

## (45) 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

武田 信生<sup>1</sup>・高岡 昌輝<sup>2\*</sup>・大下 和徹<sup>2</sup>・江口 正司<sup>3</sup>

<sup>1</sup>立命館大学エコ・テクノロジー研究センター (〒525-8577 滋賀県草津市野路東1-1-1)

<sup>2</sup>京都大学大学院工学研究科都市環境工学専攻 (〒615-8540 京都市西京区京都大学桂)

<sup>3</sup>太陽築炉工業株式会社 (〒812-0045 福岡市博多区東公園6番21号)

\* E-mail: [takaoka@environ.mbox.media.kyoto-u.ac.jp](mailto:takaoka@environ.mbox.media.kyoto-u.ac.jp)

本研究は、複数の火葬炉を対象に、残骨灰および集じん灰中の六価クロムに着目し、その排出実態を明らかにし、由来とされるステンレス製架台についても調査し、排出抑制対策を検討した。

土壤汚染対策法に基づいた溶出量試験における、灰の六価クロム溶出量は、全サンプル(10検体)で、溶出量基準の10~1,900倍の濃度が検出された。また、火葬炉における全クロムのマスバランスの整合性から、主に、ステンレス製架台の損耗によりクロムが灰中に移行することが推測されたが、ステンレス製架台を用いていない火葬炉由来の灰の六価クロム溶出量は、土壤汚染対策法に基づいた溶出量基準を達成できるほど低減されていなかった。したがって、今後、バグフィルターによる集じんを徹底し、炉外大気への排出を抑制し、灰の別途処理を検討する必要がある。

**Key Words :** crematorium, hexavalent chromium compounds, stainless steel, ash, leaching amount

### 1. はじめに

我が国の火葬率は、平成19年度で約99.9%であり、火葬数は110万人を超え、世界一の火葬大国となっている<sup>1)</sup>、<sup>2)</sup>、また死亡人口が年々増加していることから<sup>3)</sup>、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残骨灰(収骨後に残った灰の一部)、集じん灰(集じん機で捕集された灰)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。それゆえ、これらに含まれる有害物質等の知見が乏しく、その実態はほとんど把握されていない。このことから、筆者らの研究グループでは、2007年に4箇所火葬炉から得られた残骨灰、集じん灰中の水銀、六価クロム、フッ素、ホウ素の安全性について、土壤汚染対策法に基づいた溶出量試験、含有量試験により評価した。その結果、特に六価クロムの溶出量が基準値の180~1,200倍の濃度で検出され<sup>4)</sup>、さらなる調査、および対策の必要性が示唆された。しかし、これまでの調査は4施設のみにおけるデータであり、日本全国の火葬炉における状況をより正確に把握しようとするならば、できるだけ多くの施設における実測データを得ることが必要であり、その上で対策

を検討しなければならない。また、新聞報道等により、六価クロムの起源としては、火葬炉内のステンレス製架台中のクロムであると推定されているが<sup>5)</sup>、詳細は明らかになっていない。

そこで、本研究は、これまでの調査に加え複数の施設の火葬炉を対象に、残骨灰、および集じん灰中の六価クロムに着目し、その排出実態を明らかにするとともに、由来とされるステンレス製架台についても調査し、排出抑制対策について検討することを目的とした。具体的には、まず、基礎調査として、6施設の火葬炉を対象に、残骨灰、および集じん灰中の六価クロムについて土壤汚染対策法に基づいた含有量試験、溶出量試験を行って、2007年の調査結果<sup>4)</sup>と比較することにより安全性を評価した。また、灰中の六価クロムの溶出量や、排ガス経由での大気への排出状況等は、火葬の状況に左右される可能性が高いと考えられるため、灰のサンプリング前に、排ガス調査を行って火葬の状況を把握した。この灰の六価クロム含有量(19号含有量)、および火葬排ガスのデータを用いて、集じん機の有無による六価クロム排出量を推定し、集じん機の六価クロム排出抑制効果を検討した。さらに火葬炉からの全クロムの排

出係数を求め、他の燃焼発生源と比較した。

次に、灰中六価クロムの由来とされる炉内のステンレス製架台を主たる由来とした場合の、火葬場1施設における全クロムのマスバランスを評価し、その妥当性を評価した。さらに、ステンレス製架台を用いていない火葬場1施設において、残骨灰、集じん灰中の六価クロムについて、土壌汚染対策法に基づいた溶出量試験を行って、ステンレス製架台の影響について検討した。

なお、土壌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、それぞれアルカリ溶媒による抽出試験、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、本論文では“19号含有量”と記載する。

## 2. 研究方法

本研究では、基礎調査とクロムの由来調査を行った。基礎調査では、残骨灰、および集じん灰中の六価クロムの排出実態を明らかにした。クロムの由来調査は、主たる由来とされるステンレス製架台について調査した。これらの2つの調査により火葬炉からの六価クロムの排出抑制対策について検討した。これらの各調査における対象施設、サンプリング、測定項目、および測定方法について以下に示す。

### (1) 対象施設

基礎調査で対象とした火葬場は6施設である。2007年に実施した先行調査では施設A～Dの4施設において実施し<sup>4)</sup>、本研究ではそれらとは全て異なる施設で実施した。したがって、以下施設名については、施設E～Jで記述する。火葬場の一覧について表-1

に示した。6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E～Gは、排気系列が2炉1系列であり、施設H～Jは1炉1系列であった。燃料は灯油と都市ガスが用いられていた。集じん機は、施設E～Gは、平成17年以降に新設された比較的新しい施設であり、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Iではスクリーンが設置されており、施設H、および施設Jはともに集じん機が設置されていなかった。これら施設H～Jは、平成3年以前に設置された比較的古い施設である。すなわち、基礎調査における対象施設は、比較的新しい施設と古い施設を3施設ずつ選定し調査を行った。

クロムの由来調査において対象とした施設は2施設であり、その詳細を施設K, Lとして、表-1に併記した。施設K, Lともに、主燃焼室1室に対し、再燃焼室1室を有しており、燃料は都市ガスで、排気方式も排風機による強制排気方式であるが、施設Kは、排気系列が2炉1系列であり、施設Lは1炉1系列であった。集じん機は、施設Kには、バグフィルターが設置され、後段に触媒装置が設置されていた。施設Lでは集じん機としてサイクロンが設置されていた。なお、施設Lでは、通常火葬炉内で用いられているステンレス製の架台は使用されていない。

### (2) サンプリング

表-1における6施設の火葬場(施設E～J)において、まず、各施設における火葬の状態を把握するため、1施設の火葬場につき2体の火葬を対象に、排ガスサンプリングを行った。その後、2体分の残骨灰を採取し、さらに、施設E～G、施設Iでは集じん灰を採取した。施設E～Gと、施設H～Jでは炉と排ガス処理設備の比率が異なり、データの条件をそろえるため、また別途、灰中のダイオキシン類を測定す

表-1 調査対象とした火葬炉の概要

火葬炉	施設E	施設F	施設G	施設H	施設I	施設J	施設K	施設L
再燃焼炉	有	有	有	有	有	有	有	有
主燃焼室：再燃焼室	1:1	1:1	1:1	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	なし	スクリーン	なし	バグフィルター	サイクロン
集じん機後段の排ガス処理	触媒装置	触媒装置	活性炭吸着設備	なし	なし	なし	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)	強制(1:1)	強制(1:1)	強制(2:1)	強制(1:1)
燃料	都市ガス	都市ガス	灯油	灯油	都市ガス	灯油	都市ガス	都市ガス

表-2 基礎調査にて排ガス測定の対象とした火葬の概要

実験番号	E-1	E-2	F-1	F-2	G-1	G-2	H-1	H-2	I-1	I-2	J-1	J-2
火葬時間	58分	57分	66分	59分	48分	68分	60分	63分	59分	64分	85分	64分
年齢	64歳	75歳	91歳	79歳	98歳	85歳	75歳	88歳	93歳	91歳	60歳	67歳
性別	女性	女性	女性	女性	女性	女性	女性	男性	男性	女性	男性	男性

表-3 測定項目、および測定方法

対象	測定項目	測定方法
残骨灰 集じん灰	六価クロム	環境省告示18、19号に規定される溶出量試験、含有量試験
	全クロム	中性子放射化分析法
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 <sub>2</sub>	JIS K 0301 ジルコニア方式(連続分析)
	NO <sub>x</sub>	JIS K 0104 化学発光方式(連続分析)

る都合上、分析に必要な灰の量を確保するために、2体の火葬に対して灰のサンプリングは1回としている。表-2に各火葬について詳細を示す。排ガスサンプリングは、全ての火葬場で排風機の後段で行った。具体的には、排気塔出口の前段にある測定孔、あるいは測定孔が無い場合は、排気塔出口から煙道に直接サンプリングチューブを挿入し実施した。

クロムの由来調査においては、表-1に併記した2施設の火葬場(施設K, L)において、1体の火葬について残骨灰、および集じん灰を採取した。

### (3) 測定項目、および測定方法

測定項目、および測定方法の一覧を表-3に示す。

まず、基礎調査に関して、残骨灰、集じん灰は廃棄物ではなく、最終保管場所が周辺環境への影響を考慮したものになっているかどうかは不明である。したがって、灰中の六価クロムを対象に、土壤汚染対策法に基づいた環境省告示19号：含有量試験、および環境省告示18号：溶出量試験を行い、19号含有量と溶出量を評価した。灰採取前に実施した排ガス測定では、ばいじん、一酸化炭素、酸素、窒素酸化物の濃度を測定した。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E～G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、二酸化炭素、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。

クロムの由来調査においては、まず、施設Kにおいて、1体の火葬を対象にステンレス製架台を主たるクロム源とした場合の火葬炉における全クロムのマスバランスを確認した。具体的には、ステンレス製架台について、その中の全クロム含有量、架台交換時期までの損耗量、および交換時期までの火葬遺体数を施設へのヒアリングにより調べ、火葬1体あ

たりステンレス架台から放出される全クロム量をINPUTとして算定した。また、OUTPUTとしては遺体1体の火葬によって生成する残骨灰、集じん灰由来の全クロム量を評価した。具体的には、灰の発生量を施設へのヒアリングにより調べ、施設Kにおいてサンプリングした残骨灰、および集じん灰について、その全クロム量を中性子放射化分析により分析した。

中性子放射化分析は、原子炉からの熱中性子を試料に照射し、励起された原子核の壊変に伴う放射線、特にγ線を半導体検出器で検出し、核種固有のγ線エネルギースペクトルの出現位置および強度から定性定量するものである。これまでに焼却飛灰中の全クロムを対象とし、その測定の妥当性が検証されている<sup>9)</sup>。灰はその約100mgをポリエチレン袋で二重に封入し、さらに外袋で封入して測定試料とした。照射は京都大学原子炉実験所圧気輸送管(照射孔:Pn-2)において熱中性子束密度 $2.75 \times 10^{13}(\text{n}/\text{cm}^2/\text{sec})$ で行った。照射時間は3,600秒とし、冷却時間は約1ヶ月とした。γ線の計測には4096チャンネル波高分析器付きGe半導体検出器(EG&G社製:ORTEC Hp-Ge Ge COAXIAL DETECTOR)を用いた。計測時間は、7,200秒とした。フラックスモニタ法での校正用試料としては、都市ごみ焼却飛灰の標準試料であり、クロムについても保証値が示されているBCR176を用いた。また、特に集じん灰については、確認のために、土壤汚染対策法に基づいた環境省告示18号：溶出量試験により溶出量を評価した。

次に、ステンレス架台が、残骨灰や、集じん灰の六価クロム溶出量に与える影響について評価するため、ステンレス製架台を用いていない施設Lにて、1体の火葬について残骨灰、集じん灰をサンプリングし、土壤汚染対策法に基づいた環境省告示18号：溶出量試験により溶出量を評価した。なお、この調査は、国内の火葬炉では、ほとんどがステンレス製架台を用いて火葬されているため、海外の火葬炉(施設L)にて実施した。

3. 結果, および考察

(1) 基礎調査

a) 残骨灰, 集じん灰中六価クロムの19号含有量, および溶出量

表-4, および図-1にそれぞれのサンプルについて, 六価クロムの溶出量, 19号含有量の結果を示した. また, 表-5には筆者らの研究グループが, 2007年に4箇所の火葬炉について実施した調査結果<sup>4)</sup>も合わせて示した.

