

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。

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-

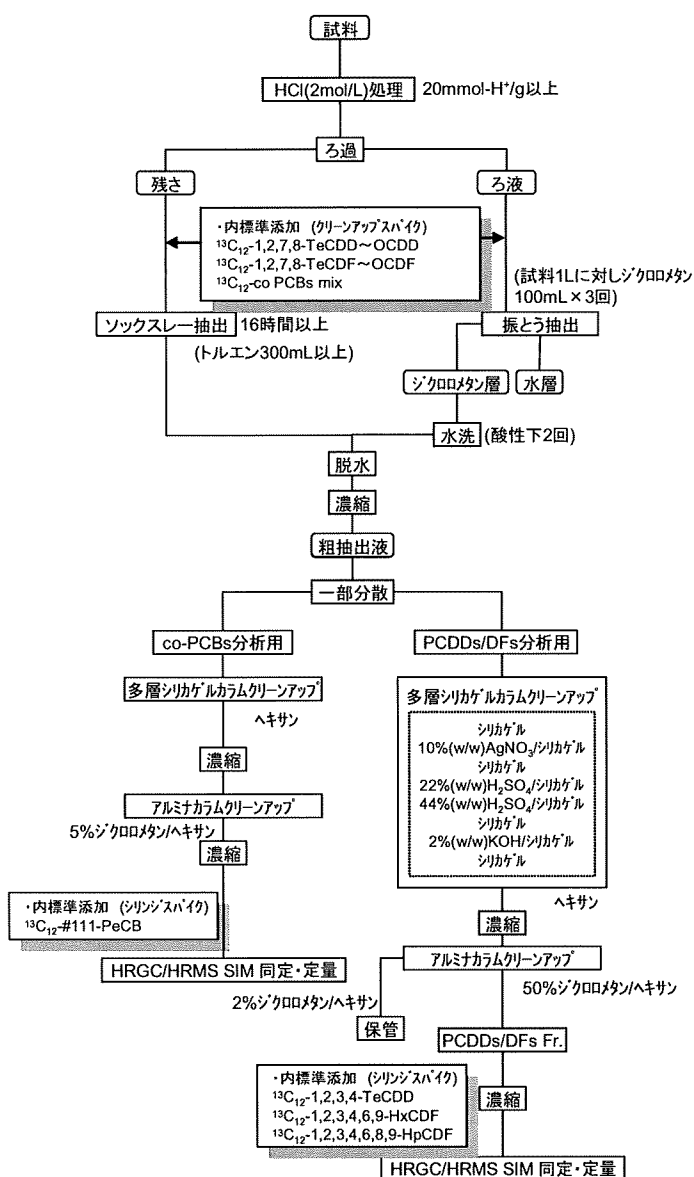


図 B.4.2 集じん灰、および残骨灰中ダイオキシン類前処理方法のフローチャート

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	

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

同定した各PCDDs/DFs、co-PCBs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/N3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-HpCDDs				
	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 -HxCDFs	¹³ C ₁₂ -1,2,3,4,7,8,9-HpCDDs				
	¹³ C ₁₂ -1,2,3,4,7,8,9-HpCDDs				
¹³ C ₁₂ -OCDF	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毒性等量は、WHO2006-TEFを用い算出した(付録資料1)。

調査結果の一覧を表C.1(1)、(2)に示した。表C.1(1)では全10施設の大気排出分として、煙突の前段で実施した結果を、表C.1(2)では2009年に実施した3施設について、各サンプリングポイントで測定した結果を示す。排ガス組成として、ばいじん濃度、CO(平均値)、NOx(平均値)については、すべてO₂12%換算値で示した。

1. 排ガス中ばいじん濃度

まず、表C.1(1)より、煙突前段のばいじん濃度は、バグフィルター、あるいは電気集じん機が設置されている施設2008-A~2008-D、施設2009-A~2009-C(SCR後、あるいはAC後)においては、0.032 g/m_N以下であり低く保たれていたが、集じん機のない施設2008-E、2008-Gは0.13~0.19 g/m_Nであり、高い値を示した。施設2008-F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_N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、スクリーン式は、高い集じん効率は期待できないといえる。

次に、表C.1(2)については、まず、各施設における排ガス処理によるばいじん除去率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.1.1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2009-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2009-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

表C.1(1) 測定結果一覧 (大気排出分)

項目	火葬 時間	排ガス温 度		排ガス 流量		ダイオキシン類				ばいじん				CO	NOx	CO ₂	O ₂		
		湿り	乾き	排ガス		残骨灰		集じん灰		g/m ³	g/m ³	ppm	ppm					%	%
				実測濃度	O ₂ 12% 換算濃度	毒性等量	実測濃度	毒性等量	実測濃度										
単位	分	°C	m ³ /h	m ³ /h	ng/m ³	ng/m ³	ng/m ³	ng/m ³	ng/m ³	ng/m ³	ng/m ³	ng/m ³	ng TEQ-WHO ₀₆ /g	g/m ³	ppm	ppm	%	%	
2008-A	A-1	58	144	9,540	1.82	122	0.011	2.40	0.042	313	5.0	<0.008	26	86	0.8	19.8			
	A-2	57	147	8,010	0.945	5.29	0.00018	0.115	0.00055	8.82	0.10	<0.006	56	110	1.2	19.4			
2008-B	B-1	66	86	14,300	1.88	12.1	0.0036	0.0291	0	37	0.61	<0.007	<4	97	0.8	19.6			
	B-2	59	79	13,900	2.79	16.8	0.010	0.0209	0.00067	1.09	0.014	<0.006	<3	120	0.9	19.5			
2008-C	C-1	48	88	14,600	3.01	14.1	0.025	0.118	0	0	0	0.005	<20	120	1.5	19.1			
	C-2	68	118	14,200	1.18	5.54	0.0037	0.0209	0.0000035	1.09	0.014	0.005	33	100	1.4	19.1			
2008-D	D-1	64	166	11,500	5.52	25.4	0.062	0.118	0.00067	1.09	0.014	0.032	<8	110	1.3	19.0			
	D-2	45	144	10,200	2.57	13.6	0.059	0.118	0.00067	1.09	0.014	0.032	<8	110	1.1	19.3			
2008-E	E-1	60	290	4,760	3.01	9.35	0.089	0.118	0.00067	1.09	0.014	0.13	<30	110	2.3	18.1			
	E-2	63	296	3,770	3.28	9.57	0.10	0.118	0.00067	1.09	0.014	0.16	<10	130	2.4	17.9			
2008-F	F-1	59	247	3,890	2.18	5.39	1.1	0.0209	0.00000035	1.09	0.014	0.15	180	84	2.5	17.4			
	F-2	64	230	5,150	27.7	86.2	1.7	0.0209	0.00000035	1.09	0.014	0.10	<40	93	2.0	18.1			
2008-G	G-1	84	400	4,440	48.9	84.4	1.6	0.31	0.0044	0.0044	0.0044	0.19	270	82	3.8	15.8			
	G-2	64	41.6	85.2	41.6	85.2	1.7	0.31	0.0044	0.0044	0.0044	0.17	77	110	1.9	16.6			
2009-A	A-1	62	125	6,860	0.93	4.23	0.06	0.040	0.000033	3.1	0.047	<0.005	<8	—	—	19.0			
2009-B	B-1	45	103	2,830	3.26	6.40	0.12	0.64	0.0068	4.19	6.3	<0.002	8	—	—	16.5			
2009-C	C-1	85	88	16,900	1.27	6.70	0.05	0.024	0.00000056	71	1.5	0.032	40	—	—	19.3			
	C-2	61	130	19,800	5.23	34.1	0.17	0.024	0.00000056	71	1.5	<0.007	270	—	—	19.6			
最大値		85	400	14,600	218	539	11	2.40	0.042	419	6.3	0.19	270	130	3.8	19.8			
最小値		45	86	3,770	0.93	4.23	0.00018	0.0209	0	1.1	0.014	0.005	<3	82	0.8	15.8			
中央値		62	144	8,010	3.01	12.9	0.061	0.115	0.00055	37	0.61	0.020	31	105	1.5	19.1			
算術平均値		62	179	9,120	20.7	53.9	0.93	0.410	0.0061	122	1.9	0.058	62	104	1.7	18.5			
幾何平均値		61	160	7,710	4.84	18.5	0.066	0.115	0.00020	26.8	0.41	0.022	28	103	1.5	18.5			

