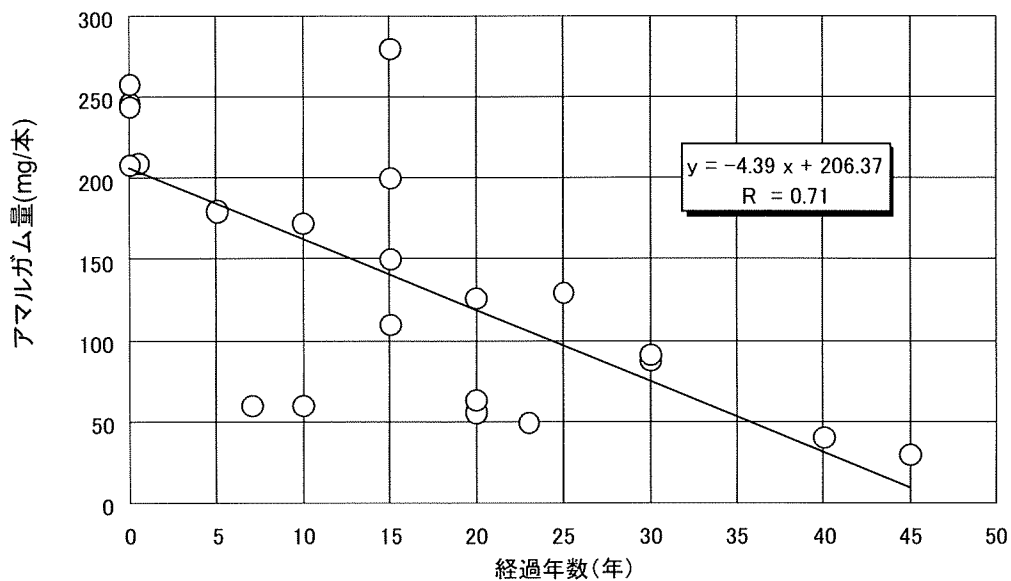


図 C.3.1 歯科アマルガム充填物の充填経過年数と、アマルガム重量との関係

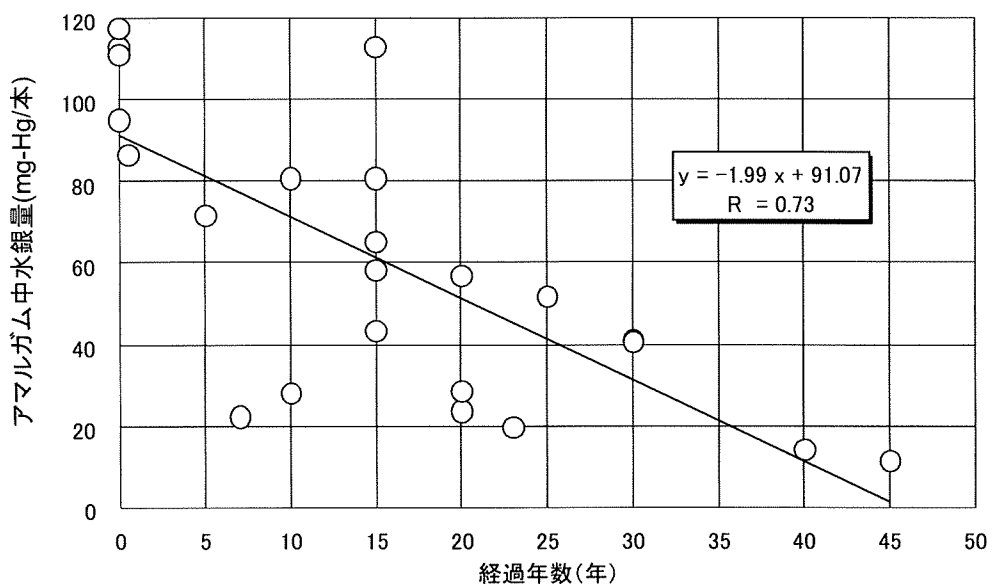


図 C.3.2 歯科アマルガム充填物の充填経過年数と、アマルガム中水銀重量との関係

計値と、アマルガムの歯科統計・工業統計やアマルガム修復率、喪失歯等の統計からの推計値に大きな隔たりがある要因としては、初期のアマルガム充填量がイギリスよりも少ないことと、口腔内でアマルガムが減少していくことが原因として考えられた。

4. 歯科用アマルガム由来蒸気水銀の体内動態評価モデルによる健康リスク評価

(1) モデルの検証

構築したPBPKモデルを、実測データに照らして検証を行った。検証には、Sandborgh-Englundら³⁷⁾が9人の被験者に対して15分間蒸気水銀を曝露させ、その後30日間にわたり血中、尿中の水銀濃度を調べたデータを用いた。実験の概要を表C.4.1に示す。

