

【参考文献】

- 1) 厚生労働省：統計一覧、保健・衛生行政業務報告（衛生行政報告例）、平成20年度衛生行政報告例、第23表 埋葬及び火葬の死体・死胎数並びに改葬数，都道府県－指定都市－中核市（再掲）別 <http://www.e-stat.go.jp/SG1/estat/GL02020101.do?method=extendTclass&refTarget=toukeihyo&listFormat=hierarchy&statCode=00450027&tstatCode=000001031469&tclass1=000001031470&tclass2=&tclass3=&tclass4=&tclass5=> (2010.3.11情報取得)
- 2) 厚生労働省大臣官房統計情報部：平成20年人口動態統計の年間推計、第1表－人口動態総覧の年次推移 <http://www.mhlw.go.jp/toukei/saikin/hw/jinkou/suikei08/index.html>(2009.2.4情報取得)
- 3) 武田信生(主任研究者)：火葬場から排出されるダイオキシン類の実態調査、平成9年度厚生科学研究費補助金(厚生科学特別研究事業)報告書(1998)
- 4) 武田信生(主任研究者)：火葬場からのダイオキシン類の排出抑制対策の検討、平成10年度厚生科学研究費補助金(厚生科学特別研究事業)報告書(1999)
- 5) 火葬場から排出されるダイオキシン削減対策検討会：火葬場から排出されるダイオキシン類削減対策指針(2000)
- 6) 環境省：ダイオキシン類の排出量の目録(排出インベントリー)、p.2、p.8(2009)
- 7) Department for Environment Food and Rural Affairs, UK: Mercury emissions from crematoria, Second consultation(2004)<http://www.defra.gov.uk/ENVIRONMENT/ppc/old-consultations/crematoria-two/consultation.pdf>(2009.2.5 情報取得)
- 8) Lesley Sloss: 国内外における微量成分の排出状況, Trace Element Workshop 2000, pp.47-59 (2000)
- 9) 読売新聞、東京夕刊 22面(2006.12.8)
- 10) 江口正司: 火葬炉の燃焼制御と環境負荷低減に関する研究、京都大学博士論文、pp.117-125(2007)
- 11) 武田信生(主任研究者): 火葬炉から排出される有害物質の実態調査とその抑制対策、平成19年度厚生労働科学研究費補助金(厚生労働科学特別研究事業)総括・分担研究報告書(2008)
- 12) 武田信生(主任研究者): 火葬場から排出される有害化学物質の排出実態調査および抑制対策に関する研究、平成20年度厚生労働科学研究費補助金(厚生労働科学特別研究事業)総括・分担研究報告書(2009)
- 13) 堂本真吾、江口正司、高岡昌輝、松本忠生、大下和徹、武田信生：火葬炉における水銀の排出挙動調査、大気環境学会誌、Vol.41, No.6, pp.309-319(2006)

- 14) Allan Mills: Mercury and Crematorium Chimneys, *Nature*, Vol.346, p.16 (1990)
- 15) 日本環境斎苑協会: 火葬場の建設・維持管理マニュアル、p.151(2002)
- 16) 厚生労働省健康局生活衛生課: 火葬場から排出される有害化学物質に関するアンケート調査結果 (2010)
- 17) Alvin Chua, Koji Tanida, Masaki Takaoka, Naoki Noda: Development of Mercury CEMs for Emission Gases, *18th International Low-Rank Fuels Symposium*, pp.1-9, (2003)
- 18) Koji Tanida, Alvin Chua, Masaki Takaoka, Naoki Noda: The Development and Current Status of the Mercury CEM, *Air Quality IV*, pp.1-12 (2003)
- 19) Farris, F.F., Dedrick, R.L., Allen, P.V., and Smith, J.C.: Physiological Model for the Pharmacokinetics of Methyl Mercury in the Growing Rat. *Toxicology and Applied Pharmacology*, Vol.119, No.1, pp.74-90 (1993)
- 20) 社団法人産業環境管理協会、低煙源拡散モデル(METI-LIS)、
http://www.jemai.or.jp/CACHE/tech_details_detailobj1816.cfm
- 21) 日本環境斎苑協会: 火葬場の建設・維持管理マニュアル、pp.37-56(2002)
- 22) 宇治貞宏、廣嶺忠生、上島賢郎、船引隆宣: 触媒によるダイオキシン類の分解特性について、第19回全国都市清掃研究発表会講演論文集、pp.208-210 (1998)
- 23) 古角雅行、青木敏春: 選択的還元脱硝触媒を用いたダイオキシン低減技術の開発、第4回廃棄物学会研究発表会講演論文集、pp.827-830 (1993)
- 24) S. Komai, A. Satsuma, K. Tokura and T. Hattori: Oxidative Coupling of Phenol: A Possible Key Step of Dioxin Formation on deNO_x Catalyst, 21st International Symposium on Halogenated Environmental Organic Pollutants and POPs, pp.407-410 (2001)
- 25) 廃棄物学会編: 廃棄物ハンドブック、オーム社、p.370 (1997)
- 26) ごみ処理に係るダイオキシン削減対策検討会: ごみ処理に係るダイオキシン類発生防止削減対策指針ダイオキシン類削減プログラム— (1997)
- 27) 高岡昌輝、武田信生、岡島重伸: 飛灰等の粉粒体による排ガス中の水銀除去に関する基礎的研究、廃棄物学会誌、Vol.6, No.6, pp.235-244 (1995)
- 28) 高岡昌輝、武田信生: 流動床式都市ごみ焼却炉排ガス中の水銀除去に与える活性炭噴霧の影響、化学工学論文集、Vol.28, No.5, pp.593-597 (2002)
- 29) Sandra Straube, Thomas Hahn, Heinz Koeser: Adsorption and oxidation of mercury in tail-end SCR-DeNO_x plants—Bench scale investigations and speciation experiments, *Applied Catalysis B: Environmental*, Vol.79, pp.286-295 (2008)
- 30) 古林通孝、篠原力男、浜野修史、長井健一、澤地實、村上真也: 活性炭塔による有害物質の除去実験、第11回廃棄物学会研究発表会講演論文集、pp.681-683 (1999)

