

【論 文】

## 物質収支による放射性セシウムの灰中回収率の推定

岩見 億 丈\*・笹 井 康 則\*\*

**【要 旨】** 福島第一原発事故による放射性セシウム汚染牧草を遠野市一般廃棄物焼却炉で焼却した際の行政資料を分析し、物質収支により放射性セシウムの挙動を検討した。2012年11月から2014年7月までの394日分のデータから274日分を選別し、ベイズ統計回帰分析を行った結果、灰中回収率は64.7% (95%信用区間56.9~72.6%)となった。設備へのセシウム吸着量を評価すると、バグフィルターの排ガス中放射性セシウム除去率は64.6%であった。排ガス中Cs137濃度は1.4 Bq/m<sup>3</sup> N前後まで上昇したと推定されるが、現行の測定法では不検出となる数値である。物質収支の視点からも放射性物質の大気への排出を検討し、科学的説得性のある排ガス中濃度測定法を実施することが、放射性廃棄物の焼却を行う際の科学的必要条件であると考えられる。

キーワード：焼却炉、物質収支、バグフィルター、放射性セシウム、除去率

### 1. は じ め に

焼却炉における有害廃棄物の環境への排出を調査研究する方法には、次の3つをあげることができる。①焼却前の対象物中有害物質と、焼却後に灰等に回収された有害物質との物質収支を検討する。②焼却炉から周囲の環境に排出される排ガス等に含まれる有害物質濃度を測定し排出量を検討する。③焼却炉周囲の環境中有害物質、または環境中の生体に対する有害事象の時間的経過や空間的分布を検討する。水銀、鉛、カドミウム等の重金属、および半減期が比較的長い放射性物質は、焼却中に総量が変化することはないため、これらの有害物質については、上記の3種類の研究方法は科学的に同等の価値をもつと考えられる。また、3つの方法から得られた結果は互いに整合性があることが必要である。

笹井、岩見らは宮古市一般廃棄物焼却炉の行政資料を用いた放射性セシウムの物質収支的検討から、焼却物中放射性セシウムの約2割がバグフィルターを通り抜け環境中に漏れ出ているとした<sup>1,2)</sup>。その後、岩見らは、宮

古市焼却炉周囲において土壤中放射性セシウム濃度を広範囲に調査し、焼却炉近傍において放射性セシウム濃度が上昇しており、その汚染量は物質収支的検討の漏出量とほぼ整合していることを報告している<sup>3)</sup>。このように、笹井らが行った行政資料を用いた物質収支的検討は、一般廃棄物焼却炉のバグフィルターによる放射性セシウム除去能力を評価する上で有用な研究方法であることが示されている。

今回、われわれは焼却炉における放射性セシウムの物質収支研究の再現性を得るべく、遠野市一般廃棄物焼却炉における放射性セシウム汚染牧草の焼却に伴う行政資料を用いて、ベイズ統計回帰分析により灰中回収率の信用区間を求め、焼却炉から環境中への放射性セシウムの排出を検討したので報告する。

### 2. 遠野市焼却炉の稼働状況と重量測定および放射能測定

遠野市の焼却炉(岩手県遠野市綾織町新里18地割75-1)は三井流動床式焼却炉(三井造船施工、炉数1)で、稼働方式は準連続焼却である。集塵器にはバグフィルターを用いており、ユニチカ(株)のバグフィルター用ガラスクロス(コーティングなしのガラス繊維二重織り)を原材料にして、東洋紡カンキョーテクノ(株)が製作したものを使用している。本社によるラボ負荷試験で

原稿受付 2015. 8. 23 原稿受理 2016. 5. 26

\* 岩見神経内科医院

\*\* みなとや調剤薬局

連絡先：〒027-0083 岩手県宮古市大通1-5-2

岩見神経内科医院 岩見 億丈

E-mail : iwamineurolog@mx5.et.tiki.ne.jp

は、粒径3~4 $\mu\text{m}$ の試験ダストに対する使用時間7時間後の集塵効率 $99.9\%$ である(同社担当者からの回答による)。焼却炉の稼働開始日は1988年4月1日である。一日最大焼却可能量は16時間連続運転で40 tonである。稼働時間は一日平均約16時間であり、土曜日曜、年末年始、定期点検時に運転を停止している。焼却温度の最高値は850~900 $^{\circ}\text{C}$ であり、乾き排気量は13,000~15,000 $\text{m}^3\text{N/hr}$ 、煙突高は33 mである。遠野市焼却炉では、バグフィルターを通過しないバイパス経路はなく、また焼却や焼却炉清掃に伴う排水もない。

遠野市で放射性セシウム濃度測定に用いられている分析機器は、Ge半導体検出器による精密測定ではキャンベラジャパン(株)GC2020であり、NaI検出器による簡易測定ではMirion Technologies, Inc. SPIR-QUANTAである。簡易測定時、牧草は2Lのマリネリ容器を使用し、飛灰(集塵灰)と主灰(焼却灰)は1Lのマリネリ容器を使用している。重量にして、牧草は300~400 g、飛灰と主灰は約1 kgのサンプル量である。簡易測定による測定下限値は、牧草でCs137が1~9 Bq/kg、Cs134が2~7 Bq/kg、飛灰でCs137が3~6 Bq/kg、Cs134が2~6 Bq/kg、主灰でCs137が1~7 Bq/kg、Cs134が3~9 Bq/kgとなっている。

汚染牧草は約0.5 tonのロットにまとめられ、専用の倉庫に保管されている。1つのロットから数カ所サンプリングし、その試料を混ぜ合わせて焼却日前日の午後に放射能濃度を測定している。焼却日当日にロットの重量を測定し、焼却炉に入れている。焼却までの半日の間に汚染牧草の性状変化は観察されていない。牧草は20 cmの長さで裁断し、クレーンで一般廃棄物と混合し焼却処分している。汚染牧草の焼却炉への投入は1日5~8回に分けて朝から夕方まで行われている。焼却されるロットの順番に一定の規則はない。焼却の翌日、飛灰にキレート剤添加水を混合し十分に攪拌したのち、数ヶ所から10ヶ所で飛灰のサンプリングを行い、総量1 kgとしたものを放射能濃度測定の試料とし、ただちに測定している。また、そのサンプリング直後に飛灰の重量を測定している。飛灰に混合するキレート剤添加水の重量は、飛灰重量1に対し0.2~0.3の割合である。主灰についても、キレート剤添加水を加えない他は飛灰と同様に放射能濃度と重量の測定が行われている。