残骨灰のダイオキシン類毒性当量の幾何平均値は施設2008-Cを除いた値
 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、NOxについてはO₂12%換算値

表C.1(2) 測定結果一覧(2009年実施：各サンプリングポイント)

項目	火焔時間	排ガス温度	排ガス流量		ダイオキシン類(PCDDs/DFs+co-PCBs)				残骨灰		集じん灰		ばいじん	CO	O ₂
			湿り	乾き	実測濃度	O ₂ 12%換算濃度	毒性等量	実測濃度	毒性等量	実測濃度	毒性等量				
												ng/m ³			
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	%
2009-A	A-1-BF前	180	9,480	9,060	6.65	33.8	0.095	0.040	0.000033	0.047	3.1	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	
2009-B	B-1-再燃後	825	3,000	2,600	3.77	3.0	0.038	0.64	0.0068	6.3	419	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	780	3,120	2,730	18.4	16.2	0.25					0.054	<10	10.9	
2009-C	B-2-BF前	199	1,150	1,080	73.8	158	3.2					0.180	<10	16.8	
	C-1-再燃後	85	635	—	39.8	44.0	0.84	0.024	0.00000056	1.5	71	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

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
2009-A		94<	—
2009-B-1	-80	98<	—
2009-B-2	-233		
2009-C-1	-22	79	-39
2009-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。

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。

2. 排ガス中CO濃度

まず、表C.1(1)より、COに関しては、最大270ppmであったが、各実験で大きく変動し、排ガス処理施設の影響等はあまりみられなかった。特に施設2009-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。この火葬場は比較的新しい施設であったが、施設2009-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。これらの基準を明らかに超えていたデータが、施設2008-F、2008-G、2009-Cで見られ、2007年調査¹⁹⁾とあわせると、22件中6件存在した。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、表C.1(2)において、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NOx濃度

表C.1.(1)より、NOx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。都市ごみ焼却施設を対象に設定されているような排出基準の250ppmを超えるようなことは、現実的にはないと考えられる。

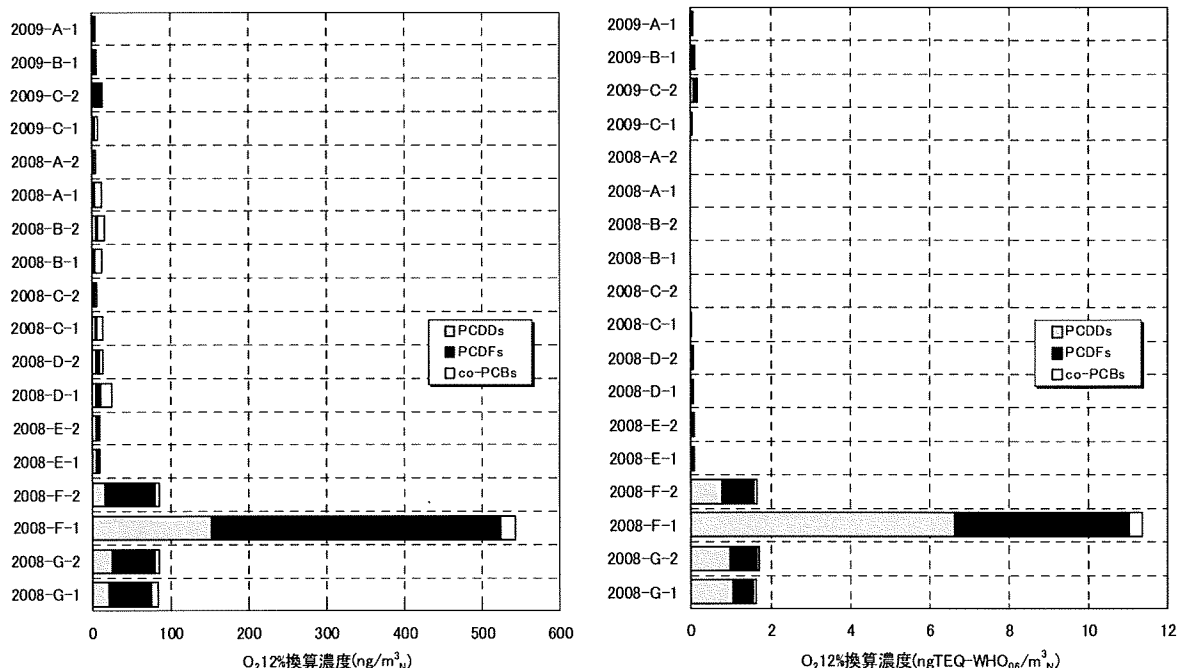
4. 排ガス中のダイオキシン類濃度とその挙動

(1) 排ガス中ダイオキシン類濃度

各施設における、ダイオキシン類濃度と、その毒性等量を図C.4.1に示す。排ガス中のダイオキシン類濃度は、酸素12%換算濃度で4.2～540 ng/m³_N、毒性等量で0.00018～11 ng TEQ-WHO₀₆/m³_Nの範囲であった。