これらの図表から, 六価クロムの19号含有量に関しては, 本研究で対象とした10検体において5.7~880mg/kgであり, F残骨灰, F集じん灰, J残骨灰の3サンプルにおいて, 土壤汚染対策法により規定されている含有量基準(250mg/kg)を超過していた. 2007年の調査において, 残骨灰4検体, 集じん灰2検体について調査した結果では, 六価クロムの19号含有量

は58~460mg/kgであり, 本研究結果の範囲内にあるとともに, 一部含有量基準を超過するケースもみられ, 同様の傾向であった. また全体として, 施設により大きく濃度は異なるが, 同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.

六価クロムの溶出量に関しては, 本研究で対象とした全ての残骨灰, 集じん灰において0.58~96mg/Lの範囲にあり, 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10~1,900倍の濃度が検出された. この傾向は, 2007年の調査結果では, 六価クロムの溶出量は9.0~60mg/Lであり, 2007年, および本研究を通じて, 全てのサンプルで溶出量基準を大きく超過する結果となった. したがって, 残骨灰, 集じん灰中の六価クロムは, 特に溶出量について注意が必要であることが確認された.

b) 六価クロムの19号含有量と溶出量との関係

図-2に本研究での調査結果, および2007年の調査結果<sup>4)</sup>における, 各灰の六価クロムの19号含有量と溶出量との関係を示した. 図より一部の残骨灰について例外があるものの, 六価クロムの19号含有量と溶出量については, 残骨灰, 集じん灰に関わらず, 一定の相関関係が認められた. この関係は, アルカリ緩衝液(5mM炭酸ナトリウム+10mM炭酸水素ナトリウム溶液)による抽出量と, 蒸留水による溶出量との関係を意味している. 土壤汚染対策法に基づく環境省告示18号で規定される溶出量試験では, 溶出条件として溶媒体積:試料重量が10:1で規定されていることから, 六価クロム溶出量の値を, サンプルの灰重量あたりの値に換算し, 19号含有量と比較したものを表-5に示した. また溶出率は, 19号含有量のうち溶出量換算値として溶出した六価クロムの割合を示す.

表-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

年	施設	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
2007	A	250	140	30	16
	B	58	460	9.0	60
	C	110	—	13	—
	D	310	—	9.0	—
本研究	E	26	66	3.0	2.7
	F	580	880	60	96
	G	70	210	7.2	19
	H	140	—	7.1	—
	I	5.7	230	0.58	16
	J	670	—	5.9	—

※土壤汚染対策法施行規則 による六価クロムの含有量基準:250mg/kg, 溶出量基準:0.05mg/L  
 ※2007年の六価クロムの19号含有量, 溶出量は文献<sup>4)</sup>

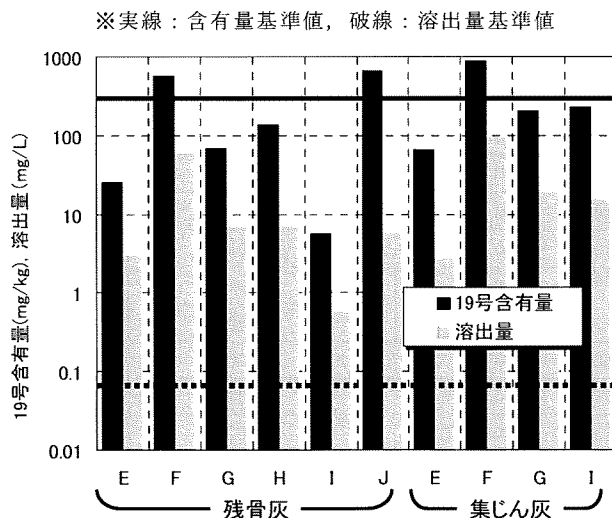


図-1 残骨灰, 集じん灰中六価クロムの19号含有量, 溶出量試験結果

※2007年の六価クロムの19号含有量, 溶出量は文献<sup>4)</sup>

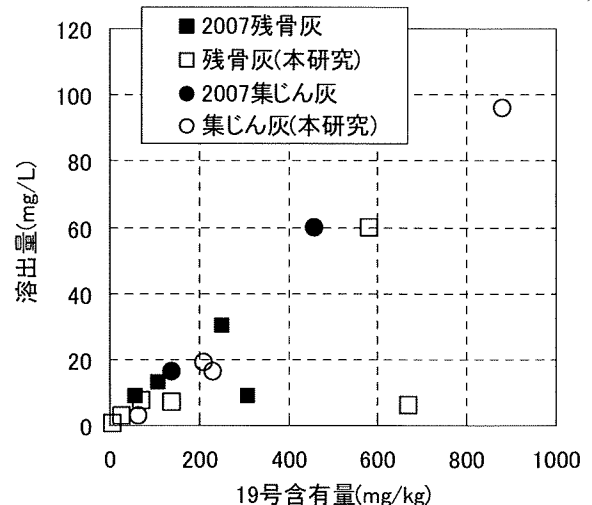


図-2 残骨灰, 集じん灰中六価クロムの19号含有量と溶出量との関係

表より、多くのサンプルについて、溶出率はほぼ100%程度となり、19号含有量として生成された六価クロムはそのほとんどが水溶性成分として存在し、溶出量として定量されていることが示唆された。すなわち、図-2に認められた相関関係は、六価クロム

表-5 残骨灰、集じん灰中六価クロムの19号含有量と溶出量から求めた溶出率

		19号含有量 a (mg/kg)	溶出量 b (mg/L)	溶出量換算値 c=b×10 (mg/kg)	溶出率 c/a×100 (%)
残骨灰	A(2007)	250	30	300	120
	B(2007)	58	9.0	90	155
	C(2007)	110	13	130	118
	D(2007)	310	9.0	90	29
	E	26	3.0	30	115
	F	580	60	600	103
	G	70	7.2	72	103
	H	140	7.1	71	51
	I	5.7	0.58	5.8	102
	J	670	5.9	59	9
集じん灰	A(2007)	140	16	160	114
	B(2007)	460	60	600	130
	E	66	2.7	27	41
	F	880	96	960	109
	G	210	19	190	90
	J	230	16	160	70

※2007年の六価クロムの19号含有量、溶出量は文献4)

※溶出量換算値  $c : b \times 10$  は、土壤汚染対策法で規定される溶出量試験において、溶媒（体積）：試料（重量）が10：1であることによる。

の19号含有量と溶出量のほぼ1対1の対応によるものと位置づけることができる。この場合は、残骨灰、集じん灰に関わらず、その中の六価クロムの化学形態が類似したものになっていることが推察される。図-2の関係から溶出量を抑制するためには、まず、19号含有量を抑制しなければならないことが示唆され、それでも依然として溶出量が基準を超過する場合には不溶化処理が必要であると考えられる。

J残骨灰については、この関係性から大きく外れており、六価クロムの溶出率は10%以下であった。この灰に関しては、後述する排ガス組成から、この施設Jでの排ガス酸素濃度が15.8～16.6%であり、本研究における他の条件が17.4～20.0%であったこと、かつ、排ガス中のCO濃度が他の火葬炉に比べ高い傾向が見られたことから、炉内が比較的還元雰囲気であったために、生成される六価クロムの化学形態が変化している可能性があるが、原因ははっきりしなかった。ただし、この場合においても、含有量および、溶出量基準を超過しているため、対策として、炉内の雰囲気制御により酸素濃度を低下させ、六価クロムの生成を抑制するような対策には限界があると考えられる。

### c) 排ガス組成

排ガス調査結果の一覧を表-6に示した。排ガス組成としてばいじん濃度、CO(平均値)、NO<sub>x</sub>(平均値)

表-6 基礎調査における排ガス調査結果

項目	火葬時間	燃料使用量	主燃焼室温度	再燃焼室温度	排ガス温度	排ガス流量		ばいじん	CO	NO <sub>x</sub>	CO <sub>2</sub>	O <sub>2</sub>	
						湿り	乾き						
単位	分	L-灯油, m <sup>3</sup> -都市ガス	°C	°C	°C	m <sup>3</sup> <sub>N</sub> /h	m <sup>3</sup> <sub>N</sub> /h	g/m <sup>3</sup> <sub>N</sub>	ppm	ppm	%	%	
E	E-1	58	50(都市ガス)	912	800	144	9,540	9,160	<0.008	26	86	0.8	19.8
	E-2	57	49(都市ガス)	923	780	147	8,010	7,780	<0.006	56	110	1.2	19.4
F	F-1	66	69(都市ガス)	956	833	86	14,300	13,900	<0.007	<4	97	0.8	19.6
	F-2	59	51(都市ガス)	960	840				<0.006	<3	120	0.9	19.5
G	G-1	48	47(灯油)	N.A.	N.A.	88	14,600	14,200	0.005	<20	120	1.5	19.1
	G-2	68	65(灯油)	N.A.	N.A.				0.005	33	100	1.4	19.1
H	H-1	60	30(灯油)	1035	820	290	4,760	4,560	0.13	<30	110	2.3	18.1
	H-2	63	40(灯油)	980	830	296	3,770	3,590	0.16	<10	130	2.4	17.9
I	I-1	59	N.A.(都市ガス)	N.A.	N.A.	247	3,890	3,700	0.15	180	84	2.5	17.4
	I-2	64	N.A.(都市ガス)	N.A.	N.A.	230	5,150	4,860	0.10	<40	93	2.0	18.1
J	J-1	84	N.A.(灯油)	N.A.	N.A.	400	4,440	4,130	0.19	270	82	3.8	15.8
	J-2	64	N.A.(灯油)	N.A.	N.A.				0.17	77	110	1.9	16.6
最大値	84	—	—	—	400	14,600	14,200	0.19	270	130	3.8	19.8	
最小値	48	—	—	—	86	3,770	3,590	0.005	<3	82	0.8	15.8	
中央値	62	—	—	—	230	5,150	4,860	0.054	32	105	1.7	18.6	
算術平均値	63	—	—	—	214	8,200	7,320	0.078	32	104	1.8	18.4	
幾何平均値	62	—	—	—	189	7,270	6,970	0.030	30	102	1.6	18.3	

※定量下限値以下の値については、定量下限値とみなし、中央値、算術平均値、幾何平均値を算出

※ばいじん、CO、NO<sub>x</sub>についてはO<sub>2</sub>12%換算値

※N.A.: Not Analyzed

についてはすべてO<sub>2</sub>12%換算値で示した。

ばいじん濃度は、バグフィルターおよび触媒や活性炭吸着設備等の高度排ガス処理設備が設置されている施設E-Gにおいては、0.008 g/m<sup>3</sup><sub>N</sub>以下であり低く保たれていたが、集じん機のない施設H、および施設Jでは、0.13～0.19 g/m<sup>3</sup><sub>N</sub>であり、高い値を示した。施設Iにおいては集じん機としてスクリーン式が設置されていたが、0.10～0.15 g/m<sup>3</sup><sub>N</sub>であり、集じん機のないケースとほぼ同等の値を示した。したがって、スクリーン式では、高い集じん効率を期待できないといえる。