### 3. 解析対象の資料および解析方法

解析に用いた行政資料は情報開示請求により取得したもので、放射能濃度値はNaI検出器を用いた簡易測定値である。これらの資料を電子付録としてAppendix I

に示す。解析対象は、2012年11月29日より2014年7月30日までのデータ、412日分である。一日に焼却処分される汚染牧草のロット数は1~3であり、3ロットの焼却が一番多い(1ロット16日、2ロット93日、3ロット289日)。飛灰のセシウム濃度を一日2回測定した日が29日、主灰のセシウム濃度を一日2回測定した日が11日あり、これらのデータについては、その平均値をAppendix Iに示している。遠野市によるNaI検出器を用いた簡易測定と、委託業者によるGe半導体検出器を用いた精密測定との両方の測定方法による放射能濃度データが、2014年9月9日までに、牧草に関しては20日分、飛灰と主灰に関しては22日分あり、これらを電子付録としてAppendix IIa, IIbに示す。また、2014年2月20日~28日に行われた設備清掃によって取り除かれた吸着物の資料を電子付録としてAppendix IIIに示す。回帰分析にはExcel 2010、および、WinBUGSを用いた<sup>4)</sup>。

## 4. 放射能収支の計算過程と結果

### 4.1 データの選択

主灰の搬出が行われていない日が2日あり、翌日以後に持ち越されて測定報告されているため、持ち越された日を含む4日分(2012年11月30日、2012年12月3, 4, 5日)を分析対象から除いた。主灰の測定が行われていない日が1日(2012年12月18日)あり、分析対象から除いた。飛灰および主灰の重量と放射性セシウム濃度の測定が2日ないし3日分をまとめて行われ、その2ないし3日のうちに汚染牧草の焼却が1日行われたシリーズが4回あり(2012年12月28日と12月30日と2013年1月3日、2013年2月23日と24日、2013年10月5日と6日、2013年12月27日と12月30日と2014年1月3日)、これら10日分も分析対象から除いた。汚染牧草の焼却が行われていない日で、飛灰および主灰の重量と放射性セシウム濃度の測定が、2日分をまとめて行われたことが3回あり、これらはまとめて1日分のデータとして扱った(2013年3月15日と16日、2013年9月30日と10月1日、2014年3月1日と2日)。これらの合算集計により、3日分のデータが他の日にまとめられる。

以上のデータの選択により、412日分のデータは18日分少ない394日分のデータになり、この394日分のデータを放射性セシウム収支の算出に用いる。飛灰中セシウム濃度を一日2回測定した日と主灰中セシウム濃度を一日2回測定した日の測定値は、その平均値を代表値とする。以下で検討する放射能量は、測定された結果の

数値を放射性セシウムの崩壊に伴う減衰で補正し (Cs137 の半減期 30.17 年, Cs134 の半減期 2.065 年で補正), 2014 年 1 月 1 日時点の数値に換算したものを扱う。

4.2 測定誤差とサンプリング誤差の検討

NaI 検出器を用いた簡易測定結果と, Ge 半導体検出器を用いた精密測定結果とを比較検討し, 測定に伴う誤差とサンプリングに伴う誤差を検討する。測定下限値未満の測定値は, 測定下限値の 1/2 の値とした。

Cs137 濃度と Cs134 濃度との相関関係を, Cs137 の値を説明変数, Cs134 の値を目的変数にして, 原点通過回帰式で回帰分析すると表 1 の結果が得られる。牧草と飛灰については, 簡易測定および精密測定ともに Cs137 と Cs134 の強い相関と高い寄与率 (R<sup>2</sup> 値) があり, 濃度測定の精度が高いことが示されている。主灰については, 精密測定では寄与率が 0.988 と良好な値であるが, 簡易測定では寄与率が 0.949 である。主灰については簡易測定の精度が若干悪い傾向があることが示されている。

簡易測定濃度と精密測定濃度との相関関係を, 簡易測定値を説明変数, 精密測定値を目的変数にして原点通過回帰式で回帰分析をした結果を表 2 に示す。牧草については, Cs137, Cs134 での寄与率は, 0.819, 0.796 である。飛灰については, Cs137, Cs134 での寄与率は 0.966, 0.973 である。主灰については, Cs137, Cs134 での寄与率は, 0.923, 0.860 である。牧草と飛灰については分析機器による放射能濃度測定の精度が高いことを考慮すると, サンプリングに伴う偶然誤差 (対象物中の放射能濃

度が不均一であるために生じる誤差) が, 飛灰では小さく, 牧草では比較的大きいことを示していると判断される。主灰のサンプリングに伴う偶然誤差は牧草と飛灰の間と考えられる。回帰直線の傾きは, 牧草で Cs137 が 0.966, Cs134 が 0.949, 飛灰で Cs137 が 1.016, Cs134 が 1.021, 主灰で Cs137 が 1.107, Cs134 が 1.005 である。

以上の検討から, 簡易測定の結果を用いて放射性セシウムの収支の解析を行う際に, 次のことを考慮する必要がある。① 飛灰の放射能濃度測定値は, 測定精度が高く, サンプリング誤差が小さい。② 牧草の放射能濃度測定値は, 測定精度は高いが, サンプリング誤差は無視できず, その誤差を補正し収支を求める必要がある。③ 主灰の放射能濃度測定値は, 測定精度がやや悪く, サンプリング誤差も牧草ほどではないものの, やや大きい値で存在する。すべての種類の検体について, 簡易測定と精密測定との回帰直線の傾きがほぼ 1 であることから, 統計的に十分な数のデータを確保して検討すれば, 簡易測定値から得られる回収率推定値の妥当性が保たれると考えられる。

牧草中 Cs137 濃度について, 簡易測定値を説明変数, 精密測定値を目的変数として, 原点通過回帰式で回帰分析した回帰直線を散布図とともに図 1 に示す。30% のデータが回帰直線から大きく外れている。Cs134 についても同様の散布図が得られ, 回収率の評価時に, この数値を考慮する。

4.3 飛灰放射能濃度による分析集団の設定

394 日分の焼却について, 飛灰と主灰に回収された放

表 1 Cs137 濃度と Cs134 濃度の相関

		データ数	傾き	P 値	相関係数	寄与率
牧草	精密測定	20	0.416	4.4E-22	0.997	0.993
	簡易測定	20	0.418	2.1E-27	0.999	0.998
飛灰	精密測定	22	0.397	6.5E-24	0.996	0.993
	簡易測定	22	0.397	8.0E-26	0.998	0.995
主灰	精密測定	22	0.409	7.8E-22	0.994	0.988
	簡易測定	22	0.426	5.1E-15	0.974	0.949

原点通過回帰式による回帰分析の結果である

表 2 簡易測定濃度と精密測定濃度の相関

		データ数	傾き	P 値	相関係数	寄与率
牧草	Cs137	20	0.966	1.8E-08	0.905	0.819
	Cs134	20	0.949	5.6E-08	0.892	0.796
飛灰	Cs137	22	1.016	7.6E-17	0.983	0.966
	Cs134	22	1.021	7.0E-18	0.986	0.973
主灰	Cs137	22	1.107	3.7E-13	0.961	0.923
	Cs134	22	1.005	1.9E-10	0.928	0.860

