

図 B.2.5 各火葬場のフローと排ガス中クロムのサンプリング箇所

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 体のみでの測定とした。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.2.3 に示した。本調査においては、排ガス中のクロム以外に、ばいじん、酸素の濃度を測定した。排ガス中のクロムの測定は、公定法がないため、JIS Z 8808 におけるばいじんの測定と同様に、円筒ろ紙に、排ガス試料を採取した後、ろ紙を過塩素酸・硝酸による酸分解を実施して、ろ過した液を ICP 発光分析することにより実施した。具体的な測定フローを図 B.2.6 に示した。

表 B.2.3 測定方法

測定項目	測定方法
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
O ₂	JIS K 0301 ジルコニア方式（連続分析）
クロム	ばいじん濃度測定方法と同様にサンプリングし、円筒ろ紙を硝酸・過塩素酸で酸分解し、ICP発光分析

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。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。

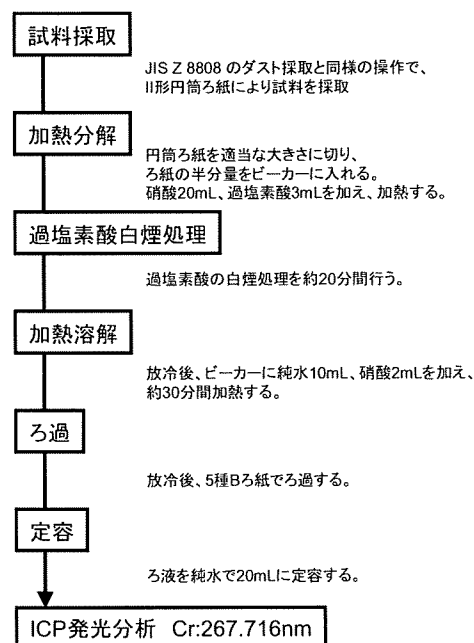


図 B.2.6 排ガス中クロムの分析方法

2.4 残骨灰、および集じん灰中の水銀、クロムの調査

残骨灰、集じん灰の水銀、クロムの調査に関しては、施設A~C、全ての火葬場で、上記の排ガス中クロムの測定における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、および集じん灰を採取した(図B.2.4)。

まず、残骨灰については廃棄物ではなく、必ずしも最終保管場所が周辺環境への影響を考慮されているかどうかはわからないため、土壤汚染対策法に基づいた溶出試験、含有量試験で評価した。具体的には、採取した火葬灰に対して、土壤対策基本法の環境省告示18号に基づく溶出量試験と環境省告示19号に基づく含有量試験を行い、溶出量および含有量を評価した。測定対象は水銀、六価クロムとした。全ての溶出量試験においては検液のpHを測定した。

また、あらかじめサンプリングした試料の元素分析を行い、キャラクタリゼーションを実施した。元素組成は主たる元素については、蛍光X線分析、重金属についてはICP発光分析、および水銀については、加熱気化法により測定した。特に火葬灰中のクロムについては、その形態を推定するために、X線吸収微細構造(XAFS)を測定した。

最後に、火葬灰中のクロム源を探索するため、クロム源としてステンレス粉を加えた模擬灰を作成し、管状炉で加熱実験を行い、土壤汚染対策法に基づいた溶出試験、含有量試験を実施するとともに、Crの形態変化をXAFS測定にて評価した。以下に各測定の詳細を示す。

(1) 蛍光X線分析法 (XRF)

蛍光X線分析は測定装置内の真空試料室で試料に管球からの蛍光X線を照射し、試料から発生する蛍光X線を複数の分光結晶を用いて分光し、試料中に含まれる元素組成を定量するものである。

本実験では走査型蛍光X線分析装置(リガク製:ZSX PrimusII)を使用した。試料は高速振動試料粉碎機(島津製作所製、TI-1100、容器はタングステンカーバイド製)により2分間乾式粉碎し、粉末状にしたものをアルミキャップ(39.7mmφ×11.3mmH)にとり、ブリケットプレス機(島津製作所製MP-35)によりシリンダ内圧140kgf/cm²(表示35t)、加圧時間10秒で成型したものを測定した。本研究では、蛍光X線分析法の測定対象元素である元素番号4のBe(ベリリウム)から元素番号92のU(ウラン)までを100%として規格化して構成比を算出するFundamental Parameter法(FP法)により濃度を換算した。測定は各試料につき、2回おこない、これを平均した値を採用した。

(2) ICP 発光分析法 (ICP - AES)

ICP発光分析法は、高周波誘導結合アルゴンプラズマを光源とした発光分析法であり、ネブライザーで霧状にした溶液試料を、アルゴンのキャリアーガスでプラズマ中に送り込むことで、試料中の原子を励起し発光した原子スペクトルの波長データから定性分析を、また標準溶液を測定して得られた検量線との比較から定量分析をおこなう方法である。

ICP-AES分析による元素組成分析の前処理である試料の溶液化には、マイクロウェーブ抽出装置(CEM製、MARS5)を用いて以下に示す条件で抽出をおこなった。100mgの試料に対して5mLのフッ化水素酸、3mLの硝酸、2mLの塩酸の混酸を用い1,240kPa(180psi)、15minの条件で溶解させた後、フッ化水素酸のマスキングのために飽和ホウ酸溶液30mLを加え、再度マイクロウェーブ抽出装置で690kPa、5minの条件で加熱し、最後に孔径が0.2μmのメンブランフィルターで吸引ろ過した。

測定はICP発光分析装置(Thermo Electron社製:ICP IRIS Intrepid Duo)を使用し、5点検量線によるイットリウム(Y)固定内標準法により定量分析をおこなった。測定元素は、Fe、Ni、Cu、Cd、Mn、Pb、Znとし、あらかじめ、内標準元素として標準試料溶液、実試料溶液のすべてにYを、5mg/Lの濃度となるように添加し、1mol/Lの硝酸で100mLにメスアップしたものを試料とした。1試料につき2回測定し平均値を求めた。

(3) 加熱気化水銀測定

灰サンプル中の水銀濃度測定には加熱気化水銀測定専用装置(日本インスツルメンツ社製:マーキュリー/SP-3D)を用いて測定を行った。この装置は試料前処理装置と水銀検出

装置から構成されており、加熱気化させた水銀の捕集法として金アマルガム法、検出法として冷原子吸光法を用いて測定を行っている。測定は1サンプルにつき少なくとも2回は測定を行い、その平均値を結果とした。

(4) X線吸収微細構造 (XAFS)

(a) 測定原理¹²⁾

原子にX線があたると、弾性散乱(Thomson散乱)、回折、非弾性散乱(コンプトン散乱、ラマン散乱)といった現象が観察される。これらのうち内殻電子励起に伴うエネルギー損失であるラマン散乱を利用した測定法が、X線吸収分光(XAS; X-ray Absorption Spectroscopy)である。X線吸収スペクトルは、図B.2.7(a)のように、内殻準位での急激な立ち上がりと以降の緩やかな減衰を繰り返す。このうち、各吸収端付近の微細構造をX線吸収微細構造(XAFS)と呼ぶ(図B.2.7(b))。

低エネルギー側から高エネルギー側へとエネルギーを徐々に変化させながらX線を対象元素に照射すると、元素固有の波長で急激に吸収が起こり(このときのX線のエネルギーを特性吸収端と呼ぶ)、それより短い波長側(高エネルギー側)にかけてゆっくりと減少する。本研究で対象元素としたCrのK殻における特性吸収端は5,989eVである。吸収端近くに現れる比較的鋭い吸収をX線吸収端微細構造(XANES: X-ray absorption near edge structure)と呼ぶ。それよりも高エネルギー側で1000eVの広い範囲にわたって周期的吸収が出現する。この吸収が広域X線吸収微細構造(EXAFS: extended X-ray absorption fine structure)である。この2つを総称してXAFS(X-ray absorption fine structure)という。

X線のエネルギーが対象原子のK殻、L殻の電子を飛び出させるに十分な値より大きくなると、X線は共鳴吸収され光電子が球面波として放出される。吸収原子から直接放出される球面波(直接波)と、その波が周辺の原子(散乱原子)により散乱される散乱波との間に干渉が起こり、吸収端から高エネルギー側約50-1,000eVの領域に、この干渉に由来するEXAFSの振動が観測される。

一方、吸収端から約50eV以内に観測される鋭い振動がXANESである。この領域では光電子の運動エネルギーが小さいため、光電子は周囲の原子から強い散乱を受け、直接波と

