

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

笹井康則^a、岩見億丈^a、永田文夫^b

^a 岩手県宮古市 ^b 岩手県盛岡市

Radioactive Cesium leakage into the atmosphere after Miyako city burned out the grass contaminated by the fallout from Fukushima Daiichi.

Yasunori SASAI^a, Okujou IWAMI, Ph.D.^a and Fumio NAGATA^b

^a Miyako Japan, ^b Morioka Japan

Abstract Miyako city started burning out the agricultural byproducts contaminated by the fallout from the Fukushima Daiichi nuclear power plant at the trash burning site in July 2013. The analyzed data were obtained from Miyako city hall. It is estimated that 19% of the radioactive cesium in the grass was not recovered within the ashes from July to October 2013, which is supposed to have leaked into the atmosphere through the bag filter. We have to review the method to measure the radioactivity of very minute particles in the exhaust gas.

This article is published with open access at “Reprocessing of nuclear fuel, Iwate environment & Radioactive waste” <http://sanriku.my.coocan.jp> 12 December 2013

要旨

宮古市で行っている「放射性物質に汚染された農林業系副産物の焼却処理」に伴う放射性物質の収支を、公開された資料と情報開示請求による資料を用いて評価した。2013年7月から10月の間に、焼却処理された農林業系副産物中放射性セシウムの19%が焼却灰に回収されていない。この19%の放射性セシウムは、バグフィルターを通り抜け、排ガスとともに大気中に放出されたと推定され、排ガス中の放射性物質濃度を正確に測定する必要がある。

はじめに

2013年7月より、宮古市は放射能に汚染された牧草等を一般ゴミに混入して、一般焼却施設で焼却処理している。同市のゴミ焼却施設から放出される排ガスの放射能測定では、排

気中のセシウム 137 検出限界が、ろ紙部、ドレン部ともに 2Bq/m^3 である。しかし、セシウム 137 が測定限界以下の濃度 1Bq/m^3 、乾き排ガス流量 $20000\text{m}^3/\text{hr}$ で焼却炉 1 機から 24 時間放出されると、総量は 48 万ベクレルになる。これは 2013 年 7 月から 10 月の間に、同市で一日に焼却された農林業系副産物中の放射性セシウム 137 総量の平均値 140 万ベクレルの 34% に相当するが、現状の測定法では検出されない。したがって、検出限界以下であるからといって大気への放出がほとんどないとは言えないのである。

目的

これまで宮古市で得られた焼却に関するデータから、放射性物質の収支を解析し、ゴミ焼却施設から排気ガス中に放出された放射性物質の量を推定する。

方法

宮古市が住民に公開してきた資料、および、情報開示請求により得られた資料に基づき、焼却前後の放射性物質の収支を計算した。解析に用いたデータを表 1, 2 に示す。主灰と飛灰の総量の値が現在入手できていない月日のデータ (10 月 31 日) は収支の解析対象から除いた。回帰分析は Microsoft Excel 2010 の分析ツールを用いて行った。同市ゴミ焼却施設における一日の最大処理能力は、炉数 1 機の場合には 93ton、炉数 2 機の場合には 186ton である。焼却炉は流動床式で、焼却温度は 800°C から 850°C となっており、集塵器はバグフィルターを使用している。焼却は週明けの午前 10 時前後から行われ、週末の午前 8 時前後で終了する。放射能測定時の検体量は、しいたけが 400g、牧草が 300g、灰が 1L で、採取する場所を少なくとも 2 箇所以上に行われている。

表 1 宮古市清掃センターでの一般ゴミ焼却時、焼却灰中放射性セシウム濃度

| 年月日 | Cs137濃度 Bq/kg | | Cs134濃度 Bq/kg | |
|-------------|---------------|-----|---------------|-----|
| | 主灰 | 飛灰 | 主灰 | 飛灰 |
| 2011年7月21日 | 16 | 130 | 24 | 110 |
| 2011年9月9日 | ND | 78 | ND | 73 |
| 2011年11月10日 | 16 | 67 | 14 | 53 |
| 2012年1月12日 | ND | 87 | ND | 69 |
| 2012年5月30日 | ND | 110 | ND | 67 |
| 2012年9月27日 | ND | 74 | ND | 44 |
| 2013年1月25日 | ND | 54 | ND | 24 |
| 2013年2月1日 | ND | 57 | ND | 27 |
| 2013年2月4日 | ND | 47 | ND | 28 |
| 2013年5月30日 | ND | 58 | ND | 30 |
| 2013年7月31日 | ND | 65 | ND | 30 |

宮古清掃センター・焼却灰等検査結果[1]、および、宮古市 H25 年 2 月 27 日住民説明会資料[2] による。測定法はゲルマニウム半導体検出器を用いている。ND は測定限界以下 (2012 年 5 月以後は 10Bq/kg 以下) であることを示す。