- 31) 古林通孝、浜野修史、長井健一：ダイオキシン類吸着活性炭の繰り返し再生、第11回廃棄物学会研究発表会講演論文集、pp.777-779 (2000)
- 32) 中西準子、小野恭子：詳細リスク評価書シリーズ21、六価クロム、丸善、p.19, p.43 (2008)
- 33) 長倉三郎、井口洋夫、江沢洋、岩村秀、佐藤文隆、久保亮五：岩波理化学辞典、岩波書店、p.701 (1998)
- 34) Rorert K.Murray, Daryl K. Granner, Peter A. Mayes and Victor W. Rodwell (上代淑人監訳)：イラストレイテッド ハーパー生化学、丸善、p.563 (2003)
- 35) I.Skare: Mass Balance and Systemic Uptake of Mercury Released from Dental Amalgam Fillings, Water, Air and Soil Pollution, Vol.80, pp. 59-67 (1995)
- 36) Clarkson TW, Friberg L, Hursh JB, Nylander M.: The prediction of intake of mercury vapor from amalgams In: Clarkson TW, Friberg L, Nordberg GF, Sager PR, editors. *Biological Monitoring of Toxic Metals*. New York: Plenum Press. pp. 247-264 (1988).
- 37) Sandborgh-Englund, G., Elinder, C-G., Johanson, G., Lind, B., Skare, I., and a, J.E. The Absorption, Blood Levels, and Excretion of Mercury after a Single Dose of Mercury Vapor in Humans. *Toxicology and Applied Pharmacology*, Vol.150, pp.146-153 (1998)
- 38) Takahashi, Y., et al.: Release of mercury from dental amalgam fillings in pregnant rats and distribution of mercury in maternal and fetal tissues, *Toxicology*, Vol.163, Nos.2-3, pp.115-126 (2001)
- 39) Vimy, M.J. and F.L. Lorscheider: Serial Measurements of Intra-oral Air Mercury - Estimation of Daily Dose from Dental Amalgam, *Journal of Dental Research*, Vol.64, No.8, pp.1072-1075 (1985).
- 40) WHO, IPCS, Environmental Health Criteria 118 Inorganic mercury (1991)
- 41) Camner, P. and B. Bakke: Nose or Mouth Breathing, *Environmental Research*, Vol.21, No.2, pp.394-398 (1980)
- 42) Gleeson, K., et al.: Breathing Route during Sleep, *American Review of Respiratory Disease*, Vol.134, No.1, pp.115-120 (1986)
- 43) Berglund, A.: Estimation by a 24-hour Study of the Daily Dose of Intraoral Mercury-vapor Inhaled after Release from Dental Amalgam, *Journal of Dental Research*, Vol.69, No.10, pp.1646-1651 (1990)

厚生労働科学研究費補助金
健康安全・危機管理対策総合研究事業

火葬場における有害化学物質の
排出実態調査および抑制対策に関する研究

Ⅱ. 分担研究報告

平成22（2010）年 3月

分担研究報告書 1

火葬場から排出される
ダイオキシン類等の実態調査

研究代表者 武田信生（立命館大学）

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（健康安全・危機管理対策総合研究事業）
 分担研究報告書
 火葬場から排出されるダイオキシン類等の実態調査

研究代表者 武田信生 立命館大学エコテクノロジー研究センター センター長
 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

わが国全体の大気へのダイオキシン類排出量は減少傾向にあるが、火葬場から大気へのダイオキシン類排出インベントリーは、10年前に求めた排出原単位を用いており、死亡人口の増加にともなって増加傾向を示している。「火葬炉から排出されるダイオキシン類削減対策指針」の効果を検証し、最新の排出量を見積るために、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、火葬炉排ガス処理でのダイオキシン類の挙動を明らかにし、現状に即した形での排出抑制対策が求められる。

そこで本研究では、平成19～20年度に実施した11箇所の火葬場における調査に加え、さらなる実態調査を行うことで、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し、「ダイオキシン類削減対策指針」の効果を検証すること、排ガス処理におけるダイオキシン類の挙動を明らかにし、排出抑制対策を検討することを目的とし、比較的新しい火葬場3施設での調査を行った。

各排ガス処理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、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と考えられた。また、熱交換器のないケース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と考えられた。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。

残骨灰中のダイオキシン類の濃度範囲は、毒性等量で0.00000056～0.0068 ng TEQ-WHO₀₆/gであり、これらの値は非常に低いといえ、環境に与える影響は大きくないといえた。一方、集じん灰中のダイオキシン類の濃度範囲は、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。

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%程度まで削減された上、諸外国の排出原単位に比較して低い範囲にあり、「ダイオキシン類削減対策指針」による効果がうかがえた。

平成20年度の火葬炉から大気へのダイオキシン類排出インベントリーを試算した結果、現在の報告値：2.2～4.9 g TEQ-WHO₀₆/年に比較して、1.2～2.8 g TEQ-WHO₀₆/年まで低減されている結果となった。我が国全体の大気へのダイオキシン類排出インベントリーに対する、火葬炉の寄与は、概ね0.54～1.3%程度と試算され低減されてきていた。しかし、欧米諸国と同レベルまでには低減されておらず、火葬数は今後も増加する傾向が予測されることから、排出原単位を下げるということが重要であると考えられた。

火葬炉から大気へのダイオキシン類排出インベントリーの将来予測は、1999年時点での予測では2040年で3.2～7.0 ng TEQ-WHO₀₆/年と試算されていたが、本研究結果からは、今後、死亡者数が増加したとしても、現状を維持すれば、「ダイオキシン類削減対策指針」により、2040年で1.7～4.0 ng TEQ-WHO₀₆/年程度までの増加に抑えられると試算された。

A. 研究目的

1. 研究の背景

わが国の火葬率は、平成19年度で約99.9%であり、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等は、現在のところ大気汚染防止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、火葬場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(以下1999調査)^{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O₂12%換算濃度の毒性等量は0.074～29.2 ng TEQ-WHO₉₈/m³の範囲で、その算術平均値は2.9 ng TEQ-WHO₉₈/m³であることを示し、また、大気へのダイオキシン類排出原単位として、一体の火葬あたり排出されるダイオキシン類の量(算術平均値4,800 ng TEQ-WHO₉₈/体)を明らかにし、これらの調査結果および統計値から、火葬炉から大気へ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「火葬場から排出されるダイオキシン類削減対策指針」(以下、ダイオキシン類削減対策指針)⁵⁾が定められたうえ、大気への排出原単位は、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、一般廃棄物焼却施設からの排出量を主として、わが国全体の大気へ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場からの排出量だけはむしろ増加傾向を示している⁶⁾。しかし、現実には、ダイオキシン類削減対策指針後、火葬場からのダイオキシン類排出量は、古くなった火葬炉の更新、燃焼管理、排ガス処理の高度化により、減少しているものと推測される。ダイオキシン類削減対策指針の効果を検証し、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。

