

図 C.6.6 残骨灰、集じん灰中
六価クロムの含有量と溶出量との関係

められた相関関係は、六価クロムの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た。図 C.6.6 の関係から溶出量を抑制するためには、まず、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。

しかし、4種類の残骨灰(2007-D、2008-G、2009-A、2009-B)については、この関係性から大きく外れており、溶出率は30%以下であった。以下にこの原因について考察する。これらの灰に関しては、2009-Aの残骨灰を除き、火

表 C.6.4 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	溶出量	溶出量換算値	溶出率
		A (mg/kg)	B (mg/L)	C=B×10 (mg/kg)	C/A
残骨灰	2007-A	250	30	300	1.20
	2007-B	58	9	90	1.55
	2007-C	110	13	130	1.18
	2007-D	310	9	90	0.29
	2008-A	26	3	30	1.15
	2008-B	580	60	600	1.03
	2008-C	70	7.2	72	1.03
	2008-E	140	7.1	71	0.51
	2008-F	5.7	0.58	5.8	1.02
	2008-G	670	5.9	59	0.09
	2009-A	31	0.02	0.2	0.01
	2009-B	110	0.07	0.7	0.01
2009-C	6.5	0.23	2.3	0.35	
集じん灰	2007-A	140	16	160	1.14
	2007-B	460	60	600	1.30
	2008-A	66	2.7	27	0.41
	2008-B	880	96	960	1.09
	2008-C	210	19	190	0.90
	2008-F	230	16	160	0.70
	2009-A	80	6	60	0.75
	2009-B	150	15	150	1.00
	2009-C	280	31	310	1.11

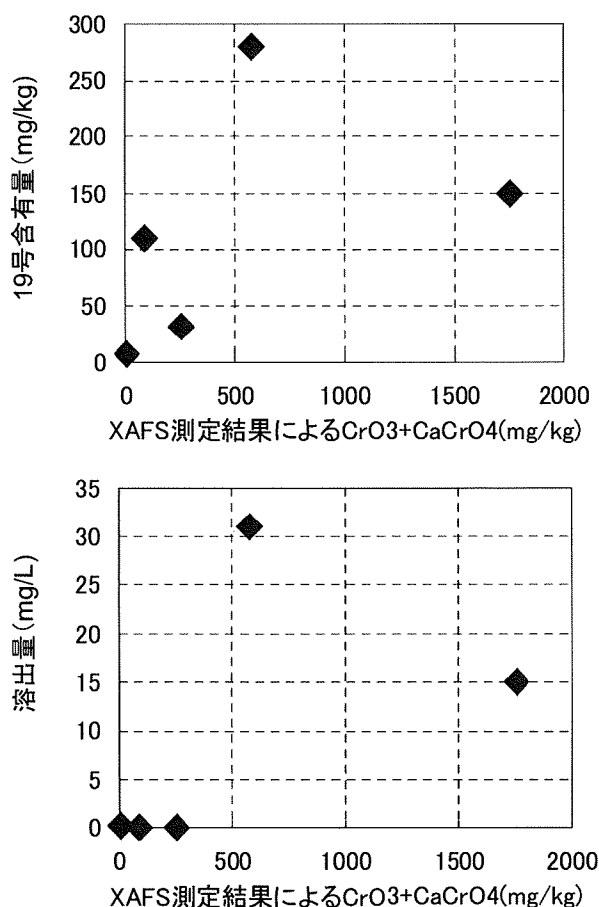
※溶出量換算値Cは、 $B \times 10$ は、土壤汚染対策法で規定される溶出量試験において、溶媒(体積):試料(重量)が10:1であることによる。

葬時の排ガス酸素濃度が、15.0～16.6%で、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と考えられた。そこでC.6.1(2)で示したXAFSによるCr化合物の推定結果として、図C.6.3の2009-B残骨灰の結果に着目すると、2009-B集じん灰、2009-C集じん灰に比較し、 CaCrO_4 の割合が20%程度と高いものの、明らかに CrO_3 の含有割合が低く、六価クロムの生成割合が低いことが確認された。したがって、19号含有量と溶出量の1:1の対応から外れてくる理由としては、この部分に由来するのではないかと推測された。

ただし、この場合においても、多くのサンプルは、含有量基準および、溶出量基準は超過しているため、例えば、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ことには限界があると考えられる。

2009-Aの残骨灰に関しては特殊であり、この1試料のみ含有量基準、および溶出量基準の双方を満たしており、火葬時の排ガス酸素濃度が低いこともなく、CO濃度も低レベルに保たれていたにもかかわらず、図C.6.3では、 CrO_3 の割合が35%程度と高かった。表C.6.1で、灰の組成に着目すると、2009-A残骨灰は、他の灰にCa濃度が低く、Si、Alの割合が高かった。これはこの灰の塩基度(CaO/SiO_2)が低いことを意味する。櫻井は、 SiO_2 、 Al_2O_3 、 CaO 、 Cr_2O_3 からなる模擬灰を用いて、加熱実験を実施し、加熱後の灰について、溶出量を評価した結果、塩基度の低い灰ほどCr(VI)の生成は抑制されるとしている²⁸⁾、しかし、実際には、図C.6.3から、 CrO_3 の生成が確認されており、19号含有量に対して、溶出量が低かったことの説明にはならない。むしろ、Si、Alの割合が高いことにより、それらが生成した CrO_3 の溶出を物理的に抑制している可能性の方が高いと考えられる。