本研究で構築したPBPKモデルによる計算結果を図C.4.1、図C.4.2に示す。ここで吸入摂取量はSandborgh-Englundらの実測値におけるMedian値：115mgとした。図中の実線は計算結果、点は実測データを表している。

血中濃度(図C.4.1)の計算値については、曝露後10日以降、実測値よりも高い値を示す傾向があるが、時間推移による濃度変化を良好に再現している。尿中排泄量(図C.4.2)については、1日の水分摂取量などの個人差の影響が大きく現れ、実測値自体にばらつきがみられた。計算値との直接的な比較は難しいが、おおむね実測値内を推移している。以上の結果から、本研究で構築したPBPKモデルは無機水銀の体内動態を良好に再現していると判断し、以後、このモデルを用いて無機水銀の体内動態を評価することとした。

表 C.4.1 Sandborgh-Englund らによる蒸気水銀吸入試験の概要

Subject	Body weight(kg)	Age	Gender	Inhaled Hg(mg)
A	67	53	F	105
B	67	19	F	98.4
C	57	19	F	84.6
D	47	20	F	115
E	108	27	M	133
F	58	38	F	129
G	87	37	M	160
H	63	21	F	115
I	57	20	F	86.3
Median	63	21		115
25-75 percentile	57-67	20-37		98.4-129

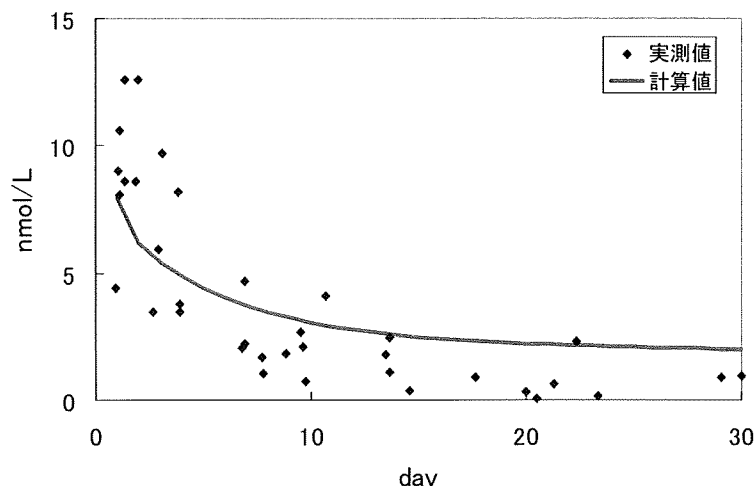


図 C.4.1 PBPK モデルの検証結果 (血中濃度の時間的変化)

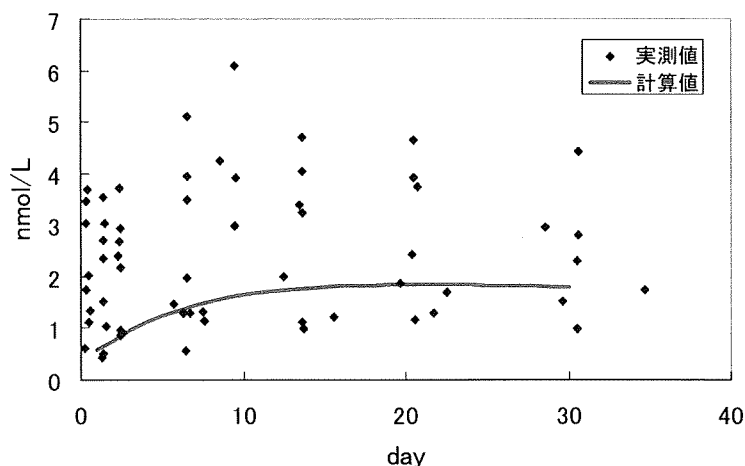


図 C.4.2 PBPK モデルの検証結果 (一日当たりの尿中排泄量の時間的変化)

(2) 水銀蒸発量の変化

(a) 蒸発量変化

アマルガムからの水銀の蒸発量は、アマルガム充填歯の劣化によって経時的に変化するとされる。また、1日の中でも変化していることが報告されており、特に食事における咀嚼回数の増加が変化量の大きな要因になることが知られている³⁸⁾。Vimyらは、咀嚼開始時間を0minとし、咀嚼中の30minとその後の30min、合計60minにわたって口腔内の空気を750mL/minの速度で20秒間(250mL)採取し、その水銀濃度($\mu\text{g}/\text{m}^3$)を測定している³⁹⁾。この測定結果を図C.4.3に引用する。