2. 国内外の火葬炉におけるダイオキシン類調査

わが国における火葬炉における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1999調査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ダイオキシン類削減対策指針が設定されたため、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。

海外においては、1990年前半頃から欧州を中心に、火葬炉から排出されるダイオキシン類に関する調査が進められてきている。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ドイツ国内の13の火葬炉において、ダイオキシン類の排出濃度が0.1～14.4 ng I-TEQ/m³_Nの範囲にあることが報告されている¹⁰⁾。この他にJ.Jagerらが、ベルリンの火葬炉のダイオキシン類の平均排出濃度として8.0 ng I-TEQ/m³_Nを報告している¹¹⁾。オランダでは、H.J.Bremmerらが、2種類の形式の異なる火葬炉で、ダイオキシン類の排出濃度が1.6、および3.3 ng I-TEQ/m³_Nであったと報告している¹²⁾。また、イギリスでは、G.H.Eduljeeらが¹³⁾、火葬炉からの平均的な排ガス濃度として46 ng I-TEQ/m³_N (D. Mitchellらの報告値¹⁴⁾)を挙げている。さらに、日本以外のアジア圏では、Lin-Chi Wangらは、台湾において、2ヶ所の火葬炉において排ガス中のダイオキシン類濃度を調査し、2.36 ng I-TEQ/m³_N、および0.322 ng I-TEQ/m³_Nであったとの報告がある¹⁵⁾。

3. 研究の目的

以上のような背景の下で、平成19年度、および平成20年度厚生労働科学特別研究事業において、武田らは、ダイオキシン類削減対策指針前、および後に設置された施設を、計11施設選定し、これらを対象にダイオキシン類、および臭素化ダイオキシン類の排出実態調査を行った(以下2007調査、および2008調査)。その結果、火葬炉における排ガス中ダイオキシン類の濃度は、O₂12%換算濃度で4.7～540 ng/m³_N、毒性等量で0.000053～11 ng TEQ-WHO₀₆/m³_Nの範囲であり、算術平均では0.88 ng TEQ-WHO₀₆/m³_Nであることがわかった。また、臭素化ダイオキシン類は、塩素化ダイオキシン類に比較してその寄与は十分低いことが確認された。これらの調査結果から、ダイオキシン類の大気への排出原単位の算術平均値は1,600 ng TEQ-WHO₀₈/体であり、10年前の調査結果に比較して、約2/5となっておりダイオキシン類削減対策指針による削減効果がうかがえた^{16),17)}。

本研究は、2007～2008調査における11施設での結果に加え、さらに数施設において、ダイオキシン類の大気への排出濃度を測定し、これまでの測定結果とあわせて、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し、ダイオキシン類削減対策指針の効果を検証することを第一の目的とした。具体的には、対象施設として比較的新しい3箇所の火葬場を選定し、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濃度を調べ、得られた結果と2007～2008調査結果を用いて、最新の排出原単位、排出インベントリーを明らかにし、ダイオキシン類削減対策指針以前のデータ、あるいは諸外国での報告値との比較を行って、ダイオキシン類削減対策指針の検証に加え、火葬大国・日本の世界における位置づけを検討した。また、排出インベントリーの将来予測も行った。

次に、各排ガス処理プロセスの前後におけるダイオキシン類濃度を測定し、それらのダイオキシン類除去効果を明らかにすることで、現状に即した排出抑制対策を検討することを第二の目的とした。具体的には火葬炉の排ガス処理における熱交換器、集じん機、触媒装置、活性炭吸着設備等の前後でのダイオキシン類濃度を測定し、それらのダイオキシン類除去効果を明らかにし、排出抑制対策を検討した。さらに、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て、現状を把握し、火葬炉構造との関連性について言及するとともに、火葬灰へのダイオキシン類排出インベントリーを明らかにし、大気へのダイオキシン類排出インベントリーとの比較、およびその将来予測を行った。

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3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～Cで記述する。3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Aは、排気系列が1炉1系列であり、施設B、Cは2炉1系列であった。排ガス冷却方式は、施設Bのみ熱交換器が導入されていたが、その他は空気混合方式であった。集じん機は、全てにバグフィルターが設置され、それぞれの後段に触媒装置、あるいは活性炭吸着設備が設置されていた。

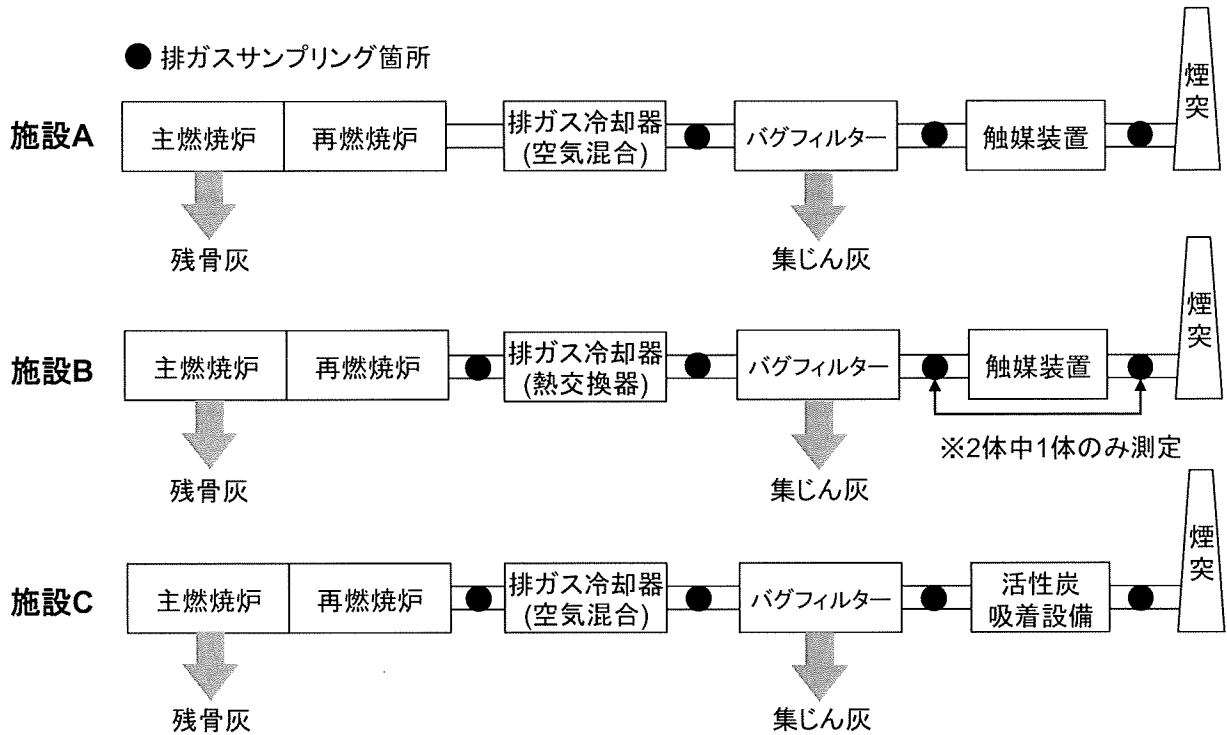
施設を選定するにあたっては、本年度は、排ガス処理プロセスにおけるダイオキシン類の除去効果を明らかにすることを目的の一つとしているため、集じん機や、触媒装置、活性炭吸着設備が設置されているような、ダイオキシン類対策指針後に新設・改造された施設を選定した。結果として、選定した3施設の全てが平成14年以降に新設された施設であった。