それぞれ算術平均では54 ng/m³_N、0.93 ng TEQ-WHO₀₆/m³_N、中央値で13 ng/m³_N、0.061 ng TEQ-WHO₀₆/m³_N、幾何平均で18.5 ng/m³_N、0.066 ng TEQ-WHO₀₆/m³_Nとなった。最も高かったのは、施設2008-Fの1回目で540 ng/m³_N、11 ng TEQ-WHO₀₆/m³_N、最も低かったのは施設2008-Aの2回目で5.3 ng/m³_N、0.00018 ng TEQ-WHO₀₆/m³_Nであった。

2回の測定で、ともに約0.1 ng TEQ-WHO₀₆/m³_N以下で、低い値を示していたのは、施設2008-A～2008-D、施設2009-A～2009-Cであった。これらは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、触媒装置、あるい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。また、施設2008-Dは削減対策指針前に設置されたものであるが、ダイオキシン類濃度は低く抑えられてお



図C.4.1 各施設から排出される排ガス中ダイオキシン類濃度と毒性等量

り、電気集じん機の集じん効果によるものと考えられた。平成12年に提示された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。

一方、 $1.0 \text{ ng TEQ-WHO}_{06}/\text{m}^3_{\text{N}}$ 以上の高い値が現れたのは、施設2008-Fと施設2008-Gであり、これらは削減対策指針前に設置された比較的古い施設である。これらの施設には、集じん機が設置されていないか、設置されていても、前述のばいじん濃度の測定結果よりあまり集じん効果が認められないものであった。施設2008-Fでの2回目、あるいは施設2008-Gでは、 $1.6\sim 1.7 \text{ ng TEQ-WHO}_{06}/\text{m}^3_{\text{N}}$ であり、削減対策指針における既設炉における指針値： $5.0 \text{ ng TEQ-WHO}_{06}/\text{m}^3_{\text{N}}$ ⁹⁾、は下回っていた。ただし、施設2008-Fでの1回目では、 $11 \text{ ng TEQ-WHO}_{06}/\text{m}^3_{\text{N}}$ であり本調査での最大値を示し、上記の指針値を上回っていた。表C.1(1)から、施設2008-Fの1回目での排ガス組成（ばいじん、CO、NOx）は、施設2008-Gの1回目と大差はなく、燃焼状態が極端に悪いとは考えにくい。可能性としては集じん機での *de novo* 合成によるものと推測される。

以上の結果からは、ダイオキシン類排出抑制のために、バグフィルターあるいは電気集じん機の設置により集じん効率を確保することの重要性が確認された。しかし、施設2008-Eでは、削減対策指針前に設置された比較的古い施設であるが、 $0.089\sim 0.10 \text{ ng TEQ-WHO}_{06}/\text{m}^3_{\text{N}}$ 程度に抑えられ、ほぼ同様の構造であった施設2008-Gと大きく濃度が異なる結果となっており、御遺体や副葬品により燃焼条件がかなり異なってくる場合もあることが示唆された。

図C.4.1においてPCDDs、PCDFs、およびco-PCBsの実濃度を比較すると、比較的排出濃度の低い施設（例えば施設2008-A～2008-Dなど）においては、co-PCBsの割合が、全体の30～70%程度を占めていたが、比較的排出濃度の高い施設2008-F、2008-Gにおいては、co-PCBsの割合は、全体の10%以下であり、PCDDs/DFsが残りの90%を占めていた。これは、集じん機や触媒装置等により、ダイオキシン類全体として濃度は減少するが、co-PCBsはPCDDs/DFsに比較して、相対的に除去しにくいことを意味している。このような傾向は、高度に除去されたケースで顕著であり、あまり問題があるわけではないが、一般的にPCDDs/DFsよりも、co-PCBsの方が蒸気圧が高いとされ²⁰⁾、凝縮、あるいは吸着等による除去効果が働きにくくなっていることによると考えられた。

(2) 各排ガス処理プロセスでのダイオキシン類の挙動

2009-A～2009-C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.4.2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.4.1に示した。

$$R_{DXN} = \left(1 - \frac{C_{DXN\ out}}{C_{DXN\ in}} \right) \cdot 100 \quad (C.4.1)$$

ただし、 $C_{DXN\ in}$: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)

$C_{DXN\ out}$: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)

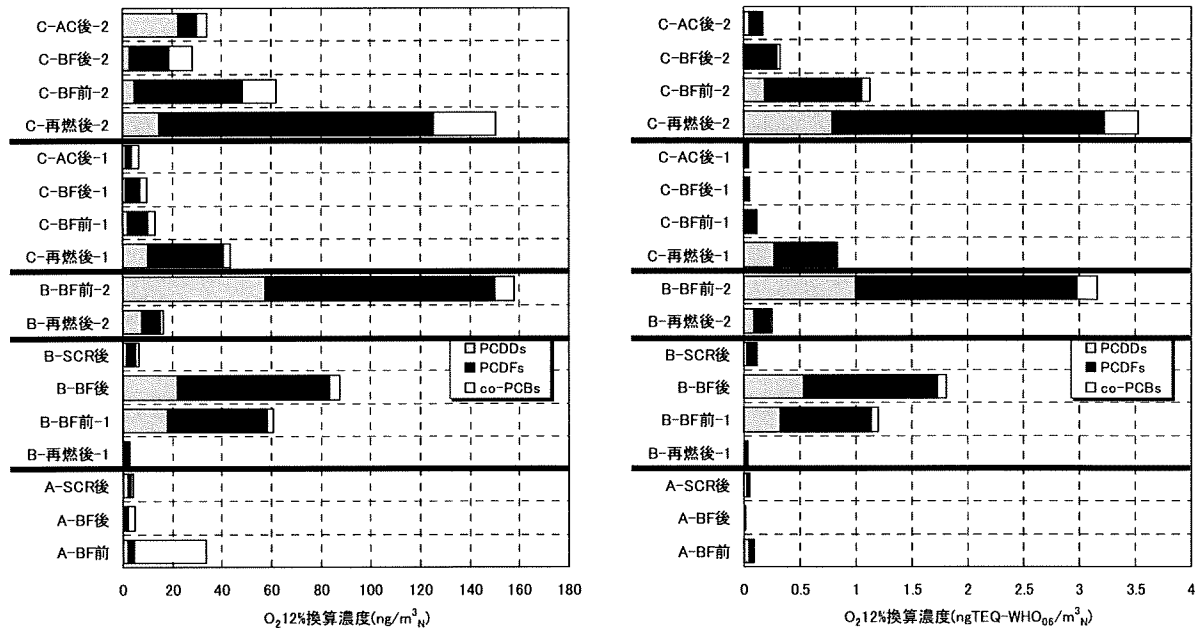
表C.4.1から各排ガス処理プロセスにおけるダイオキシン類除去率をみると、まず、施設2009-Aにおいては、バグフィルターによるダイオキシン類除去率は85%、毒性当量で78%であり、これによりダイオキシン類がある程度除去されている傾向が伺えた。しかし、後段の触媒装置においては、ダイオキシン類除去率は14%程度であり、毒性当量では-167%となり逆に毒性が増加する傾向が見られた。施設2009-A、2009-Bで使用されている触媒はV₂O₅系触媒であり、脱硝性能とともに、ダイオキシン類分解能を有するが、触媒入口のダイオキシン類濃度が極端に低い場合など、逆にダイオキシン類が生成され、触媒出口でのダイ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^{21)・23)}。施設2009-Aでは触媒入口のダイオキシン類濃度が0.021 ng TEQ-WHO₀₆/m³_Nであり、施設2009-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2009-Aでは同様の現象が生じている可能性が考えられた。