Clarksonら³⁶⁾は、Vimyらの実測データを元に、アマルガム充填歯からの水銀蒸発速度($\mu\text{g}/\text{min}$)を求めて一日摂取量を報告している。本研究においても、蒸発量から蒸発速度に換算した値を使用した。

(b) 口腔内水銀摂取モデル

口腔内のアマルガムから発生した蒸気水銀を摂取するモデルを作成した。モデルの概略を図C.4.4に示す。水銀はアマルガム充填歯から蒸気となって口腔内に発生し、呼気と混合されて一部が肺に移行、一部が呼気とともに体外に排出される。ここで、口腔内で発生した水銀蒸気の吸入に關与するのは経口呼吸のみであるので、本モデルでは経鼻呼吸は考慮していない。また、肺に移行した呼気中水銀は、80%が血中に移行するとした⁴⁰⁾。

モデルの構造式は以下のとおりである。

$$V_m \frac{dC_m}{dt} = -2C_m \cdot F + C_L \cdot F + R \quad (\text{C.4.1})$$

$$V_L \frac{dC_L}{dt} = C_m \cdot F - C_L \cdot F - 0.8C_L \cdot V_L \quad (\text{C.4.2})$$

- V_m : 口腔内体積 (L)
- V_L : 肺の体積 (L)
- C_m : 口腔内水銀濃度 (mg/L)
- C_L : 肺中水銀濃度 (mg/L)
- F : 口呼吸量 (L/min)
- R : 蒸気水銀蒸発速度 (mg/min)

式(C.4.1)、(C.4.2)中で使用した経口呼吸量には、ヒトの経口呼吸量は6L/min³⁹⁾に経口呼吸率 k を乗じたものを使用した。この経口呼吸率は1日の中で変化することが知られており^{41)、42)}、Berglundは1日を睡眠、会話、通常の3パターンに経口呼吸率を分けて、蒸気水銀の1日摂取量を計算している⁴³⁾。本研究においても、

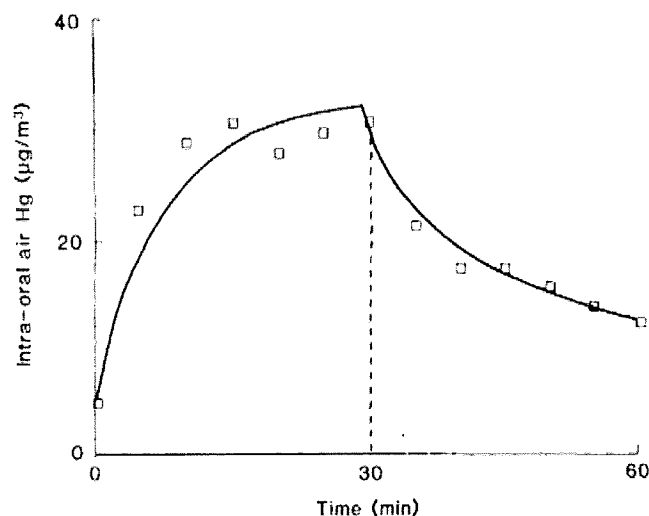


Fig. 1 - Mean concentrations of Hg in intra-oral air during 30 min of chewing stimulation, followed by 30 min with no stimulation, in 35 randomly selected subjects with dental amalgam restorations.

図 C.4.3 咀嚼による口腔内蒸発量変化

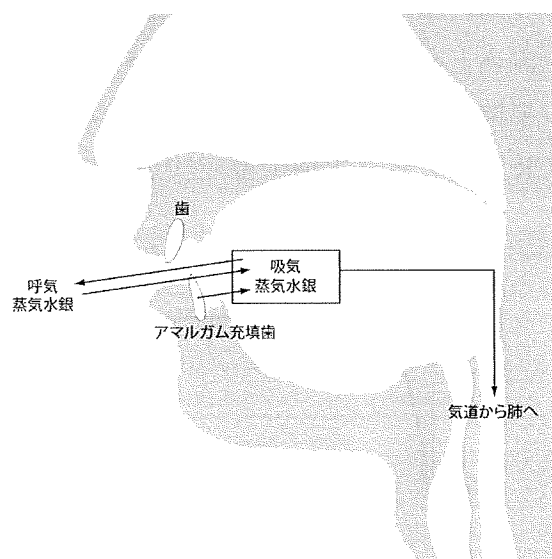


図 C.4.4 口腔内水銀摂取モデル

Berglundに従って1日の中での経口呼吸率に変化を持たせ、1日24時間の生活シナリオを表C.4.2のように設定した。食事時間は7時、12時、19時に30分間とし、食事中とその後90分間の水銀蒸発量は(a)に述べた通りとする。