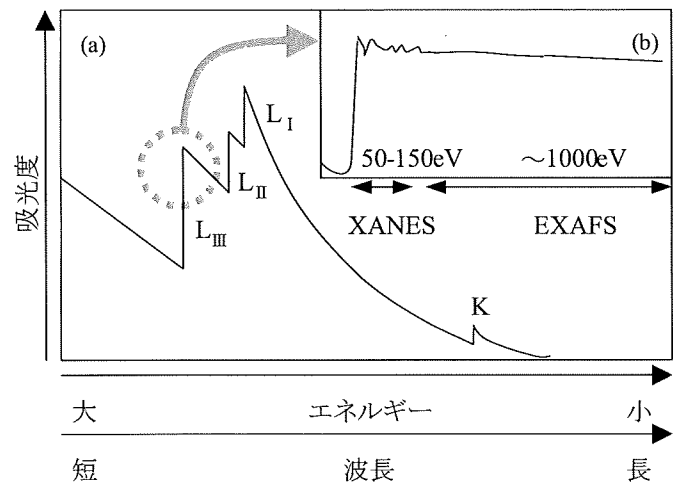


図 B.2.7 X線吸収スペクトル模式図

多重散乱波との干渉が重要になる。また、XANESは内殻電子がフェルミレベル近傍の空準位に励起される過程に対応するため、吸収原子の電子状態に関する情報を含んでいる。

(b) 測定施設の概要

本研究のXAFS測定は(財)高輝度光科学研究センターのSPring-8(Super Photon ring-8GeV)内のビームラインBL01B1、および高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所放射光利用施設Photon FactoryのビームラインBL-12Cにおいて行った。SPring-8での代表的な測定条件を、表B.2.4に示す。SPring-8における蓄積リングの電子のエネルギーは8GeVであり、臨界エネルギーは28.9keV、Photon Factoryにおける蓄積リングの電子のエネルギーは2.5GeV、臨界エネルギーは4keVである。

表B.2.4 灰中クロムのXAFS分析条件

Element	Cr
Edge	K
Monochromator	Si(111)
Mirror (mrad)	5.5
Initial angle (deg)	20.04231
Final angle (deg)	18.02647
Step (deg)	0.001-0.06141

(c) 測定条件とサンプル準備

本研究では、サンプル上流および下流の電離箱(ionization chamber)でのカウントの比を用いる透過法、光源と90°の向きに設置したライトル検出器(Lytle detector)または19素子Ge半導体検出器(SSD, Solid State Detector)を用いた蛍光法の2法を用いた。基本的に標準試料は透過法、Crとして1wt%を含む模擬試料(後述)はライトル検出器を用いた蛍光法、火葬灰は19素子SSDを用いた蛍光法によって測定した。透過法用サンプルは、吸収係数調整用の窒化ホウ素BNを加えめのう鉢でよく混合し、FT-IR用の錠剤機でディスク状に成形後、ポリエチレンバックに入れて作成した。ディスク中の試料量は、サンプルの元素組成から目的元素の吸収端直前直後のX線吸収(μt : 吸収係数 μ と試料厚さ t の積)を算出し、 μt が3-4以下の範囲で $\Delta \mu t$ が1に近づくように設定した。ディスク重量は、およそ100-200mgであった。蛍光法用のサンプルはめのう鉢で粉碎後、ポリエチレンバックに入れて作成した。サンプル重量は、およそ300-1000mgであった。

(d) 解析

火葬灰ではEXAFS領域の微細振動はノイズが多く解析が不可能であったため、XANES解析のみを行った。計測されたX線吸収スペクトルには、注目している核電子による吸収以外に、他の元素や他の核電子による吸収などが含まれるため、まずこれらを除去する必要がある。この「バックグラウンド除去」は、吸収端よりも低いエネルギー側(pre-edge)の区間を選んで適当な式で表し、吸収端より高エネルギーの領域へ外挿したものを差し引くことにより行う。次に対象となるスペクトルを定量的に扱うため「規格化」を行い、およそ吸収端後50eV前後の高さを1とする。

こうして得た測定試料のスペクトルを標準試料のスペクトルと比較し、測定試料のスペ

クトルが標準試料のスペクトルの和によって表されると考え、指紋的な解析(パターンフィッティング)を行った。以上の解析は、XAFS解析用ソフトREX-2000 Ver.2.5(理学電機社製)を用いて行った。

(5) 模擬火葬灰の加熱実験

(a) 模擬火葬灰の作成

模擬火葬灰は、主成分と考えられる SiO_2 、 Al_2O_3 、 CaO の混合物を母材(Base matrix)として、それぞれ40.4、19.2、40.4wt%となるように混合した(CaO/SiO_2 :塩基度=1.0)。これに、Cr化合物としてステンレス粉(SUS303L)を添加した、Cr化合物添加量については、化学的挙動をより明確に測定できるように、Crとして、1wt%とした。

(b) 加熱条件

加熱温度は火葬炉の主燃焼炉内の温度を想定して、 800°C 、 1000°C とし、さらに低い 700°C の3条件とした。雰囲気ガスは O_2 10%+ N_2 balanceとした。加熱処理時間は、平均的な火葬時間を想定し、60minとした。

(c) 実験方法

本実験では熱処理実験に管状炉を使用した。管状炉は処理できる試料量は少ないが雰囲気ガスの制御、急熱・急冷処理が可能である。

管状炉は光洋サーモシステム製のチューブ炉KTF-045(炉長650mm)を用い、直径40mm、長さ1100mmの石英管を挿入して使用した。容器は相互理化学硝子製作所製のボート(20 \times 15 \times 100mm)を用い、ボート1個あたり約4-5gの試料を入れて飛散防止のため軽く表面を押さえ、1条件につきボート1個を石英管に挿入した。雰囲気ガスは50ml/minで石英管に導入した。ガスの出入りがなく雰囲気を正確に制御し、かつ急熱・急冷処理を行うために管状炉自体を移動させ、試料を加熱する方法をとった。このとき、管状炉の移動開始からの時間を加熱保持時間と定義した。また、移動開始から設置地点が所定温度まで昇温するのに約5分要した。以下に加熱方法を記す。

管状炉の昇温前に石英管内の雰囲気を置換するため、30分間ガスを流した。このとき、試料ボートは石英管内部で、かつ管状炉の炉外にあらかじめ設置した。管状炉を所定温度まで加熱した後、ボートが位置する石英管が、炉に入るように炉本体を移動させ所定時間加熱した。炉の昇温中に、試料設置場所も数十度の温度上昇がみられたが、加熱温度に比べて影響を無視できる範囲であると考えた。加熱後、急冷するため再びボートが炉外に出るように管状炉を移動させ、蓋を開けた状態で30分放置した。このとき、排ガスは1N硝酸トラップを通して揮発した重金属の回収を行った。実験装置の概要を図B.2.8に示す。

加熱後のサンプルは、土壌対策基本法の環境省告示18号に基づく溶出量試験と環境省告

示19号に基づく含有量試験を行い、六価クロムの溶出量および含有量を評価するとともに、XAFS測定を実施し、クロムの形態変化を調査した。

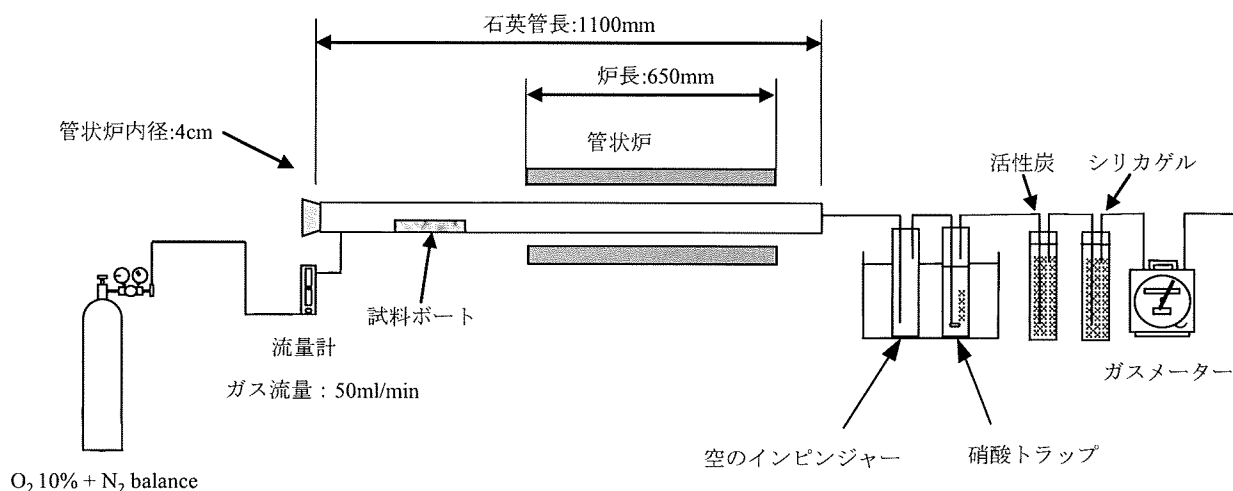


図 B.2.8 模擬火葬灰加熱実験装置

以上の火葬灰の分析方法について、具体的な測定対象と、測定項目、分析方法を、表 B.2.5、表 B.2.6 に示す。

表 B.2.5 灰中水銀、クロムを主たる対象とした分析対象と分析項目

火葬場	施設A	施設B	施設C
灰中の元素組成分析(XRF、ICP、Hg)	残骨灰	残骨灰 集じん灰	残骨灰 集じん灰
灰中六価クロム含有量・溶出量調査	残骨灰 集じん灰	残骨灰 集じん灰	残骨灰 集じん灰
灰中水銀含有量・溶出量調査	集じん灰	集じん灰	集じん灰
灰中のCrの形態推定(XAFS)	残骨灰	残骨灰 集じん灰	残骨灰 集じん灰