表C.4.1 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
2009-A	/	85(78)	14(-167)
2009-B-1	-1900(-3100)	-43(-50)	93(93)
2009-B-2	-880(-1200)	/	/
2009-C-1	71(86)	22(58)	32(3.9)
2009-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。



図C.4.2 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

施設2009-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ん除去率は、-233～-80%であり、熱交換器部分に堆積したばいじん、あるいは熱交換器表面の材質が剥離し、熱交換器出口でのばいじん濃度が増加したことに由来すると推測されたが、ダイオキシン類除去率は、このばいじん除去率よりも、大きく下回っていた。

これは、熱交換器部分でのダイオキシン類の増加要因が、熱交換器出口のばいじんに含まれるダイオキシン類の寄与以外に存在することを意味する。また、表C.1より、熱交換器部分での温度は、195～825°Cの範囲にあることが考えられることから、熱交換器部分で、ダイオキシン類の再合成が生じていると考えられた。後段のバグフィルターにおいては、ダイオキシン類の除去率は-43%、毒性当量として-50%であり、ほとんど除去されていなかった。このバグフィルターにおけるばいじんの除去率は表C.1.1から98%以上であったことから、バグフィルター入口ではダイオキシン類のほとんどがガス状態で存在し、集じんとともに除去されることなく、通過したものと推測される。

結果として、バグフィルターで除去されなかったダイオキシン類はその93%が触媒装置で除去されており、触媒装置出口におけるダイオキシン類濃度は、実濃度で $3.26 \text{ ng/m}^3_{\text{N}}$ 、毒性当量で $0.12 \text{ ng TEQ-WHO}_{06}/\text{m}^3_{\text{N}}$ 程度に抑えられた。ただし、この値は、同施設の再燃焼炉出口のダイオキシン類濃度 $3.77 \text{ ng/m}^3_{\text{N}}$ 、 $0.038 \text{ ng TEQ-WHO}_{06}/\text{m}^3_{\text{N}}$ に比較してほとんど除去されておらず、熱交換器での再合成の影響を受けて、バグフィルターがダイオキシン類の

除去に効果的に作用していないことが明らかである。火葬炉における熱交換器の使用には、設備をコンパクトにできる利点があるものの、ばいじんの堆積や、その温度管理に注意する必要がある。熱交換器での再合成により増加したダイオキシン類はバグフィルターでも除去できない可能性があり、セーフティネットとしての触媒装置を併用することが望ましいと考えられる。

施設 2009-C においては、再燃焼炉出口のダイオキシン類濃度が $39.8 \sim 91.2 \text{ ng/m}_N^3$ であり、施設 2009-A、2009-B よりも高い傾向にあった。CO 濃度についても施設 2009-C では高く、2 回目は約 300ppm にも達する傾向にあったことから、主燃焼炉、再燃焼炉における燃焼状態が施設 2009-A、2009-B に比較して良くなかったものと考えられる。次に、施設 2009-C では、排ガス冷却は空気混合により行っており、排ガス冷却器部分で施設 2009-B の熱交換器の場合のようなダイオキシン類の再合成はみられなかった。むしろダイオキシン類は実濃度で 60～71%、毒性当量で 69～89% 除去されていた。また後段のバグフィルターにおいても実濃度で 22～54%、毒性当量で 58～70% 除去されていた。さらに後段の活性炭吸着設備においては、大きく値がばらついたが、実濃度で 20～39%、毒性当量で 3.9～48% の除去であった。都市ごみ焼却施設における活性炭吸着設備（充てん塔式）においては、 150°C におけるダイオキシン類の除去率は毒性当量で 80% 以上であるとされる²⁴⁾。また、2007 調査にて実施した同火葬場でのダイオキシン類測定結果では、活性炭吸着設備出口のダイオキシン類濃度は $0.009 \text{ ng TEQ-WHO}_{06} / \text{m}_N^3$ 以下であり¹⁰⁾、高度にダイオキシン類が除去されていたと考えられるが、本研究の結果とは異なっている可能性が高い。原因としては、活性炭吸着設備において、活性炭が吸着破過状態に近かったため、除去率が低くなった可能性が考えられた。

以上の結果からは、熱交換器を設備として有している場合、ダイオキシン類の再合成に注意することが必要であり、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望めないことから、触媒装置等を設置することが重要である。また、熱交換器のない設備ではバグフィルターにてダイオキシン類は毒性当量として、58% 以上除去できる。触媒装置においても 90% 以上のダイオキシン類の除去が期待できるが、触媒入口のダイオキシン類濃度が低い場合濃度が逆転するケースがあるため注意する必要がある。活性炭吸着設備においては、本来高いダイオキシン類除去率が期待できるが、活性炭の吸着破過状況を把握し、適切に交換することが重要であると考えられた。

(3) 排ガス中ダイオキシン類の同族体、異性体分布

次に、各サンプルでのPCDDs、PCDFsの同族体分布を施設毎に図C.4.3(1)～図C.4.3(4)に示した。同族体の絶対量としては、施設2008-A、施設2008-F～2008-G、施設2009-B～2009-CでPCDFsが、PCDDsよりも高い傾向を示す一方で、施設2008-B、2008-Dでは逆にPCDDsが、PCDFsよりも高い傾向を示した。施設2008-D～2008-E、施設2009-AではPCDDsとPCDFsがほぼ同等の量であった。

また、同族体分布の傾向としては、PCDFsについてはほとんどの施設で、4塩素化物(TeCDFs)、あるいは5塩素化物(PeCDFs)の濃度が最も高く、高塩素化物になるほど濃度が低くなるパターンであり、一般的な燃焼起源のパターンを示した。施設2009-Bにおいては、再燃焼後は、他と同様のパターンであったが、熱交換器で濃度が増加した後は、6塩素化物(HxCDFs)、あるいは5塩素化物(PeCDFs)の濃度が最も高く、山形の分布に変化した。ダイオキシン類の再合成では、一般に同族体分布は、高塩素化側にシフトするとされていることから²⁹⁾、ダイオキシン類の再合成の影響を大きく受けているものと推測された。