本研究では食事中の呼吸率は、会話中の呼吸率を代用した。

表 C.4.2 1日における呼吸率の変化

時間	状態	呼吸率 k
0:00-7:00	睡眠	0.17
7:00-9:00	食事	0.58
9:00-12:00	通常	0.004
12:00-14:00	食事	0.58
14:00-19:00	通常	0.004
19:00-21:00	食事	0.58
21:00-24:00	通常	0.004

(c) 体内動態の評価結果およびリスク評価

アマルガム充填歯1本を10年間口腔内で使用し続けた場合を想定して、シミュレーションを行った。血中濃度の濃度変化を図C.4.5に、臓器中濃度変化を図C.4.6に示す。血中濃度は $1.5\mu\text{g/L}$ で平衡となった。腎臓は体内で無機水銀が多く蓄積する臓器であり、今回の計算結果では体内総水銀量が 0.31mg に対して、腎臓での蓄積量は 0.22mg となり、およそ体内の70%が腎臓に蓄積されることがわかった。

呼気、尿中、糞便中から排泄された総水銀は 27mg となった。本研究の実測値ではアマルガム1本あたりの水銀は 91mg 程度であり、10年間で約30%が排出されることとなる。

無機水銀の毒性は、尿中排泄量が目安となっており、WHOでの報告によれば、 $100\mu\text{g/gCR}$ を超えると水銀中毒症状が発生するとされている。また、 $30\mu\text{g/gCR}$ を超えるような

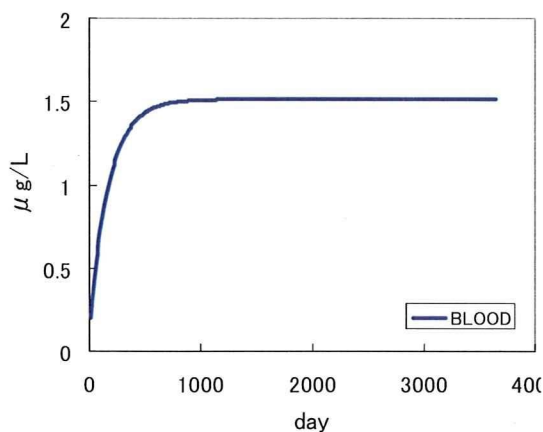


図 C.4.5 血中水銀濃度

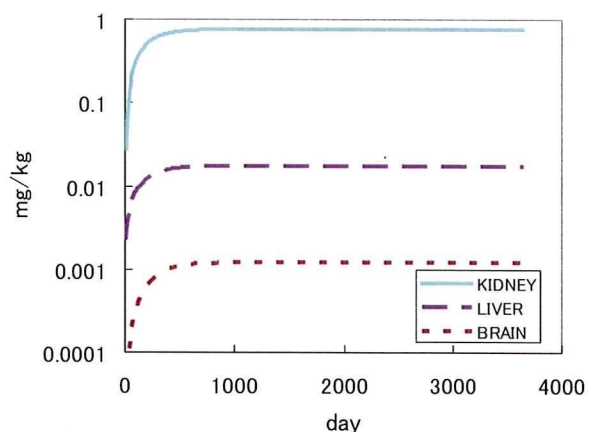


図 C.4.6 臓器中水銀濃度

曝露を受けると人体に何らかの悪影響が発生するとされている。本研究で求めた尿中水銀濃度をクレアチニン補正值に換算すると1.0 $\mu\text{g/gCR}$ となり、毒性指標値を大きく下回った。このことから腎障害を及ぼすレベルではないことが分かった。

5. 火葬場における低煙突が拡散に与える影響に関する調査

全シミュレーションの設定値、および最大着地濃度の計算結果をまとめたものを、表C.5にまとめて示す。以下では、この表の結果とともに、特にダイオキシン類について、1km四方のコンター図を示し、煙突高さの影響を基本ケースとして、建物構造物の影響、煙突遮蔽物の影響について考察する。