表 B.2.6 灰中水銀、クロムを主たる対象とした分析方法

対象	測定項目	測定方法
残骨灰、 集じん灰	水銀	環境省告示18、19号に規定される溶出量試験、含有量試験
	六価クロム	溶出量試験では検液のpHも測定
	全クロム	酸分解－フッ酸処理＋ICP発光分析 (Thermo Electron社製:ICP IRIS Intrepid Duo)
	全水銀	加熱気化法(日本インスツルメンツ社製:マーキュリー/SP-3D)
	その他灰中元素	蛍光X線分析(リガク製:ZSX PrimusII)、 ICP発光分析(Thermo Electron社製:ICP IRIS Intrepid Duo)
	灰中クロムの形態	XAFS測定(SPring-8:BL01B1、およびPhoton Factory:BL-12C)

(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. 実験結果および考察

1. 排ガス中水銀の排出濃度、および挙動調査

1.1 各排ガス処理プロセスにおける水銀の挙動

まず、水銀の排ガス処理プロセスでの挙動調査を3つの施設で実施したが、施設A～Cの全ての施設にてバグフィルター前後での水銀の挙動を、施設Bでは触媒装置前後での水銀の挙動を、および施設Cでは、活性炭吸着設備における水銀の挙動を調査した。

(1) バグフィルター

表C.1.1に施設A～Cにおけるバグフィルター前後での水銀の挙動を水銀連続分析計で測定した結果を示す。なお、水銀濃度は O_2 12%換算して示し、バグフィルター前後での濃度変化から除去率を Hg^0 、 Hg^{2+} について算出した。

表における除去率に着目すると、まず施設Aにおいては、 Hg^{2+} の除去率が高く52～100%であり、 Hg^0 についてはほとんど除去できない結果となった。したがって、総水銀濃度の除去率は排ガス中の Hg^0 と Hg^{2+} の比率に依存する傾向が見られた。都市ごみ焼却排ガス中の水銀は、バグフィルターおよびそこに堆積した飛灰層により酸化・還元反応を伴って塩

表 C.1.1 バグフィルター前後での排ガス中水銀濃度測定結果

	IN ($\mu g/m^3_N$)			OUT ($\mu g/m^3_N$)			除去率(%)		
	Hg0	Hg2+	総水銀	Hg0	Hg2+	総水銀	Hg0	Hg2+	総水銀
施設A	0.4	4.5	5.0	0.7	0	0.7	-56	100	86
	0.3	0.9	1.2	0.4	0	0.4	-12	100	69
	8.3	0.5	8.7	8.6	0	8.6	-4	100	1
	1.8	2.1	3.9	99.7	1.0	100.7	-5437	52	-2481
施設B	8.2	0.1	8.3	0.5	0.3	0.8	93	-240	90
	6.1	0.2	6.3	0.9	0.6	1.5	85	-212	76
	21.3	3.4	24.7	12.4	0.7	13.1	42	78	47
	5.7	6.9	12.6	0.9	0.8	1.7	84	89	87
	5.0	1.9	6.9	0.5	0.8	1.3	90	58	81
	3.6	2.1	5.7	2.6	1.1	3.7	26	49	35
	6.4	2.5	8.9	1.1	1.0	2.1	83	60	76
	7.0	0.5	7.5	0.4	0.9	1.4	94	-76	82
	8.8	1.2	10.0	3.0	0.7	3.8	65	40	62
	6.8	1.3	8.1	1.3	0.4	1.7	80	71	79
施設C	25.1	3.0	28.0	12.1	0.7	12.7	52	77	55
	3.0	2.3	5.3	46.2	2.9	49.1	-1426	-25	-824
	3.7	4.5	8.2	24.1	8.9	32.9	-546	-96	-299
	3.1	4.0	7.1	18.1	6.6	24.7	-493	-65	-251
	3.4	3.2	6.6	25.5	5.5	31.0	-658	-70	-370
	3.6	3.6	7.2	17.7	5.4	23.1	-396	-50	-222
	119.0	3.5	122.5	217.9	4.6	222.5	-83	-33	-82
	1.7	3.1	4.7	22.1	4.3	26.4	-1220	-39	-456
15.2	2.6	17.9	50.5	6.3	56.8	-232	-137	-218	

※ 水銀濃度は全て O_2 12%換算

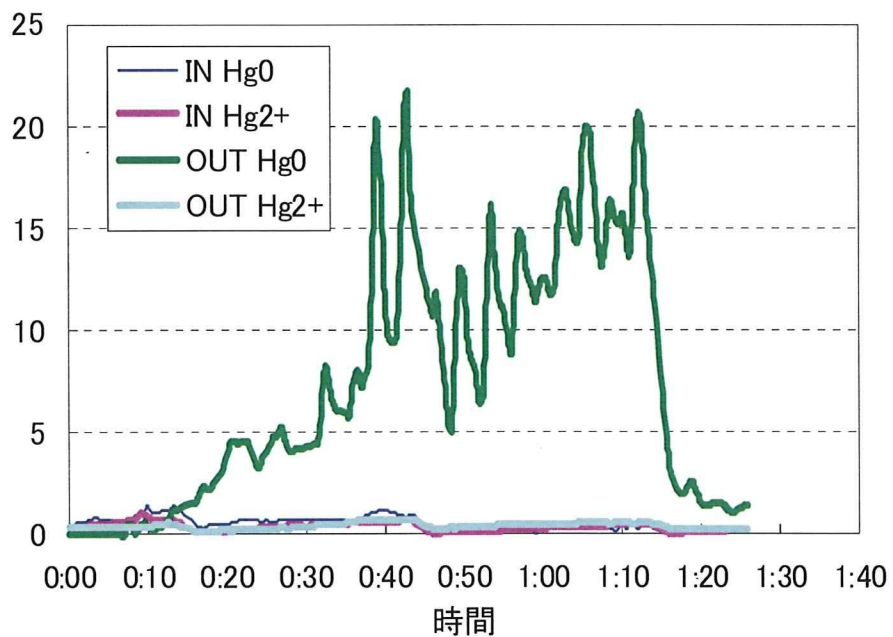
化第一水銀や、オキシ塩化第二水銀として吸着除去されるとされ、この結果は、これまでの都市ごみストーカ炉からの飛灰を集じんするバグフィルターの傾向と類似した傾向であった¹³⁾。

また、4つ目の検体では、バグフィルター後の Hg^0 濃度が $99.7 \mu\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$ と極端に高いが、このケースは、火葬開始後約10分で $770 \mu\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$ 程度の非常に高濃度を示しており、典型的な歯科アマルガムによるピークが生じていた。しかし、このピークはバグフィルター前では見られなかった。この原因としては、火葬時間の開始から終了まで連続分析は継続しており、バグフィルター部分における排ガスのタイムラグによるとは考えにくい。2008年調査においても、火葬排ガス中の水銀測定において、JIS法と連続分析法の比較を実施した際、一部の施設において、JIS法では比較的高濃度の $24 \mu\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$ と検出されていたが、連続分析法では $0.9 \mu\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$ であった⁸⁾。これらのことから、連続分析法においては、サンプリングにおいて、高濃度の水銀のピークを捕捉できないことがある可能性が示唆された。ただし、表C.1.1において、施設Bの3回目、11回目、施設Bの6回目等、水銀のピークが生じた場合は、2つの水銀連続分析装置双方で捕らえることができしており、このようなケースは稀であると考えられる。

施設Bにおいては、 Hg^{2+} 除去率は、1回目、2回目、8回目で除去率がマイナスになっているが、これはバグフィルター前の濃度が $0.1\sim 0.5 \mu\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$ しかなく、濃度が逆転したことによる。この濃度域は定量下限付近であるため、排ガス経路へ付着している水銀の影響などにより除去率が逆転する場合は他の事例でも認められる。したがって、バグフィルター前濃度が $0.5 \mu\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$ 以上に限ると、概ね40%以上、平均で65%であった。また、 Hg^0 除去率は、少なくとも25%以上、平均で78%であり、 Hg^0 の除去率が高い傾向にあることがわかった。これは施設Aのケースとは逆の傾向であった。高岡は、都市ごみ流動床炉からの飛灰を集じんするバグフィルターにおいては、都市ごみストーカ炉のケースと異なり、 Hg^0 のバグフィルターでの除去率が Hg^{2+} の除去率よりも高い傾向にあり、吸着される飛灰が、未燃炭素が少なく、金属酸化物を多く含む場合、 Hg^{2+} を還元するよりも、 Hg^0 の塩素化・酸化反応が優勢となり、 Hg^0 の除去率が高くなったものとしている¹⁴⁾。後述するが、施設Bの集じん灰の元素分析結果(表C.4.1)では、施設Cの集じん灰に比較して、Fe濃度が10%程度含まれており、10倍以上の値であった。また、ZnやCuについても高い傾向にあった。施設Aの集じん灰を測定していないため直接的な比較はできないが、施設Bの集じん灰は、施設Aの集じん灰よりもFeをはじめとする金属を酸化物として多く含んでいる可能性が高い。したがって、施設Bにおいて、高岡の報告と同様の現象が生じていることが推測された。ただし、火葬炉においては都市ごみ焼却施設に比較してHCl濃度は低いため、 Hg^0 については主として酸化反応が生じているものと推測される。