次に、これまでの結果から、火葬灰中クロムのXAFS測定結果と、19号含有量、溶出量との関係を、図C.6.7に示した。



図C.6.7 XAFS測定結果と、19号含有量、溶出量との関係

XAFS測定結果のうち、六価クロムである CrO_3 、 CaCrO_4 とされた割合に対する総量を横軸にとり、縦軸に19号含有量、溶出量をプロットした。

図より、19号含有量、および溶出量とXAFS測定結果から予測した六価クロム量は、全体的な傾向として、対応が見られたが、相関はあまり高くなかった。XAFSのパターンフィッティングにて、六価クロムであると判定された量が多いほど、19号含有量、溶出量も高くなる傾向にはあるが、必ずしも比例関係にあるわけではなかった。

(2) 排出量の推定について

六価クロムに関しては、2007調査⁷⁾、および本研究にて、ほとんどの残骨灰、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になったが、特に集じん機が設置されていない火葬炉においては、その排出量を把握しておくことが重要である。C.5にて実際に火葬排ガス中クロムの測定結果を示したが、本研究における施設2009-A～2009-Cのすべてで、大気への放出濃度に対応する値は、定量限界以下であること、2007調査、および2008年の調査において対象とした火葬場では不明であることから、以下の方法により、火葬1件あたりの六価クロムの大気排出量を推定した。

まず、本研究を含め(表C.5.1)、2007調査時⁷⁾のすべての火葬場における排ガスの大気放出前の温度は $86\sim 400^\circ\text{C}$ の範囲にあり、その温度域では、六価クロムは、そのほとんどが固体で存在すると考えられる²⁴⁾。そこで、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。集じん機がない施設で、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(C.6.1)式にしたがって、火葬炉排ガス排出口付近における排ガス中六価クロム濃度： $G_{\text{Cr(VI)}}(\text{mg}/\text{m}^3_{\text{N}})$ を求めた。

$$G_{\text{Cr(VI)}} = G_{\text{DUST}} \cdot C_{\text{Cr(VI)}} \cdot 10^{-3} \quad (\text{C.6.1})$$

ただし G_{DUST} : 排ガス中ばいじん濃度 ($\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$) (O_2 12%換算値)

$C_{\text{Cr(VI)}}$: 集じん灰の含有量試験による六価クロム含有量 (mg/kg)

次に(C.6.2)式により、求めた $G_{\text{Cr(VI)}}$ に各施設の火葬1体あたりの排ガス量を乗じ、火葬

1体あたりの六価クロム排出量： $E_{Cr(VI)}$ (mg/体) を推定した。

$$E_{Cr(VI)} = G_{Cr(VI)} \cdot V \cdot t \quad (C.6.2)$$

ただし V : 排ガス量 (O_2 12%換算) (m^3_N/h)

t : 火葬時間 (h)

なお、各施設における、 t : 火葬時間、 V : 排ガス量 (O_2 12%換算)、 G_{DUST} : 排ガス中ばいじん濃度は、1～2 遺体の火葬の平均値を用いた。

以上の試算結果を表C.6.5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ているような施設は、2007-A～2007-B、2008-A～2008-C、2009-A～2009-Cの8箇所であり、 O_2 12%換算値で、 $0.23 \sim 5.46 \mu g/m^3_N$ 程度と見積もられた。特に2009-A～2009-Cにおける結果は、C.5における排ガス中クロムの測定結果と矛盾しない結果であった。

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、 $6.0 \pm 1.0 \mu g/m^3_N$ (O_2 11%換算値)であったと報告している²⁹⁾。この値

表 C.6.5 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^3_N/h	g/m^3_N	mg/kg	$\mu g/m^3_N$	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
2008	A	58	1,320	<0.007	66	0.23	0.15	BF+SCR
	B	63	2,240	<0.007	880	2.9	3.3	BF+SCR
	C	55	3,000	0.005	210	1.1	2.9	BF+AC
	E	62	1,360	0.145	(66-880)	70	97	集じん機なし
	F	62	1,550	0.125	230	29	46	SC
	G	74	2,200	0.180	(66-880)	86	230	集じん機なし
2009	A	82	1,470	<0.005	80	0.2	0.40	BF+SCR
	B	45	1,240	<0.002	150	0.15	0.14	BF+SCR
	C	73	3,060	0.0195	280	5.46	20	BF+AC

※2007年、2008年の火葬データ、Cr(VI)の19号含有量は文献7)、8)

※火葬時間、乾き排ガス流量、ばいじんについては各施設1-2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_2 12%換算値

※六価クロムの19号含有量()内の値は、集じん機がなくデータが無いため、他施設の最大～最小値

※排ガス中六価クロム濃度、六価クロム排出量は、六価クロムの19号含有量ベースであるとともに、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

は O_2 12%換算値では $5.4 \pm 0.9 \mu\text{g}/\text{m}^3_N$ となる。前述したように、施設2009-A、Bの集じん灰ではICP-AESによる全クロム濃度は表C.6.1に示すように3,790mg/kg、および1,140mg/kgであり、その際の六価クロムの19号含有量はそれぞれ80mg/kg、150mg/kgであった。この値は、全クロム濃度の2.1%～13.1%に対応する。またこの割合は別の文献を基に算出すると、6.3～20.1%程度と推測されている³⁰⁾。全クロムの測定値としては、酸分解後ICP-MSによる測定と、ICP-AES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_2 12%換算値： $5.4 \pm 0.9 \mu\text{g}/\text{m}^3_N$ の2.1%～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、この値は、 $0.095 \sim 1.2 \mu\text{g}/\text{m}^3_N$ と見積もられた。本研究の予測値である $0.23 \sim 5.46 \mu\text{g}/\text{m}^3_N$ と比較すると、ほぼ同じレベル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-C～2007-D、および2008-E～2008-G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 $25 \sim 86 \mu\text{g}/\text{m}^3_N$ 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-A～2007-B、2008-A～2008-C、2009-A～2009-Cにおいて $0.15 \sim 20 \text{mg}/\text{体}$ 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-C～2007-D、2008-E～2008-Gにおいては、 $46 \sim 230 \text{mg}/\text{体}$ 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が、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ものの、排出基準や環境基準が現時点で存在しないため³¹⁾、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ていないため、将来的には、より詳細な調査が必要である。