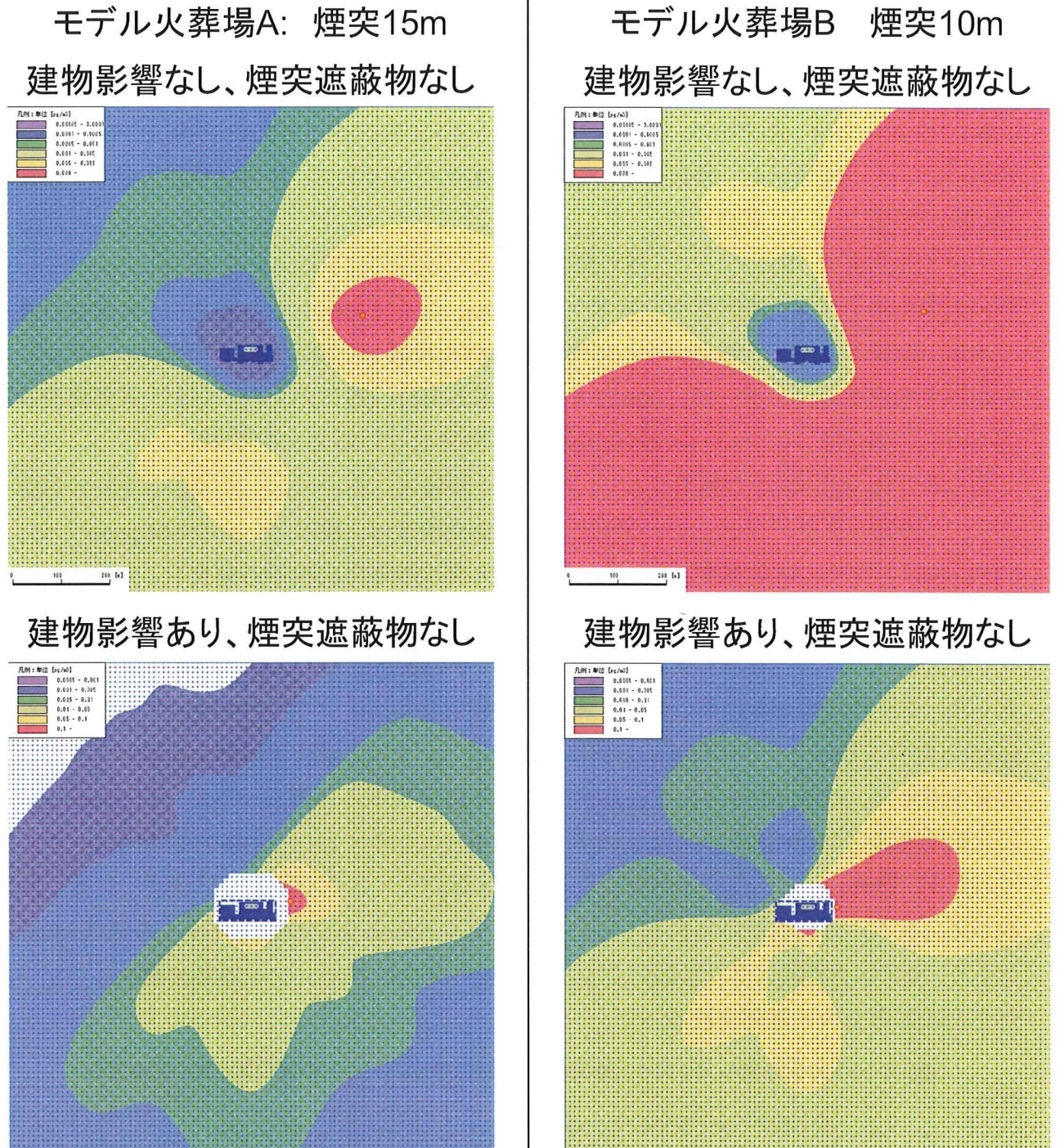
モデル火葬場A、Bについて、何も障害物のない理想的な平面にある場合において、一定の気象条件を与え、煙突高さを基本ケース15m、および10mとした場合に、火葬場自身の建物の影響を考慮した場合、さらに煙突遮蔽物を設置した場合の、1年間のダイオキシン類の平均濃度のコンター図（1km四方）を図C.5.1(1)、(2)に示した。なお、火葬場建物近傍の白い部分は、モデルの未検証領域であり除外していることを意味する。

図C.5.1(1)、(2)、および表C.5より、モデル火葬場Aにおいては、火葬場の建物の影響として、建物のダウンウォッシュが生じ、最大着地濃度は、基本ケースの0.01 pg/m^3 から、0.151 pg/m^3 となり、15倍程度となった。また最大着地濃度の出現する地点も、火葬場の近傍に出現した。さらに煙突遮蔽物が存在した場合には、最大着地濃度は、0.226 pg/m^3 となり、基本ケースの23倍程度の値となるとともに、0.1 pg/m^3 以上の比較的高濃度の範囲も拡大した。モデル火葬場Bにおいても、建物の影響を考慮することで、0.093 pg/m^3 から、0.380 pg/m^3 となり、基本ケースの約4倍の値にとどまった。また、煙突遮蔽物の影響により、最大着地濃度は、1.295 pg/m^3 となり、基本ケースの13倍程度にとどまったが、0.1 pg/m^3 以上の比較的高濃度の範囲は拡大した。モデル火葬場Aに比較すると、全体的な傾向は一致していたが、建物、および煙突遮蔽物による負の影響がモデル火葬場Bでは発現しにくい傾向が見られた。この差ははっきりしないが、モデル火葬場Bでの煙突排ガス温度は350 $^{\circ}\text{C}$ であり、モデル火葬場Aよりも高いことから建物のダウンウォッシュ効果が働きにくかったことによるものと推測される。