施設Cにおいては、施設A、施設Bのケースとは異なり、全体として除去率は負となり、バグフィルターにて増加する傾向が見られた。特に Hg^0 の場合でその傾向は顕著であり、除去率は最小で-1220%となった。図C.2.1に、施設Cでのバグフィルター前後における水銀の1回目の連続分析結果を示す。この図より、バグフィルター前の Hg^0 、 Hg^{2+} は比較的低濃度であり、バグフィルター後の Hg^{2+} も低濃度であったが、バグフィルター後の Hg^0 に関しては、火葬が進むにつれて、濃度が $20 \mu\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$ 以上まで幾つかのピークを伴って上昇した。これは、バグフィルターに捕集された集じん灰に吸着されていた水銀が脱着してきたものと推測される。後述する火葬灰の元素組成結果（表C.4.1）をみると、施設Cの集じん灰中の水銀濃度は極端に高く、集じん灰に水銀が濃縮されている傾向が伺え、これらの一部が脱着された可能性が高い。バグフィルター部分の排ガス温度は、後述する排ガス中のクロムを測定する際に、全ての施設で測定した結果、その範囲は、 $130 \sim 180^\circ\text{C}$ でありそれほど施設による差はなかった。したがって、捕集された集じん灰の組成を原因として、より蒸気圧が高く脱着し易い Hg^0 等の形態に変化した、あるいは、集じん灰の水銀除去能が飽和となった結果、火葬時のわずかな温度上昇により脱着が進行したものと推測された。

以上より、3施設での火葬排ガス中の水銀は、3施設ともに傾向が異なり、 Hg^{2+} が優先的に除去される場合、逆に Hg^0 が優先的に除去される場合、双方ともに除去されず逆に濃度が増加する場合が認められ、これは、バグフィルターに堆積された集じん灰の組成や、状態によるものと推測された。



図C.1.1 施設C（1回目）におけるバグフィルター前後の水銀の挙動

(2) 触媒装置

施設Bにおける、触媒装置前後での連続分析計を用いた水銀の分析結果を表C.1.2に示す。除去率に着目すると、 Hg^0 除去率は85～98%であった。 Hg^{2+} 除去率は、2～3回目が触媒前の濃度が、 $0.1 \sim 0.3 \mu\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$ であり低いことから濃度が逆転しているが、この場合を除くと85%と高い傾向を示した。総水銀の除去率は結果として19～90%、平均で74%であった。すなわち、触媒装置では、総水銀として、ある程度除去でき、 Hg^0 除去率が高くなる傾向であった。

Sandraらは、 V_2O_5 を主体とする脱硝触媒上に、水銀を含むガスを供給する実験を行い、脱硝触媒にて、 Hg^0 は酸化され、 HgO の形態で吸着されるが、その一部は HCl により塩素化され、 HgCl_2 となり脱着する傾向があることを報告している¹⁵⁾。施設Bの触媒装置における触媒も、 V_2O_5 を主体とする触媒であることから、これと同様のことが生じている可能性が示唆された。すなわち、排ガス中の Hg^0 は酸化され触媒上に吸着されるため、触媒での Hg^0 除去率が高くなっており、その一部が塩素化され、 HgCl_2 の形で脱着すると考えられるが、火葬排ガス中の塩化水素濃度は低いため、脱着する割合は限定的であり、 Hg^{2+} の除去率もある程度高かったものと考えられた。

表 C.1.2 触媒装置前後での排ガス中水銀濃度測定結果

	IN ($\mu\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$)			OUT ($\mu\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$)			除去率(%)		
	Hg^0	Hg^{2+}	総水銀	Hg^0	Hg^{2+}	総水銀	Hg^0	Hg^{2+}	総水銀
施設B	9.2	1.6	10.8	0.2	0.2	0.4	98	85	96
	5.5	0.1	5.6	0.3	0.7	0.9	95	-390	83
	1.0	0.3	1.2	0.1	0.9	1.0	85	-226	19
	2.1	0.2	2.3	0.3	0.6	0.9	84	-202	59

※ 水銀濃度は全て O_2 12%換算

(3) 活性炭吸着設備

施設Cにおける、活性炭吸着設備前後での連続分析計を用いた水銀の分析結果を表C.1.3に示す。除去率に着目すると、 Hg^0 除去率は53～99%、 Hg^{2+} 除去率は-29～58%であり、総水銀の除去率は結果として43～98%、平均で72%であった。すなわち、活性炭吸着設備では、総水銀として平均70%以上除去でき、 Hg^0 除去率が高く、 Hg^{2+} 除去率が低い傾向であった。施設Cの活性炭吸着設備は、ダイオキシン類除去を想定したものであることや、一般的に、ダイオキシン類より水銀の方が破過しやすいという報告もあることから^{16), 17)}、必ずしも効率的に除去できていない可能性があったが、例えば1回目には、非常に高い水銀濃度が、活性炭吸着装置に流入しているケースでも、活性炭吸着装置の出口では濃度は低く、高度除去がなされていると言え、現在は、吸着破過に達していないと考えられた。

表 C.1.3 活性炭吸着設備での排ガス中水銀濃度測定結果

	IN ($\mu\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$)			OUT ($\mu\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$)			除去率(%)		
	Hg ⁰	Hg ²⁺	総水銀	Hg ⁰	Hg ²⁺	総水銀	Hg ⁰	Hg ²⁺	総水銀
施設C	486.0	4.2	490.2	6.6	1.8	8.4	99	58	98
	75.9	3.2	79.1	5.8	2.1	7.9	92	33	90
	17.0	3.1	20.1	4.9	3.3	8.2	71	-7	59
	62.7	3.5	66.2	16.5	3.0	19.5	74	15	71
	25.1	3.4	28.5	11.8	4.4	16.2	53	-29	43

※ 水銀濃度は全てO₂12%換算

(4) まとめ

以上の検討をまとめ、総水銀濃度としての排ガス処理の各プロセスにおける除去率をまとめたものを、表 C.1.4 に示す。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明らかとなった。一方、バグフィルターにおいては、フィルターに堆積した集じん灰層、あるいはその組成により水銀が除去されるケースと、除去されない、もしくは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、火葬場における排ガス中の水銀を除去するためには、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る。ただし、触媒装置の場合は、ダイオキシン類の分解、脱硝を目的とするものであり、水銀を吸着除去することにより、触媒の活性が低下することが懸念されるため、水銀の除去としては、活性炭吸着設備が最も望ましいと考えられた。

表 C.1.4 各排ガス処理設備での水銀の形態別除去率

	バグフィルター			触媒装置 活性炭吸着設備		
	Hg ⁰	Hg ²⁺	総水銀	Hg ⁰	Hg ²⁺	総水銀
A	-24	100	52	-	-	-
B	72	65	67	90	85	96
C	-630	-64	-340	78	14	72

※ Hg²⁺の流入濃度が低いことによる濃度の逆転現象は考慮していない。

1.2 排ガス中水銀の排出濃度とその形態、および高濃度ピーク

排ガス処理各プロセスにおける水銀の除去効率を調査するために実施した連続分析結果を、各火葬の時間、および御遺体の年齢・性別ともに、表 C.1.5 にまとめて示す。これらの調査は合計で57体の火葬について実施し(表中には重複あり)、御遺体の年齢分布は32歳～102歳(これに加えて、死産児:0歳1件)であり、男性31検体、女性25検体のデータが得られた。連続分析計のデータは負の値をすべて0に直し、補正した。