表 B.1.1 対象とした火葬場と測定対象

火葬炉	施設A		施設B		施設C	
	再燃焼炉	有	有	有	有	有
主燃焼室・再燃焼室	1:1	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	バグフィルター	バグフィルター	バグフィルター	
集じん機後段の高度排ガス処理	触媒装置	触媒装置	触媒装置	活性炭吸着設備	活性炭吸着設備	
排ガス冷却方式	空気混合	熱交換器＋空気混合	熱交換器＋空気混合	空気混合	空気混合	
排気方式(炉:系列)	強制(1:1)	強制(2:1)	強制(2:1)	強制(2:1)	強制(2:1)	
燃料	天然ガス	都市ガス 13A	都市ガス 13A	都市ガス 13A	都市ガス 13A	
実験番号	A-1	B-1	B-2	C-1	C-2	
火葬日	2009/9/8	2009/11/12	2009/11/12	2009/12/4	2009/12/4	
火葬開始時間	14:24	11:22	14:20	11:15	15:24	
火葬終了時間	15:26	12:07	15:05	12:40	16:25	
火葬時間	1:02	0:45	0:45	1:25	1:01	
火葬遺体数	1	1	1	1	1	
年齢	97歳	86歳	58歳	52歳	69歳	
性別	女性	女性	女性	男性	男性	

2. 測定項目および測定方法

3箇所の火葬場を対象に、1箇所の火葬場につき施設Aでは1体、施設B、Cでは各2体、計5体の火葬に対し、排ガスサンプリングを行った。排ガスサンプリングは同一日に実施した(表B.1.1)。排ガスサンプリング箇所を3施設の火葬場のフロー図とともに、図B.2.1に示した。



図B.2.1 各火葬場のフローとサンプリング箇所

全ての火葬場で、少なくともバグフィルターの前後段、煙突の前段（触媒装置、あるいは活性炭吸着設備の後段）でサンプリングを行うとともに、施設B、Cでは再燃焼炉の後段（排ガス冷却器入口）でサンプリングを行った。なお、施設Bにおけるバグフィルター後段（触媒装置入口）、煙突の前段（触媒装置出口）の2箇所は、サンプリングの都合により2体の火葬のうち最初の1体だけの測定とした。具体的な実施は、各サンプリングポイントにおける測定孔にサンプリングチューブを挿入し実施した。測定口がない場合は工事を行って増設した。

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、ばいじん、一酸化炭素、酸素の濃度を測定した。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」に準拠し行った。サンプリング時間は一火葬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B、Cでは、排気系列が2炉1系列となっているが、この場合、2炉以上は同時

に稼働させず、1炉のみの稼働とした。一酸化炭素、酸素は連続分析計により測定した。また、あらかじめ、各サンプリングポイントにおける排ガス温度を熱電対により測定するとともに、排ガス中水分、流速を測定し、排ガス流量（湿り、乾き）を求めた。

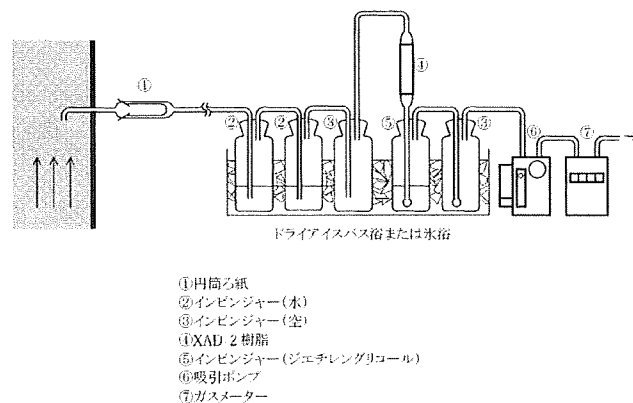
全ての火葬場で、全ての排ガスサンプリングが終了した約1時間後に、残骨灰（収骨後に残った灰の一部）を採取し、さらに、集じん灰（集じん機で捕集された灰）を採取した。これらの固体サンプル中のダイオキシン類濃度は環境省告示80号に基づいて行った。

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)
	ダイオキシン類	JIS K 0311 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

3. 排ガス採取方法

排ガス中の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捕集装置

4. 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チャートを、図B.4.2に集じん灰、残骨灰におけるフローチャートを示した。これらのフローチャート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。