原点通過回帰式による回帰分析の結果である

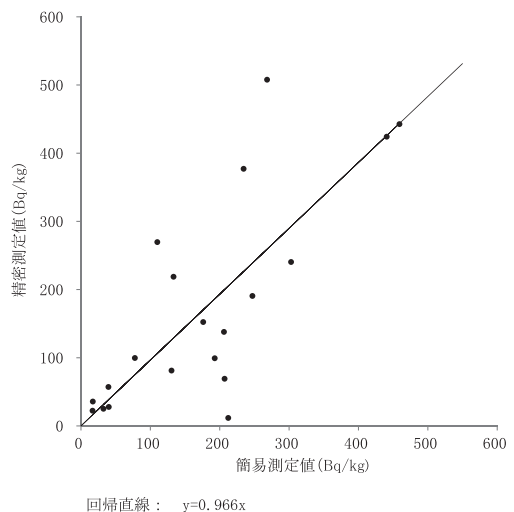


図 1 牧草中 Cs137 濃度の簡易測定値と精密測定値との相関

射エネルギーは Cs137 が飛灰へ 173,493 kBq、主灰へ 13,939 kBq、Cs134 が飛灰へ 70,146 kBq、主灰へ 6,116 kBq である。総セシウム量では、飛灰に回収された放射性セシウムは全灰に回収された放射性セシウムの 92.39% である。したがって、放射性物質の収支の算出には、飛灰の放射エネルギーが大きく影響し、主灰の放射エネルギーの寄与は小さい。また、4.2 で検討したように、飛灰中の放射エネルギー濃度測定は、精度が高くサンプリング誤差が小さい。したがって、飛灰の放射エネルギー濃度や放射エネルギーを基準にして、分析集団を設定すること、およびサンプリング誤差が大きいデータを除外することが適切である。

飛灰中 Cs137 濃度を経時的に示すと図 2 となり、冬期と夏期で濃度に大きな差があることが読みとれる。一方、混合焼却された汚染牧草中 Cs137 の放射エネルギーを経時的に示すと図 3 となる。2013 年 2 月下旬前後に一日に焼却される放射エネルギーが低い値で経過するが、他の期間では一定の傾向はない。Cs134 についても同様である。夏期に飛灰中放射エネルギー濃度が上昇するのは、一般家庭から出る植栽の剪定物等が一般廃棄物として焼却されることが主な要因と推定される。

以上より、394 日分のデータを飛灰中放射エネルギー濃度により、4 つの期間に分けて検討することとした。第 1 期は

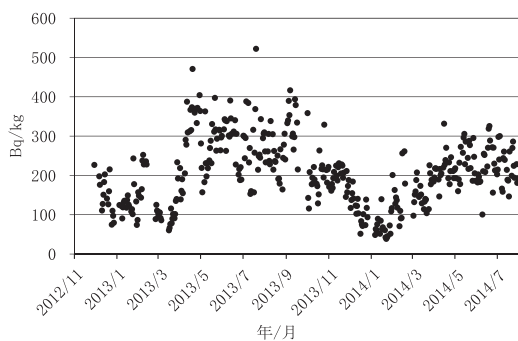


図 2 飛灰中 Cs137 濃度の経時変化

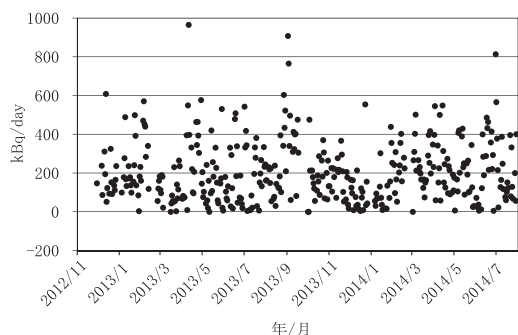


図 3 一日に焼却された牧草中 Cs137 放射エネルギー

2012 年 11 月 29 日～2013 年 4 月 8 日の 72 日分、第 2 期は 2013 年 4 月 9 日～10 月 31 日の 141 日分、第 3 期は 2013 年 11 月 1 日～2014 年 4 月 14 日の 104 日分、第 4 期は 2014 年 4 月 15 日～7 月 30 日の 77 日分である。

次に、飛灰中放射エネルギーを基準にして、サンプリング誤差の大きい汚染牧草データを分析対象から除外することを検討する。汚染牧草を焼却した日に、汚染牧草中放射エネルギーの飛灰中放射エネルギーに対する比を調べると、1～401% の間に分布している。正の値をとる計測値の真の値が 0 に近いときに、計測値に大きな偶然誤差が存在する場合、計測値を大きくする方向に働く偶然誤差には上限がないが、計測値を小さくする方向に働く偶然誤差には 0 未満の負の値になることができないという制限が生ずる。したがって、サンプリング誤差の大きいデータを含んだ汚染牧草中放射エネルギー濃度の報告値をそのまま用いて計算すると、誤差分布の影響を受けて回収率は過小評価されることになる。4.2 での検討から、牧草中放射エネルギー濃度の計測値には、30% の外れ値 (outlier) が存在すると考えられる。そこで、牧草のサンプリング誤差を大きく受けていると考えられるデータを除外するために、各期間中の総データから、当日の牧草中放射エネルギーの飛灰中放射エネルギーに対する比が高いものを 15% の個数分除き、また、比の値が小さいデータも 15% の個数分除くことにする。このデータの選別を行った後の、汚染牧草焼却日のデータ数と比の値を表 3 に示す。放射エネルギー回収率の算出には、これら 269 日分のデータと、汚染牧草を焼却していない 5 日分のデータ (第 1 期 1 日、第 2 期 3 日、第 3 期 1 日) を用いて行うこととする。

#### 4.4 一般廃棄物に由来する放射性セシウム濃度から求めた放射性セシウム回収率

一般廃棄物に存在する放射性セシウムに由来する灰中放射エネルギー濃度の期待値が推定できれば、汚染牧草を加えて焼却したことによる放射エネルギー濃度上昇が決定でき、汚染牧草に由来する放射性セシウムの灰中回収率を算出することができる。一定時間に放射性物質から出るガンマ線の

表 3 汚染牧草中放射エネルギーの飛灰中放射エネルギーに対する比から選別したデータ

	牧草 焼却日数	Cs137 の比 (%)	Cs134 の比 (%)	牧草 非焼却日数
第 1 期	49	24～107	24～110	1
第 2 期	96	11～71	11～80	3
第 3 期	71	24～120	27～122	1
第 4 期	53	14～73	16～75	0