表 C.1.5 排ガス中水銀の形態別連続分析測定結果

施設	日	性別	火葬時間 (分)	年齢 (歳)	Hg ⁰ 濃度 (μg/m ³)	Hg ²⁺ 濃度 (μg/m ³)	総水銀濃度 (μg/m ³)	Hg ⁰ の割合 (%)	O ₂ 濃度 (vol%)	O ₂ 12%換算 総水銀濃度 (μg/m ³)
A-BF前-1	9月8日	女性	65	97	0.1	0.9	1.0	9	19.2	3.1
A-BF前-2	9月11日	女性	66	71	0.1	0.2	0.2	27	19.2	0.8
A-BF前-3	9月15日	男性	70	81	1.7	0.1	1.7	95	19.2	5.4
A-BF前-4	9月17日	女性	55	65	0.4	0.4	0.8	46	19.2	2.4
B-BF前-1	11月12日	女性	44	86	5.7	0.1	5.7	99	14.8	8.3
B-BF前-2	11月12日	女性	46	58	3.3	0.1	3.4	97	16.2	6.3
B-BF前-3	11月13日	男性	57	44	12.6	2.0	14.5	86	15.7	24.7
B-BF前-4	11月14日	男性	54	78	4.0	4.8	8.8	45	14.7	12.6
B-BF前-5	11月14日	女性	51	92	4.9	1.9	6.8	72	12.2	6.9
B-BF前-6	11月15日	女性	53	92	2.6	1.5	4.2	63	14.4	5.7
B-BF前-7	11月15日	女性	60	40	3.8	1.5	5.3	72	15.6	8.9
B-BF前-8	11月15日	男性	61	64	4.3	0.3	4.6	93	15.5	7.5
B-BF前-9	11月16日	男性	52	72	7.5	1.0	8.5	88	13.3	10.0
B-BF前-10	11月17日	男性	64	92	6.2	1.2	7.4	84	12.8	8.1
B-BF前-11	11月17日	女性	50	67	18.1	2.1	20.2	89	14.5	28.0
C-BF前-1	12月4日	男性	86	52	0.5	0.4	0.9	57	19.4	5.3
C-BF前-2	12月4日	男性	63	69	0.7	0.8	1.5	45	19.4	8.2
C-BF前-3	12月5日	男性	57	76	0.5	0.7	1.3	43	19.4	7.1
C-BF前-4	12月5日	女性	49	99	0.6	0.6	1.2	51	19.4	6.6
C-BF前-5	12月6日	女性	53	74	0.6	0.6	1.3	50	19.4	7.2
C-BF前-6	12月7日	男性	60	71	21.2	0.6	21.8	97	19.4	122.5
C-BF前-7	12月7日	男性	53	79	0.3	0.5	0.8	35	19.4	4.7
C-BF前-8	12月8日	女性	60	77	2.7	0.5	3.2	85	19.4	17.9
A-BF後-1	9月8日	女性	65	97	0.1	0.0	0.1	100	19.2	0.7
A-BF後-2	9月11日	女性	66	71	0.1	0.0	0.1	100	19.2	0.4
A-BF後-3	9月15日	男性	70	81	1.7	0.0	1.7	100	19.2	8.6
A-BF後-4	9月17日	女性	55	65	19.9	0.2	20.1	99	19.2	100.7
A-BF後-5	9月18日	男性	60	102	0.2	0.0	0.2	100	19.2	0.8
A-BF後-6	9月20日	男性	71	90	21.2	0.2	21.4	99	19.2	106.9
A-BF後-7	9月21日	女性	56	93	1.2	0.0	1.2	98	19.2	6.0
A-BF後-8	9月22日	男性	55	81	0.2	0.0	0.2	100	19.2	1.1
A-BF後-9	9月23日	男性	60	94	0.1	0.0	0.1	100	19.2	0.4
A-BF後-10	9月24日	男性	53	84	0.1	0.0	0.1	97	19.2	0.6
A-BF後-11	9月24日	女性	67	69	0.1	0.0	0.1	83	19.2	0.6
A-BF後-12	9月25日	男性	60	82	1.4	0.0	1.4	98	19.2	7.2
A-BF後-13	9月26日	女性	57	85	64.2	0.8	65.1	99	19.2	325.3
A-BF後-14	9月27日	死産児	48	0	0.2	0.1	0.3	70	19.2	1.5
A-BF後-15	9月27日	女性	58	76	3.9	0.1	4.0	98	19.2	19.9
A-BF後-16	9月28日	女性	67	84	0.5	0.1	0.6	90	19.2	2.8
A-BF後-17	9月29日	男性	63	85	0.3	0.0	0.3	97	19.2	1.4
A-BF後-18	9月30日	男性	65	32	22.7	0.4	23.1	98	19.2	115.7
A-BF後-19	9月30日	男性	68	78	0.2	0.0	0.2	93	19.2	1.0
A-BF後-20	10月1日	男性	55	84	0.3	0.0	0.3	93	19.2	1.7
B-BF後-1	11月12日	女性	44	86	0.4	0.2	0.6	64	14.8	0.8
B-BF後-2	11月12日	女性	46	58	0.5	0.3	0.8	63	16.2	1.5
B-BF後-3	11月13日	男性	57	44	7.3	0.4	7.7	94	15.7	13.1
B-BF後-4	11月14日	男性	54	78	0.6	0.5	1.2	55	14.7	1.7
B-BF後-5	11月14日	女性	51	92	0.5	0.8	1.3	38	12.2	1.3
B-BF後-6	11月15日	女性	53	92	1.9	0.8	2.7	71	14.4	3.7
B-BF後-7	11月15日	女性	60	40	0.7	0.6	1.3	53	15.6	2.1
B-BF後-8	11月15日	男性	61	64	0.3	0.6	0.8	32	15.5	1.4
B-BF後-9	11月16日	男性	52	72	2.6	0.6	3.2	81	13.3	3.8
B-BF後-10	11月17日	男性	64	92	1.2	0.3	1.6	78	12.8	1.7
B-BF後-11	11月17日	女性	50	67	8.7	0.5	9.2	95	14.5	12.7
B-BF後-12	11月24日	男性	48	74	6.4	1.1	7.6	85	14.7	10.8
B-BF後-13	11月25日	男性	64	46	3.9	0.1	4.0	98	14.6	5.6
B-BF後-14	11月25日	男性	62	65	0.7	0.2	0.9	79	14.7	1.2
B-BF後-15	11月26日	男性	62	76	1.4	0.1	1.5	91	15.1	2.3
C-BF後-1	12月4日	男性	86	52	7.2	0.4	7.6	94	19.6	49.1
C-BF後-2	12月4日	男性	63	69	3.7	1.4	5.1	73	19.6	32.9
C-BF後-3	12月5日	男性	57	76	2.8	1.0	3.8	73	19.6	24.7
C-BF後-4	12月5日	女性	49	99	4.0	0.9	4.8	82	19.6	31.0
C-BF後-5	12月6日	女性	53	74	2.7	0.8	3.6	77	19.6	23.1
C-BF後-6	12月7日	男性	60	71	33.9	0.7	34.6	98	19.6	222.5
C-BF後-7	12月7日	男性	53	79	3.4	0.7	4.1	84	19.6	26.4
C-BF後-8	12月8日	女性	60	77	7.9	1.0	8.8	89	19.6	56.8
C-BF後-9	12月10日	女性	62	88	10.6	0.9	11.5	92	19.6	74.2
C-BF後-10	12月11日	男性	68	89	5.9	0.5	6.4	92	19.6	41.0
C-BF後-11	12月11日	女性	54	58	75.6	0.7	76.3	99	19.6	490.2
C-BF後-12	12月12日	女性	55	77	11.8	0.5	12.3	96	19.6	79.1
C-BF後-13	12月13日	女性	61	80	2.7	0.5	3.1	85	19.6	20.1
C-BF後-14	12月13日	女性	56	82	9.7	0.5	10.3	95	19.6	66.2
C-BF後-15	12月14日	女性	56	90	3.9	0.5	4.4	88	19.6	28.5
B-SCR後-1	11月24日	男性	48	74	0.1	0.2	0.3	40	14.7	0.4
B-SCR後-2	11月25日	男性	64	46	0.2	0.5	0.7	31	14.6	0.9
B-SCR後-3	11月25日	男性	62	65	0.1	0.6	0.7	14	14.7	1.0
B-SCR後-4	11月26日	男性	62	76	0.2	0.4	0.6	36	15.1	0.9
C-AC後-1	12月11日	女性	54	58	1.1	0.3	1.4	79	19.5	8.4
C-AC後-2	12月12日	女性	55	77	1.0	0.4	1.4	74	19.5	7.9
C-AC後-3	12月13日	女性	61	80	0.8	0.6	1.4	60	19.5	8.2
C-AC後-4	12月13日	女性	56	82	2.8	0.5	3.4	85	19.5	19.5
C-AC後-5	12月14日	女性	56	90	2.0	0.8	2.8	73	19.5	16.2
C-AC後-6	12月16日	男性	68	63	1.4	0.5	1.9	72	19.5	10.9
C-AC後-7	12月16日	女性	51	70	3.4	1.5	4.8	69	19.5	28.0
C-AC後-8	12月17日	男性	65	43	2.3	0.0	2.3	100	19.5	13.1
C-AC後-9	12月18日	男性	59	87	2.1	0.2	2.2	92	19.5	12.9
C-AC後-10	12月18日	男性	51	65	1.7	0.0	1.8	98	19.5	10.4
C-AC後-11	12月20日	女性	58	75	1.4	0.1	1.5	95	19.5	8.7
C-AC後-12	12月20日	男性	64	83	2.9	0.1	3.0	97	19.5	17.3
算術平均			58	74	5.5	0.6	6.0	78	18	28
最大値			86	102	76	5	76	100	20	490
最小値			44	0.0	0.1	0.0	0.1	9	12	0.4
標準偏差			8	17	12	1	12	23	2	7.6
中央値			58	76	2	0.5	2	85	19	9.5