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の分析条件を示した。

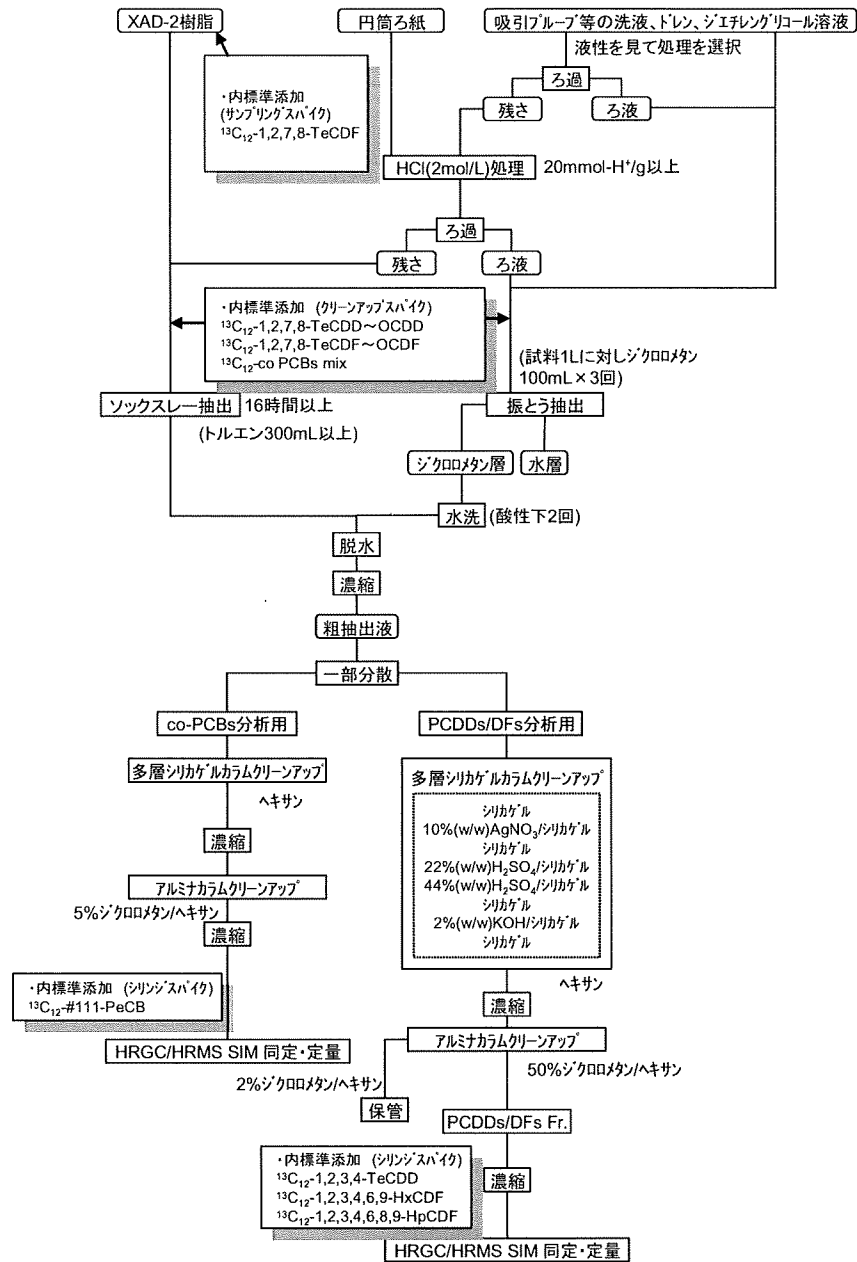


図 B.4.1 排ガス中ダイオキシン類
前処理方法のフローチャート

まず、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^+ 、 $(M+2)^+$ 、 $(M+4)^+$ のイオンの内、各塩化物について測定対象物質と、 $^{13}C_{12}$ -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について、各2つのイオンの面積比率が標準物質とほぼ同じで、塩素原子の同位体存在比から推定されるイオン強度比に対して $\pm 15\%$ 以内（検出下限の3倍以下の濃度では $\pm 25\%$ 以内）のものをPCDDs/DFs、co-PCBsとして同定した。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。

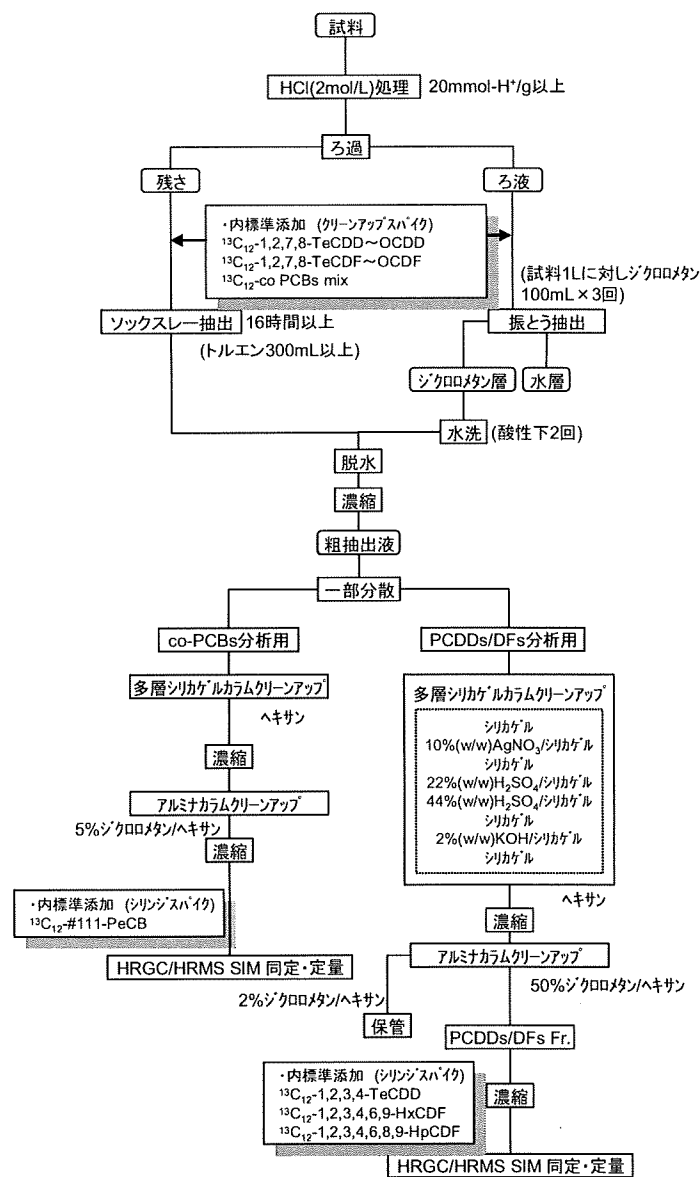


図 B.4.2 集じん灰、および残骨灰中ダイオキシン類前処理方法のフローチャート

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 (1min)	→ 220°C (6°C/min) (0min)	→ 260°C (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 (1min)	→ 200°C (20°C/min) (0min)	→ 250°C (3°C/min) (30min)	→ 300°C (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 (1min)	→ 180°C (20°C/min) (0min)	→ 260°C (2°C/min) (0min)	→ 300°C (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	

同定した各 PCDDs/DFs、co-PCBs 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/DFs 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.4.3、に示した。また、本研究における各試料の検出・定量下限値を表 B.4.4 に示した。濃度が低くなると想定された一部のサンプルについてはサンプリング量を増やし、検出・定量下限値を下げた。