PCDDsについては、以下の大きく3つのパターンに分けることができた。

- ① 8塩素化物(OCDD)が最も多く、4塩素化(TeCDDs)が最も少ないパターン。
施設2008-A～2008-D、施設2008-Eの1回目、施設2009-A、施設2009-B
- ② 6塩素化物(HxCDDs)が最も多く、山型の分布を示すパターン。
施設2008-Eの2回目、施設2009-A、施設2009-B、施設2009-C
- ③ 4塩素化物(TeCDDs)が最も多く、8塩素化物(OCDD)が最も少ないパターン。
施設2008-F、施設2008-G、施設2009-C

ここで、平成9・10年度厚生科学研究事業において、削減対策指針前に設置された17施設における調査結果（以下1999調査）と比較すると⁴⁾、PCDFsの傾向は同様であったが、PCDDsについては、パターン③が全体の2/3を占め、残りはパターン②のような、都市ごみ焼却排ガスでも良く見られるパターンであった。また、平成19年度厚生労働科学特別研究事業¹⁰⁾により、実施された4施設における調査の結果（以下2007調査）と比較すると、施設の新旧にかかわらず、PCDFsの傾向は同様であり、PCDDの場合は、全てパターン②であった。

本研究では、PCDDsの同族体パターンについて、過去の研究のいずれにも見られなかったパターン①が、比較的新しい施設で多く見られ、比較的古い施設でパターン③が見られた。これまでの調査結果と照らし合わせると、比較的新しい施設はパターン①、およびパターン②が、古い施設ではパターン③、およびパターン②が発現し易い傾向がうかがえた。

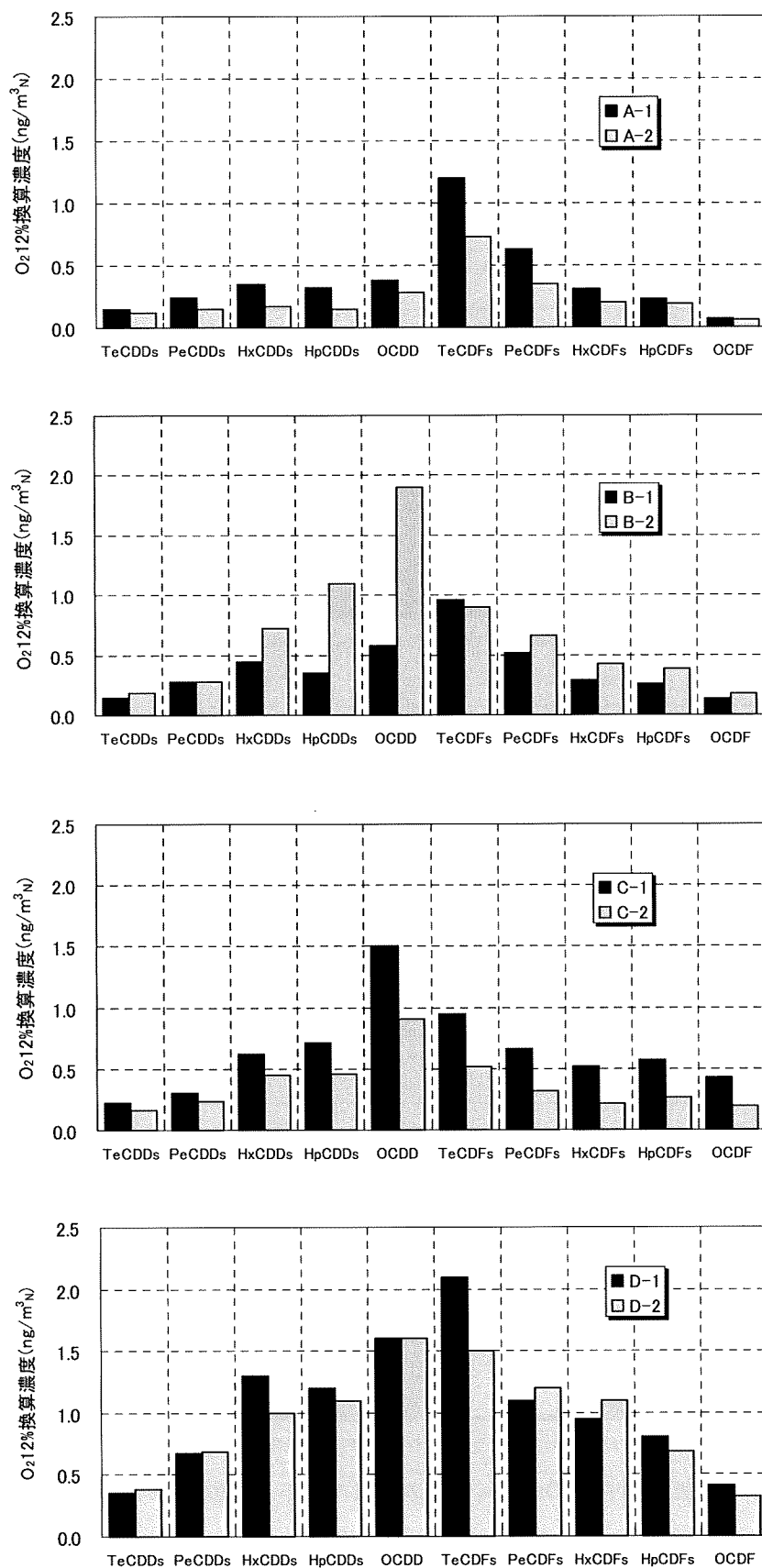


図 C.4.3(1) 排ガス中 PCDDs/DFs 濃度の同族体分布 (施設 2008-A ~ 2008-D)

2009年に実施した3つの施設では、施設2009-Cの2回目のみ傾向が異なった。前述したように、施設2009-Cの2回目では排ガス中のCO濃度が高く、炉における燃焼状態があまり良くなかったこと、比較的古い炉ではCO濃度が10～1000ppm程度であり、比較的高い傾向にあること³⁾、⁴⁾を考えると、パターン③の発現には、炉における燃焼状態が影響しているものと推測された。