※水銀濃度は実測値、BF: バグフィルター、AC ; 活性炭吸着設備、SCR : 触媒装置

(1) 水銀の排出濃度

対象とした施設A～Cについて、表C.1.5における実質的な大気への放出のデータは、施設Bにおける触媒装置(SCR)後と施設Cにおける活性炭吸着設備(AC)後となる、この部分での総水銀濃度は、施設Bにおいては、O₂12%換算で、0.4～0.9 μg/m³_N(平均:0.8 μg/m³_N)であり、施設Cにおいては8.2～28.0 μg/m³_N(平均:13.5 μg/m³_N)であった。この値は、都市ごみ焼却炉煙突排ガスと比べると同程度か、やや高い値であるといえる¹⁸⁾。2008年調査においては、54検体の調査で、総水銀濃度はO₂12%換算値として平均11.5 μg/m³_Nであり⁸⁾、2005調査⁹⁾では29.2 μg/m³_Nであった。施設Bではこれらに比較して、非常に低く保たれており、施設Cにおいては、2008年調査とほぼ同様であり、2005調査の1/3程度となった。イギリスでは3箇所の火葬炉において22検体の火葬排ガス中水銀の実測値が報告されており、3箇所それぞれの排ガス中水銀濃度の平均値はO₂11%換算で、690 μg/m³_N、880 μg/m³_N、430 μg/m³_Nであって¹⁹⁾、非常に高い。またHoglandはスウェーデン、ルンドにおける火葬炉からの水銀濃度を調査し、排ガス流量は日本の1/20程度であるが、最大濃度は60,000 μg/m³_Nにも達することが報告されており²⁰⁾、同様に高い。したがって日本人の平均水銀保有量は、諸外国に比較して低いと推測される。

施設Bにおいては、触媒装置(SCR)前、およびバグフィルター前の総水銀濃度は、それぞれ0.8～13.1 μg/m³_N、5.7～28.0 μg/m³_Nであり、排ガス処理上流側での濃度も比較的強く抑えられていた。

施設Cにおいては、活性炭吸着設備(AC)前、およびバグフィルター前の総水銀濃度は、それぞれ20.1～490.1 μg/m³_N、4.7～122.5 μg/m³_Nで、その多くが、歯科アマルガムに由来するような高濃度のピーク、もしくは、バグフィルターでの集じん灰層からの水銀の脱着により、都市ごみ焼却炉の自主目標値を大きく上回るケースが見られた。しかし、これらは活性炭吸着設備により、低濃度に抑えられており、この観点からも、火葬場における排ガス経路での水銀の排出抑制には、活性炭吸着設備の設置が効果的であると考えられる。

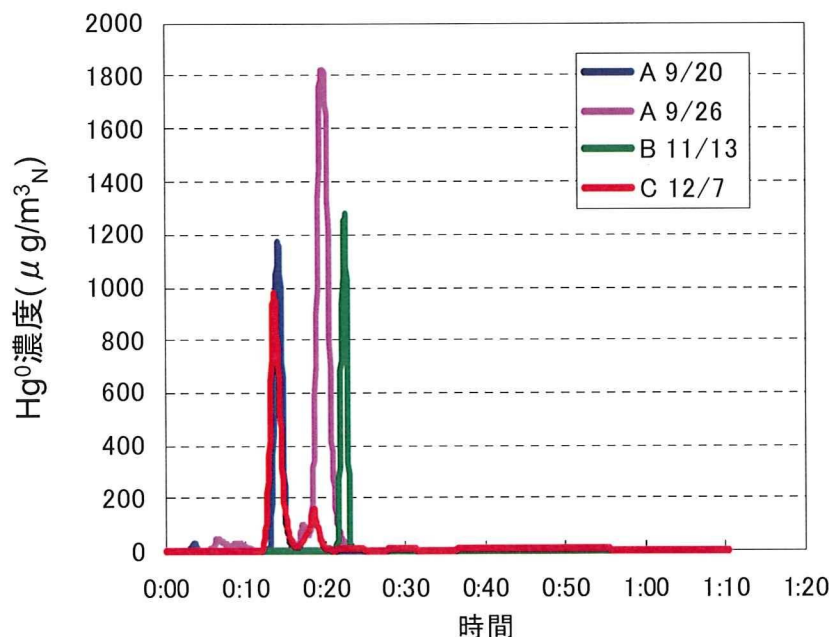
施設Aにおいては、バグフィルターの後段に触媒装置が設置されているが、本調査で得られたデータは、バグフィルター前後のみのデータであり、特にバグフィルター後の総水銀濃度は、O₂12%換算で、0.4～325.3 μg/m³_Nであり、特に9月17日、20日、26日、30日におけるデータは、歯科アマルガムに由来する高濃度ピークが見られ、この場合の総水銀濃度は、O₂12%換算で、100.7～325.3 μg/m³_Nであり非常に高い濃度を示した。ここで、仮に後段の触媒装置で、施設Bと同レベル(表C.1.3における触媒装置でのアマルガムピーク時のHg⁰除去率、Hg²⁺除去率を使用)で水銀が除去できたと仮定すると、施設Aからの総水銀排出濃度は、1.41～4.97 μg/m³_N程度まで抑えられることが予想された。

(2) 水銀の高濃度ピーク

本調査においても歯科アマルガムに由来するとされる、 Hg^0 の高濃度ピーク^{20), 21)}が、いくつかの検体で見られた、水銀の高濃度ピーク例として、施設Aにおいて9/20と9/26、施設Bにおいて11/13、および施設Cにおいて12/7(1回目)の Hg^0 のトレンドデータを図C.1.2に示した。この4例に関しては、総水銀濃度の O_2 12%換算値として、 $13.1 \sim 325.3 \mu\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$ であり、施設B-11/13のデータを除けば、国内の都市ごみ焼却炉で、各自治体が独自に設定する自主目標値や現実的な要求値としての $30 \sim 50 \mu\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$ ²²⁾を大きく上回っていた。

これらのうち、2例については、水銀連続分析計の上限($1,000 \mu\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$)を振り切っていた時間があり、その間についてはガウス関数によって補正し、データとした。図より、ピーク時の Hg^0 濃度は、施設A-9/26では最大約 $1,800 \mu\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$ まで、施設A-9/20、および施設B-11/13では最大約 $1,200 \mu\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$ まで達していたと推測された。

これら4つのトレンドデータは、火葬開始後約10～20分に0価水銀(Hg^0)の大きなピークが現れることが特徴であった。これらの水銀の由来は歯科アマルガム中の水銀によるものと推測され、火葬開始後約10～20分程度で高濃度水銀が出始めるのが特徴であり^{20), 21)}、2005調査、2008調査でも同様のピークが見られている^{9), 8)}。表C.1.5でのデータのうち、施設A～Cにおけるバグフィルター後の50検体のデータについて、このような特徴的な変化を示したものは、17検体/50検体であった。2008調査では、19検体/54検体であり⁸⁾、ほぼ同様の頻度であった。歯科アマルガムを有する火葬対象者は、将来的な死亡者増加とともに2020年頃にピークを迎える予測があり⁹⁾、今後、このような高濃度の水銀排出が増加することが想定されるため、留意する必要があるだろう。



図C.1.2 排ガス中 Hg^0 の連続分析測定結果(バグフィルター出口)

(3) 水銀の形態

火葬排ガス中水銀の形態として、 Hg^0 濃度、 Hg^{2+} 濃度、総水銀濃度に占める Hg^0 濃度の割合を求めた結果を表C.1.5に示す。いくつかのデータについては平均濃度が $0.1\mu\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$ 未満(検出下限値未満)であったため、計算上は $0.1\mu\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$ とした。サンプリングポイントに係らず、全てのデータを対象とした場合、0価水銀の平均濃度は $5.5\mu\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$ 、2価水銀の平均濃度は $0.6\mu\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$ であった。それぞれの平均濃度を比較すると0価の割合は90%を超えるが、これは歯科アマルガムに由来する高濃度水銀のデータの影響が極めて大きいことによる。しかし、それらを除いた場合の、総水銀に占める0価水銀の平均割合は14～100%でばらつき、算術平均で79%であったことから、上記2つのデータがなくとも平均的に水銀の形態は0価の水銀が主であることがわかった。過去の研究事例でもこの割合はかなりばらついているが⁶⁾、⁸⁾、歯科アマルガム由来と考えられる大きなピークが認められる場合は、例えば、表C.1.5における施設A-9/20、施設A-9/26、施設B-11/13、および施設C-12/7(1回目)のデータから0価水銀の占める割合が圧倒的に大きいことが明らかであり、問題となるような高濃度排出である場合は0価水銀が主たる形態であるといえる。