(3) 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、2.1%～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³²⁾、年齢別の体重³³⁾、死亡者数の男女割合³⁴⁾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で報告されており、代表的な燃焼発生源を選定し^{35)~40)}、比較を行った。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⁴¹⁾、それを参考にした。

表C.6.6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。火葬炉からの全クロムの排出係数は、排ガス処理のある場合で0.014~18mg/kg、排ガス処理のない場合で、4.3~200 mg/kgと算出された。他の燃焼発生源と比較すると、排ガス処理がある場合は、火葬は石炭火力発電、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、火葬は、石炭火力発電、廃棄物焼却、下水汚泥焼却よりも高くなる可能性があることが示唆された。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⁴²⁾などの影響があると考えられた。

表 C.6.6 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	(35), (36)
廃棄物焼却	4.49	0.015~0.13		(37)
下水汚泥焼却	14	0.01~9.8		(38)
耐火レンガ製造	130~350	64	Cr-Mgレンガ製造	(39)
セメント製造	—	0.0039~0.070		(40)
火葬	4.3~200	0.014~18	排ガス処理なし: 2007-A, B, 2008-A~C, 2009-A~C 排ガス処理あり: 2007-C, D, 2008-E~G	本研究

(4) 六価クロムの由来：クロムのマスバランスの検討

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⁴²⁾。この推定される根拠としては、以下のようなことが考えられる。SUS310Sのようなステンレス鋼では表面にCr₂O₃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²⁵⁾、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、Cr₂O₃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⁴³⁾。人骨には主成分であるヒドロキシアパタイト(Ca₁₀(PO₄)₆(OH)₂)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²⁰⁾、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_2O_3 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、江口は、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⁴¹⁾。以下は、江口の研究⁴²⁾を引用し、クロムのマスバランスについて補足、および考察を加えた。

まず、集じん機としてバグフィルターを有する火葬施設において、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(C.6.3)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。

$$\text{MScr} = \text{MBcr} + \text{MFcr} \quad (\text{C.6.3})$$

ただし、MScr：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)

MBcr：火葬1体あたりの残骨灰に由来する全クロム量(mg/体)

MFcr：火葬1体あたりの集じん灰に由来する全クロム量(mg/体)

MScr：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は、図C.6.8に示すステンレス製架台の交換時期までの減少量を考え、以下の(C.6.4)式により求めることができる。

$$\text{MScr} = \pi (\text{SUi}^2 - \text{SUo}^2) \cdot \text{L} \cdot \rho \cdot \text{Scr} \cdot 10^6 / \text{N} \quad (\text{C.6.4})$$

ただし、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)

ρ ：ステンレス製架台：SUS310Sの比重(kg/m^3)

Scr：ステンレス製架台：SUS310S中全クロム含有割合(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(C.6.5)式により求めることができる。

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。焼却飛灰中のクロムを対象とし、その測定の妥当性が検証されている⁴⁴⁾。試料は、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ており、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 $2.75 \times 10^{13}(\text{n}/\text{cm}^2/\text{sec})$ で行っている。照射時間は3,600秒とし、冷却時間は約1ヶ月としている。 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)を用いている。計測時間は7,200秒としている。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を用いている。

火葬炉におけるクロムのマスバランスを求めるために用いたデータ、および測定値を表C.6.7にまとめて示した。また前述の式にしたがって求めた、火葬炉における全クロムのマスバランスを図C.6.9に示す。図C.6.9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が高くなったものの、INPUTに対し、OUTPUT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/体程度存在するとされることから⁴⁵⁾、12,100mg/体に対して無視できると考えられる。燃料としては灯油、都市ガスが用いられているが、都市ガス中の全クロムは無視できると考えられる。また、灯油中の全クロムは、ICP-MSで測定した結果、 $62.4 \mu\text{g}/\text{L}$ であったとの報告があり⁴⁶⁾、火葬での灯油使用量は経験的に約50L/体であるので、灯油由来の全クロムは3.1mg/体となり、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、含有

表C.6.7 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C.6.8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	施設における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C.6.8より算出
ステンレス製架台:SUS310Sの比重	ρ	kg/m^3	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	$\text{kg}/\text{体}$	3	施設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	$\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$	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	$\text{g}/\text{m}^3_{\text{N}}$	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	$\text{m}^3_{\text{N}}/\text{体}$	12,000	施設K運転データのヒアリングより