表C.5 モデル火葬場A、Bにおける煙突からの拡散シミュレーションの設定値と最大着地濃度

設定条件													計算結果						
記号	対象	稼働パターン	煙突高さ m	建物影響の考慮	遮蔽物	排ガス量 (乾き)		ダイオキシン類			水銀			クロム			最大着地濃度 pg/m^3	最大着地濃度 pg/m^3	最大着地濃度 pg/m^3
						濃度	時間当たり排出量	年間稼働日数を考慮	濃度	時間当たり排出量	年間稼働日数を考慮	濃度	時間当たり排出量	年間稼働日数を考慮					
A_15	モデル火葬場A	60分×4	15	-	-	12011	11710	2.26	0.02646	0.02175	8.1	94.851	77.960	0.29	3.4	2.8	0.010	34.594	1.239
A_30	モデル火葬場A	60分×4	30	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.004	16.078	0.576
B_10	モデル火葬場B	70分×4	10	-	-	5409	5139	41.36	0.21255	0.17470	6	30.834	25.343	23.28	119.6	98.3	0.093	13.451	52.191
B_30	モデル火葬場B	70分×4	30	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.035	5.080	19.712
A_15_C	モデル火葬場A	60分×4	15	火葬場建物	-	12011	11710	2.26	0.02646	0.02175	-	-	-	-	-	-	0.151	-	-
B_10_C	モデル火葬場B	70分×4	10	火葬炉建物	-	5409	5139	41.36	0.21255	0.17470	-	-	-	-	-	-	0.380	-	-
A_15_CS	モデル火葬場A	60分×4	15	火葬炉建物	●	12011	11710	2.26	0.02646	0.02175	-	-	-	-	-	-	0.226	-	-
B_10_CS	モデル火葬場B	70分×4	10	火葬炉建物	●	5409	5139	41.36	0.21255	0.17470	-	-	-	-	-	-	1.295	-	-

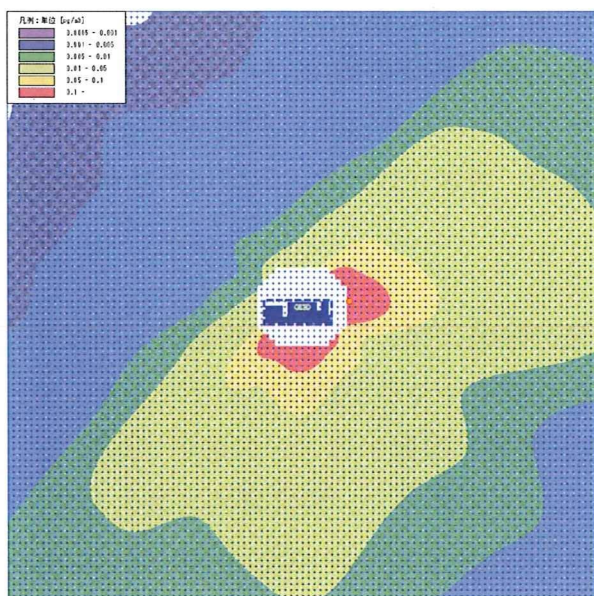
以上の検討により、火葬場自身の建物のダウンウォッシュ等の影響を考慮した場合、考



図C.5.1(1) モデル火葬場A、Bにおけるダイオキシン類の煙突からの拡散シミュレーション結果(火葬場建物、煙突遮蔽物の影響)