全 394 日分のデータを検討し、各期間において、牧草中放射エネルギー濃度のサンプリング誤差が大きいと判断される日のデータを 30% の個数分除いたもの



数はポアソン分布に従うため、個々の放射能濃度計測値は比較的大きな偶然誤差を含んでおり、多くの計測値を用いて回収率を推定する必要がある。

放射性セシウム、Cs137 および Cs134 の 1 日分の焼却について、以下のように変数を定義する。重量単位は kg、濃度単位は Bq/kg である。

- A : 汚染牧草焼却重量 (1 から 3 個のロットの総重量)
- a : 汚染牧草中放射性セシウム濃度 (ロット重量による加重平均値)
- B : 一般廃棄物焼却重量
- C : 飛灰重量
- c : 飛灰中放射性セシウム濃度
- D : 主灰重量
- d : 主灰中放射性セシウム濃度
- E : 一般廃棄物に由来する飛灰重量
- e : 一般廃棄物に由来する放射性セシウムの E における濃度
- F : 一般廃棄物に由来する主灰重量
- f : 一般廃棄物に由来する放射性セシウムの F における濃度
- R : 灰中放射性セシウム回収率

灰重量 E と F は、A/B の値が小さいことから C と D で近似できるが、より正確な近似値で表すために、焼却物重量の比による次の近似を用いる。

$$E = C \times B \div (A + B)$$

$$F = D \times B \div (A + B)$$

対象期間中の e の期待値 Mean(e)、および、f の期待値 Mean(f) を用いて、一般廃棄物に由来する対象期間中の放射性セシウム総量 (Bq) は次のように表される。

$$\begin{aligned} & \text{一般廃棄物に由来する飛灰中放射能総量} \\ & = \text{Mean}(e) \times \Sigma E \\ & \text{一般廃棄物に由来する主灰中放射能総量} \\ & = \text{Mean}(f) \times \Sigma F \end{aligned}$$

したがって

$$R = [\Sigma(Cc + Dd) - (\text{Mean}(e) \times \Sigma E + \text{Mean}(f) \times \Sigma F)] \div (\Sigma Aa) \quad (1)$$

汚染牧草を焼却していない 5 日分の灰中放射能濃度データ (第 1 期 1 日分の値、第 2 期 3 日分の平均値、第 3 期 1 日分の値) を Mean(e) および Mean(f) に当てはめ、第 1, 2, 3 期の回収率を式(1)より計算すると、表 4 の数値が得られる。Cs137 と Cs134 との平均値を求め、灰への放射性セシウム回収率は 64.9% となる (以下、方法 1 による回収率と呼ぶ)。

5 日分のデータで一般廃棄物に由来する放射性セシウムの濃度期待値を推定することは、一般廃棄物中の放射

表 4 牧草非焼却日 5 日分の一般廃棄物放射能濃度から求めた放射性セシウム回収率

	参照 データ数	Cs137	Cs134	平均
第 1 期	1	108.7%	101.3%	
第 2 期	3	61.9%	44.4%	
第 3 期	1	68.9%	51.5%	
加重平均値		72.7%	57.2%	64.9%

加重平均は参照データ数の個数により計算した

性セシウム濃度の変動も考慮すると、統計学的に十分であるとはいいいにくい。次に、より多くのデータを用いて、期待値 Mean(e) および Mean(f) の数値を算出することを試みる。変数 i と j を次のように定義する。

i : 牧草放射能から算出した飛灰中一般廃棄物由来放射性セシウム濃度

j : 牧草放射能から算出した主灰中一般廃棄物由来放射性セシウム濃度

飛灰と主灰への牧草由来放射性セシウム回収率は、各灰に存在する放射能に比例すると仮定するのが妥当であり、次式が成り立つ。

$$Ei = Cc - AaR \times [Cc \div (Cc + Dd)]$$

$$Fj = Dd - AaR \times [Dd \div (Cc + Dd)]$$

飛灰中放射能は主灰中放射能の 10 倍以上あり、かつ測定精度が高い。そこで、汚染牧草中放射能の飛灰中放射能に対する比が小さい日のデータを選別し、牧草中放射能の回収率 R を 100% とし、上式により i および j を求めると、これらは、やや過小に見積もった一般廃棄物由来の飛灰および主灰中放射能濃度、e および f に相当する。統計的に十分な個数の濃度 i および j の平均値を、それぞれ Mean(e) および Mean(f) として採用することで推定値の精度が高くなる。当日の牧草中放射能の飛灰中放射能に対する比が小さいデータから、該当期間中の全データの 1/3 の個数選別して求めた濃度 i および j の平均値を、それぞれ Mean(e) および Mean(f) として採用し、式(1)により計算した回収率値を表 5 に示す。また、同様にして該当期間中の全データの 1/2 の個数選別した場合の回収率値を表 6 に示す。1/3 の個数選別した場合には、Cs137 と Cs134 の平均回収率は 55.7%、1/2 の個数選別した場合には、平均回収率は 66.1% である (以下、方法 2 および方法 3 による回収率と呼ぶ)。一般廃棄物由来放射性セシウムの飛灰および主灰中放射能濃度がやや過小に見積もられているために、回収率値はやや過大に見積もられている数値であるが、それぞれの期間における個々の回収率値が方法 1 より近似し、また、Cs137 と Cs134 の回収率も

表5 放射能総量の比(牧草/飛灰)が小さいデータをデータ数の1/3選択し算出した一般廃棄物中濃度期待値から求めた放射性セシウム回収率

	参照 データ数	Cs137	Cs134	平均
第1期	17	61.7%	58.3%	
第2期	33	40.4%	51.9%	
第3期	24	59.2%	60.9%	
第4期	18	60.8%	66.4%	
加重平均値		53.2%	58.3%	55.7%

加重平均は参照データ数の個数により計算した

表6 放射能総量の比(牧草/飛灰)が小さいデータをデータ数の1/2選択し算出した一般廃棄物中濃度期待値から求めた放射性セシウム回収率

	参照 データ数	Cs137	Cs134	平均
第1期	25	68.9%	66.4%	
第2期	50	57.9%	59.9%	
第3期	36	68.9%	71.0%	
第4期	27	70.8%	75.3%	
加重平均値		65.3%	67.0%	66.1%

加重平均は参照データ数の個数により計算した

近似し、偶然誤差の影響が小さくなっている。

#### 4.5 回帰分析による放射性セシウム回収率

飛灰に回収される汚染牧草中放射能の回収率を  $R_{fy}$  とすると、

$$AaR_{fy} = Cc - Ee \quad \text{より、} \quad Cc/E = e + R_{fy} \times (Aa/E)$$

という式が得られる。これは、一般廃棄物由来の飛灰に、飛灰中の放射能がすべて移行したと考えて一般廃棄物の飛灰重量に換算した場合、汚染牧草を焼却することにより放射能濃度がどれだけ上昇するのかを示した式である。したがって、 $Aa/E$  を説明変数、 $Cc/E$  を目的変数にして、回帰分析を行えば、回帰直線の傾きが回収率  $R_{fy}$  を、 $y$  切片の値が一般廃棄物焼却時の飛灰中放射能濃度  $e$  を与える。用いた統計モデルは以下である。

$$X: Aa/E$$

$$Y: Cc/E$$

$$Y_i = e + R_{fy} X_i + \delta_i$$

$$e \sim N(\alpha, \phi^2)$$

$$\delta_i \sim N(0, \sigma^2)$$

$$Y_i \sim N(\mu_i, \sigma^2)$$

$$\mu_i = e + R_{fy} X_i$$

主灰についても同様なモデル式を作れる。飛灰と主灰について、Conventionalな回帰分析を行った結果を表7および表8に示す。飛灰については、8つの回帰分析す

表7 線形1次回帰分析による飛灰への回収率(傾き)