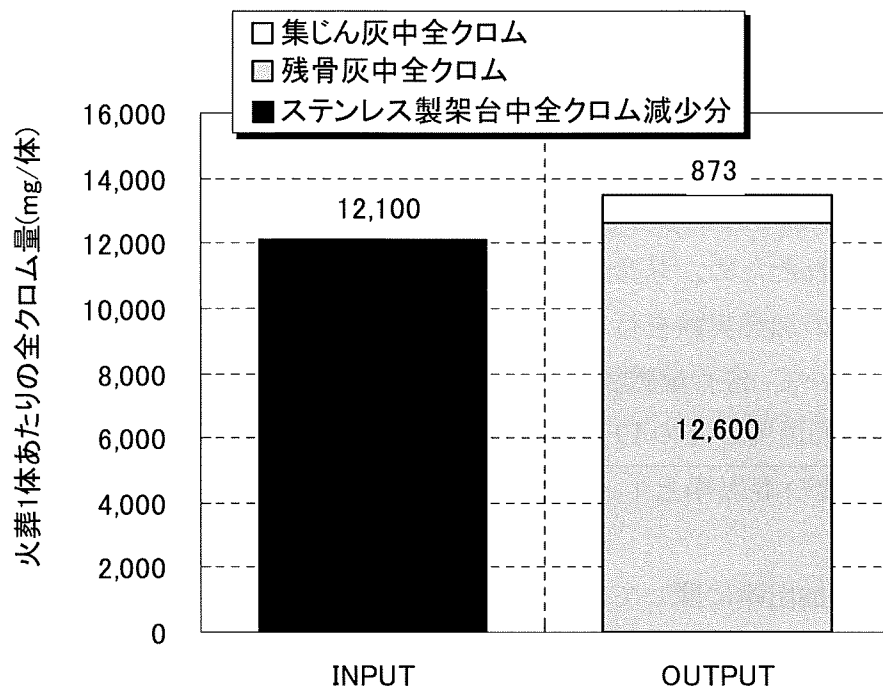


図 C.6.9 1 遺体の火葬における全クロムのマスバランス算出結果

量、および火葬における減少量のデータが少ないためはつきりしなかったが、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、そ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C.6.7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（残骨灰+集じん灰として、人体、棺、副葬品の化学組成から3.4kg/体と見積もっている⁴⁷⁾。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⁴⁸⁾。また、分担研究1では、残骨灰量を、厚生労働省健康局生活衛生課が平成21年に実施した火葬場のアンケート結果を用いて⁴⁹⁾、1.87 kg/体としている。

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とし

ては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。

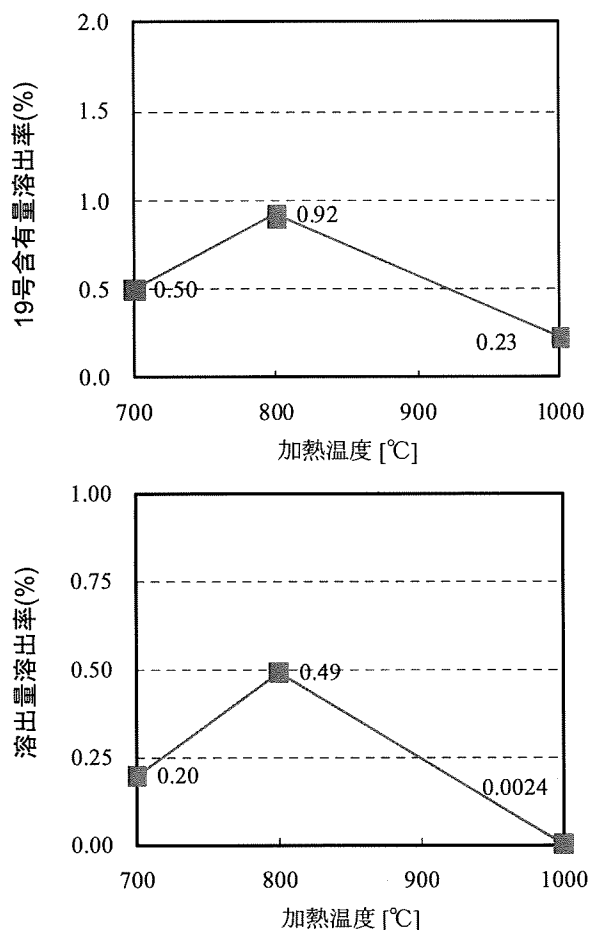
(5) 模擬火葬灰を用いた加熱実験

ステンレス架台が火葬灰中のクロム源である可能性が示唆されたため、ステンレス粉を含む模擬火葬灰の加熱実験を行い、加熱後のサンプルについて、含有量試験、溶出量試験を実施し、加熱温度ごとの19号含有量の抽出率、溶出量の溶出率として、図C.6.10に示した。

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

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

図C.6.11に、ステンレス混合模擬灰に対して、加熱処理を行ったときのCr K-edge XANESスペクトルを示す。スペクトルは、700°Cと800°Cのときには似た形状をしていたのに対して、1000°Cではこれらとは異なる形状であった。ゆえに、800°Cから1000°Cの間に大きな化学形態の変化が生じたと考えられた。