1.3 水銀の排出原単位

(1) 各施設における水銀の排出原単位

水銀実測濃度に燃焼時間中の排ガス流量と火葬時間を乗じることによって、火葬1体あたりに排出される総水銀量(排出原単位)を算定した。排ガス流量は、後述する排ガス中クロムの調査時に分析した乾ガス流量を用いた。この結果を、表C.1.6に示す。

表C.1.6における実質的な大気への放出のデータは、施設Bにおける触媒装置(SCR)後と施設Cにおける活性炭吸着設備(AC)後となる、この部分での水銀排出原単位は、この部分での総水銀濃度は、施設Bにおいては、 $0.6\sim 1.9\text{mg}/\text{体}$ (平均: $1.5\text{mg}/\text{体}$)であり、施設Cにおいては $22\sim 73\text{mg}/\text{体}$ (平均: $40\text{mg}/\text{体}$)であった。2005調査では、水銀排出量は $51.8\text{mg}/\text{体}$ ⁶⁾、2008調査では、 $19.4\text{mg}/\text{体}$ ⁸⁾と推定されていることから、施設Bに関しては、大幅に低減されており、施設Cに関しては、ほぼこれまでの調査と合致していると考えられる。イギリスでは火葬場からの水銀排出量が規制されようとしているが、規制値案は水銀排出量 $150\text{mg}/4\text{人}$ ($37.5\text{mg}/\text{人}$)である²³⁾。今回測定したケースでは、施設Bはこの基準を大幅に下回っていたが、施設Cでは、測定した12検体中、7検体がこの基準を上回っていた。

施設Bにおいては、触媒装置(SCR)前、およびバグフィルター前の総水銀の排出原単位は、それぞれ $1.1\sim 20.2\text{mg}/\text{体}$ (平均: $7.0\text{mg}/\text{体}$)、 $6.8\sim 44\text{mg}/\text{体}$ (平均: $19\text{mg}/\text{体}$)であり、排ガス処理上流側での排出原単位も比較的強く抑えられていた。

表 C.1.6 水銀の排出原単位算出結果

施設	日	性別	火葬時間 (min/体)	年齢 (歳)	総水銀濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	排出原単位	
						排ガス量 (m^3/h)	($\text{mg}/\text{体}$)
A-BF前-1	9月8日	女性	65	97	1.0	7835	8.5
A-BF前-2	9月11日	女性	66	71	0.2	7835	2.1
A-BF前-3	9月15日	男性	70	81	1.7	7835	16
A-BF前-4	9月17日	女性	55	65	0.8	7835	5.6
B-BF前-1	11月12日	女性	44	86	5.7	2633	11
B-BF前-2	11月12日	女性	46	58	3.4	2633	6.8
B-BF前-3	11月13日	男性	57	44	14.5	2633	36
B-BF前-4	11月14日	男性	54	78	8.8	2633	21
B-BF前-5	11月14日	女性	51	92	6.8	2633	15
B-BF前-6	11月15日	女性	53	92	4.2	2633	10
B-BF前-7	11月15日	女性	60	40	5.3	2633	14
B-BF前-8	11月15日	男性	61	64	4.6	2633	12
B-BF前-9	11月16日	男性	52	72	8.5	2633	20
B-BF前-10	11月17日	男性	64	92	7.4	2633	21
B-BF前-11	11月17日	女性	50	67	20.2	2633	44
C-BF前-1	12月4日	男性	86	52	0.9	17750	24
C-BF前-2	12月4日	男性	63	69	1.5	17750	27
C-BF前-3	12月5日	男性	57	76	1.3	17750	21
C-BF前-4	12月5日	女性	49	99	1.2	17750	17
C-BF前-5	12月6日	女性	53	74	1.3	17750	20
C-BF前-6	12月7日	男性	60	71	21.8	17750	387
C-BF前-7	12月7日	男性	53	79	0.8	17750	13
C-BF前-8	12月8日	女性	60	77	3.2	17750	56
A-BF後-1	9月8日	女性	65	97	0.1	7835	1
A-BF後-2	9月11日	女性	66	71	0.1	7835	1
A-BF後-3	9月15日	男性	70	81	1.7	7835	16
A-BF後-4	9月17日	女性	55	65	20.1	7835	145
A-BF後-5	9月18日	男性	60	102	0.2	7835	1
A-BF後-6	9月20日	男性	71	90	21.4	7835	198
A-BF後-7	9月21日	女性	56	93	1.2	7835	9
A-BF後-8	9月22日	男性	55	81	0.2	7835	2
A-BF後-9	9月23日	男性	60	94	0.1	7835	1
A-BF後-10	9月24日	男性	53	84	0.1	7835	1
A-BF後-11	9月24日	女性	67	69	0.1	7835	1
A-BF後-12	9月25日	男性	60	82	1.4	7835	11
A-BF後-13	9月26日	女性	57	85	65.1	7835	484
A-BF後-14	9月27日	死産児	48	0	0.3	7835	2
A-BF後-15	9月27日	女性	58	76	4.0	7835	30
A-BF後-16	9月28日	女性	67	84	0.6	7835	5
A-BF後-17	9月29日	男性	63	85	0.3	7835	2
A-BF後-18	9月30日	男性	65	32	23.1	7835	198
A-BF後-19	9月30日	男性	68	78	0.2	7835	2
A-BF後-20	10月1日	男性	55	84	0.3	7835	2
B-BF後-1	11月12日	女性	44	86	0.6	2633	1
B-BF後-2	11月12日	女性	46	58	0.8	2633	2
B-BF後-3	11月13日	男性	57	44	7.7	2633	19
B-BF後-4	11月14日	男性	54	78	1.2	2633	3
B-BF後-5	11月14日	女性	51	92	1.3	2633	3
B-BF後-6	11月15日	女性	53	92	2.7	2633	6
B-BF後-7	11月15日	女性	60	40	1.3	2633	3
B-BF後-8	11月15日	男性	61	64	0.8	2633	2
B-BF後-9	11月16日	男性	52	72	3.2	2633	7
B-BF後-10	11月17日	男性	64	92	1.6	2633	4
B-BF後-11	11月17日	女性	50	67	9.2	2633	20
B-BF後-12	11月24日	男性	48	74	7.6	2633	16
B-BF後-13	11月25日	男性	64	46	4.0	2633	11
B-BF後-14	11月25日	男性	62	65	0.9	2633	2
B-BF後-15	11月26日	男性	62	76	1.5	2633	4
C-BF後-1	12月4日	男性	86	52	7.6	17750	194
C-BF後-2	12月4日	男性	63	69	5.1	17750	95
C-BF後-3	12月5日	男性	57	76	3.8	17750	65
C-BF後-4	12月5日	女性	49	99	4.8	17750	70
C-BF後-5	12月6日	女性	53	74	3.6	17750	56
C-BF後-6	12月7日	男性	60	71	34.6	17750	614
C-BF後-7	12月7日	男性	53	79	4.1	17750	64
C-BF後-8	12月8日	女性	60	77	8.8	17750	157
C-BF後-9	12月10日	女性	62	88	11.5	17750	212
C-BF後-10	12月11日	男性	68	89	6.4	17750	128
C-BF後-11	12月11日	女性	54	58	76.3	17750	1218
C-BF後-12	12月12日	女性	55	77	12.3	17750	200
C-BF後-13	12月13日	女性	61	80	3.1	17750	56
C-BF後-14	12月13日	女性	56	82	10.3	17750	170
C-BF後-15	12月14日	女性	56	90	4.4	17750	74
B-SCR後-1	11月24日	男性	48	74	0.3	2633	0.6
B-SCR後-2	11月25日	男性	64	46	0.7	2633	1.9
B-SCR後-3	11月25日	男性	62	65	0.7	2633	1.9
B-SCR後-4	11月26日	男性	62	76	0.6	2633	1.7
C-AC後-1	12月11日	女性	54	58	1.4	17750	23
C-AC後-2	12月12日	女性	55	77	1.4	17750	22
C-AC後-3	12月13日	女性	61	80	1.4	17750	25
C-AC後-4	12月13日	女性	56	82	3.4	17750	56
C-AC後-5	12月14日	女性	56	90	2.8	17750	46
C-AC後-6	12月16日	男性	68	63	1.9	17750	38
C-AC後-7	12月16日	女性	51	70	4.8	17750	73
C-AC後-8	12月17日	男性	65	43	2.3	17750	43
C-AC後-9	12月18日	男性	59	87	2.2	17750	39
C-AC後-10	12月18日	男性	51	65	1.8	17750	27
C-AC後-11	12月20日	女性	58	75	1.5	17750	26
C-AC後-12	12月20日	男性	64	83	3.0	17750	56
算術平均			58	74	6.0	9981	59
最大値			86	102	76	17750	1940
最小値			44	0	0.1	2633	0.14
標準偏差			8	17	12	6608	10
中央値			58	76	2	7835	17

※水銀濃度は実測値、BF: バグフィルター、AC: 活性炭吸着設備、SCR: 触媒装置

バグフィルター前の排出原単位は、2008調査とほぼ同じ程度のレベルであったが、施設Bでは、バグフィルター、触媒装置で水銀が67%以上除去されていることから、最終的な大気放出に関する原単位は、非常に低く抑えられているといえる。