	データ数	回収率	95%信頼区間	P値
第1期	Cs137 50	67.3%	47.2~87.5%	2.1E-08
	Cs134 50	67.1%	48.1~86.1%	5.4E-09
第2期	Cs137 99	47.3%	23.7~71.0%	1.4E-04
	Cs134 99	49.9%	28.3~71.6%	1.4E-05
第3期	Cs137 72	66.1%	48.5~83.7%	1.7E-10
	Cs134 72	64.5%	48.3~80.6%	2.0E-11
第4期	Cs137 53	46.2%	18.6~73.8%	1.5E-03
	Cs134 53	48.3%	20.9~75.6%	8.5E-04

表8 線形1次回帰分析による主灰への回収率(傾き)

	データ数	回収率	95%信頼区間	P値
第1期	Cs137 50	-0.4%	-1.8~1.1%	0.61
	Cs134 50	-0.9%	-2.6~0.9%	0.32
第2期	Cs137 99	0.6%	-0.6~1.8%	0.30
	Cs134 99	1.1%	-0.2~2.4%	0.11
第3期	Cs137 72	0.6%	-0.5~1.7%	0.25
	Cs134 72	0.5%	-0.8~1.7%	0.46
第4期	Cs137 53	2.0%	-0.3~4.2%	0.08
	Cs134 53	1.2%	-1.9~4.2%	0.44

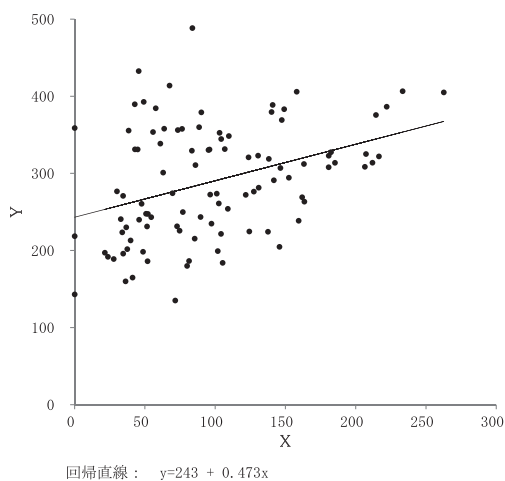


図4 第2期Cs137のXとYの散布図と回帰直線

べてで、P値は0.002未満であり回帰直線は統計学的に十分な有意性を示している。また、飛灰への回収率(回帰直線の傾き)の95%信頼区間は18.6~87.5%と広い範囲にあるものの、データ全体として回収率が不十分であることが読み取れる。これに対して、主灰についての8つの回帰分析ではP値は0.08以上あり、回帰直線の有意性はない。したがって、回帰分析による回収率の推定は飛灰についてのみ可能である。第2期と第3期のCs137について、XとYの散布図と回帰直線を図4と図5に示す。回帰直線の $y$ 切片値が、一般廃棄物だけ

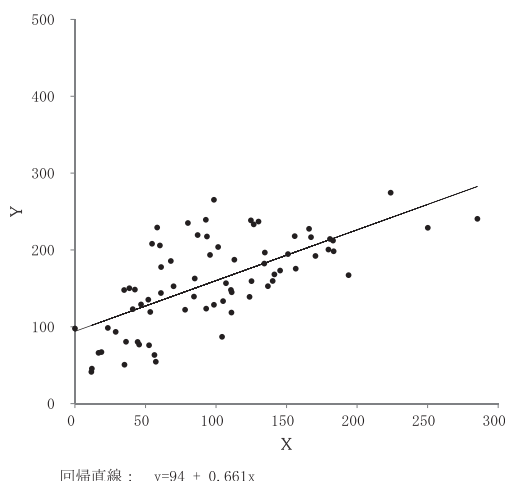


図5 第3期 Cs137の X と Y の散布図と回帰直線

焼却した飛灰中セシウム濃度と近似しており、方法1の回収率との整合性が示されている。

次にベイズ統計による回帰分析を行い、飛灰の8つの回帰分析を統合した回収率の信用区間を求める。ベイズ統計回帰分析のモデルは上記と同様である。4つの期間のCs137とCs134における8個の $e$ は、互いに独立した正規分布に従うものとする。まず、第1期のCs137について、無情報事前分布の $e$ と $R_{fy}$ を用いてモンテカルロマルコフチェーン法(MCMC法)による回帰分析を行い、 $R_{fy}$ の事後分布を得る。この $R_{fy}$ の事後分布を第2期のCs137の回帰分析の $R_{fy}$ の事前分布に用い、 $e$ には無情報事前分布を用いて、再度MCMC法による回帰分析を行う。次に新しく得られた $R_{fy}$ の事後分布を順次第3期、第4期の $R_{fy}$ 事前分布として渡していき、その後Cs134の4つの時期で繰り返しMCMC法を行う。このように一つの回帰分析で得られた $R_{fy}$ の事後分布を、順次、次の回帰分析の事前分布として受け渡していくと、8つの回帰分析を統合した $R_{fy}$ の事後分布が得られる。WinBUGSによる回帰分析を8回行った結果を表9に示す。飛灰への回収率は59.8% (95%信用区間52.6~67.0%)であり、その確率分布を図6に示す。4.3より飛灰中放射性セシウム量は全灰中放射性セシウム量の92.39%である。灰の放射性セシウム量に比例して主灰にも飛灰と同じ割合の放射性セシウムが回収されると仮定し、飛灰の回収率を92.39%で割り、放射性セシウムの全灰への回収率は64.7% (95%信用区間56.9~72.6%)と算出される(以下、方法4による回収率と呼ぶ)。