表 B.4.3 ダイオキシン類の分析に用いた標準物質

標準物質		標準物質			
TeCDDs	2,3,7,8-TeCDD	#81	344'5-T4CB	※	
PeCDD	1,2,3,7,8-PeCDD	#77	33'44'-T4CB	※	
HxCDDs	1,2,3,4,7,8-HxCDD	#105	233'44'-P5CB	※※	
	1,2,3,6,7,8-HxCDD	#114	2344'5-P5CB	※※	
	1,2,3,7,8,9-HxCDD	#118	23'44'5-P5CB	※※	
HpCDD	1,2,3,4,6,7,8-HpCDD	#123	2'344'5-P5CB	※※	
OCDD	OCDD	#126	33'44'5-P5CB	※	
TeCDFs	2,3,7,8-TeCDF	#156	233'44'5-H6CB	※※	
PeCDFs	1,2,3,7,8-PeCDF	#157	233'44'5'-H6CB	※※	
	2,3,4,7,8-PeCDF	#167	23'44'55'-H6CB	※※	
HxCDFs	1,2,3,4,7,8-HxCDF	#169	33'44'55'-H6CB	※	
	1,2,3,6,7,8-HxCDF	#170	22'344'55'-H7CB	※※※	
	1,2,3,7,8,9-HxCDF	#180	22'33'44'5-H7CB	※※※	
	2,3,4,6,7,8-HxCDF	#189	233'44'55'-H7CB	※※※	
HpCDFs	1,2,3,4,6,7,8-HpCDF	内標準物質			
	1,2,3,4,7,8,9-HpCDF	#81	¹³ C ₁₂ -344'5-T4CB	※	
OCDF	OCDF	#77	¹³ C ₁₂ -33'44'-T4CB	※	
内標準物質		#105	¹³ C ₁₂ -233'44'-P5CB	※※	
¹³ C ₁₂ -TeCDDs	¹³ C ₁₂ -1,3,6,8-TeCDDs	アルミナカラム分画確認用	#114	¹³ C ₁₂ -2344'5-P5CB	※※
	¹³ C ₁₂ -2,3,7,8-TeCDDs		#118	¹³ C ₁₂ -23'44'5-P5CB	※※
	¹³ C ₁₂ -1,2,3,4-TeCDDs	シリジスハイク	#123	¹³ C ₁₂ -2'344'5-P5CB	※※
¹³ C ₁₂ -PeCDDs	¹³ C ₁₂ -1,2,3,7,8-PeCDDs		#126	¹³ C ₁₂ -33'44'5-P5CB	※
	¹³ C ₁₂ -HxCDDs		#156	¹³ C ₁₂ -233'44'5-H6CB	※※
¹³ C ₁₂ -HxCDDs	¹³ C ₁₂ -1,2,3,4,7,8-HxCDDs		#157	¹³ C ₁₂ -233'44'5'-H6CB	※※
	¹³ C ₁₂ -1,2,3,6,7,8-HxCDDs		#167	¹³ C ₁₂ -23'44'55'-H6CB	※※
	¹³ C ₁₂ -1,2,3,7,8,9-HxCDDs		#169	¹³ C ₁₂ -33'44'55'-H6CB	※
¹³ C ₁₂ -HpCDDs	¹³ C ₁₂ -1,2,3,4,6,7,8-HpCDDs		#170	¹³ C ₁₂ -22'344'55'-H7CB	※※※
¹³ C ₁₂ -OCDD	¹³ C ₁₂ -OCDD		#180	¹³ C ₁₂ -22'33'44'5-H7CB	※※※
¹³ C ₁₂ -TeCDFs	¹³ C ₁₂ -1,3,6,8-TeCDDs	アルミナカラム分画確認用	#189	¹³ C ₁₂ -233'44'55'-H7CB	※※※
	¹³ C ₁₂ -1,2,7,8-TeCDDs	サンプリングスハイク	#111	¹³ C ₁₂ -233'55'-H5CB	シリジスハイク
	¹³ C ₁₂ -2,3,7,8-TeCDDs		※	non-ortho-PCBs	
¹³ C ₁₂ -PeCDFs	¹³ C ₁₂ -1,2,3,7,8-PeCDFs		※※	mono-ortho-PCBs	
	¹³ C ₁₂ -2,3,4,7,8-PeCDFs		※※※	di-ortho-PCBs	
¹³ C ₁₂ -HxCDFs	¹³ C ₁₂ -1,2,3,4,7,8-HxCDDs				
	¹³ C ₁₂ -1,2,3,6,7,8-HxCDDs				
	¹³ C ₁₂ -1,2,3,4,6,9-HxCDDs	シリジスハイク			
	¹³ C ₁₂ -1,2,3,7,8,9-HxCDDs				
¹³ C ₁₂ -HpCDFs	¹³ C ₁₂ -2,3,4,6,7,8-HxCDDs				
	¹³ C ₁₂ -1,2,3,4,6,7,8-HpCDDs				
	¹³ C ₁₂ -1,2,3,4,6,8,9-HpCDDs	シリジスハイク			
¹³ C ₁₂ -OCDF	¹³ C ₁₂ -1,2,3,4,7,8,9-HpCDDs				
	¹³ C ₁₂ -OCDF				

表 B.4.4 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/DFs	4-5塩素化物	0.008(0.002)	0.002(0.0008)	0.0008	0.0002
	6-7塩素化物	0.02(0.005)	0.005(0.002)	0.002	0.0005
	8塩素化物	0.04(0.01)	0.01(0.004)	0.004	0.001
co-PCBs		0.02(0.005)	0.005(0.002)	0.002	0.0005

()内の値は、ダイオキシン類濃度が低くなると想定されたサンプルについて、サンプリング量を増加させ、定量・検出下限値を下げた値。

(倫理面への配慮)

火葬現場での測定を伴う研究であり、火葬される遺体や遺族の尊厳を尊重し、慎重な対応により、実態調査を行った。

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。2006年にWHOにより毒性等価係数の見直しがなされWHO2006-TEFが決定されており、日本においても、WHO2006-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月から施行された¹⁸⁾。したがって、本研究で得られたダイオキシン類の毒性等量は、WHO2006-TEFを用いて算出した(付録資料1)。

調査結果の一覧を表C.1に示した。排ガス組成として、ばいじん濃度、CO(平均値)については、すべてO₂12%換算値で示した。

1. 排ガス中ばいじん濃度

ばいじん濃度について、各施設における排ガス処理による除去率 $Rd(\%)$ を以下の式で定義し、表C.1.1に示した。

$$Rd = \left(1 - \frac{Cd_{out}}{Cd_{in}} \right) \cdot 100 \quad (C.1.1)$$

ただし、 Cd_{in} :各排ガス処理プロセスに流入するばいじん濃度(O₂:12%換算)