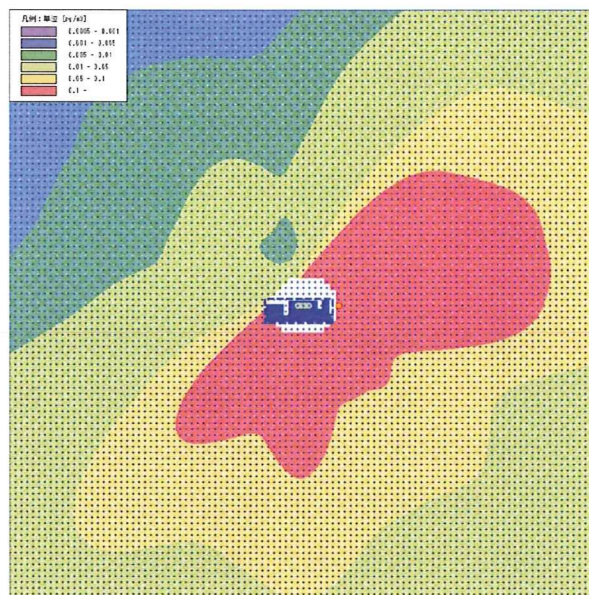
モデル火葬場A: 煙突15m

建物影響あり、煙突遮蔽物あり



モデル火葬場B 煙突10m

建物影響あり、煙突遮蔽物あり



図C.5.1(2) モデル火葬場A、Bにおけるダイオキシン類の煙突からの拡散シミュレーション結果(火葬場建物、煙突遮蔽物の影響)

慮しない場合に比較して、最大着地濃度が高くなるとともに、出現地点も火葬場近傍になることが明らかとなった。また、煙突に遮蔽物が存在する場合においても、排ガスの拡散が妨げられ、最大着地濃度を高くする効果が認められた。

本研究における、火葬場からの有害物質拡散シミュレーションに関しては、対象となる有害物質をガス状で存在するとしていることや、地形の設定、煙突遮蔽物による煙流の分断等いくつかの仮定を含むため、その最大着地濃度と、実際の環境基準等に照らし比較することは、さらなる詳細な検討を要する。しかしながら、新旧の火葬場において一定の条件を与え、煙突高さ、火葬場建物の影響、煙突遮蔽物の影響を相対的に評価した結果、少なくとも低煙突、煙突遮蔽物は、有害物質の拡散を妨げる結果となった。したがって、実火葬場における煙突はできるだけ高くし、煙突遮蔽物も可能な限り設置しないほうが望ましいと考えられた。

D. 結論

本研究では、火葬場から排出される有害物質の濃度、排出量、排出形態やその排ガス処理での除去効果について、その実態を明らかにし、排出抑制策を検討すること、水銀排出起源に関する調査を行って、火葬炉からの水銀排出量推計値を見直すとともに、水銀による人体への健康リスクを評価すること、火葬場からの有害物質の排出、およびその拡散に関連して、火葬場特有の低煙突の影響をシミュレーションにより推定し抑制対策を検討すること、以上の3点を主たる目的とし、それぞれ調査、実験を行った。以下に得られた知見を示す。

- 各排ガス処理プロセスにおけるダイオキシン類の挙動に関しては、熱交換器でのダイオキシン類の再合成が確認された。再合成されたダイオキシン類はバグフィルターでの除去がほとんどできなかったことから、触媒装置等を設置することが重要である。また、熱交換器のない設備ではバグフィルターにてダイオキシン類は毒性当量として、58%以上除去された。触媒装置においても90%以上のダイオキシン類が除去されたが、触媒入口のダイオキシン類濃度が低い場合濃度が逆転するケースがあるため注意する必要がある。活性炭吸着設備においては、本来高いダイオキシン類除去率が期待できるが、活性炭の吸着破過状況を把握し、適切に交換することが重要であると考えられた。
- 集じん灰中のダイオキシン類の濃度範囲は、実測濃度で3.1～419 ng/g、毒性等量で0.047～6.3 ng TEQ-WHO₀₆/gであった。集じん灰中のダイオキシン類濃度が高い火葬炉は、熱交換器を用いた冷却方式を有するものに限られ、熱交換器部分で再合成が生じていることが排ガス測定の結果からも裏付けられた。したがって、排ガスの冷却方式には注意が必要であり、低温での集じんを徹底し、再合成を抑制しつつ、濃度の高い集じん灰に関しては別途処理を検討する必要がある。残骨灰中ダイオキシン類濃度については問題ないレベルであった。
- 本研究および2007～2008年の調査結果から、大気へのダイオキシン類の排出原単位は、加重平均を考慮した場合、算術平均値は2,390 ng TEQ-WHO₀₆/体と算出された。この値は、1999調査による排出原単位の約57%程度まで削減され、「ダイオキシン類削減対策指針」による効果がうかがえた。
- 火葬場での調査により、排ガス中水銀は、触媒装置、あるいは活性炭吸着設備にて70%以上の除去率が見込めることが示された。一方、バグフィルターでは、堆積した集じん灰により水銀が除去されるケースと、増加するケースがみられ、安定性に欠けることが示唆された。したがって、排ガス中水銀の除去には、バグフィルターの後段に、触

媒装置、あるいは活性炭吸着設備を設置することが望ましいと考えられた。ただし、触媒装置は、ダイオキシン類の分解、脱硝が本来の目的であり、水銀の吸着除去により、触媒活性の低下が懸念されるため、水銀除去には、活性炭吸着設備が最も望ましいと考えられた。