#### 4.6 放射性セシウムの排ガス中排出率の推定

遠野市焼却炉では、焼却や清掃に伴う排水はないので、

表9 ベイズ統計回帰分析によりCs137とCs134の4期間を統合した飛灰への回収率と全灰への回収率

	回収率	95%信用区間
飛灰回収率	59.8%	52.6~67.0%
全灰回収率	64.7%	56.9~72.6%

全灰回収率は飛灰回収率を0.9239で除した値である

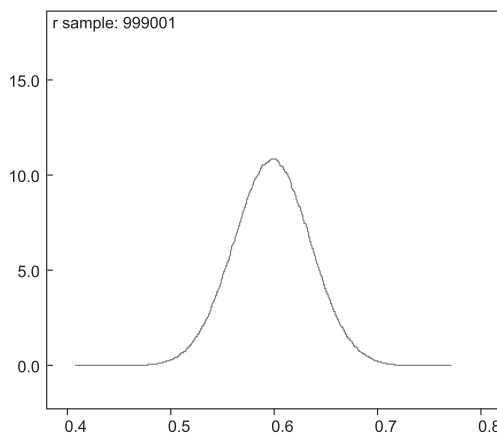


図6 ベイズ統計回帰分析による飛灰への放射性セシウム回収率の確率分布

設備に吸着ないし捕捉された放射エネルギーを評価し、灰回収率から放射性セシウム排ガス中排出率を推定する。

2013年9月末に焼却炉清掃作業が行われた。2013年10月1日~2014年2月18日の間、汚染牧草と一般廃棄物の焼却があり、2014年1月1日時点で換算し、この期間中に灰に回収された放射性セシウム総量(Cs137とCs134の合計)は45,194 kBqである。この焼却期間後、2014年2月20日~28日の間に設備清掃が行われ、清掃作業によって取り出された焼却設備に吸着した灰等(以下クリンカと呼ぶ)の放射性セシウム総量はappendix IIIより1,758 kBqである。構造物の表面にクリンカが吸着し表面がクリンカで完全に被われると、高熱乾燥状態にあるレンガや配管等の設備に捕捉される物質量は増加しない。遠野市焼却炉担当者によれば、清掃時、設備に吸着しているクリンカの厚さは、焼却炉下方で10~20 cm、焼却炉上方とガス冷却塔と減温塔で数10 cm、煙道で数センチメートルであり、清掃は丁寧に行われている。したがって、放射性セシウムの構造物への補足は無視でき、クリンカの回収率が100%であると仮定することには妥当性があると考えられる。この仮定の基で、4.5の回帰分析で得られた結果を用い、灰とクリンカ中に回収された焼却物中放射性セシウムの割合を求めると、 $64.7 \times [(1,758 \div 45,194) + 1]$ より、67.2%であり、排ガスを通じて大気へ排出される放射性セシウムの割合は

32.8%と推算される。また、個々の放射性セシウム濃度測定値に濃度値の15%にあたる標準偏差を仮定すると、比1.758/45.194の標準偏差は0.0023となり、灰とクリンカ中に回収された放射性セシウムの割合の95%信用区間は59.1~75.4%と算出され、大気に排出される放射性セシウムの割合の95%信用区間は24.6~40.9%と算出される。

以上の結果をまとめると、焼却された放射性セシウムは、飛灰に59.8%、主灰に4.9%、クリンカに2.5%、バグフィルター通過後の排ガスに32.8%の割合で存在すると算定される。遠野市焼却炉にはバイパス経路はないので、バグフィルターの排ガス中放射性セシウム除去率は64.6%となる。

## 5. 考 察

今回の研究では、汚染牧草放射能濃度の測定値に、放射能濃度の不均一性に由来すると考えられる大きなサンプリング誤差が存在することが明らかになった。このサンプリング誤差を補正するために、測定精度が高くサンプリング誤差が小さい飛灰放射能測定値と比較することで、サンプリング誤差が大きいと考えられる汚染牧草放射能濃度を示す測定日のデータを30%除いて回収率値を求めた。この30%という数値は簡易測定と精密測定の検討から導き出したものである。しかし、394日分のデータから30%の日数のデータを除いて収支の計算を行ったことで、どれだけの系統誤差を回収率の推定値から除くことができたのか疑問が生ずる。そこで、①394日分のデータをすべて用いた場合、②牧草放射能の飛灰放射能に対する比の分布を調べて分布の外側30%（両側15%ずつ）のデータを除いた場合、③牧草放射能の飛灰放射能に対する比の分布を調べて分布の外側60%（両側30%ずつ）のデータを除いた場合の3とおりについて回収率を考察する。汚染牧草非焼却日の5日分の飛灰中および主灰中放射能濃度データを、 $Mean(e)$ および $Mean(f)$ に当てはめ、第1, 2, 3期の回収率を式1より計算し、非焼却日の日数で加重平均した回収率値を表10に示す（外側30%除の数値は表4の再掲）。外側30%を除くことで、回収率は全データを用いた場合の59.5%から64.9%に上昇している。しかし、データを除く割合を増やし、外側60%のデータを除いて算出しても回収率値は上昇しない。以上のことから、外側30%のデータを除いて算出した回収率値は、牧草放射能濃度のサンプリング誤差による影響を十分除くことができている、妥当性が高い数値と考えてよいだろう。

データ選択後に274日分のデータを用いて、汚染牧草

表10 汚染牧草放射能の飛灰放射能に対する比の分布よりデータ選択をして算出した放射性セシウム回収率

	全データ	分布外側30%除	分布外側60%除
Cs137	66.3%	72.7%	68.9%
Cs134	52.6%	57.2%	56.0%
平均	59.5%	64.9%	62.4%

第1期から第3期のデータにより汚染牧草を焼却しない5日分の灰中放射能濃度値から計算した加重平均値

焼却に伴う放射性セシウムの灰への回収率を4とおりの方法で検討すると、方法2による回収率は、他の3方法の結果よりやや低値であるものの、方法1, 3, 4の結果は近似しており、計算結果の再現性が得られている。したがって、遠野市焼却炉における放射性セシウムの灰中回収率の最尤推定値は100%を大きく下回り、70%未満であると考えられる。また、274日分のデータを用いてベイズ統計回帰分析により得られた放射性セシウム灰中回収率の95%信用区間は56.9~72.6%と狭い区間であり、灰中回収率は100%から大きく乖離していることが統計学的に明確に示されている。設備に吸着ないし捕捉された放射能を評価し、灰中回収率値からバグフィルターの排ガス中放射性セシウム除去率の最尤推定値を求めると64.6%であり、物質収支の検討によるバグフィルターの除去能力は不十分なものである。

笹井、岩見らは宮古市の一般廃棄物焼却炉での放射性セシウム灰中回収率の最尤推定値を約80%とし、排ガス中排出率を約20%と見なしていたが、これらの研究ではクリンカ等による補正が行われていない<sup>12)</sup>。しかし、宮古市担当者によれば宮古市焼却炉では清掃により除去できるクリンカ等はないとのことで、約20%の排出率として大きな誤りはないだろう。一般的に、バグフィルターの集塵性能は不織布では高く、織布では低い<sup>5)</sup>。宮古市の焼却炉ではテファイヤーという不織布のバグフィルターを使っているのに対して、遠野市ではガラス繊維二重織りのバグフィルターを使用しており、バグフィルターの性能の違いが、2つの市での放射性セシウムの排出率値の差を説明できるのかもしれない。