施設Cにおいては、活性炭吸着設備(AC)前、およびバグフィルター前の総水銀の排出原単位は、それぞれ56～1,218 mg/体(平均:225mg/体)、17～387 mg/体(平均:70mg/体)で、バグフィルター前では、歯科アマルガムに由来するような高濃度のピーク、活性炭吸着設備(AC)前では、その多くが、バグフィルターでの集じん灰層からの水銀の脱着により、イギリスにおける規制値をオーバーするとともに、これまでの国内での調査結果も大きく上回る傾向にあった。しかし、前述したように、最終的な大気への排出原単位は、活性炭吸着装置により、従来の調査結果と同レベルまで抑えられており、この観点からは、活性炭吸着装置の意義は重要であるといえる。

施設Cでは、1.2(1)で前述したように、水銀の排出濃度としては、これまでの調査と同レベルであった。しかし、排出原単位としては、活性炭吸着装置を導入しながらも、イギリスでの規制値案をオーバーするようなケースが12検体中7検体あった。その内訳としては、歯科アマルガムに由来するような高濃度ピークを完全に除去しきれなかったことによるものが2検体、バグフィルターでの集じん灰層からのHg⁰の脱着を除去しきれなかったものが5検体存在した。イギリスの規制値案を日本における火葬場に適用することは疑義があるものの、一つの基準として見た場合には、さらに水銀排出濃度を低減することが求められよう。

そのために、まず、歯科アマルガムに由来する水銀の高濃度ピークに関しては、今後、歯科アマルガムを多く有する世代の火葬が増加してくることが予想されており⁹⁾、施設Cのみに限定されないが、現在主に用いられているダイオキシン類除去用の活性炭に、水銀除去用の活性炭を加えることや、活性炭層のSVを下げること等、活性炭吸着設備による水銀除去能を高めることが必要であると考えられる。また、活性炭の吸着破過状況を適宜モニタリングし、必要時には、活性炭を交換するなど適切な管理が求められる。

また、バグフィルターでの集じん灰層からの水銀の脱着に関しては、これまでの調査では見られなかったケースであり、この場合は、集じん灰中の水銀濃度が高い場合に生じることが施設Cの結果から推測された。したがって、バグフィルターの定期的な清掃頻度を高め、集じん灰層を適宜取り除くことが重要であると考えられる。

(2) 水銀排出原単位と検体との関係

上記で算出した水銀排出原単位と検体の年齢、性別との関連性を評価した。

ここでは、検体が有する本来の水銀量との関連性をみるため、排ガス処理による影響を

排して考察する。すなわち、表C.1.6の水銀排出原単位のうち、施設B、Cでは、バグフィルター前の値を用い、施設Aでは、バグフィルターではほとんど水銀が除去されないこと、データ数が多いことからバグフィルター後の値を用いた。水銀排出原単位と、検体の性別・年齢との関係を2008調査結果⁸⁾、2005調査結果⁹⁾と比較する形で、表C.1.7に示す。

データ数は十分とはいえないが、85～89歳の1名の非常に大きな排出原単位に影響されている部分を除けば、65～69、70～74歳の部分が男女ともに最大の値を示した。2005年調査では、65～69歳で男女とも最大の値を示し、これは、歯科アマルガムの治療歴からの推測では、45～70歳くらいまでの年代がもっともアマルガムを保持していると考えられることと合致しているとされていたが⁹⁾、これは、4年前の調査結果であり、現在では、50～75歳に相当する年代が、もっともアマルガムを保持していると考えられ、この点では、今回の調査結果は妥当であったと考えられる。

性別における排出量の違いについては、男性が48.3mg/体、女性が51.2mg/体となり、2005調査と同様に男女間の差はあまり見られなかった。

排出量をみると、2005調査結果、本調査結果はほぼ同等の排出量であったが、2008年調査では、排出量が全体的に低い傾向を示した。2008年調査での測定に問題はないと考えられ、この要因としては、2008調査を実施した施設の管轄自治体における御遺体中のアマルガム量が少なかったことに由来するのではないかと推測されている⁸⁾。

表C.1.7 年齢、性別ごとの水銀排出量 (mg/体)

年齢	2005調査(n=34)			2008調査(n=44)			2009調査:本研究(n=38)		
	男性	女性	全体	男性	女性	全体	男性	女性	全体
-59	35.8	—	35.8	—	0.9	0.9	85.6	10.4	55.5
60-64	68.7	—	68.7	4.0	25.5	14.7	12.3	—	12.3
65-69	146.0	132.0	142.0	12.4	350	181	27.3	63.3	54.3
70-74	79.5	18.6	64.3	4.5	4.0	4.3	203	10.3	107
75-79	22.0	20.2	21.3	12.2	9.4	11.7	14.2	43.3	23.9
80-84	42.1	24.7	37.7	4.9	3.2	4.2	6.4	4.9	6.1
85-89	—	—	—	2.8	0.2	2.5	248	2.3	166
90-94	19.0	67.8	43.4	2.0	3.6	3.3	73.2	11.2	42.2
95-	64.6	48.5	58.2	5.1	9.4	7.3	1.3	9.1	6.5
全体	54.9	45.7	51.8	5.6	22.1	13.3	48.3	51.2	49.6

(3) 火葬灰への水銀の排出原単位

排ガス中水銀測定における連続分析法では、ばいじん中の水銀濃度は対象としておらず、ガス状の水銀のみを対象としている。本測定ではばいじん濃度および、後述する表C.4.1にて、集じん灰中水銀濃度をそれぞれ測定していることから、特にバグフィルターにおいて、どの程度集じん灰へ移行しているかを推測した。

まず、施設A～Cにおけるバグフィルター前のばいじん濃度を $C_{in}(\text{mg}/\text{m}^3_{\text{N}})$ とし、バグフィルター出口のばいじん濃度を $C_{out}(\text{mg}/\text{m}^3_{\text{N}})$ とし、排ガス量(O_2 12%換算): $V(\text{m}^3_{\text{N}}/\text{h})$ と火葬時間 $t(\text{h})$ を用いて、火葬1件あたりの集じん灰量 $D(\text{mg}/\text{人})$ を(C.1.1)式によって求めた。

$$D = (C_{in} - C_{out}) \cdot V \cdot t \quad (\text{C.1.1})$$

(C.1.1)式からは、火葬1件あたりの集じん灰の発生量は、施設Aにおいて138～146g/体、施設Bについて99～183g/体、73～138g/体と算出された、これらの値に、後述する集じん灰中の水銀測定値(表C.4.1)の値を乗じ、1体あたり集じん灰に移行する水銀量を算出すると、施設Aでは集じん灰を測定していないため算出できなかったが、施設B、および施設Cではそれぞれ0.38～0.70mg/体、0.8～1.52mg/体と計算され、排ガスとして排出される水銀量は、前述したように、施設Bにおいては、0.6～1.9mg/体(平均:1.5mg/体)であり、施設Cにおいては22～73mg/体(平均:40mg/体)であった。

これらの結果から、施設Bでは、量としては低いものの、大気排出量の約半分に相当する量が灰として排出され、施設Cでは、約1/50に相当する量が灰として排出されている結果となった。マスバランスに関しても検討したが、火葬と、それにより発生する灰が必ずしも対応していないことや、施設Cではバグフィルターに蓄積した集じん灰からの Hg^0 の放出があったことから、マスバランスの整合性は低かった。

2. パイロット式活性炭吸着実験装置による水銀除去実験

表C.2.1に、パイロット式活性炭吸着実験装置による水銀除去実験結果を示す。

まず、活性炭吸着塔後の水銀濃度は極めて低く、総水銀濃度では $0.0 \sim 0.5 \mu\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$ の範囲であった。入口側が極めて高かった排ガス条件に対しても総水銀濃度は $0.1 \mu\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$ であり、極めて高度に水銀が活性炭吸着塔で除去されていることがわかった。また、活性炭吸着塔出口では、0価水銀の平均濃度は $0.1 \mu\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$ 、2価水銀の平均濃度は $0.1 \mu\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$ であり、各火葬における総水銀に占める0価水銀の平均割合は47.6%であった。水銀濃度が極めて小さいため評価が難しいが、この結果より0価、2価ともにほぼ同量存在しているといえる。

活性炭吸着塔における水銀除去率としては、平均除去率は66.6%となった。3/18、4/12において除去率がマイナスになっているが、これは排気筒出口(活性炭吸着塔入口)濃度が $0.1 \mu\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$ しかなく、濃度が逆転したことによる。 $0.1 \mu\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$ は定量下限付近であるため、経路への付着している水銀の影響などにより除去率が逆転する場合は他の事例でも認められる。したがって、活性炭吸着塔入口濃度が $0.5 \mu\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$ 以上ある場合(20検体)についてかぎってみると90.2%となり、極めて高度に除去されていることがわかった。