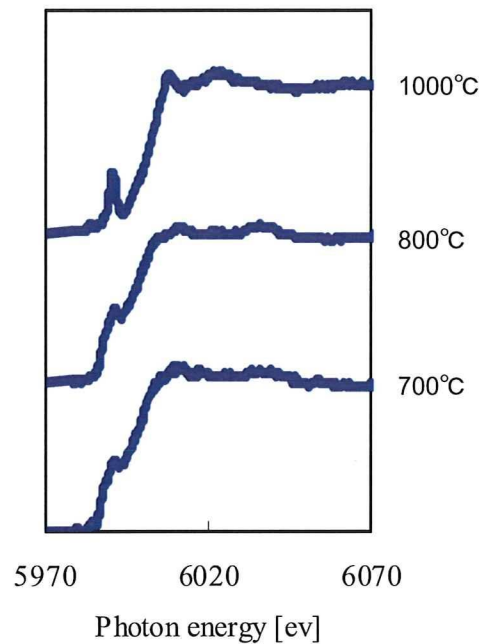


図C.6.10 ステンレス含有模擬火葬灰の19号含有量溶出率、および溶出量溶出率

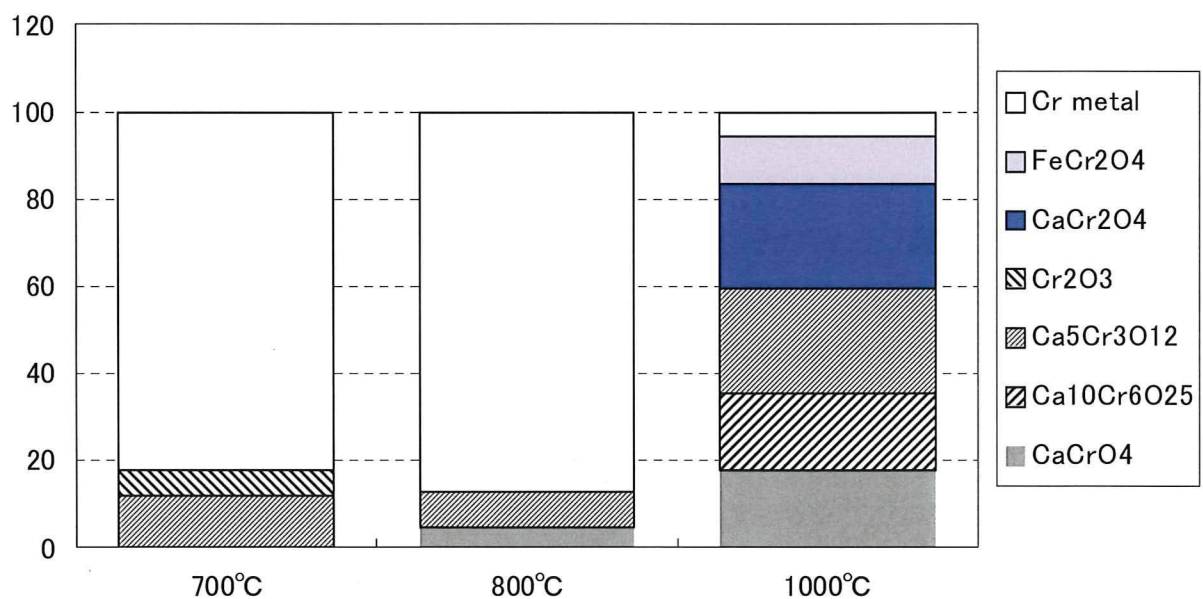
さらに、これらのスペクトルのパターンフィッティングから得られた各Cr化合物の存在割合を図C.6.12に示す。ステンレス混合模擬灰の700°Cおよび800°Cのときには、それぞれ約82%と約87%がCr metalであり、残りの15%程度が Cr_2O_3 、 CaCrO_4 、 $\text{Ca}_5\text{Cr}_3\text{O}_{12}$ として同定された。さらに、1000°Cのときは CaCr_2O_4 および FeCr_2O_4 がそれぞれ約24%と約14%同定され、残りの約60%は $\text{Ca}_{10}\text{Cr}_6\text{O}_{25}$ 、 $\text{Ca}_5\text{Cr}_3\text{O}_{12}$ 、 CaCrO_4 およびCr metalであった。ステンレス混合灰においてはいずれの加熱温度においても、各化合物の線形足し合わせを行ったスペクトルがある程度一致しており、信頼できる結果であると考えられた。

以上より、熱処理によってCrの化学形態が変化し、さらに700°Cおよび800°Cのときと1000°Cのときでは大きく化学形態が異なることが明らかになった。

19号含有量、溶出量との関連性をみると、XAFSによる結果からは700°Cから800°Cに加熱温度が上昇することで、六価クロム化合物である、 CaCrO_4 の割合が、5%まで増加しており、それに対応して、19号含有量、溶出量も増加していた。しかし、19号含有量、溶出



図C.6.11 ステンレス含有模擬火葬灰の加熱処理後のCr K-edge XANESスペクトル



図C.6.12 ステンレス含有模擬火葬灰の加熱処理後のCr化合物推定結果

量が低く抑えられていた1000°Cにおいては、 CaCrO_4 の割合は20%程度まで増加しており、対応がとれなかった。この原因としては、Si、Alを実灰よりも多く含むため、これらがCr(VI)化合物の溶出に物理的に抑制したこと等が考えられるが、はっきりとはわからなかった。

(6) 六価クロム対策について

六価クロムに対する対策としては、六価クロムを生成させないように燃焼温度、あるいは酸素濃度を下げることが考えられるが、我が国の火葬の習慣上、あるいはダイオキシン類生成の観点から燃焼制御による対策は非現実的である。また、残骨灰とステンレス材、耐火物の直接接触が回避できるような構造的な対策も考えられるが、炉構造の根本的な見直しが必要であり困難であると考えられる。

さらに、江口によると、ステンレス架台を用いない火葬炉において、残骨灰、集じん灰の六価クロム溶出量を評価した結果、灰の溶出量は7.0、および3.4mg/Lで、溶出基準値の50倍以上超過していたという報告がある⁴²⁾。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。

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

6.4 フッ素

表C.6.8、および図C.6.13にそれぞれのサンプルについて、フッ素の溶出量、含有量試験の結果を示した。まず、含有量に関しては残骨灰、集じん灰で、230～2,000mg/kgであり、全てのサンプルで、含有量基準(4,000mg/kg)以下であった。

溶出量に関しては、まず残骨灰は、全て土壤汚染対策法により規定されている溶出量基準(0.8mg/L)以下であり、特に問題はないといえる。しかし集じん灰においては2008-A～2008-C集じん灰において、2.6～7.4mg/Lであり溶出量基準を超過していた。

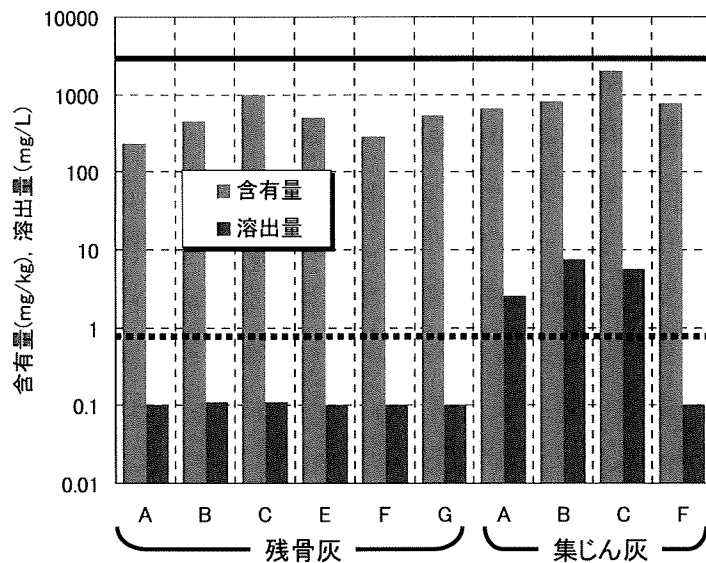
以上の傾向は、2007調査において、残骨灰4検体、集じん灰2検体について調査した結果⁷⁾と同様の結果であり、フッ素の観点からは、特に集じん灰について取扱に注意が必要