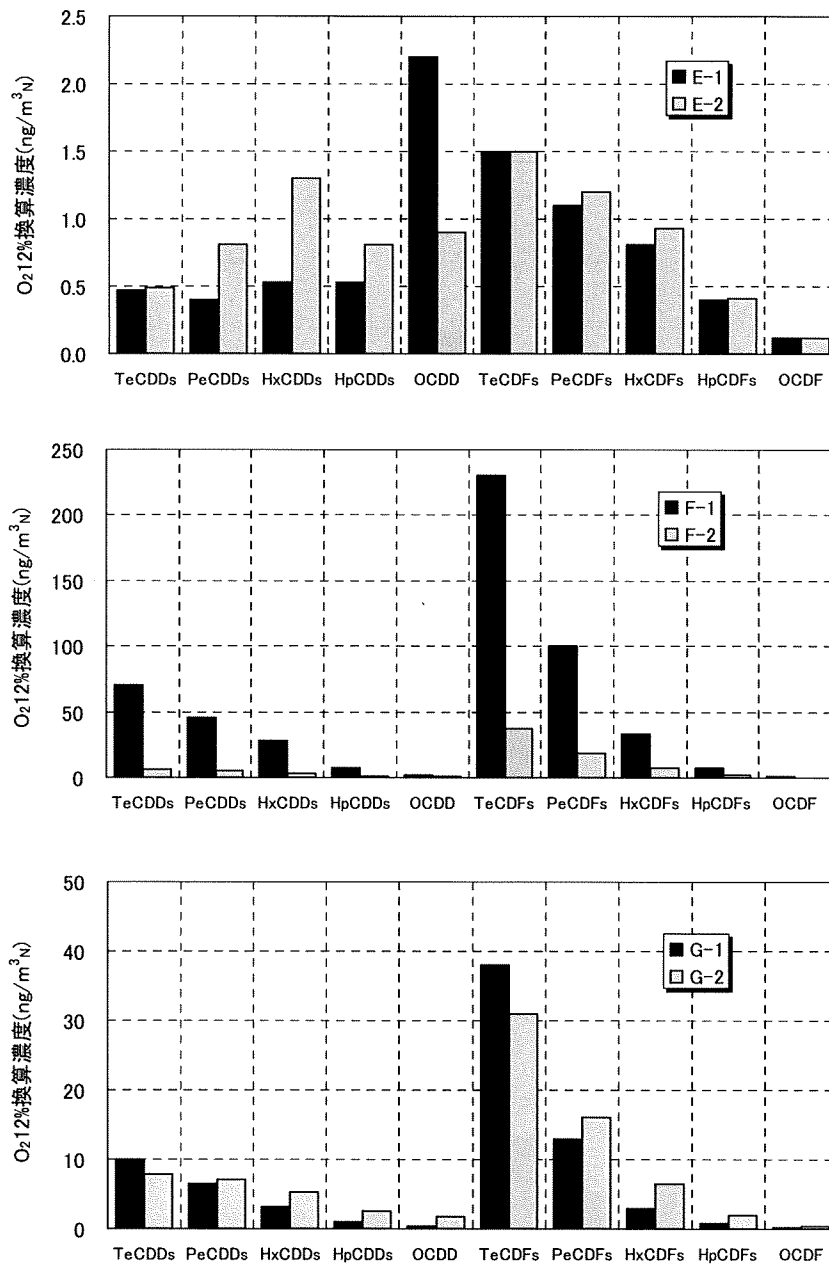
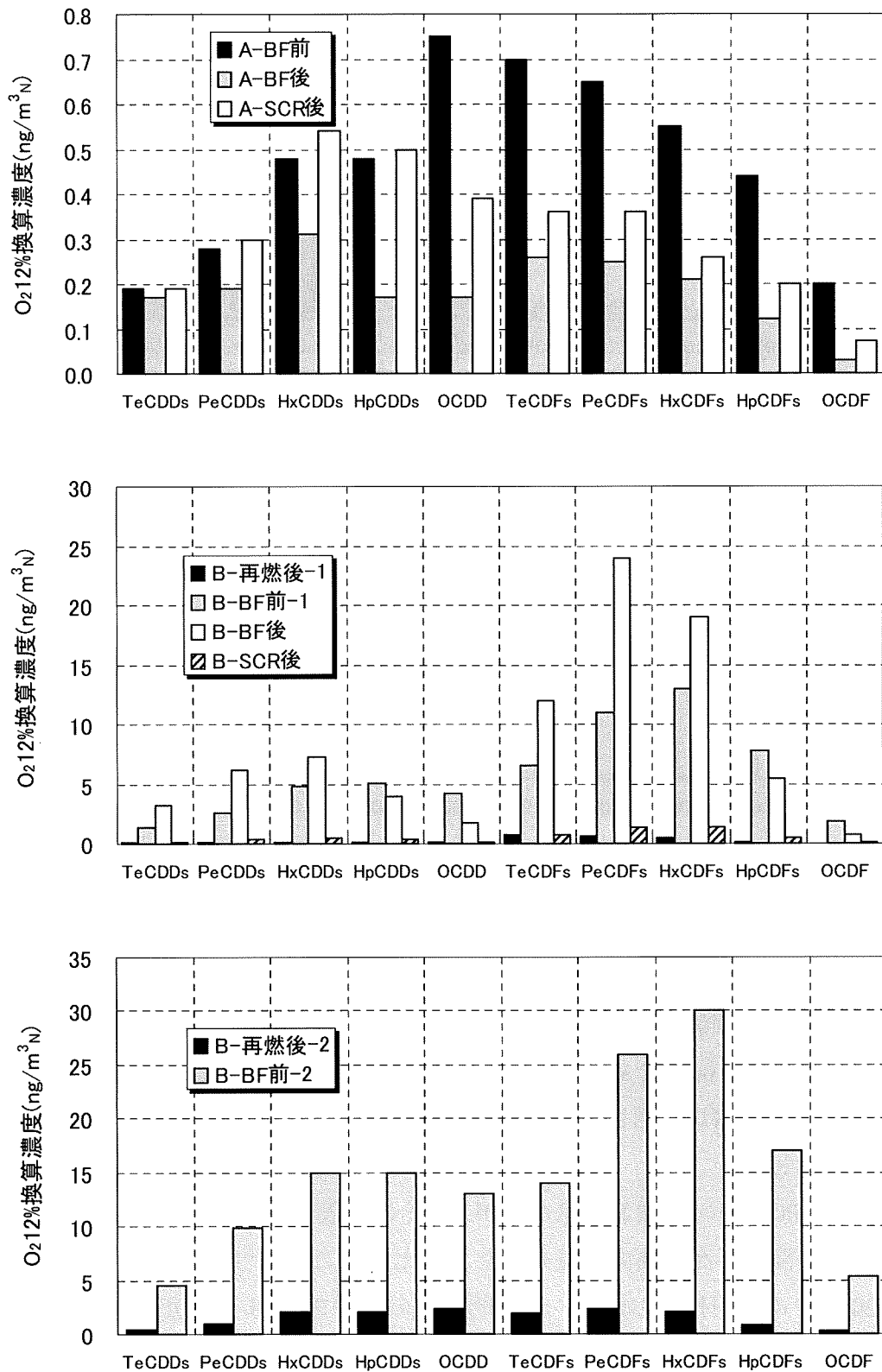
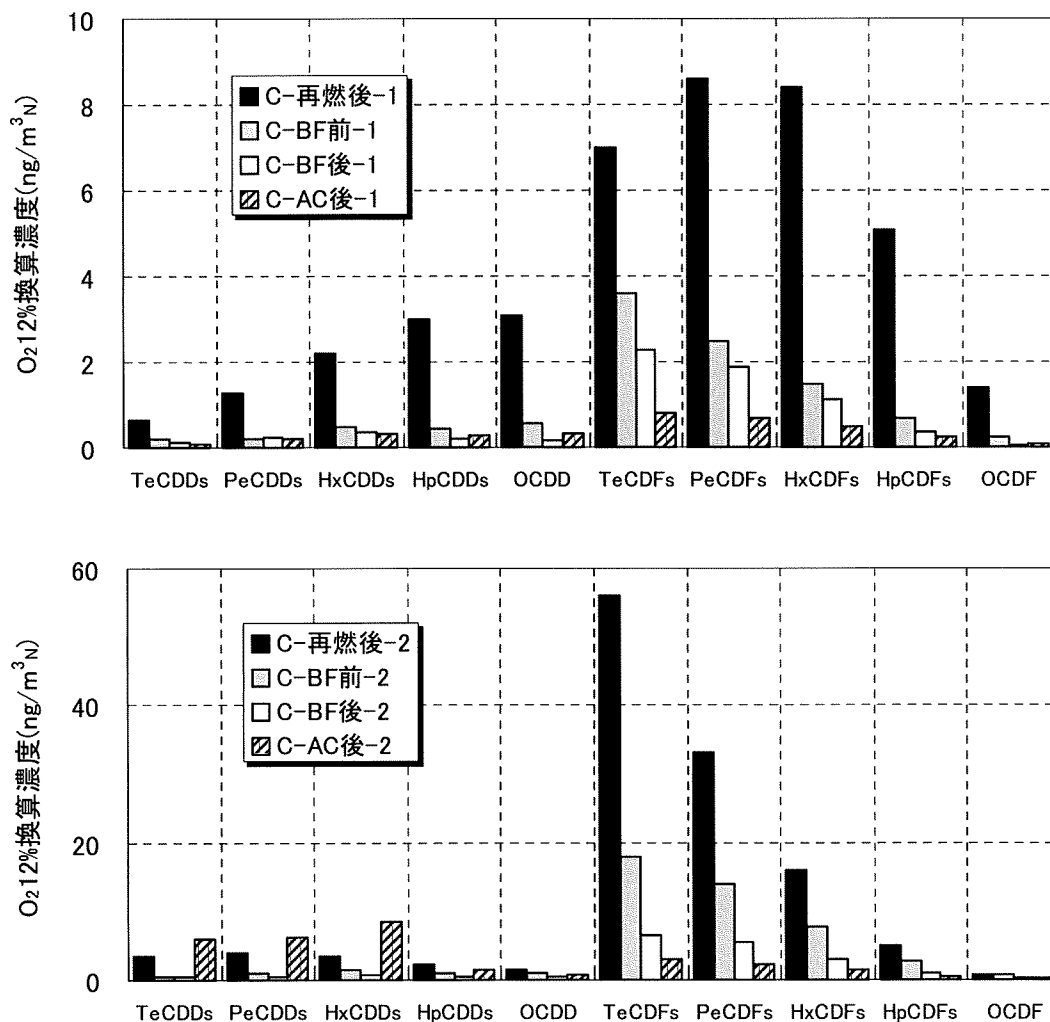