焼却炉等の固定発生源からPM2.5等のエアロゾルが排出される機構として、神谷らは次の3機構をあげている<sup>6)</sup>。①バグフィルターの捕集効率が最低になる粒径数10nmから数100nmの粒子が主な構成員である粒子集団の排出。②バグフィルターを通過する際の温度では気体状になっている凝縮性粒子の存在。③バイパス操作等によるバグフィルター等を通さない排出経路。さらに、バグフィルター払い落とし時の捕集効率低下も4番目のエアロゾル排出機構に加えることができる<sup>7)</sup>。エ



アロゾル過理論は、通常、粒子がフィルターの繊維表面に到達すると必ず付着することを前提としている<sup>8)</sup>。しかし、Mullinsらは、液体粒子と固体粒子とを用いてフィルターの捕集効率を調べ、粒径 $1.5\mu\text{m}$ 前後の固体粒子は液体粒子に比べ捕集効率が低下し、この粒径の固体粒子の付着効率が1より小さいことを示している<sup>9)</sup>。慣性による捕集機構が大きく働く粒径 $1\sim 3\mu\text{m}$ の粒子においては、フィルターの繊維表面で粒子のはね返りが生じ、付着効率が低下し粒子排出が起きている可能性があり、この機構はバグフィルターの5番目のエアロゾル排出機構として今後の研究が必要である。

遠野市焼却炉の排ガス中のCs137の濃度を、飛灰濃度が高い第2期について試算する。汚染牧草が焼却されなかった3日分を除いた138日分のデータを使って計算すると、この期間の灰に回収されたCs137総量は91,229 kBqである。4.6での排ガス中排出率より、大気中に漏出したCs137総量は46,249 kBqとなる。また、焼却炉からの乾き排気量を $14\text{ km}^3\text{ N/hr}$ とすると、同期間の総排気量は $33,500\text{ km}^3\text{ N}$ である。以上より、大気に排出された排ガス中のCs137濃度平均値は $1.38\text{ Bq/m}^3\text{ N}$ になる。この数値は2014年1月1日時点に換算した数値であるが、第2期開始時点の2013年4月9日の濃度に換算すると $1.40\text{ Bq/m}^3\text{ N}$ になる。また、バグフィルター前の排ガス濃度は $3.95\text{ Bq/m}^3\text{ N}$ になる。環境省の放射能濃度等測定方法ガイドラインによる排ガス中Cs137の濃度測定下限値は $2\text{ Bq/m}^3\text{ N}$ である<sup>10)</sup>。焼却物中の放射性セシウムの1/3という多量の放射能が排出されているにもかかわらず、遠野市焼却炉でも放射性セシウムを検出したことはないと報告されている。

環境省ガイドラインが規定した排ガス中放射性セシウムのドレン部測定法の定量可能性が示されないまま、ドレン部測定法が施行されている問題点を岩見らは指摘した<sup>11)</sup>。大迫らは、ドレン部や活性炭部で放射性セシウムが検出された一般廃棄物焼却炉の例はないことが、排ガス中放射性セシウムがバグフィルターを通過する際にガス態ではほぼ存在しないことを示すものであると解釈し、バグフィルターが排ガス中に存在する全形態の放射性セシウムの99.9%を除去するという仮説を主張している<sup>12)</sup>。しかし、ある検査法で検出されないことと、物理的に存在しないことは明確に区別されなければならない。現行の排ガス中放射能濃度のドレン部測定法は、未だにその定量可能性と測定下限値のデータが示されていない測定法であり、科学的根拠がある測定法とはいえない。したがって、ろ紙部を通過した形態（エアロゾル状ないし気体状）の放射性セシウムをドレン部で捕捉できてい

ると仮定する環境省ガイドラインの測定法は科学的批判に耐えるものではないと考えるべきである。今回のわれわれの研究結果は、笹井、岩見らの宮古市焼却炉での報告と同様に<sup>1-3)</sup>、99.9%除去仮説を支持できないものである。

一般廃棄物焼却炉の排ガスに含まれる有害物質を濃度規制で管理することは比較的簡便であり、世界中で広く行われてきた。焼却炉周囲の環境汚染を生じさせない十分な管理が行われるためには、上記で考察した様に、濃度規制を実施する上で、その測定法の根拠に科学的説得性があり、規制濃度下限値が十分低いものでなければならない。しかし、日本で現行の濃度規制を一般廃棄物焼却炉で実施する場合の最大の問題点は、排ガス等に存在する有害物質の測定が1ヶ月あたり数時間未満のサンプリングに基づいて行われていることであろう。加えて、サンプリングは安定燃焼時に行われるのが普通であり、燃焼条件が異なる焼却開始時や終了時のサンプリングは通常行われていない点も問題である。すなわち、濃度規制が一般廃棄物焼却炉で厳格に行われるためには24時間の連続モニタリングが行われる必要がある。今回の研究方法である焼却炉での物質収支的検討は、環境中への有害物質漏出に関して、24時間連続モニタリングと同等の情報を示しうる方法とみなすことができる。また、濃度規制では大気で希釈されているために排ガス中で測定下限値以下となる有害物質量であっても、物質収支的検討ではその存在を示すことができる。さらに、バイパス操作や設備の破損により漏出する有害物質は、バグフィルター通過後の排ガスのみを測定する現行の濃度規制では観察不可能である。したがって、焼却前後で物質量に変化がないと仮定できる有害物質では、物質収支的方法こそ、より現実に近い有害物質排出のモデルを一般廃棄物焼却炉に提供するものであり、濃度規制的方法よりも重視されるべきものであるといえる。これらのことは総量規制の方法が、環境汚染を防止するという視点からみた場合、理想的な有害物質の排出規制であることと密接な関係にある。物質収支的検討を行って、管理された廃棄物に十分な有害物質の回収がない場合には、管理されない形態の有害物質が存在することになり、総量規制の上からは不適切な管理状態と判断されることになろう。

放射性セシウムのみならず、水銀、鉛、カドミウム等の重金属を含む対象物が焼却処理される際にも、物質収支的方法是意義のある研究であると思われる。すでに水銀の深刻な海洋汚染が世界中に広がっており、大型魚で観察される水銀濃度の上昇は著しく、妊婦は大型魚の摂取に注意が必要なレベルにある<sup>13)</sup>。このような環境汚染状況においては、さらなる水銀の環境への排出は総量規