NO<sub>x</sub>に関しては、全ての施設で82～130ppmであり施設ごとに大きな差は見られなかった。

COに関しては、施設Jで比較的高い傾向を示し、最大270ppmであったが、各実験で大きく変動し、排ガス処理の影響等はあまりみられなかった。COには、炉構造に加えて、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。

#### d) 六価クロムの排ガス経路での排出量の推定

火葬炉に由来する灰中の六価クロムに関しては、2007年の調査<sup>4)</sup>、および本研究にて、全ての残骨灰、および集じん灰について溶出量基準を超過することが明らかとなった。火葬炉の周辺環境への直接的な影響を考えた場合、大気への排出量を把握しておくことが重要である。

ここでは、バグフィルターに加え、触媒や活性炭吸着設備等の高度排ガス処理設備が設置された施設E～Gと、集じん機のない、あるいは集じん効率の低い施設H～Jにおける排ガスを經由した火葬炉外への六価クロムの排出量を推定し、バグフィルターおよび高度排ガス処理設備の導入が、六価クロムの排出抑制に与える効果を明らかにすることとした。具体的には、以下の方法により、火葬1体あたりの六価クロム排出量を推定した。

まず、六価クロムに関しては、表-6に示す排ガス温度86～400℃においてはそのほとんどが固体で存在すると考えられるため<sup>7)</sup>、集じん機や、触媒装置等の排ガス処理装置で捕集しきれなかったばいじんが、大気へ排出される際に、そのばいじんに含まれる六価クロム量を大気排出量とした。また、ばいじん中六価クロム濃度としては、各施設の集じん灰中六価クロムの19号含有量を用いた。したがって灰中の全六価クロムでないことに注意を要する。集じん機がなく、19号含有量が把握できない場合には、ばいじん中六価クロム濃度は、集じん機を有する施設における19号含有量の最大値～最小値の範囲を用いた。

以上の前提により、以下の(1)式にしたがって、火葬炉排ガス出口付近における排ガス中六価クロム濃

度： $G_{Cr(VI)}$  (μg/m<sup>3</sup><sub>N</sub>)を求めた。

$$G_{Cr(VI)} = G_{DUST} \cdot C_{Cr(VI)} \quad (1)$$

$G_{DUST}$  : 排ガスばいじん濃度 (g/m<sup>3</sup><sub>N</sub>)  
(O<sub>2</sub>12%換算)

$C_{Cr(VI)}$  : 集じん灰の中六価クロムの  
19号含有量(μg/g)

次に(2)式により、求めた $G_{Cr(VI)}$ に各施設での火葬1体あたりの乾き排ガス量を乗じ、火葬1体あたりの六価クロム排出量： $M_{Cr(VI)}$  (mg/体)を推定した。

$$M_{Cr(VI)} = G_{Cr(VI)} \cdot 10^{-3} \cdot V \cdot t / 60 \quad (2)$$

$V$  : 乾き排ガス量 (m<sup>3</sup>/h)(O<sub>2</sub>12%換算)

$t$  : 火葬時間 (min/体)

なお、各施設における、 $t$ :火葬時間、 $V$ :排ガス量(O<sub>2</sub>12%換算)、 $G_{DUST}$ :排ガス中ばいじん濃度は2体の火葬の平均値を用いた。

試算結果を表-7に示した。まず、排ガス中の六価クロム濃度(19号含有量ベース)は、バグフィルター+触媒装置、あるいは活性炭吸着設備が設置され、2007年に調査した施設A～B、本研究における施設E～Gにおいて、O<sub>2</sub>12%換算値で、0.23～3.8μg/m<sup>3</sup><sub>N</sub>程度と見積もられた。A.Santarsieroらは、イタリアのバグフィルターを有する火葬炉において、煙突の直前で排ガス中のばいじんに含まれるクロムを、酸分解後ICP-MSで測定し、排ガス中全クロム濃度を求め、その値が、6.0±1.0μg/m<sup>3</sup><sub>N</sub>(O<sub>2</sub>11%換算値)であったと報告している<sup>8)</sup>。この値はO<sub>2</sub>12%換算値では5.4±0.9μg/m<sup>3</sup><sub>N</sub>となる。後述するが、施設Kの集じん灰では中性子放射化分析による全クロム濃度は表-9に示すように1,820mg/kgであり、その際の六価クロムの溶出量は15mg/Lであった。この溶出量を灰重量基準に換算すると150mg/kgとなる。表-5の溶出率より、灰重量基準の溶出量換算値と、19号含有量との比は、基礎調査で調査した4種の集じん灰で41%～130%の範囲にあったことから、施設Kの集じん灰中六価クロムの19号含有量は、概ね115～367mg/kgであると推算できる。この値は、中性子放射化分析により求めた全クロム量:1,820mg/kgの6.3%～20.1%に対応する。全クロムの測定値としては、酸分解後ICP-MSによる測定と、中性子放射化分析の値はほぼ対応すると考えられるため、A.Santarsieroらの報告値のO<sub>2</sub>12%換算値:5.4±0.9μg/m<sup>3</sup><sub>N</sub>の6.3%～20.1%が、排ガス中の六価クロム濃度(19号含有量ベース)に相当し、この

表-7 火葬炉における排ガス中六価クロム濃度と排出量の推定

項目	火葬時間	排ガス流量 (乾き)	ばいじん	集じん灰中 六価クロム 19号含有量	排ガス中 六価クロム濃度	六価クロム 排出量	備考: 排ガス処理	
単位	分	m <sup>3</sup> <sub>N</sub> /h	g/m <sup>3</sup> <sub>N</sub>	mg/kg	μg/m <sup>3</sup> <sub>N</sub>	mg/体		
2007	A	44	2,100	<0.006	140	0.42	0.65	BF+SCR
	B	65	2,510	<0.017	460	3.8	10	BF+AC
	C	69	1,730	0.155	(66-880)	75	140	集じん機なし
	D	81	2,130	0.0525	(66-880)	25	70	集じん機なし
本研究	E	58	1,320	<0.007	66	0.23	0.15	BF+SCR
	F	63	2,240	<0.007	880	2.9	3.3	BF+SCR
	G	55	3,000	0.005	210	1.1	2.9	BF+AC
	H	62	1,360	0.145	(66-880)	70	97	集じん機なし
	I	62	1,550	0.125	230	29	46	SC
	J	74	2,200	0.180	(66-880)	86	230	集じん機なし

※2007年の火葬データ，集じん灰の六価クロム19号含有量は文献4)

※火葬時間，乾き排ガス流量，ばいじんについては各施設2体分の火葬の平均値

※乾き排ガス流量，ばいじんについてはO<sub>2</sub>12%換算値

※集じん灰六価クロム19号含有量()内は，集じん機がなくデータが無いため，集じん機を有する施設の最大～最小値

※排ガス中六価クロム濃度，六価クロム排出量は，六価クロム19号含有量ベースであり，各施設の平均値として算出

※BF：バグフィルター，SCR：触媒装置，AC：活性炭吸着設備，SC：スクリーン式集じん機

値は，0.37～1.2μg/m<sup>3</sup><sub>N</sub>と見積もられた。したがって，本研究の施設E～Gの予測値である0.23～3.8μg/m<sup>3</sup><sub>N</sub>とほぼ同じオーダーであると推測される。

集じん機が設置されていない，あるいは集じん効率が低い施設である，2007年の施設C～D，および本研究で調査した施設H～Jにおいては，排ガス中の六価クロム濃度(19号含有量ベース)は25～86μg/m<sup>3</sup><sub>N</sub>の範囲にあると推定され，少なくともバグフィルターや高度排ガス処理設備が設置された施設よりも高い濃度レベルにあると推測される。

火葬1体あたりの六価クロム排出係数(19号含有量ベース)に関しては，バグフィルター，および高度排ガス処理設備を有する2007年の施設A～B，本研究で調査した施設E～Gにおいて0.15～10mg/体と見積もられた。また，集じん機を有しない，あるいはあっても集じん効率が低い，2007年の施設C～D，および本研究で調査した施設H～Jにおいては，46～230mg/体と見積もられた。双方の比較により，六価クロム排出量(19号含有量ベース)は，集じん効率の高いバグフィルターや高度排ガス処理設備が設置されることにより，集じん機を有しない，あるいは集じん効率が低い場合に比較して，78～99%低減されている。すなわち，排ガスを經由した火葬炉外への六価クロムの排出が，主としてダイオキシン排出抑制を目的に設置されたバグフィルターや高度排ガス処理設備により抑制されていると考えられた。

以上より，排出量に関しては，バグフィルター等の高度排ガス処理設備により，抑制されていることが考えられた。しかし，排出濃度として考えた場合には，我が国では，大気中の六価クロムは大気汚染

防止法により要監視項目としては挙げられているが，排出基準や環境基準が現時点で存在しないため<sup>9)</sup>，これらの排出濃度について安全性を評価することができない。また，周辺土壌環境への影響についても，本研究では対象としなかったため，将来的には，より詳細な調査が必要である。

#### e) 火葬炉における全クロムの排出係数

これまでの結果から，火葬炉から大気への全クロムの排出係数を算出し，他燃焼発生源の排出係数と比較検討した。集じん灰中の全クロムに対する六価クロム(19号含有量ベース)の割合は，前述の検討により，6.3%～20.1%であると推定された。この値により，火葬1体あたりの六価クロム排出係数(19号含有量ベース)を，全クロムの排出係数に換算した。また，日本人の平均寿命<sup>10)</sup>，年齢別の体重<sup>11)</sup>，死亡者数の男女割合<sup>12)</sup>から平均的な遺体の体重は53.5kg/体と推定され，火葬による全クロム排出量を遺体重量あたりの排出係数に換算した。様々な燃焼発生源の全クロムの排出係数は，USEPA，AP42で多く報告されており，ここから代表的な燃焼発生源を選定し<sup>13)～18)</sup>，火葬との比較を行った。燃焼発生源の選定は，中西，小野が2004年の国内における六価クロムの大気への排出インベントリーを見積もっており<sup>19)</sup>，それを参考にした。

表-8に，火葬，および他の燃焼発生源から大気への全クロムの排出係数を示した。まず，排ガス処理のある場合を見ると，火葬炉からの全クロムの排出係数は0.014～3.0mg/kgであり，石炭火力発電，廃棄物焼却，下水汚泥焼却とほぼ同オーダーであった。一方，排ガス処理のない場合，火葬の排出係数は，

表-8 火葬, その他燃焼発生源から大気への全クロム排出係数(mg/kg)

項目	排ガス処理なし	排ガス処理あり	備考	文献
石炭火力発電	14	0.13	排ガス処理なし: 無煙炭 排ガス処理あり: 瀝青炭, 亜瀝青炭, 褐炭	13),14)
廃棄物焼却	4.49	0.015~0.13		15)
下水汚泥焼却	14	0.01~9.8		16)
耐火レンガ製造	130~350	64	Cr-Mgレンガ製造	17)
セメント製造	-	0.0039~0.070		18)
火葬	4.3~69	0.014~3.0	排ガス処理なし: 施設A, B, E~G 排ガス処理あり: 施設C, D, H~J	本研究

4.3 ~ 69mg/kg であり, 石炭火力発電, 廃棄物焼却, 下水汚泥焼却の 4.5 ~ 14mg/kg と同程度か, それよりも高くなる可能性があることが示唆された. クロムの由来については後段で検討するが, 燃焼対象物としては, 石炭や廃棄物, 下水汚泥に比較して遺体や副葬品, 棺, 燃料に由来するクロムが高くなるとは考えにくく, 従来からクロム源と推測されているステンレス製の架台<sup>9)</sup>などの影響があると考えられる.