であることが確認された。また2007調査を含め、全ての灰におけるフッ素溶出量と含有量との関係を図C.6.14に示したが、含有量と溶出量の間には必ずしも明確な比例関係があるわけではなかった。

表 C.6.8 残骨灰、集じん灰中フッ素の含有量、溶出量試験結果(2008 調査)

	含有量(mg/kg)		溶出量(mg/L)	
	残骨灰	集じん灰	残骨灰	集じん灰
A	230	650	<0.1	2.6
B	450	790	0.11	7.4
C	990	2000	0.11	5.5
E	510	—	<0.1	—
F	280	780	<0.1	<0.1
G	530	—	<0.1	—

※「土壤汚染対策法施行規則」環境省令第29号(平成14年)による
フッ素の含有量基準：4,000mg/kg、溶出量基準：0.8mg/L



※定量下限値以下の値は、定量下限値として図示。

※実線：含有量基準値、破線：溶出量基準値

図 C.6.13 残骨灰、集じん灰中フッ素の含有量、溶出量試験結果

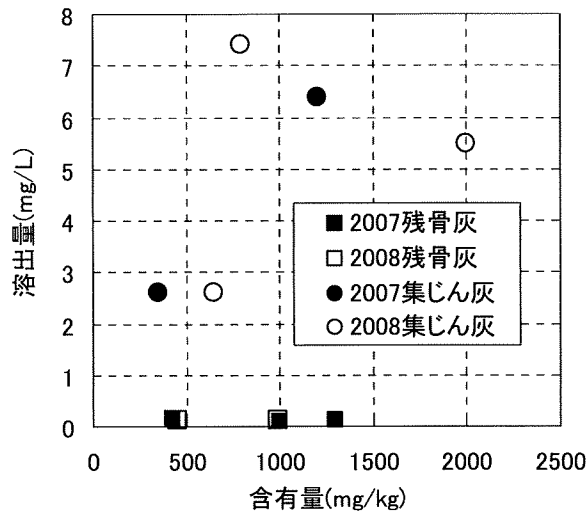


図 C.6.14 残骨灰、集じん灰中フッ素の含有量と溶出量との関係

6.5 ホウ素

表 C.6.9、および図 C.6.15 にそれぞれのサンプルについて、ホウ素の溶出量、含有量試験の結果を示した。まず、含有量に関しては残骨灰、集じん灰で、290mg/kg以下であり、全てのサンプルで、含有量基準(4,000mg/kg)以下であった。

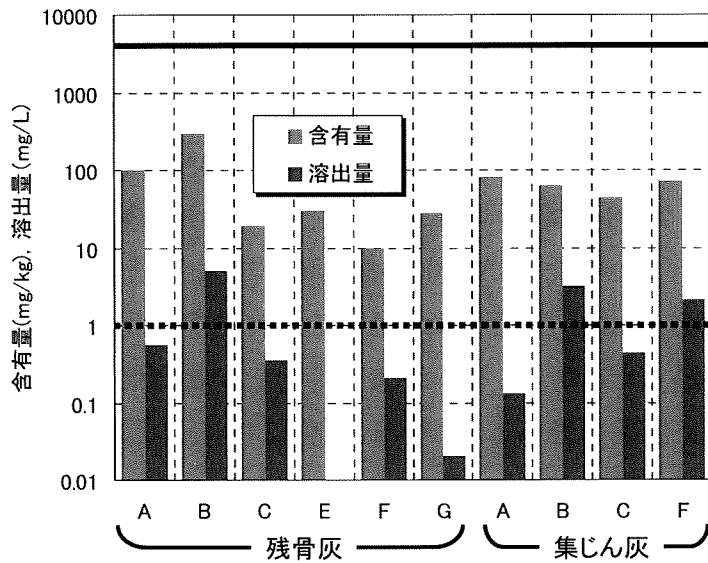
溶出量に関しては、全ての灰で0.01～5.1mg/Lの範囲にあったが、残骨灰、集じん灰、あるいは施設の違いで特に着目すべき傾向は見られなかった。2008-B残骨灰、2008-B集じん灰、2008-F集じん灰について、土壤汚染対策法により規定されている溶出量基準(1.0mg/L)をオーバーしたため、残骨灰、集じん灰にかぎらず超過する可能性がある。

以上の傾向は、2007調査において、残骨灰4検体、集じん灰2検体について調査した結果と同様の結果⁷⁾であった。また2007調査を含め、全ての灰におけるホウ素溶出量と含有量との関係を図C.6.16に示したが、含有量と溶出量の間にはわずかに正の相関が見られるが、必ずしも明確な比例関係があるわけではなかった。

表 C.6.9 残骨灰、集じん灰中ホウ素の含有量、溶出量試験結果(2008調査)

	含有量(mg/kg)		溶出量(mg/L)	
	残骨灰	集じん灰	残骨灰	集じん灰
A	100	82	0.55	0.13
B	290	63	5.1	3.2
C	19	43	0.36	0.44
E	30	—	0.010	—
F	<10	71	0.21	2.1
G	28	—	0.020	—