制的に行われることが望ましく、物質収支的研究調査も必要と考えられる。

## 6. 結 論

岩手県遠野市の一般廃棄物焼却炉で行われた、放射性セシウム汚染牧草と一般廃棄物との混焼に際して、遠野市が測定した394日分の放射性セシウム濃度値から、焼却炉における放射性セシウムの物質収支を検討した。灰中放射性セシウムの濃度が夏期には高く、冬期には低い傾向があり、4つの期間に分けて灰中回収率を算出した。飛灰中放射性セシウム濃度値は、測定精度が高く、濃度の不均一性に由来するサンプリング誤差が小さかった。この飛灰の濃度測定値を参考基準値とすることにより、牧草中放射能濃度測定値に存在するサンプリング誤差が大きいと判断されるデータを除き、274日分のデータを用いて妥当性の高い灰中回収率推定値を得ることを試みた。ベイズ統計回帰分析の結果、放射性セシウムの全灰への回収率値の最尤推定値は64.7%であり、その95%信用区間は56.9~72.6%と算出された。一般廃棄物に由来する灰中放射性セシウム濃度により算出した回収率値も同様の数値を示した。設備に吸着または捕捉された放射能量を評価し、灰中回収率からバグフィルターの放射性セシウム除去率を算定すると64.6%であった。遠野市焼却炉における排ガス中Cs137濃度は1.4 Bq/m<sup>3</sup>N前後まで上昇したことがあると推定されるが、現状の測定方法では不検出とされる濃度である。今回の研究結果は、焼却炉のバグフィルターが排ガス中放射性セシウムの99.9%を除去するという仮説を支持できない。科学的根拠に基づいた排ガス中放射性セシウム測定法が行われていない現状では、物質収支の方法の結果を重視し、放射能汚染物を一般廃棄物焼却炉で処分することには慎重な姿勢が必要である。水銀、鉛、カドミウム等の重金属においても、今後、物質収支の方法も用いた研究調査で環境への負荷を検討することが望まれる。

### [謝 辞]

バグフィルターの基礎的事項について御指導いただきました江見準金沢大学名誉教授に深謝の意を表します。また、遠野市行政資料を情報開示請求し収集していただいた佐久間智子さんに深謝の意を表します。

### [Conflict of interest]

本研究に関連して、開示すべき利益相反はありません。

## 参 考 文 献

- 1) 笹井康則, 岩見億丈, 永田文夫: 宮古市「放射性物質に汚染された農林業系副産物の焼却処理」に伴う放射性セシウムの大気への漏出, 再処理/岩手の環境/放射性廃棄物 (2013)  
<http://sanriku.my.coocan.jp/Miyakoshoukyaku.pdf> (閲覧日 2015年1月14日)
- 2) 岩見億丈, 笹井康則, 永田文夫: ゴミ焼却時における放射性セシウムの排ガスへの漏れ, 精密測定法およびベイズ統計による回収率の評価, 再処理/岩手の環境/放射性廃棄物 (2014)  
<http://sanriku.my.coocan.jp/140105Miyakoshoukyaku.pdf> (閲覧日 2015年1月14日)
- 3) 岩見億丈, 中屋諒大, 笹井康則: 焼却炉周囲における土壌中放射性セシウム濃度の異常上昇, 第26回廃棄物資源循環学会研究発表会講演集C6-5 (2015)  
[https://www.jstage.jst.go.jp/article/jsmcwm/26/0/26\\_381/\\_pdf](https://www.jstage.jst.go.jp/article/jsmcwm/26/0/26_381/_pdf) (閲覧日 2016年3月15日)
- 4) Medical Research Council: WinBUGS PACKAGE (1996-2007)  
<http://www.mrc-bsu.cam.ac.uk/software/bugs/the-bugs-project-winbugs/> (accessed 2015-January-3)
- 5) 江見 準: “大気拡散防止技術 (捕集装置)”, ナノ粒子安全性ハンドブック, 日本粉体工業技術協会編, 日刊工業新聞社, pp.194-204 (2012)
- 6) 神谷秀博, 並木則和, 塚田まゆみ, W. Lenggoro, 和田匡司, 野田直希, 牧野尚夫, 峰島知芳, W. W. Szmanski: 固定発生源におけるエアロゾルの生成と排出機構, エアロゾル研究, 第29巻, 特別号 (No. S1), pp.27-37 (2014)
- 7) B. H. Park, S. B. Kim, Y. M. Jo and M. H. Lee: Filtration Characteristics of Fine Particulate Matters in a PTFE/Glass Composite Bag Filter, Aerosol and Air Quality Research, Vol. 12, pp.1030-1036 (2012)
- 8) 江見 準: 気中微粒子汚濁の基礎, エアロゾル研究, 第4巻, 第4号, pp.4-13 (1989)
- 9) B. J. Mullins, I. E. Agranovski and R. D. Braddock: Particle Bounce during Filtration of Particles on Wet and Dry Filters, Aerosol Science and Technology, Vol. 37, pp.587-600 (2003)
- 10) 環境省: 放射能濃度等測定方法ガイドライン第2版 (平成25年3月) (2013)
- 11) 岩見億丈, 齊藤正俊, 小堀内陽, 笹井康則: 放射性物質を処理する焼却炉周囲の空間線量率に関する研究, 第25回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集, pp.375-376 (2014)  
[https://www.jstage.jst.go.jp/article/jsmcwm/25/0/25\\_375/\\_pdf](https://www.jstage.jst.go.jp/article/jsmcwm/25/0/25_375/_pdf) (閲覧日 2015年1月14日)
- 12) 大迫政浩, 倉持秀敏, 肴倉宏史: 放射性セシウムを含む廃棄物の焼却処理, 都市清掃, 第65巻, 第305号, pp.23-27 (2013)
- 13) 小野塚春吉: 日本の水銀対策と魚介類中メチル水銀規制の重要性, 月刊保団連, 第1,166号, pp.34-39 (2014)

## Balance Analysis Estimation of the Recovery of Radioactive Cesium from Ash

Okujou Iwami\* and Yasunori Sasai\*\*

\* Iwami Neurological Clinic

\*\* Minatoya Pharmacy

† Correspondence should be addressed to Okujou Iwami :  
Iwami Neurological Clinic  
(1-5-2 Ohdohri, Miyako, Iwate 027-0083 Japan)

### Abstract

At the Tono municipal waste incinerator, they burned grass that had been contaminated by radionuclides from the Fukushima Daiichi nuclear power plants with ordinary wastes. We analyzed the income and outcome balance of radioactive cesium using data of the incinerator. We obtained data of 394 days between November 2012 and July 2014 from Tono city. Selecting appropriate data of 274 days, Bayesian regression analysis revealed that the recovered proportion of radioactive cesium from ash was 64.7 % (95 % credible interval : 56.9-72.6). Allowing for the radioactive cesium that was lost by absorption or adhesion to the equipment, one can conclude that the bag filter collected 64.6 % of radioactive cesium from the flue gas. The  $^{137}\text{Cs}$  concentration in the stack gas was estimated at up to about  $1.4 \text{ Bq/m}^3 \text{ N}$ , which cannot be detected using current administrative methods. Scientific requirements for radioactive waste incineration should include a balance investigation of radionuclides and convincing analytical methods of radionuclide concentrations in the waste gas.

**Keywords** : incinerator, balance estimation, bag filter, radioactive cesium, recovered proportion