(2) クロムの由来調査

a) 火葬炉における全クロムのマスバランス

火葬における残骨灰, および集じん灰中六価クロムの由来は主に, 棺を乗せるステンレス製(SUS310S)架台であると推測されている<sup>9)</sup>. この根拠としては, 以下のようなことが考えられる.

まず, SUS310S のようなステンレス鋼では表面に Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> のような不動態膜が形成され, これにより高温・酸化雰囲気中で内部構成元素の酸化が防がれ強度が保持されているが<sup>20)</sup>, 高温・酸化雰囲気下で塩基性のアルカリ土類金属化合物により, Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> は容易に酸化され, 水溶性の六価クロム化合物を形成するとされる<sup>21)</sup>. 人骨には主成分であるヒドロキシアパタイト(Ca<sub>10</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>6</sub>(OH)<sub>2</sub>)に加え, マグネシウム, 炭酸イオンなどが含まれているとともに<sup>22)</sup>, 台車の保護剤として, カルシウムを含むキャストブル粉を用いている施設もあり, これらが高温・酸化雰囲気下で六価クロム生成能を有すると考えられる. ただし, 火葬炉内における耐火物には, Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> が含まれる可能性があり, これが六価クロムの由来になっていることも否定できない. そこで, 火葬における全クロムのマスバランスを明らかにすることで, 残骨灰, および集じん灰中六価クロムの由来を明らかにできると考えた. 具体的には, 施設Kにおいて, ステンレス製架台が残骨灰, および集じん灰中六価クロムの由来とした時の火葬炉における全クロムのマスバランスを検討した. この場合, 以下(3)式による全クロ

ムの収支式が概ね成立すると考えられる.

$$M_{Scr} = M_{Bcr} + M_{Fcr} \tag{3}$$

M<sub>Scr</sub>: 火葬1体あたりのステンレス製架台中全クロムの減少量(mg/体)

M<sub>Bcr</sub>: 火葬1体あたりの残骨灰に由来する全クロム量(mg/体)

M<sub>Fcr</sub>: 火葬1体あたりの集じん灰に由来する全クロム量(mg/体)

M<sub>Scr</sub>: 火葬1体あたりのステンレス製架台中クロムの減少量は, 図-3に示す施設Kのステンレス製架台の交換時期までの損耗量を考え, 以下の(4)式により求めることができる.

$$M_{Scr} = \pi (SU^2 - SU_0^2) \cdot L \cdot \rho \cdot Scr \cdot 10^6 / N \tag{4}$$

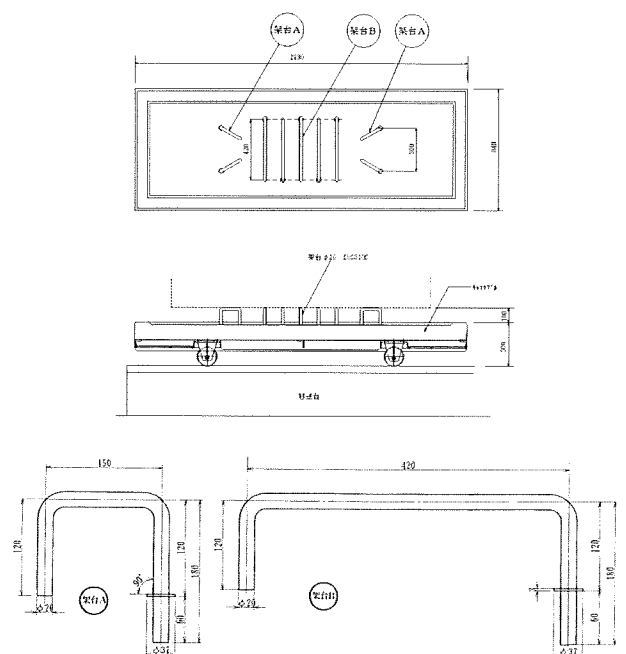


図-3 施設Kにおけるステンレス製架台



表-9 火葬炉における全クロムのマスバランス算出に用いた諸係数

項目	記号	単位	値	備考
ステンレス製架台の初期半径	SUi	m	0.010	図-3より
ステンレス製架台の交換時期における半径	SUo	m	0.005	施設K、ステンレス架台交換基準より
ステンレス製架台の総長さ	L	m	4.86	図-3より算出
ステンレス製架台:SUS310Sの比重	$\rho$	kg/m <sup>3</sup>	7,870	鋼材検査証明書より
ステンレス製架台:全クロム含有割合	Scr	wt%	24	鋼材検査証明書より
ステンレス製架台の交換時期までの火葬遺体数	N	体	180	施設K運転データのヒアリングより
残骨灰中の全クロム濃度	Bcr	mg/kg	4,210	中性子放射化分析結果(平均値:N=3)
火葬1体あたりの残骨灰発生量	MB	kg/体	3	施設K運転データのヒアリングより
集じん灰中の全クロム濃度	Fcr	mg/kg	1,820	中性子放射化分析結果(平均値:N=2)
バグフィルター入口ばいじん濃度	Din	g/m <sup>3</sup> <sub>N</sub>	0.05	施設K運転データのヒアリングより
バグフィルター出口ばいじん濃度	Dout	g/m <sup>3</sup> <sub>N</sub>	0.01	施設K運転データのヒアリングより
火葬1体あたりの排ガス量	Vb	m <sup>3</sup> <sub>N</sub> /体	12,000	施設K運転データのヒアリングより

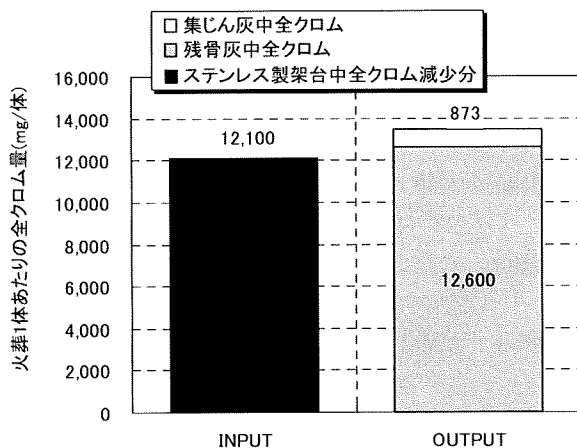


図-4 1体の火葬における全クロムのマスバランス算出結果

SUi : ステンレス製架台の初期半径 (m)

SUo : ステンレス製架台の交換時期における半径 (m)

L : ステンレス製架台の総長さ (m)

$\rho$  : ステンレス製架台:SUS310Sの比重 (kg/m<sup>3</sup>)

Scr : ステンレス製架台:SUS310S 全クロム含有割合 (wt%)

N : ステンレス製架台の交換時期までの火葬遺体数 (体)

MBCr : 火葬1体あたりの残骨灰に由来する全クロム量は、以下の(5)式により求めることができる。

$$MBCr = Bcr \cdot MB \quad (5)$$

Bcr : 残骨灰全クロム濃度 (mg/kg)

MB : 火葬1体あたりの残骨灰発生量 (kg/体)

MFcr : 火葬1体あたりの集じん灰に由来する全クロム量は、以下の(6)式により求めることができる。

$$MFcr = Fcr \cdot (Din - Dout) \cdot 10^{-3} \cdot Vb \quad (6)$$

Fcr : 集じん灰中の全クロム濃度 (mg/kg)

Din : バグフィルター入口ばいじん濃度 (g/m<sup>3</sup><sub>N</sub>)

Dout : バグフィルター出口ばいじん濃度 (g/m<sup>3</sup><sub>N</sub>)

Vb : 火葬1体あたりの排ガス量 (m<sup>3</sup><sub>N</sub>/体)

これらの値を求めるために用いたデータ、および測定値を表-9にまとめて示した。またこれらの式にしたがって求めた施設Kにおける火葬炉における全クロムのマスバランスを図-4に示す。図-4より、ステンレス架台中全クロムの減少分は、12,100mg/体であるのに対し、残骨灰、および集じん灰の全クロム量は、12,600mg/体、および863mg/体であり、わずかにOUTPUTが高くなったが、その割合は110%程度であり、概ね整合する結果となった。

INPUTとしてステンレス製架台以外には人体由来や、燃料由来、副葬品、炉内耐火物、熱電対が考えられる。人体中全クロムは体重70kgの成人男性で約2mg/体、存在するとされることから<sup>23)</sup>、12,100mg/体に対して無視できると考えられる。燃料は表-1に示したように灯油、都市ガスが用いられているが、都市ガス中に全クロムはほとんど含まれないと考えられる。また、灯油中の全クロムは、ICP-MSでの測定値として、62.4  $\mu$ g/Lとの報告がある<sup>24)</sup>。表-6における火葬での使用量は約50L/体であるので、灯油由来の全クロムは3.1mg/体となる。したがって、これについても無視できると考えられる。副葬品や炉内耐火物、熱電対に関しては、クロム含有量や、火葬における減少量のデータが得られなかったため、はっきりしないが、残骨灰、集じん灰中の全クロムがステンレス架台の減少量でほぼ説明できることから、比較的影響は少ないと考えた。

またOUTPUTとして、残骨灰中の全クロム濃度は集じん灰に比較し高く、残骨灰の発生量はこの結果に大きく影響している。火葬1体あたりの残骨灰発生量は、表-9に示すように、施設へのヒアリングにより3kg/体としている。島崎は、体重60kgの遺体の

火葬あたりの灰発生量として、人体、棺、副葬品の化学組成から3.4kg/体と見積もっている<sup>29)</sup>。本ケースにおいて集じん灰の発生量は0.48kg/体であったことから、残骨灰の発生量を予測すると2.9kg/体となる。また Monaghan は、イギリスの火葬炉における灰の発生量を1.8～2.3kg/体と報告している<sup>20)</sup>。火葬の状況は遺体の年齢や体格等によっても異なってくるためばらつきはあるものの、残骨灰発生量のヒアリング値である3kg/体は妥当な範囲にあると考えられる。

以上の結果から、残骨灰、および集じん灰中の主たるクロム源としては、ステンレス製架台による可能性が高いことが推測された。また全クロム量としては集じん灰よりも、残骨灰中に移行する割合が大きいことが示唆された。ただし、この施設Kにおける集じん灰について、土壤汚染対策法に基づいた溶出量試験を実施した結果、六価クロムの溶出量は15mg/Lであり、残骨灰へ移行する割合が多くとも、溶出量基準:0.05mg/Lを大幅に超過する結果となった。

#### b) ステンレス製架台の影響

以上の検討から、残骨灰、集じん灰中のクロムの由来としては、ステンレス製架台であると推定された。そこで、ステンレス製架台を利用していない海外の火葬炉Lにおいて、残骨灰、集じん灰をサンプリングし、溶出量を評価した。

火葬炉Lにおける残骨灰、集じん灰の溶出量試験の結果を、(I)基礎調査の10検体の残骨灰、集じん灰の結果とあわせて図-5に示す。L残骨灰、およびL集じん灰の溶出量は、7.0mg/L、および3.4mg/Lであり、基礎調査の結果と比較して、全体的には低い傾向にあったが、E残骨灰、I残骨灰、E集じん灰ほど低くはならず、依然として溶出量基準:0.05mg/Lを大幅に超過していた。すなわち、全クロムのマスバランスからはステンレス製架台が主たるクロム源であると推測されたが、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。