Cd_{out} :各排ガス処理プロセスから流出するばいじん濃度(O₂:12%換算)

表C.1 測定結果一覧

項目	火葬 時間	排ガス 温度	排ガス 流量		ダイオキシン類 (PCDDs/DFs+co-PCBs)				集じん灰				ばいじん	CO	O ₂
			湿り	乾き	排ガス		残骨灰		集じん灰						
					実測濃度	O ₂ 12% 換算濃度	実測濃度	毒性等量	実測濃度	毒性等量					
単位	分	°C	m ³ /h	m ³ /h	ng/m ³	ng/m ³	ng/m ³	ng TEQ-WHO ₀₆ /m ³	ng/m ³	ng TEQ-WHO ₀₆ /g	ng/m ³	ng TEQ-WHO ₀₆ /g	g/m ³	ppm	%
A	A-1-BF前	180	9,480	9,060	6.65	33.8	0.095	0.000033	0.040	0.000033	3.1	0.047	0.090	<3	19.2
	A-1-BF後	162	21,200	20,400	0.97	4.93	0.021						<0.005	<6	19.2
	A-1-SCR後	125	6,960	6,610	0.93	4.23	0.056						<0.005	<8	19.0
B	B-1-再燃後	45	825	3,000	3.77	3.0	0.038	0.0068	0.64	0.0068	419	6.3	0.055	17	9.7
	B-1-BF前	196	1,150	1,070	34.5	60.7	1.2						0.099	<10	15.9
	B-1-BF後	134	2,650	2,470	47.1	86.9	1.8						<0.002	9	16.2
	B-1-SCR後	103	2,930	2,730	3.26	6.4	0.12						<0.002	8	16.5
	B-2-再燃後	45	780	3,120	2,730	18.4	16.2	0.25					0.054	<10	10.9
	B-2-BF前	199	1,150	1,080	73.8	158	3.2						0.180	<10	16.8
C	C-1-再燃後	85	635	-	39.8	44.0	0.84	0.0000056	0.024	0.0000056	71	1.5	0.090	46	12.9
	C-1-BF前	151	6,290	5,980	2.49	12.6	0.12						0.110	<30	19.3
	C-1-BF後	130	-	-	1.73	9.79	0.051						0.023	38	19.4
	C-1-AC後	88	16,900	16,300	1.27	6.70	0.049						0.032	40	19.3
	C-2-再燃後	61	526	-	91.2	155	3.5						0.087	430	15.5
	C-2-BF前	164	7,600	7,430	10.4	61.8	1.1					0.072	250	19.5	
	C-2-BF後	142	-	-	3.75	28.5	0.33					<0.008	240	19.8	
	C-2-AC後	130	19,800	19,200	5.23	34.1	0.17					<0.007	270	19.6	

再燃：再燃焼炉、BF：バグフィルター、AC：活性炭吸着設備、SCR：触媒装置
ばいじん、COについてはO₂12%換算値

まず、表 C.1 から、それぞれの施設煙突手前に相当する A-1-SCR 後、B-1-SCR 後、C-1-AC 後、および C-2-AC 後におけるばいじん濃度は $0.032 \text{ g/m}^3_{\text{N}}$ 以下であり、比較的 low に保たれていた。特に C-1-AC 後を除いては、定量下限値以下であり、少なくとも $0.007 \text{ g/m}^3_{\text{N}}$ 以下に除去されていた。

次に、表 C.1.1 から各排ガス処理プロセスにおけるばいじん除去率をみると、バグフィルターにおいては、ばらつきがあるが、少なくとも 79% 以上の除去率が確保できていることがわかった。排ガス冷却器においては、施設 C の空気混合のケースでは、ばいじんの増減がそれほどみられないが、施設 B の熱交換器の場合は、-80%、-233% となり、大きく増加している傾向が見られた。熱交換器は、その構造が複雑でばいじんが堆積しやすく、サンプリング調査時まで堆積したばいじん、あるいは熱交換器表面の材質が剥離し、後段に飛散したため、結果的に、濃度が増加したことによるものと考えられる。触媒装置あるいは活性炭吸着設備の場合は、活性炭吸着設備のみのデータであるが、1 回目において、わずかに濃度が増加する傾向が見られた。通常、活性炭吸着塔でばいじん濃度が増加することは考えにくく、2 回目では定量下限値以下であり、大きく増加する傾向は見られていないことから、粉末状の活性炭が吸着設備出口側にわずかに飛散し、ばいじんとして測定された結果、濃度が高くなった可能性がある。

表 C.1.1 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<	—

“—” 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。

2. 排ガス中 CO 濃度

表 C.1 より、CO に関しては、各施設で値は異なり、特に施設 C では 1 回目が約 40ppm であったのに対し、2 回目は 250～430ppm と大きく変動した。今回選定した火葬場は比較的新しい施設であったが、施設 C の 2 回目のデータは高い値であるといえ、CO には、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。欧州の都市ごみ焼却炉においては、CO の排ガス規制値が設けられており、国にもよるが、概ね 11%O₂ 換算で 50～100 mg/m³_N 程度である¹⁹⁾。これは 12%O₂ 換算で、約 36～72ppm に相当する。施設 C での 2 回目の

データはこの値を大きく超えているとともに、2007～2008 調査においても、これらの基準を明らかに超えていたデータが、22 件中6件存在した^{16), 17)}。火葬炉は、都市ごみ焼却炉に比較して規模が小さいため、排ガス中のCO濃度が高くなる傾向は、施設構造上免れ得ないが、COは不完全燃焼の1指標であるとともに、ダイオキシン類濃度との相関性もある程度認められることから、できるだけ低く保つことが望ましいと考えられる。