- ・パイロット式活性炭吸着実験装置による水銀除去実験により、5種類の活性炭による吸着除去を検討した結果、全体における除去率の平均は90.2%であり、極めて高度に除去できることがわかった。活性炭の種類としては、除去率や、活性炭層での温度上昇を考慮した場合、石炭系活性炭が望ましいことが明らかとなった。
- ・火葬排ガス中のクロムに関しては、バグフィルターにてばいじんとともに高度に除去され、少なくとも75%以上の除去率が見込めることがわかった。また熱交換器部分で、排ガス中のクロムが増加する現象が認められ、熱交換器部分に過去に堆積したばいじん、および熱交換器の材質であるステンレスが剥離して濃度が上昇し、集じん灰へのクロムの供給源となっている可能性が示唆された。したがってダイオキシン類と同様に、クロムの観点からも熱交換器の導入には注意する必要がある。
- ・灰中の六価クロムに関しては、19号含有量についていくつかのサンプルでのみ基準値を超過するケースが見られたが、溶出量では1検体を除く全てのサンプルで基準の1.4～1,800倍の濃度が検出された。
- ・ステンレスを混合した模擬火葬灰の加熱実験を実施した結果、炉内のステンレス架台をクロム源とした場合、温度が800℃程度の火葬で、灰中の六価クロムは、溶出基準を超過することが確認された。
- ・灰中の六価クロムの由来としては、ステンレス架台や、炉内耐火物中のクロムが酸化されることによるものと予想されたが、炉内材のクロムフリー化対策によっても、依然として溶出量が高くなる可能性もあり、今後、バグフィルター等による集じんをしっかり行い火葬炉外への排出を抑制し、別途灰の処理を検討することが必要であると考えられた。
- ・アマルガム充填物の採取、ヒアリング、および治療時のデータ収集を行い、24検体のアマルガム採取、ヒアリングデータが得られた。アマルガム充填物の重量は10～340mg(算術平均127mg)であったが、経過年数とともに重量は減少する傾向がわずかに見られた。
- ・アマルガム充填物の減少傾向から、イギリスよりも日本の方がアマルガム処置歯あたりの水銀量は少なく、91mg/本程度であることと、経過年数とともに口腔内アマルガム中の水銀が5.5 μ g/dayの割合で減少していることが明らかとなった。
- ・無機水銀の体内動態を評価するPBPKモデルを構築し、人における体内動態を評価し

た。5つのコンパートメントのPBPKモデルにおいて、ラットで求められた移動係数から推定した値などを用いることで、血中濃度や尿中排泄濃度の再現性という点で比較的信頼性の高いPBPKモデルを作成することができた。さらにこのモデルを用いて、歯科治療用の水銀アマルガムからの曝露に起因する尿中排泄量を評価した。その結果、WHOが人体に悪影響を及ぼす指標よりも少ないことが分かり、腎障害を懸念するレベルではないことが推定された。

- ・ 火葬場の拡散シミュレーションにおいて、火葬場建物のダウンウォッシュ等の影響を考慮した場合、考慮しない場合に比較して、火葬場の新旧にかかわらず、最大着地濃度が高くなるとともに、出現地点も火葬場近傍になることが明らかとなった。また、煙突に遮蔽物が存在する場合においても、排ガスの拡散が妨げられ、最大着地濃度を高くする効果が認められた。
- ・ 本研究での火葬場の拡散シミュレーションでは、幾つかの仮定を含むものの、種々のケースを相対的に評価した結果から、実火葬場における煙突はできるだけ高くし、煙突遮蔽物も可能な限り設置しないほうが望ましいと考えられた。

E. 健康危険情報

なし

F. 研究発表

- ・ M. Takaoka, N. Takeda, K. Oshita, S. Eguchi, PCDDs/DFs and PBDDs/DFs Emissions from Crematory, *Organohalogen Compounds*, Vol.71, pp.848-853 (2009)
- ・ 武田信生、高岡昌輝、大下和徹、江口正司：火葬場から排出される六価クロムの実態と由来の調査および排出抑制対策、*環境工学研究論文集*、Vol.46、pp. 377-388 (2009)
- ・ M. Takaoka, K. Oshita, N. Takeda and S. Morisawa: Mercury emission from crematory in Japan, *Proceeding of the 9th International Conference on Mercury as a Global Pollutant*, CD-ROM, S17-12 (2009)
- ・ M. Takaoka, K. Oshita, N. Takeda, and S. Morisawa: Mercury emission from crematory in Japan, *Atmospheric Chemistry and Physics*, Vol.10, pp.3665-3671 (2010)

G. 知的財産権の出願・登録状況

該当なし(平成22年3月現在)