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が高い。よって、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。

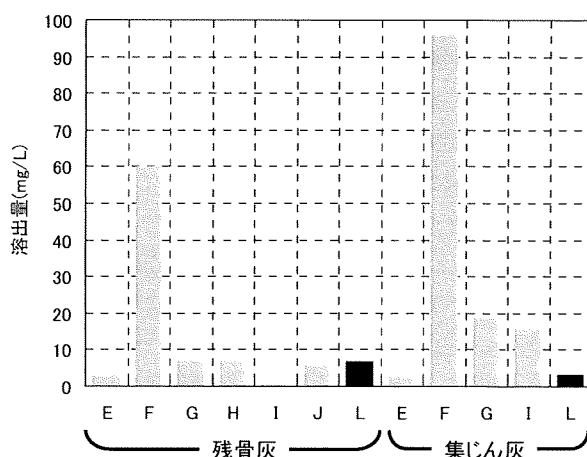


図-5 施設Lにおける残骨灰、集じん灰の六価クロム溶出量の比較

## 4. まとめ

本研究は、複数の施設の火葬炉を対象に、残骨灰、および集じん灰中六価クロムの排出実態を明らかにするとともに、クロム源とされるステンレス製架台についても調査し、排出抑制対策について検討した。

以下に得られた知見を示す。

- 火葬炉における残骨灰、集じん灰の六価クロム溶出量は、10検体全て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10～1,900倍の濃度が検出された。一方19号含有量に関しては、含有量基準(250mg/kg)を超過したのは3検体のみであった。したがって、特に灰の溶出量に注意する必要がある。
- 残骨灰、集じん灰の六価クロム溶出量、19号含有量の関係から、多くのサンプルで、19号含有量のほとんどが溶出量試験で溶出していることがわかった。よって、溶出量を抑制するためには、まず、19号含有量を抑制しなければならないことが示唆され、それでも依然として溶出量が基準を超過する場合には不溶化処理が必要であると考えられた。
- 排ガスの酸素濃度が比較的低く、CO濃度が高い場合には、六価クロムの19号含有量が高くとも溶出量が比較的抑制されるケースも見られたが、依然として溶出量基準は超過しており、炉内の雰囲気制御等の対策には限界があると考えられる。
- 排ガス測定データと、六価クロムの19号含有量から、火葬炉から排ガス経由で大気へ排出される六価クロム量(19号含有量ベース)を推定したところ、集じん機としてバグフィルターや高度排ガス処理設備が導入されることで、集じん機がない場合に比較し、78～99%程度の排出抑制効果があることが推定された。

- ・火葬における大気への全クロムの排出係数を求め、他の燃焼発生源と比較したところ、排ガス処理のないケースにおいて、石炭火力発電所、下水汚泥焼却、廃棄物焼却よりも高くなる可能性があり、ステンレス製架台の影響が示唆された。
- ・灰中の六価クロムの由来として、ステンレス製架台とした場合の、火葬炉1施設における全クロムのマスバランスを明らかにし、その整合性を概ね確認できた。またこの結果から、灰中六価クロムの主たる由来としてはステンレス製架台が損耗し、それらが灰中に移行したものであると推測された。
- ・ステンレス製架台を用いない海外の火葬炉1施設において、残骨灰、および集じん灰の溶出量を評価したところ、基礎調査の結果と比較して低い範囲にあったが、依然として溶出量基準を超過する結果となった。したがって、ステンレス製架台がなくとも、他のクロム源の影響により、溶出量基準の達成は厳しい状況にあるといえる。
- ・今後、材質による対策として、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は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が高い。したがって、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が必要である。

謝辞：本研究を遂行するにあたり、研究主旨をご理解頂き、実態調査にご協力頂いた計8箇所の火葬場、および関係自治体の方々に感謝の意を表す。なお、本研究の一部は平成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）により実施された。ご協力いただいた方々に深く感謝する。

#### 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19年度衛生行政報告例，表 埋葬及び火葬の死体・死胎数並びに改葬数，都道府県一指定都市－中核市（再掲）別，<http://www.e-stat.go.jp/SG1/estat/List.do?lid=000001035603>，2009.2.5 情報取得。
- 2) 島崎昭：五訂版火葬概論，特定非営利活動法人日本環境斎苑協会，p.31，2007。
- 3) 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/suikai08/index.html>，2009.2.4 情報取得。
- 4) 武田信生，高岡昌輝，大下和徹：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，環境工学研究論文集，Vol.45，pp.259-270，2008。
- 5) 読売新聞：火葬の灰，六価クロム420倍も ひつぎ載せるステンレス台影響？，2006年12月8日夕刊1面，2006。
- 6) 高岡昌輝，中塚大輔，武田信生，藤原健史，ごみ焼却飛灰中元素の定量に関する蛍光X線分析法の適用性，廃棄物学会論文誌，Vol.11，No.6，pp.333-342，2000。
- 7) 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。
- 8) A. Santarsiero, G. Trevisan, G. Cappiello, G. Formenton, E. Dell'Andrea: Urban crematoria emissions as they stand with current practice, *Microchemical Journal*, Vol. 79, pp.299-306, 2005.
- 9) 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，pp.27-30，2008。
- 10) 総務省 統計局：日本の統計，第2章 人口・世帯，2-21 日本人の平均寿命，<http://www.stat.go.jp/data/nihon/02.htm>，2009，8，7 情報取得。
- 11) 厚生労働省：厚生統計要覧（平成20年度）第2編 保健衛生，第1章 保健 第2-6表 身長・体重の平均値，性・年次×年齢別，<http://www.mhlw.go.jp/toukei/youran/data20k/2-06.xls>，2009，8，7 情報取得。
- 12) 総務省 統計局：日本の長期統計系列，第2章 人口・世帯，2-25 男女別死亡数及び死亡率，<http://www.stat.go.jp/data/chouki/02.htm>，2009，8，7 情報取得。
- 13) USEPA: AP 42, Fifth Edition, Volume I, Chapter 1: External Combustion Sources, 1.1 Bituminous and Subbituminous Coal Combustion, Table 1. 1-18, 1998.
- 14) USEPA: AP 42, Fifth Edition, Volume I, Chapter 1: External Combustion Sources, 1.2 Anthracite Coal Combustion, Table 1. 2-7, 1996.
- 15) USEPA: AP 42, Fifth Edition, Volume I, Chapter 2: Solid Waste Disposal, 2.1 Refuse Combustion, Table 2. 1-1, 1996.
- 16) USEPA: AP 42, Fifth Edition, Volume I, Chapter 2: Solid Waste Disposal, 2.2 Sewage Sludge Incineration, Table 2. 2-5, 1995.
- 17) USEPA: AP 42, Fifth Edition, Volume I, Chapter 11: Mineral Products Industry, 11.5 Refractory Manufacturing, Table 11. 5-4, 1995.
- 18) USEPA: AP 42, Fifth Edition, Volume I, Chapter 11: Mineral Products Industry, 11.6 Portland Cement Manufacturing, Table 11. 6-9, 1995.
- 19) 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，pp.99-143，2008。
- 20) 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。
- 21) 西野忠，桜井正：含アルカリ土類複酸化物と酸化クロム(III)との反応(その1)，窯業協会誌，Vol.85, No.10, pp.496-500, 1977。

- 22) 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.
- 23) 桜井弘編: *元素 1 1 1 の新知識*, 講談社ブルーバックス, pp.134-138, 1997.
- 24) Willi Barger: *Analysis of Petroleum Products with the ELAN DRC ICP-MS, PerkinElmer Field Application Report*, 2007.
- 25) 島崎昭: *五訂版火葬概論*, 特定非営利活動法人日本環境斎苑協会, p.98, 2007.
- 26) Adrian Monaghan: *Conceptual niche management of grassroots innovation for sustainability: The case of body disposal practices in the UK, Technological Forecasting & Social Change, in press*, 2009.

(2009. 5. 22 受付)

## Measures and Source to Prevent the Emission of Hexavalent Chromium Compounds in Ash from Crematoriums in Japan

Nobuo TAKEDA<sup>1</sup>, Masaki TAKAOKA<sup>2</sup>, Kazuyuki OSHITA<sup>2</sup> and Shoji EGUCHI<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Eco-Technology Research Center, Ritsumeikan University

<sup>2</sup>Department of Urban and Environmental Engineering, Graduate School of Engineering,  
Kyoto University

<sup>3</sup>Taiyo Chikuro Industries Co. Ltd.

This study measured hexavalent chromium compounds in the fly ash and bottom ash from a number of crematoriums in Japan, and investigated the stainless steel trestle as the source of the chromium, to evaluate the emissions from crematoriums.

The hexavalent chromium compounds leached from all of the ash samples exceeded the Japanese environmental quality standards for soil by 10 to 1,900 times. Based on the consistency of the mass balance of chromium in the crematorium, the estimated source of the chromium was mainly the wear of the stainless steel trestle. Nevertheless, the hexavalent chromium compounds leached from ash samples from a crematorium that did not use a stainless steel trestle were not low enough to meet the Japanese environmental quality standards for soil. Future studies need to investigate ash treatment from crematoriums using bag filters to limit emissions.

## Mercury emission from crematories in Japan

M. Takaoka<sup>1</sup>, K. Oshita<sup>1</sup>, N. Takeda<sup>2</sup>, and S. Morisawa<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Department of Urban and Environmental Engineering, Graduate School of Engineering, Kyoto University, Nishikyo-ku, Kyoto, 615-8540, Japan

<sup>2</sup>Eco-technology Research Center, Ristumeikan University, 1-1-1 Nojihigashi, Kusatsu, Shiga, 525-8577, Japan

Received: 30 September 2009 – Published in Atmos. Chem. Phys. Discuss.: 16 December 2009

Revised: 8 April 2010 – Accepted: 8 April 2010 – Published: 20 April 2010

**Abstract.** Anthropogenic sources of mercury emissions have a significant impact on global pollution. Therefore, finding uncharacterised sources and assessing the emissions from these sources are important. However, limited data are available worldwide on mercury emissions from crematories. In Japan, 99.9% of dead bodies are cremated, which is the highest percentage in the world, and more than 1600 crematories are in operation. We thus focused on emissions from crematories in Japan. The number of targeted facilities was seven, and we used continuous emission monitoring to measure the mercury concentrations and investigate mercury behaviour. The total mercury concentrations in stack gases were a few  $\mu\text{g}/\text{Nm}^3$  (normal cubic meters). Considering the time profile of mercury and its species in cremations, the findings confirmed that the mercury in stack gas originated from dental amalgam. The amount of mercury emissions was calculated using the total concentration and gas flow rate. Furthermore, the annual amount of mercury emission from crematories in Japan was estimated by using the total number of corpses. The emission amount was considerably lower than that estimated in the United Kingdom. From statistical analyses on population demographics and measurements, future total emissions from crematories were also predicted. As a result, the amount of mercury emitted by crematories will likely increase by 2.6-fold from 2007 to 2037.

ald et al., 1998). Some of the inorganic mercury in water is converted into organic mercury, which can be very toxic and is subject to biological accumulation. Consequently, the emission of mercury is of great concern. The United Nations Environment Programme (UNEP) is conducting studies with the goal of a worldwide reduction in mercury (UNEP Chemicals, 2002). These programmes require estimates of the national emissions of mercury from major sources in each country. A report by the Arctic Monitoring and Assessment Programme and UNEP Chemicals (2008), lists mercury emissions from crematories because dental amalgam contains a significant amount of mercury.