また、各施設における、排ガス処理プロセスそれぞれのCO濃度に対する影響はあまりみられなかった。

3. 排ガス中のダイオキシン類濃度

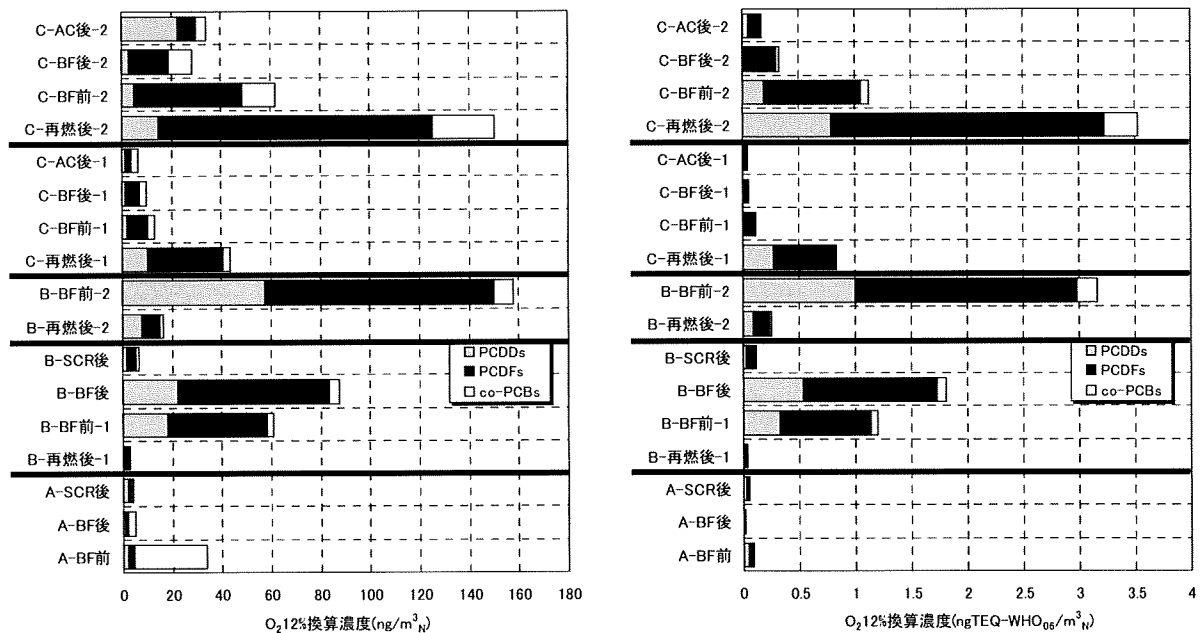
各施設における、排ガス中のダイオキシン類濃度と、その毒性等量を図C.3.1に示す。また、ダイオキシン類濃度について、各施設における排ガス処理による除去率 R_{DXN} (%)を以下の式で定義し、表C.3.1に示した。

$$R_{DXN} = \left(1 - \frac{C_{DXN\ out}}{C_{DXN\ in}} \right) \cdot 100 \quad (C.3.1)$$

ただし、 C_{DXNin} :各排ガス処理プロセスに流入するダイオキシン類濃度(O₂:12%換算)

C_{DXNout} :各排ガス処理プロセスから流出するダイオキシン類濃度(O₂:12%換算)

まず、表C.1から、各施設における煙突手前(A-1-SCR後、B-1-SCR後、C-1-AC後、C-2-AC後に対応)における排ガス中のダイオキシン類濃度は、O₂12%換算濃度で4.23～34.1 ng/m³_N、毒性等量で0.021～0.17 ng TEQ-WHO₀₆/m³_Nの範囲であった。



図C.3.1 各施設における排ガス中ダイオキシン類の濃度と毒性等量

表C.3.1 各排ガス処理プロセスでのダイオキシン類除去率(%)

	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		85(78)	14(-167)
B-1	-1900(-3100)	-43(-50)	93(93)
B-2	-880(-1200)		
C-1	71(86)	22(58)	32(3.9)
C-2	60(69)	54(70)	-20(48)

斜線部分は前後のダイオキシン類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。
()内の値は、毒性当量としての除去率を示す。

それぞれ算術平均では $12.7 \text{ ng/m}^3_{\text{N}}$ 、 $0.1 \text{ ng TEQ-WHO}_{06}/\text{m}^3_{\text{N}}$ 、中央値で $6.56 \text{ ng/m}^3_{\text{N}}$ 、 $0.09 \text{ ng TEQ-WHO}_{06}/\text{m}^3_{\text{N}}$ 、幾何平均で $8.88 \text{ ng/m}^3_{\text{N}}$ 、 $0.086 \text{ ng TEQ-WHO}_{06}/\text{m}^3_{\text{N}}$ となった。最も高かったのは、施設Cの2回目で $34.1 \text{ ng/m}^3_{\text{N}}$ 、 $0.17 \text{ ng TEQ-WHO}_{06}/\text{m}^3_{\text{N}}$ 、最も低かったのは施設Aの $4.23 \text{ ng/m}^3_{\text{N}}$ 、 $0.056 \text{ ng TEQ-WHO}_{06}/\text{m}^3_{\text{N}}$ であった。平成12年に提示されたダイオキシン類削減対策指針における新設炉における指針値は $1.0 \text{ ng TEQ-WHO}_{06}/\text{m}^3_{\text{N}}$ で⁹⁾、これらの施設ではその値を大幅に下回る結果となった。施設A～Cはダイオキシン類削減対策指針後に設置された比較的新しい施設であり、集じん機としてバグフィルターが設置された上、施設A、Bでは触媒装置、施設C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。

次に、表C.3.1から各排ガス処理プロセスにおけるダイオキシン類除去率をみると、まず、施設Aにおいては、バグフィルターによるダイオキシン類除去率は85%、毒性当量で78%であり、これによりダイオキシン類がある程度除去されている傾向が伺えた。しかし、後段の触媒装置においては、ダイオキシン類除去率は14%程度であり、毒性当量では-167%となり逆に毒性が増加する傾向が見られた。施設A、Bで使用されている触媒は V_2O_5 系触媒であり、脱硝性能とともに、ダイオキシン類分解能を有するが、触媒入口のダイオキシン類濃度が極端に低い場合など、逆にダイオキシン類が生成され、触媒出口でのダイオキシン類が増加する可能性があることが指摘されている²⁰⁾⁻²²⁾。施設Aでは触媒入口のダイオキシン類濃度が $0.021 \text{ ng TEQ-WHO}_{06}/\text{m}^3_{\text{N}}$ であり、施設Bにおける同じ地点の濃度の1.1%程度に過ぎなかった。触媒によりダイオキシン類が増加する条件は明確ではないが、施設Aでは同様の現象が生じている可能性が考えられた。

施設Bにおいては、排ガス冷却器としての熱交換器部分で、ダイオキシン類除去率は-880～-1,900%、毒性当量として-1,200～-3,100%となり、熱交換器でダイオキシン類が大きく増加している傾向が見られた。C.1にて述べたように、この熱交換器部分でのばいじ