※「土壤汚染対策法施行規則」環境省令第29号(平成14年)による
ホウ素の含有量基準：4,000mg/kg、溶出量基準：1.0mg/L



※定量下限値以下の値は、定量下限値として図示。

※実線：含有量基準値、破線：溶出量基準値

図 C.6.15 残骨灰、集じん灰中ホウ素の含有量、溶出量試験結果

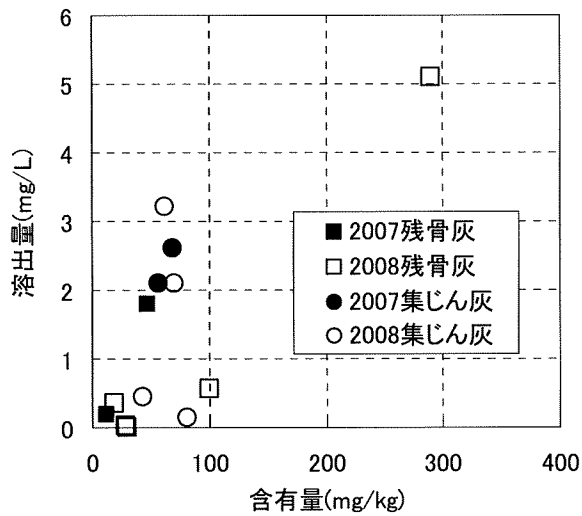


図 C.6.16 残骨灰、集じん灰中ホウ素の含有量と溶出量との関係

6.6 カドミウム

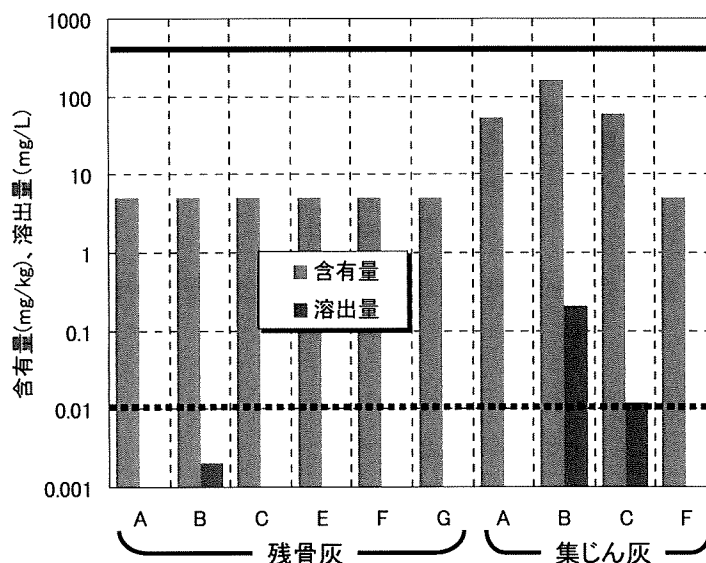
表C.6.10、および図C.6.17にそれぞれのサンプルについて、カドミウムの溶出量、含有量試験の結果を示した。まず、含有量に関しては残骨灰に関しては、5mg/kg以下であり全く問題は無い。しかし集じん灰では、最大で160mg/kgであり、全体として、残骨灰よりも高い値を示した。特に、2008-B集じん灰において、含有量基準(150mg/kg)を超過した。

溶出量に関しては、全ての残骨灰で0.0002mg/L以下であり、土壤汚染対策法により規定されている溶出量基準(0.01mg/L)以下であったが、2008-B集じん灰、2008-C集じん灰において、溶出量基準を超過した。カドミウムおよびその化合物は低沸点である性質を有することからも、集じん灰に濃縮されることが容易に推測でき、この観点からは集じん灰に留意する必要性が示唆された。

表 C.6.10 残骨灰、集じん灰中カドミウムの含有量、溶出量試験結果(2008 調査)

	含有量(mg/kg)		溶出量(mg/L)	
	残骨灰	集じん灰	残骨灰	集じん灰
A	<5	54	<0.001	<0.001
B	<5	160	0.002	0.21
C	<5	59	<0.001	0.012
E	<5	—	<0.001	—
F	<5	<5	<0.001	<0.001
G	<5	—	<0.001	—

※「土壤汚染対策法施行規則」環境省令第29号(平成14年)による
カドミウムの含有量基準：150mg/kg、溶出量基準：0.01mg/L



※定量下限値以下の値は、定量下限値として図示。

※実線：含有量基準値、破線：溶出量基準値

図 C.6.17 残骨灰、集じん灰中カドミウムの含有量、溶出量試験結果

D. 第3章のまとめ

本研究では、延べ11施設の火葬場を対象として、排ガス中の水銀、クロム、および灰中の重金属、フッ素、ホウ素について調査を行い、実態を明らかにするとともに排出抑制対策を検討した。以下に得られた知見を示す。