According to the Ministry of Health, Labour and Welfare (MHLW) of Japan (2008a), 99.9% of all bodies (1 108 334) were cremated in about 1600 facilities in 2007; this percentage is the highest in the world. With demographic changes, the number of deaths is increasing, and the number of cremations will also increase (MHLW, 2008b). For religious reasons, mercury emissions from crematories in Japan are not regulated by the Air Pollution Control Act or the Waste Management and Public Cleansing Act. However, examining mercury emissions from crematories is needed to determine their environmental impact and to take measures to reduce or monitor them if necessary. Anthropogenic sources of mercury emissions have a significant impact on global pollution. Therefore, finding uncharacterised sources and evaluating the emissions from them are important. However, only limited data on mercury emissions from crematories are available in the literature. According to the Department for Environment, Food and Rural Affairs (DEFRA) in the United Kingdom (2004), mercury emissions in 2020 will be 1.67 times those in 1995 and will peak in 2035. It will contribute 11–35% of the total mercury emissions in the United Kingdom in 2020. In Sweden, it was estimated to be the third highest contributor of all anthropogenic sources of mercury (Hogland, 1994). Emissions from crematories are also very likely to have a significant impact in Japan.

### 1 Introduction

Given in its high volatility, mercury is emitted into the atmosphere from both anthropogenic and natural sources. Subsequently, it enters oceans, lakes, and rivers from the atmosphere directly or from deposits in surrounding basins, even when no specific source of the element is present (Fitzger-



Correspondence to: M. Takaoka  
(takaoka@environ.mbox.media.kyoto-u.ac.jp)

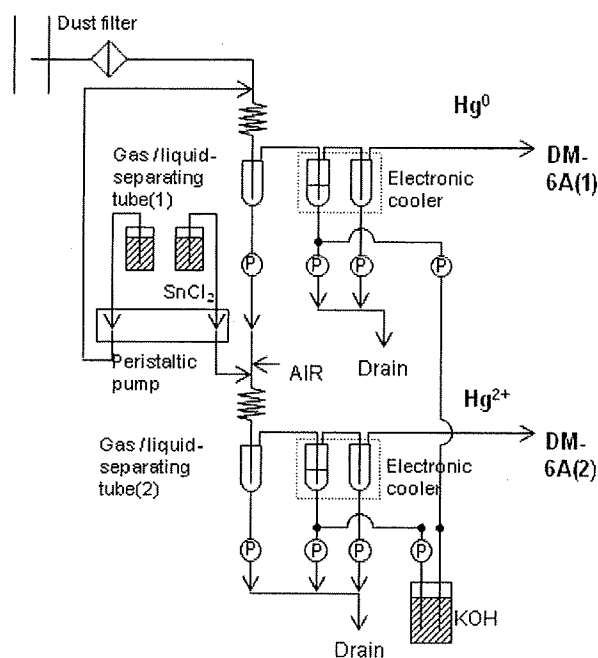


Fig. 1. The pretreatment section of the speciation CEM.

The purposes of this research were to measure actual emission levels, estimate emissions from crematories in Japan using measurement data and clarify the behaviour of mercury in crematory flue gas with the goal of predicting the environmental fate of the mercury in the surrounding area. Finally, future trends in emissions were estimated.

## 2 Materials and methods

### 2.1 Facilities

Table 1 shows the configuration of the seven crematories and the sampling conditions. In Japan, to prevent dioxin emissions from crematories, a guideline was implemented in 2000 requiring installation of air pollution control devices (APCDs) in newly constructed facilities. Although the removal efficiency of mercury by APCDs is beyond the scope of this research, APCDs do have a significant impact on the mercury concentration in final flue gas. Thus, we selected three crematories (Facilities No. 1, 2, and 3) that were constructed after 2000. In these particular facilities, bag filters were used as dust collectors and advanced APCDs had been installed. Additionally, Facility No. 7 also has a bag filter system, although it was constructed in 1998. Conversely, Facilities No. 5 and 6 were not equipped with even a dust collector. All crematories had a series of one secondary combustion chamber to one main combustion chamber, and in all cases, flue gases were cooled by air ejectors. Facility No. 1 used a heat exchanger for flue gas cooling. Natural gas and

oil were used as auxiliary fuel in four (Facilities No. 1, 2, 4, and 7) and three (Facilities No. 3, 5, and 6) of the crematories, respectively.

The origin of the mercury is believed to be dental amalgam (Mills, 1990). Since there is a large difference in mercury emissions between a body with or without mercury amalgam, we conducted many measurements at two facilities (No. 6 and 7) to determine an accurate average mercury concentration. In other crematories, flue gas was sampled twice for each crematory. Since bodies are cremated individually, flue gas was sampled throughout a cremation, from ignition of the secondary burner to extinction of the main burner.

### 2.2 Mercury emission monitoring

Knowing the species of mercury in stack gas will contribute to a better understanding of the environmental fate of mercury. The mercury concentrations in stack gas were monitored continuously using a speciation mercury continuous emission monitor (CEM, MS1A+DM-6A; Nippon Instruments). This device was developed by Nippon Instruments and the Central Research Institute of the Electric Power Industry in Japan (Chua et al., 2003). The pretreatment section of the speciation CEM is shown in Fig. 1.

An aqueous solution of 1 mol/L potassium chloride and flue gases that had been passed through the dust filter is mixed with a gas/liquid contact coil to transfer oxidised mercury ( $\text{Hg}^{2+}$ ) into the liquid phase. The gas flow rate is 0.5 L/min, and the gas and solution are separated in the gas/liquid separating tube. Elemental mercury ( $\text{Hg}^0$ ) in the gas phase is washed with 1 mol/L potassium hydroxide to remove any acid gas, and the excess moisture in the gas is condensed with an electric cooler. Then, the gas including  $\text{Hg}^0$  is fed into the first detection device, which is an atomic absorption mercury analyser (DM-6A(1)). The aqueous solution in the gas/liquid separating tube is directed into another gas/liquid contact coil and then mixed with 1% stannous chloride and 10% sulphuric acid. In this process, the  $\text{Hg}^{2+}$  in solution is reduced, liberating gaseous  $\text{Hg}^0$ , which passes through another gas/liquid separating tube before it is fed into the second detection device (DM-6A(2)) to quantify the  $\text{Hg}^{2+}$ . Here, the gas flow rate must be the identical to that in line DM-6A(1).

Given this speciation, CEM was developed based on the Ontario Hydro method, which is used to determine the elemental, oxidised, particle-bound and total mercury emissions from coal-fired stationary sources (ASTM D6784-02, 2008); it was compared with the Ontario Hydro method periodically and showed an excellent correlation for mercury concentrations ranging from 0 to 100  $\mu\text{g}/\text{Nm}^3$  in a municipal solid waste incinerator (Chua et al., 2003). The detection limit of this device is 0.1  $\mu\text{g}/\text{Nm}^3$ .

Some flue gas obtained at Facility No. 7 was simultaneously sampled using an absorption method based on Japanese Industrial standard K0222. Flue gas was passed through

**Table 1.** The configurations and mercury concentration of seven crematories.

Facility No.	1		2		3		4		5		6		7	
Dust collector	Bag filter		Bag filter		Bag filter		Electrostatic precipitator		–		–		Bag filter	
Advanced APCD	Catalytic reactor		Catalytic reactor		Activated carbon filter		–		–		–		–	
Flue gas cooling device	Heat exchanger +air ejeccor		Air ejector		Air ejector		Air ejector		Air ejector		Air ejector		Air ejector	
Ventilation	Induced		Induced		Induced		Induced		Induced		Induced		Induced	
The number of secondary chambers connected to flue gas treatment line	2		2		2		3		2		1		2	
Fuel	Natural gas		Natural gas		Kerosene		Natural gas		Kerosene		Kerosene		Natural gas	
Experimental No.	1	2	1	2	1	2	1	2	1	2	44	33		
Cremation time	58	57	66	59	48	68	64	45	71	66	84 (60–107)		57 (47–75)	
Age	64	75	91	79	98	85	66	80	84	65	81 (52–99)		77 (29–101)	
Sex	female	female	female	female	female	female	male	female	female	male	male(24), female(20)		male(22), female(11)	
Hg concentraion ( $\mu\text{g}/\text{Nm}^3$ )	0.2	0.9	0.3	0.4	0.4	3	30.3	1.4	2.8	0.3	3.0 (0.2–82.7)		4.3 (0.8–25.2)	
Hg <sup>0</sup> concentraion ( $\mu\text{g}/\text{Nm}^3$ )	0.1	0.5	0.2	0.1	0.3	2.7	30.1	1.3	2.7	0.2	2.6 (0.1–81.2)		2.2 (0.0–23.6)	
Hg <sup>2+</sup> concentraion ( $\mu\text{g}/\text{Nm}^3$ )	0.1	0.4	0.1	0.3	0.1	0.3	0.3	0.1	0.1	0.1	0.5 (0.1–2.7)		2.1 (0.7–8.1)	

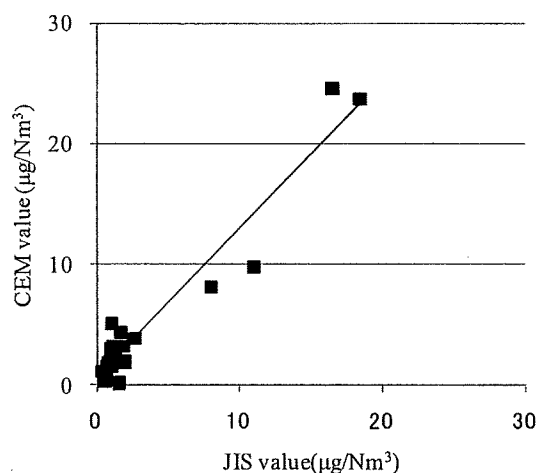
a glass filter and bubbled through a sulphuric acid solution with potassium permanganate ( $\text{KMnO}_4$ ). Mercury absorbed in the solution was measured using a frameless reduction vapourisation atomic absorption mercury analyser (RA-2; Nippon Instruments). The sulphuric acid solution with  $\text{KMnO}_4$  oxidises organic or inorganic mercury into bivalent mercury ions, and using stannous chloride as a reducing agent, bubbling changes ions into mercury vapour. This mercury vapour is then directed to an absorption cell and atomic absorption was measured at a wavelength of 253.7 nm to determine the quantity of mercury.

Carbon monoxide (CO), oxygen ( $\text{O}_2$ ), carbon dioxide ( $\text{CO}_2$ ), nitrogen oxide ( $\text{NO}_x$ ), and sulphur dioxide ( $\text{SO}_2$ ) concentrations were also monitored using continuous emission monitors (CGT-7000 for CO, NOA-7000 for  $\text{O}_2$  and  $\text{NO}_x$ , SOA-7000 for  $\text{SO}_2$ ; Shimadzu Co. Ltd.). In crematory No. 7, the HCl concentration was measured manually based on Japanese Industrial Standard K0107.