図 C.4.3(2) 排ガス中PCDDs/DFs 濃度の同族体分布 (施設2008-E～2008-G)



図C.4.3(3) 排ガス中PCDDs/DFs濃度の同族体分布（施設2009-A、2009-B）



図C.4.3(4) 排ガス中PCDDs/DFs濃度の同族体分布(施設2009-C)

次にPCDDsとPCDFsの17種、およびco-PCBsの12種の異性体分布を、それぞれ図C.4.4(1)～(3)、図C.4.5(1)～(3)に示した。PCDDsでは多くの場合、低塩素化物よりも、1,2,3,4,6,7,8-HpCDD、OCDDの濃度が高い傾向にあった。これは、1999調査での結果⁴⁾、および2007調査での結果¹⁰⁾の傾向と同様であった。ただし、比較的古い施設である、施設2008-Fの1回目、および施設2008-Gの1回目においては、低塩素化物である1,2,3,7,8-PeCDDsが最も高くなる傾向を示した。

PCDFsでは、PCDDsほど顕著ではないが、多くの施設で、1,2,3,4,6,7,8-HpCDF、OCDF等の高塩素化物の濃度が高い傾向が見られた。ただし、この場合、施設2008-F、施設2008-G、施設2009-Cの2回目において、比較的毒性の高い2,3,7,8-TeCDF、1,2,3,7,8-PeCDFs、2,3,4,7,8-PeCDFsについても濃度が高くなる傾向を示した。この傾向は、2007調査での結果¹⁰⁾において、比較的古い施設の2施設や、1999調査での結果⁴⁾のほとんどの施設についてもその傾向が見られており、PCDDの同族体パターンと同様に、炉における燃焼状態と関連しているものと考えられた。