- JIS法により7施設、14件の火葬場を対象に測定した排ガス中水銀濃度は、 O_2 12%換算で、 $<0.010 \text{ mg/m}^3_N \sim 0.135 \text{ mg/m}^3_N$ であり、廃棄物焼却炉の自主目標値の値を大きく超えるケースもあった。また、14検体中11検体の実測値は定量下限値以下となったため、正確な水銀濃度、および排出量の見積のためには、定量下限値をさらに低くできるような方法を検討する必要がある。
- JIS法による測定結果を基にした水銀の排出量は、 $30.8\text{mg/体} \sim 70.0\text{mg/体}$ であり。過去の調査とほぼ同様の範囲であった。イギリスの水銀排出量規制値 37.5mg/体 を明らかに超えていないと言えるのは14検体中6検体のみであった。
- 水銀挙動の調査では、延べ9施設において連続分析計を用いて経時変化を測定した。その結果、挙動については過去の調査事例と同様の傾向であり、過去の調査と同程度の頻度（約2検体/5検体）で、歯科アマルガム由来と考えられる Hg^0 の高濃度ピークが見られ、排出濃度としても廃棄物焼却炉の自主目標値の値を大きく超えていた。
- 排ガス中水銀の Hg^0 と Hg^{2+} の占める割合は Hg^0 の方が大きく、歯科アマルガム由来の高濃度排出が見られる場合では、 Hg^0 がそのほとんどを占めた。歯科アマルガムを有する火葬対象者は、今後死亡者増加とともに2020年頃にピークを迎える予測があるため、活性炭吸着などの排出抑制対策の必要性が改めて示唆された。
- 火葬場での調査により、排ガス中水銀は、触媒装置、あるいは活性炭吸着設備にて70%以上の除去率が見込めることが示された。一方、バグフィルターでは、堆積した集じん灰により水銀が除去されるケースと、増加するケースがみられ、安定性に欠けることが示唆された。したがって、排ガス中水銀の除去には、バグフィルターの後段に、触媒装置、あるいは活性炭吸着設備を設置することが望ましいと考えられた。ただし、触媒装置は、ダイオキシン類の分解、脱硝が本来の目的であり、水銀の吸着除去により、触媒活性の低下が懸念されるため、水銀除去には、活性炭吸着設備が最も望ましいと考えられた。
- 集じん機や触媒装置、活性炭吸着設備の前段では、歯科アマルガムに由来する高濃度の無機水銀ピークが見られたが、特に高度排ガス処理装置により、比較的low濃度に抑えられていた。

- ・ 水銀の排出原単位は、灰への排出原単位よりも、大気への排出原単位が高かった。大気への排出原単位はこれまでの研究を総合して、31.4～36.9mg/体と算出された。いくつかの検体はイギリスの排出原単位の基準を超過しており、これを低減していくには、さらなる水銀の高度除去が必要であり、歯科アマルガム由来の高濃度ピークに対し、水銀吸着用の活性炭で対応すること、バグフィルター集じん灰中の水銀の脱着に対し、定期的なバグフィルターの清掃により対応することが必要と考えられた。
- ・ パイロット式活性炭吸着実験装置による水銀除去実験により、5種類の活性炭による吸着除去を検討した結果、全体における除去率の平均は90.2%であり、極めて高度に除去できることがわかった。活性炭の種類としては、除去率や、活性炭層での温度上昇を考慮した場合、石炭系活性炭が望ましいことが明らかとなった。
- ・ 火葬排ガス中のクロムに関しては、バグフィルターにてばいじんとともに高度に除去され、少なくとも75%以上の除去率が見込めることがわかった。また熱交換器部分で、排ガス中のクロムが増加する現象が認められ、熱交換器部分に過去に堆積したばいじん、および熱交換器の材質であるステンレスが剥離して濃度が上昇し、集じん灰へのクロムの供給源となっている可能性が示唆された。したがってダイオキシン類と同様に、クロムの観点からも熱交換器の導入には注意する必要がある。
- ・ 火葬灰のキャラクタリゼーションの一つとして、XAFSによる灰中のクロムの化学形態を推定した結果、全ての灰でメタルとしてのクロムが含まれるとともに、六価クロムが生成していることが確認できた。
- ・ 集じん灰中水銀について、19号含有量については土壤汚染対策法の基準以下であったが、溶出量は基準値を超える場合があり、取扱いに注意が必要であることがわかった。残骨灰については問題なかった。
- ・ 灰中の六価クロムに関しては、19号含有量についていくつかのサンプルでのみ基準値を超過するケースが見られたが、溶出量では1検体を除く全てのサンプルで基準の1.4～1,800倍の濃度が検出された。19号含有量と溶出量の対応から、ほとんどのサンプルで含有量として定量された六価クロムの大部分が溶出量試験で溶出していることが明らかとなった。
- ・ 六価クロムの19号含有量、および溶出量と、XAFSにより推定した六価クロムの生成量は弱い相関が見られ、19号含有量、溶出量の高い試料は、灰中に多く六価クロムが生成していることが確認された。ただし、完全な比例関係はみられず、SiやAlが高い濃度であると灰中六価クロムが高くとも溶出量が物理的に抑制されている可能性がある。

- 六価クロムの大気への排出量を詳細に見積もった結果、バグフィルターを有する比較的新しい炉では0.15～20mg/体、集じん機を有しない旧型の炉では、46～230mg/体と見積もられた。また他の燃焼発生源とクロムの排出係数を比較した結果、集じん機がない場合、都市ごみ、下水汚泥焼却炉よりも、排出原単位は高くなる傾向にあり、火葬には特有のクロム源が存在することが示唆された。
- 火葬炉におけるクロムのマスバランスを検討するとともに、ステンレスを混合した模擬火葬灰の加熱実験を実施した結果、炉内のステンレス架台をクロム源とした場合、マスバランスが整合し、温度が800℃程度の火葬で、灰中の六価クロムは、溶出基準を超過することが確認された。
- 灰中の六価クロムの由来としては、ステンレス架台や、炉内耐火物中のクロムが酸化されることによるものと予想されたが、炉内材のクロムフリー化対策によっても、依然として溶出量が高くなる可能性もあり、今後、バグフィルター等による集じんをしっかりと行い火葬炉外への排出を抑制し、別途灰の処理を検討することが必要であると考えられた。
- 灰中のフッ素、ホウ素に関しては、全ての灰で含有量は問題なかったが、特にフッ素について、集じん灰で溶出量を超過するケースが多く見られたため、集じん灰中のフッ素に留意する必要がある。
- 灰中のカドミウムについては、集じん灰で含有量、溶出量ともに超過するケースがあり、集じん灰の取扱に留意する必要がある。

E. 研究発表

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

F. 知的財産権の出願・登録状況

該当なし(平成22年3月31日現在)