### 3 Results and discussion

#### 3.1 Mercury concentration in crematory flue gas

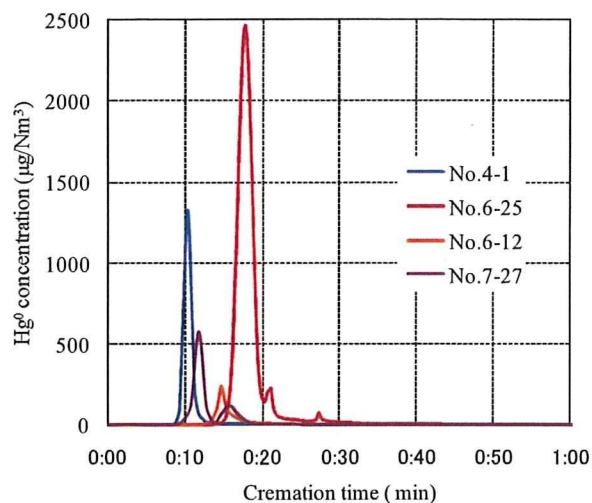
First, we show the relationship between the JIS and CEM methods in Fig. 2. As a result, the regression equation is as follows:

**Fig. 2.** The relationship between the JIS and CEM methods.

$$\text{CEM} = 1.23(\text{JIS}) + 0.687 (R^2 = 0.93), \quad (1)$$

where CEM = CEM value ( $\mu\text{g}/\text{Nm}^3$ ); JIS = JIS value ( $\mu\text{g}/\text{Nm}^3$ ).

Although the CEM values were slightly higher than the JIS values, the correlation coefficient was considered to be sufficiently high to determine trends in mercury emissions.



**Fig. 3.** Temporal changes in the elemental mercury ( $\text{Hg}^0$ ) concentration in crematory flue gas.

When using the CEM value, we may need to be aware of some degree of overestimation.

The total averaged mercury concentration in stack gas was  $3.6 \mu\text{g}/\text{Nm}^3$ , which consisted of  $\text{Hg}^0$  ( $2.6 \mu\text{g}/\text{Nm}^3$ ) and  $\text{Hg}^{2+}$  ( $1.1 \mu\text{g}/\text{Nm}^3$ ). Hg concentrations ranged from 0.2 to  $82.7 \mu\text{g}/\text{Nm}^3$ . When the concentration was normalised by 12%  $\text{O}_2$  to compare the concentration to municipal solid waste incinerator flue gas, the total averaged mercury concentration was  $17.8 \mu\text{g}/\text{Nm}^3$ , which was higher than that in stack gas of a municipal solid waste incinerator (Takaoka et al., 2002). This is because the  $\text{O}_2$  concentration is so high (15.8–20.8%) that the concentration normalised by 12%  $\text{O}_2$  becomes high. The mercury concentrations for the facilities are shown in Table 1. The average mercury concentration by facility ranged from 0.4 to  $15.9 \mu\text{g}/\text{Nm}^3$ . This difference is not caused by the structure of each crematory, including APCDs, but depends on whether the body contains mercury amalgam.

Mercury concentrations in 22 crematory flue gas samples at three crematories, A, B, and C, were measured in the United Kingdom (Edwards, 2001). According to the reports, the average mercury concentrations normalised by 11%  $\text{O}_2$  were 690, 880 and  $430 \mu\text{g}/\text{Nm}^3$  at crematory A, B and C, respectively. The mercury concentration in flue gas is influenced by the volume of exhaust gas per cremation. The average flue gas volume varied considerably by crematory; indeed, the range was  $3250\text{--}14600 \text{ Nm}^3/\text{h}$ . The average volume of exhaust gas in a cremation in Japan is 3–10 times larger than that in the United Kingdom because the flue gas was cooled by air dilution using an air ejector in Japan. However, this means that the mercury concentration in the UK exhaust gas is very high by comparison. Hogland (1994) reported the mercury concentration from a crematory in Lund,

Sweden. Although the volume of exhaust gas was about 1/5–1/20 of that in Japan, the maximum concentration achieved was  $60\,000 \mu\text{g}/\text{Nm}^3$ , which is extremely high. From comparisons with data for other countries, we suggest that the average mercury quantity emitted in Japan is low.

The contribution of  $\text{Hg}^0$  to the total mercury was 70%, which is relatively high.  $\text{Hg}^0$  concentrations ranged from 0.1 to  $81.2 \mu\text{g}/\text{Nm}^3$ , whereas  $\text{Hg}^{2+}$  concentrations ranged from 0.1 to  $8.1 \mu\text{g}/\text{Nm}^3$ . A higher peak was observed only in  $\text{Hg}^0$ .

The chemical form of mercury in flue gas is known to be influenced by the gas composition, especially the presence of halogen compounds (Takaoka, 2005). HCl was measured in Facility No. 7, and its concentration was found to range from 2 to  $13 \text{ mg}/\text{Nm}^3$ . Even when the HCl was removed by a bag filter (this facility did not use alkaline reagents for acid gas removal), the concentration was very low compared with that in the municipal solid waste incinerator. To check the validity of the mercury form from the viewpoint of thermodynamics, the stable form of mercury was calculated under the following conditions: 19.6%  $\text{O}_2$ , 10 ppm HCl and 4%  $\text{H}_2\text{O}$  using Fact sage 5.0. As a result,  $\text{HgCl}_2$  was found to be stable at  $200^\circ\text{C}$  and  $\text{Hg}^0$  to be dominant at temperatures above  $600^\circ\text{C}$ . Because  $\text{Hg}^0$  was dominant in flue gas based on measurement results, there was a difference in the chemical form between the results of thermodynamics and measurements. It might be cleared by measurement in upstream flue gas before bag filter.

### 3.2 Temporal change in mercury concentration

Two patterns in changes of mercury concentrations were observed. The first pattern is shown in Fig. 3. In some samples, a large peak in  $\text{Hg}^0$  appeared at 10–20 min; two samples exceeded  $1000 \mu\text{g}/\text{Nm}^3$ . This period indicates the burning of the cephalic part of the corpse. Considering the behaviour of mercury in cremations, the findings confirmed that the mercury in stack gas originated from the mercury in dental amalgam. This behaviour was previously reported by Hogland (1994). During this period, peaks were observed in 36 samples.

In the other pattern, no distinct peak of  $\text{Hg}^0$  was detected in the remaining 51 samples. In some samples, a small peak of  $\text{Hg}^{2+}$  was noted. Various internal organs of the human body contain mercury, and the mercury quantity in an adult is estimated to be more than 3.3 mg/body, apart from dental amalgam (The Chemical Society of Japan, 1977). Moreover, the mercury contents of liver (0.71 mg) and kidney (0.28 mg) are reportedly quite high. If these organs are burned in a short time, calculations indicate that a small peak (about  $1\text{--}3 \mu\text{g}/\text{Nm}^3$ ) may appear. From comparisons of the measurements and the above calculations, we can conclude that mercury in dental amalgam has a significant impact on mercury emissions from crematories.



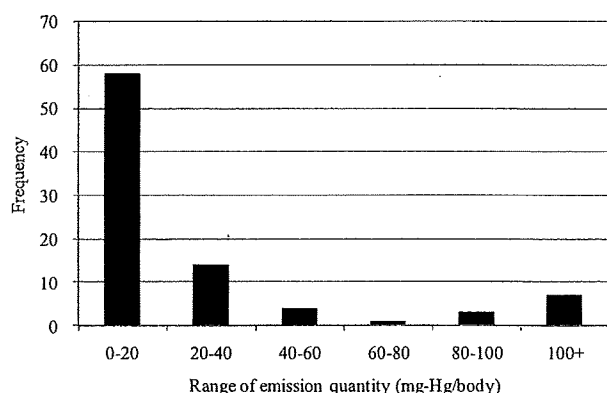


Fig. 4. The distribution of emission quantities calculated using measured data.

### 3.3 Mercury emission from crematories

Total emissions from all active crematories in Japan were estimated using the following equations:

$$\begin{aligned} \text{Total emissions (mg/year)} &= \text{Emission quantity (mg/body)} \\ &\times \text{the number of cremations (bodies/year)} \end{aligned} \quad (2)$$

$$\begin{aligned} \text{Emission quantity (mg/body)} \\ &= \text{Mercury concentration (mg/Nm}^3\text{)} \\ &\times \text{dry gas volume (Nm}^3\text{/h)} \\ &\times \text{cremation period (h)/the number of cremations (bodies)} \end{aligned} \quad (3)$$

The amount of mercury emission was calculated to be 31.7 mg/cremation using the total concentration and gas flow rate. The standard deviation was 64 mg/body; this was so large because the mercury quantity per body has a large range from 0.7 to 362 mg/body. In the United Kingdom, 150 mg/four cremations was proposed as a regulatory criterion by DEFRA (2004). Taking this to be equivalent to 37.5 mg/body, the values in 15 samples in this research were over this level.

The distribution of emission quantities calculated using measured data is shown in Fig. 4. As the emission quantity increases, the frequency decreases. However, the frequency increased at over 80 mg/body. In the United Kingdom, in total, 54 cremations were tested at two separate locations (Rahill, 2008). From the results, 31 cremations were suspected to have been of bodies with no amalgam fillings. Average mercury release per cremation over 54 cremations was reported to be 240 mg/body. The United States Environmental Protection Agency (US EPA) also reported that the emission quantity was 456 mg/body from nine cremations (Rahill,

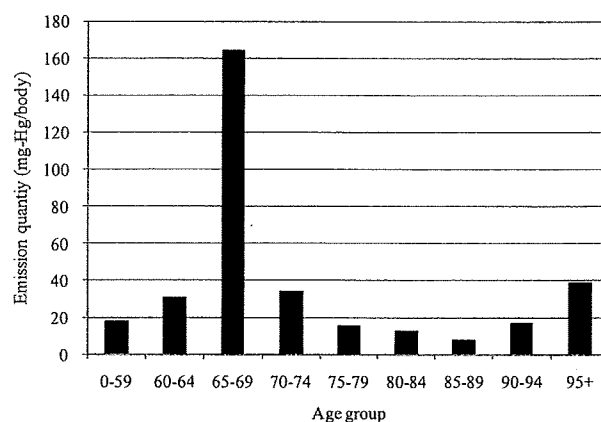
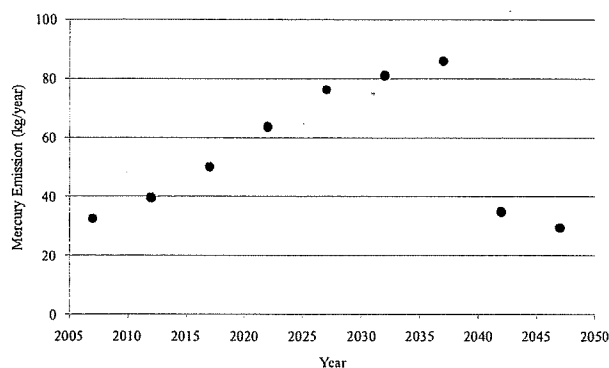


Fig. 5. The amount of mercury emission per cremation calculated using measured data by age group (number of samples by age group: 0–59:4, 60–64:6, 65–69:7, 70–74:9, 75–79:15, 80–84:17, 85–89:9, 90–94:12, 95+:8).

2008). Although 0.94 mg/body was reported in another US EPA document, this value would have been for bodies with no amalgam filling (US EPA, 1997). According to the UNEP tool kit for the identification and quantification of mercury releases (2005), the emission quantity in various countries ranged from 0.1 to 5.1 g/body. Comparing our results with these reported data, including corpses with amalgam fillings, the emission quantity obtained in this research is quite low. The use of amalgam has a close relationship with mercury emissions. The amount of mercury in amalgam in one filling was reported to be 600 mg by Mills (1990). We sought to examine the actual mercury content in one used amalgam filling. According to our ongoing research, the weight per filling removed by a dentist ranged from 56 to 231 mg. The mercury content in an amalgam filing ranged from 42.5 to 53.0%. Therefore, the average amount of mercury per filling was 51.6 mg. This is at least one of the reasons why emissions in Japan are low.