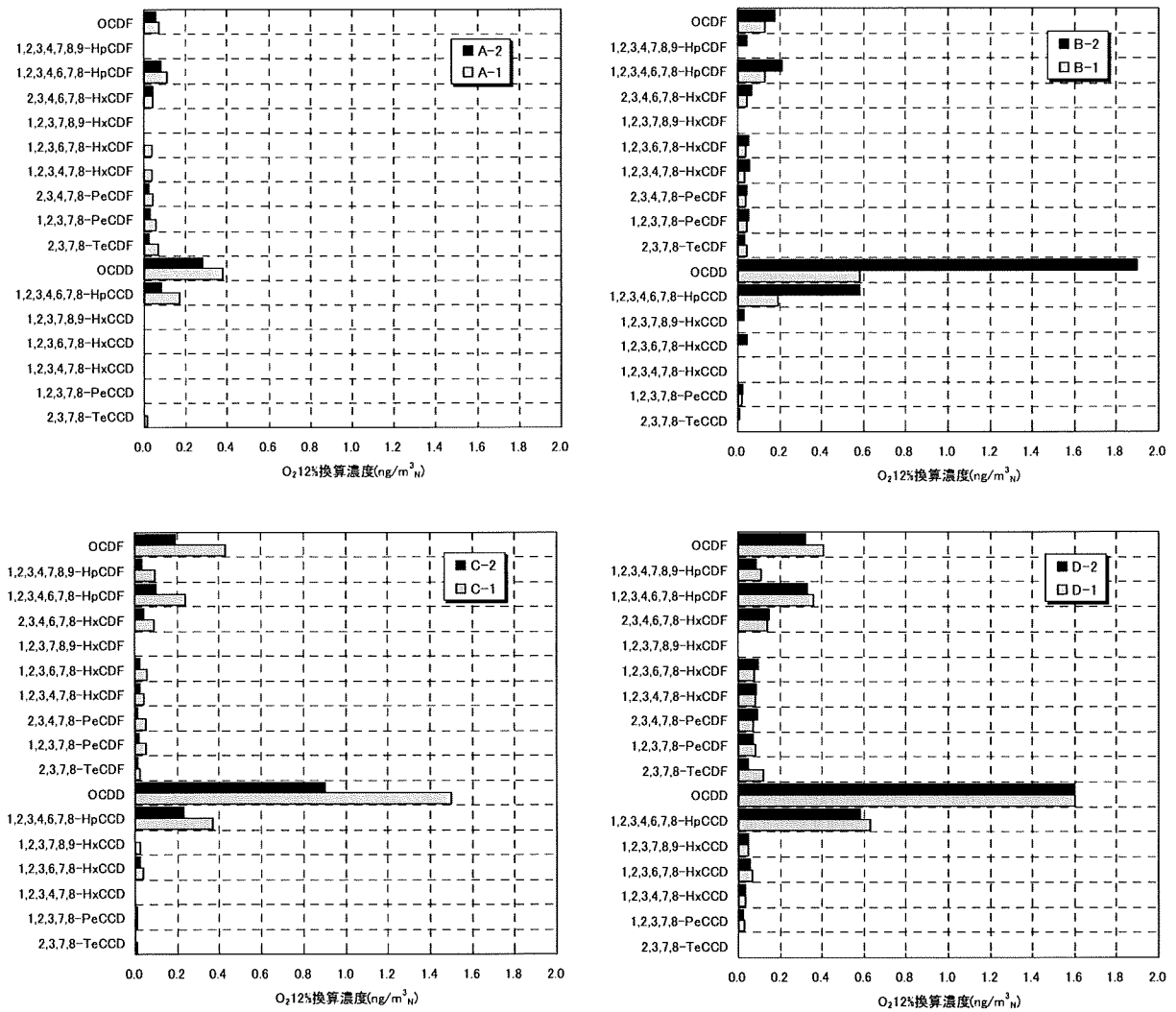


図 C.4.4(1) 排ガス中 PCDDs/DFs 濃度の異性体分布 (施設 2008-A ~ 2008-D)

すなわち、削減対策指針後に設置された比較的新しい施設では、全体的にダイオキシン類が低減されていることに加え、毒性等価係数が大きく毒性が高いとされる低塩素化物がより高度に除去されていることにより毒性等量が低減していると考えられた。

co-PCBsの異性体分布に関しては、全てのサンプルで、ノンオルト体であるT4CB(#77)、P5CB(#126)、モノオルト体であるP5CB(#118)、P5CB(#105)、が高い傾向が見られ、ついで、H6CB(#156)が比較的高くなる傾向が見られた。特に、ダイオキシン類の再合成が顕著であった施設2009-Bにおいては、P5CB(#126)の増加が顕著であった。都市ごみ焼却飛灰において、ダイオキシン類の*de novo*合成実験では、P5CB(#126)が、P5CB(#118)よりも優先的に生成することが報告されており^{26)、27)}、本研究においても集じん灰中で少なからず、*de novo*合成が生じている可能性が確認された。これらの傾向は、2007調査結果¹⁶⁾と同様の傾向であった。

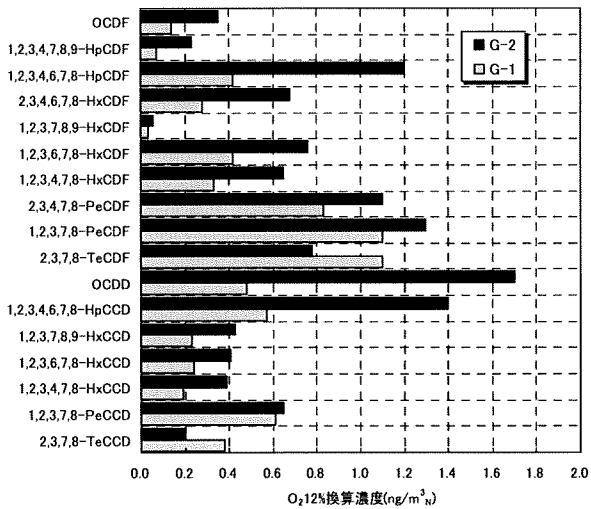
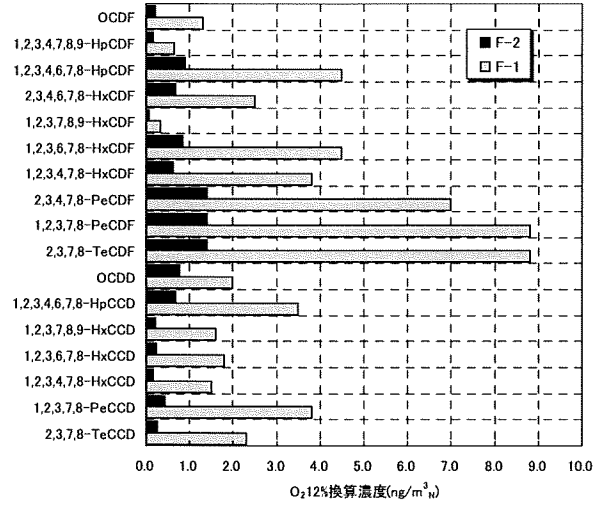
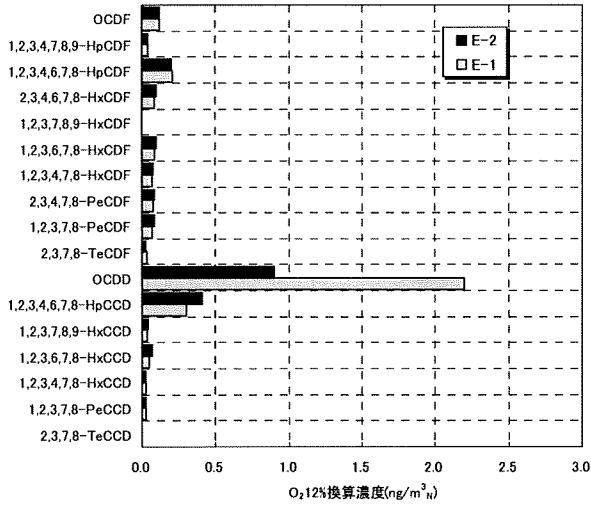


図 C.4.4(2) 排ガス中 PCDDs/DFs 濃度の異性体分布 (施設 2008-E ~ 2008-G)