The amount of mercury emission per cremation calculated using measured data by age group is shown in Fig. 5. The maximum value was obtained in the age range 65–69 years. The second highest value was observed in the age ranges of 95+, 70–74, and 60–64 years. In addition, a difference in mercury emission was observed between males and females. This trend is consistent with a report from the United Kingdom (Edwards, 2001).

These mean values (31.7 mg/body) were multiplied by 1 169 174, the number of bodies cremated in 2007, which was calculated using the number of corpses (1 108 334 including dead bodies of uncertain age (MHLW, 2008b)) and the cremation rate (99.9%); total emissions were estimated to be 35.1 kg/year. Considering the number of bodies and the emission quantity by age group, the total estimated emissions decreased slightly to 32.5 kg/year. This constitutes less



**Fig. 6.** Estimated future trends of total mercury emissions in Japan from crematories based on population demographic statistics and measured data.

than 0.01% of the total amount of mercury released into the atmosphere (21–28 tons/year) in Japan (Kida et al., 2008).

To estimate mercury emissions in the United Kingdom, 3 g/body was used as the emission quantity (DEFRA, 2004). This value is based on Mills' report (1990), which assumes that a dead body has five restored teeth with amalgam fillings containing 0.6 g mercury. Based on this assumption, the mercury emission was calculated to be 3300 kg/year in Japan. This procedure leads to an obvious overestimation. The mercury release to the air from crematories should be based on measurements.

Next, total future trends in emission were calculated using statistics on population demographics (NIPSSR, 2008) and the emission quantity obtained in this research. That is, the emission quantity was multiplied by the number of dead bodies by age group. Here, we assume that the emission quantity obtained in this research is a property of each group and shifted it to the emission quantity of the next age range as 5 years passed. We set the cremation rate to be 100%. As a result, estimated future trends of total mercury emissions from crematories based on the statistics of population demographics and measured data are shown in Fig. 6. The amount of mercury emissions from crematories is expected to increase to 86 kg/year, about 2.6-fold, between 2007 and 2037. The distinct distribution of emission quantities is expected to show a rapid decrease in 2042 because the highest emission quantity (164 mg/body) moved outside the age ranges. In fact, the distribution of emission quantities would then be expected to moderate and then decline because of the impact of dental care, such as the removal of amalgam fillings, the loss of teeth and loss of mercury in amalgam fillings (Skare, 1995) as the age group shifts. Although we should use measurement data to estimate current emissions, we can combine measurement data with demographic statistics on dental care or material flow data of mercury amalgam to estimate accurate future trends in mercury emissions from crematories.

#### 4 Conclusions

In this study, to measure the actual emission level and estimate the emission from crematories in Japan using measurement data, the mercury concentration in crematory flue gas from mercury emissions was examined at seven facilities. Total averaged mercury concentration in stack gas was  $3.6 \mu\text{g}/\text{Nm}^3$ , which consisted of  $\text{Hg}^0$  at  $2.6 \mu\text{g}/\text{Nm}^3$  and  $\text{Hg}^{2+}$  at  $1.1 \mu\text{g}/\text{Nm}^3$ . The mercury concentration ranged from 0.2 to  $82.7 \mu\text{g}/\text{Nm}^3$ . At two facilities, we used continuous emission monitoring to measure mercury concentrations and to evaluate mercury behaviour. In some samples, a large peak of  $\text{Hg}^0$  appeared at 10–20 min. Considering the behaviour of mercury in cremations, the findings confirmed that mercury in stack gas originated from dental amalgam. The amount of mercury emitted was calculated to be 31.7 mg/cremation using the total concentration and gas flow rate. The emission quantity obtained in this research is apparently quite low. Although the reason for this is unclear, the mercury amount per filling in the Japanese oral cavity may be smaller than that in other countries. Furthermore, the annual amount of mercury emission from crematories in Japan was estimated using the total number of corpses. The total emissions were estimated to be 35.1 kg/year. Total future trends in emissions were calculated using demographic statistics and the emission quantity obtained in this research. As a result, the amount of mercury emissions from crematories is expected to increase by 2.6-fold between 2007 and 2037.

One possible countermeasure would be to remove amalgam fillings before cremation, but this may be difficult to actualize for practical and religious reasons.

*Acknowledgements.* We are grateful for financial support in the form of a Grant-in-Aid for Waste Treatment Research and Health Sciences Research Grants in FY 2007 to 2009 from the Japanese government and for cooperation with the sampling and mercury analysis from each municipality, and Shoji Eguchi of Taiyo Chikuro Industries and Koji Tanida of Nippon Instruments.

Edited by: R. Ebinghaus

#### References

- Arctic Monitoring and Assessment Programme (AMAP) and UNEP Chemicals: Technical Background Report to the Global Atmospheric Mercury Assessment, online available at [http://www.chem.unep.ch/mercury/Atmospheric\\_Emissions/Atmospheric\\_emissions\\_mercury.htm](http://www.chem.unep.ch/mercury/Atmospheric_Emissions/Atmospheric_emissions_mercury.htm), 2008.
- ASTM D6784-02: Standard test method for elemental, oxidized, particle-bound and total mercury in flue gas generated from coal-fired stationary sources (Ontario Hydro Method), 2008.
- Chua, A., Tanida, K., Takaoka, M., and Noda, N.: Development of mercury CEMs for emission gases. Proc. of 18th International Low-Rank Fuels Symposium, 1–9, 2003.
- Department for Environment Food and Rural Affairs (DEFRA), UK; Mercury emissions from crematoria Second consultation, De-

- partment for Environment, Food and Rural Affairs; Welsh Assembly Government; Scottish Executive Environment and Rural Affairs Dept. Available at: <http://www.defra.gov.uk/corporate/consult/crematoria-two/consultation.pdf>, 2004.
- Edwards, P.: Reviews of Emissions from Crematoria in the UK Volume A- Emissions, Measurements, AEA Technology Report, Resurgam, 44, 81–128 and Pharos International, 67(3), 1–19, 2001.
- Fitzgerald, W. F., Engstrom, D. R., Mason, R. P., and Nater, E. A.: The case for atmospheric mercury contamination in remote areas, *Environ. Sci. Technol.*, 32, 1–7, 1998.
- Hogland, W.: Usefulness of selenium for the reduction of mercury emissions from crematoria, *J. Environ. Qual.*, 23, 1364–1366, 1994.
- Kida, A., Sakai, S., Takaoka, M., Hirai, Y., Moritomi, H., and Yasuda, K.: Study on air emission inventory of mercury including waste management processes and emission reduction measures (K1940), 2008 (in Japanese).
- Mills, A.: Mercury and crematorium chimneys, *Nature*, 346, p. 615, 1990.
- Rahill, P.: Mercury Emissions and the Cremation Process–2008, Available at: [http://www.matthewscremation.com/pdf/Mercury\\_Emissions\\_&\\_Crem\\_Process.pdf](http://www.matthewscremation.com/pdf/Mercury_Emissions_&_Crem_Process.pdf), 2008.
- Skare, I.: Mass balance and systemic uptake of mercury released from dental amalgam fillings, *Water, Air and Soil Pollution*, 80, 59–67, 1995.
- Takaoka, M., Takeda, N., Fujiwara, T., Kurata, M., and Kimura, T.: Control of mercury emission from a municipal solid waste incinerator in Japan, *J. Air Waste Manag. Assoc.*, 52, 931–940, 2002.
- Takaoka, M.: Behavior and control of mercury in the waste combustion process, *Waste Manage. Res.*, 16, 213–222, 2005 (in Japanese)
- The Chemical Society of Japan (Eds): *Mercury*, Maruzen Co., Ltd., Tokyo, Japan, 1977 (in Japanese).
- The Ministry of Health, Labour and Welfare (MHLW), Public Health Administration Report, online available at <http://www.e-stat.go.jp/SG1/estat/List.do?lid=000001035603>, 2008a (in Japanese).
- The Ministry of Health, Labour and Welfare (MHLW), Vital Statistics, online available at <http://www.mhlw.go.jp/toukei/saikin/hw/jinkou/suikai08/index.html>, 2008b (in Japanese).
- UNEP Chemicals: Global Mercury Assessment, online available at <http://www.chem.unep.ch/mercury/report/gma-report-toc.htm>, 2002.
- UNEP Chemicals: Tool kit for the identification and quantification of mercury releases, online available at <http://www.chem.unep.ch/mercury/Toolkit/default.htm>, 2005.
- National Institute of Population and Social Security Research (NIPSSR), *Statistics of Population Projection*, 2008.
- US EPA: Mercury Study Report to Congress. US EPA, online available at <http://www.epa.gov/mercury/report.htm>, December 1997.

## 謝 辞

本報告書は平成21年度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）により行った「火葬場から排出される有害物質の実態調査とその抑制対策」の研究成果をまとめたものです。

“火葬場から排出されるダイオキシン類等の実態調査”、および“火葬場から排出される水銀をはじめとする重金属等の実態調査”においては、研究の主旨を御理解下さり、実態調査に御協力頂きました火葬場、および関係自治体の方々に深く感謝いたします。

また、火葬炉におけるダイオキシン類や水銀、クロムの排ガス分析、残骨灰・集じん灰中の水銀、クロムの19号含有量、溶出量試験につきましては、株式会社島津テクノリサーチ・前川勇氏、松下正和氏、小林均氏をはじめとする方々にお世話になりました。水銀の連続分析に関しては、株式会社日本インスツルメンツの方々にお世話になりました。厚く御礼申し上げます。火葬灰のキャラクタリゼーションでは、京都大学大学院工学研究科都市環境工学専攻技術職員の塩田憲司氏、同専攻環境デザイン工学講座の小笠原奨悟君、福田尚倫君にお手伝い頂きました。ありがとうございました。XAFS測定に関しては、SPring-8の宇留賀朋哉博士、谷田肇博士、高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所の野村昌治博士、稲田康宏博士(当時)、仁谷浩明博士に大変お世話になりました。ありがとうございました。

現場の下見、立会、データの解析等に関しては、太陽築炉工業株式会社・江口正司氏をはじめとする皆様、ダイネン株式会社・向井明氏をはじめとする皆様に御協力いただきました。ここに記して深く感謝の意を表します。

“火葬場から排出される水銀排出起源に関する調査”においては、まず、アマルガムの採取、ヒアリングに関連して、研究の主旨を御理解いただき、調査に御協力頂きました大阪歯科大学の患者の皆様には深く感謝いたします。また、歯科用アマルガムに由来する蒸気水銀の体内動態評価モデルの構築に関しては、京都大学大学院工学研究科都市環境工学専攻環境リスク工学分野の真見一樹君にご協力頂きました。ありがとうございました。

“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”に関しては、株式会社数理計画数理計画本部の小泉正明氏、恵土英氏に、大変多忙な中ご協力をいただきました。ありがとうございました。

研究者会議のバックアップ、および研究費の管理に関しては、立命館大学エコテクノロジー研究センター・吉田恵美子秘書、京都大学大学院工学研究科都市環境工学専攻環境デザイン工学講座・大澤恵芳秘書にお世話になりました。ありがとうございました。

最後に、厚生労働省健康局生活衛生課管理係・吉田諭史氏には、アンケートの情報提供を含め、研究全体に対する、直接的なご意見、助言等を賜りました。ここに御礼申し上げます。