表2 宮古市農林業系副産物焼却処理に伴う放射性セシウムの測定結果

| 2013年 月日 | 炉数 | 焼却量ton | | 灰重量ton | | Cs137濃度 Bq/kg | | | Cs134濃度 Bq/kg | | |
|-------------|----|--------|--------|--------|-------|---------------|----|-----|---------------|----|-----|
| | | 対象物 | 全量 | 主灰 | 飛灰 | 対象物 | 主灰 | 飛灰 | 対象物 | 主灰 | 飛灰 |
| 7月8日 | 1 | 0.00 | 49.78 | 0.40 | 4.58 | 0 | 16 | 40 | 0 | 13 | 26 |
| 7月9日 | 1 | 0.63 | 91.03 | 0.65 | 6.05 | 204 | 5 | 60 | 70 | 15 | 35 |
| 7月10日 | 1 | 1.32 | 81.07 | 0.67 | 6.58 | 179 | 24 | 71 | 76 | 20 | 39 |
| 7月11日 | 1 | 1.95 | 95.72 | 0.59 | 6.04 | 263 | 15 | 76 | 101 | 11 | 43 |
| 7月12日 | 1 | 1.36 | 89.63 | 0.75 | 6.65 | 245 | 22 | 94 | 113 | 20 | 52 |
| 7月16日 | 1 | 0.66 | 88.61 | 0.56 | 7.64 | 182 | 16 | 56 | 99 | 11 | 35 |
| 7月17日 | 1 | 0.51 | 93.09 | 0.55 | 5.95 | 181 | 11 | 63 | 104 | 12 | 40 |
| 7月30日 | 2 | 2.63 | 150.25 | 0.90 | 10.17 | 202 | 18 | 77 | 60 | 9 | 40 |
| 7/30精密 | 2 | 2.63 | 150.25 | 0.90 | 10.17 | 202 | ND | 65 | 82 | ND | 30 |
| 8月8日 | 2 | 3.31 | 154.73 | 1.38 | 11.24 | 565 | 39 | 92 | 285 | 35 | 44 |
| 8月9日 | 2 | 3.53 | 140.60 | 1.35 | 11.45 | 186 | 17 | 86 | 94 | 13 | 49 |
| 8/9精密 | 2 | 3.53 | 140.60 | 1.35 | 11.45 | 160 | ND | 72 | 80 | ND | 36 |
| 8月19日 | 2 | 3.49 | 148.96 | 1.78 | 15.43 | 441 | 16 | 76 | 225 | 12 | 48 |
| 8月20日 | 2 | 2.72 | 171.98 | 1.80 | 9.98 | 221 | 14 | 89 | 131 | 12 | 51 |
| 8月21日 | 2 | 3.39 | 170.87 | 2.42 | 12.44 | 345 | 13 | 137 | 194 | 9 | 78 |
| 8月22日 | 2 | 3.64 | 174.79 | 2.19 | 11.43 | 259 | 16 | 164 | 122 | 13 | 98 |
| 8月23日 | 2 | 4.10 | 153.40 | 1.89 | 12.97 | 330 | 24 | 171 | 194 | 11 | 95 |
| 8月26日 | 2 | 3.22 | 149.32 | 2.28 | 11.72 | 180 | 21 | 168 | 94 | 9 | 79 |
| 8月27日 | 2 | 4.29 | 187.80 | 1.84 | 14.22 | 704 | 20 | 183 | 359 | 11 | 95 |
| 8月28日 | 2 | 4.93 | 187.90 | 3.57 | 14.67 | 747 | 23 | 302 | 403 | 15 | 159 |
| 8月29日 | 2 | 1.44 | 171.79 | 3.11 | 13.87 | 749 | 18 | 198 | 376 | 12 | 102 |
| 8月30日 | 2 | 1.54 | 168.97 | 2.89 | 15.23 | 728 | 19 | 155 | 365 | 14 | 76 |
| 9月2日 | 2 | 3.18 | 145.69 | 2.20 | 13.77 | 427 | 19 | 151 | 196 | 12 | 79 |
| 9月3日 | 2 | 2.59 | 182.43 | 2.10 | 14.46 | 652 | 17 | 186 | 302 | 14 | 86 |
| 9月4日 | 2 | 4.13 | 175.50 | 16.81 | 16.65 | 694 | 22 | 143 | 338 | 17 | 71 |
| 9月5日 | 2 | 2.49 | 167.13 | 2.05 | 13.99 | 317 | 20 | 107 | 154 | 13 | 52 |
| 9月6日 | 2 | 3.60 | 168.00 | 15.30 | 12.20 | 377 | 22 | 149 | 185 | 16 | 71 |
| 9月9日 | 2 | 3.30 | 103.27 | 2.15 | 11.49 | 572 | 21 | 149 | 283 | 15 | 74 |
| 9月10日 | 2 | 4.64 | 172.80 | 2.67 | 12.79 | 684 | 21 | 170 | 344 | 15 | 86 |
| 9月11日 | 2 | 4.48 | 182.79 | 3.92 | 15.63 | 458 | 25 | 188 | 224 | 14 | 91 |
| 9月12日 | 2 | 4.07 | 189.95 | 5.41 | 15.88 | 161 | 24 | 165 | 80 | 14 | 80 |
| 9月13日 | 2 | 4.32 | 118.33 | 3.83 | 9.88 | 425 | 28 | 154 | 216 | 28 | 79 |
| 9/13精密 | 2 | 4.32 | 118.33 | 3.83 | 9.88 | 540 | ND | 160 | 250 | ND | 75 |
| 9月18日 | 1 | 3.14 | 61.28 | 3.24 | 7.26 | 494 | 26 | 197 | 262 | 21 | 100 |
| 9月19日 | 1 | 2.47 | 90.48 | 0.97 | 4.36 | 540 | 27 | 257 | 250 | 20 | 127 |
| 9月20日 | 1 | 2.22 | 78.28 | 0.81 | 4.84 | 626 | 30 | 246 | 350 | 19 | 119 |
| 9月24日 | 2 | 3.92 | 176.30 | 1.71 | 10.57 | 590 | 15 | 187 | 306 | 14 | 94 |
| 9月25日 | 2 | 4.00 | 170.88 | 1.77 | 10.72 | 335 | 20 | 229 | 173 | 13 | 108 |
| 9月26日 | 2 | 4.10 | 175.85 | 1.99 | 13.36 | 390 | 26 | 179 | 203 | 18 | 92 |
| 9月27日 | 2 | 4.14 | 171.09 | 1.62 | 12.46 | 1053 | 22 | 248 | 527 | 15 | 123 |
| 9月30日 | 2 | 3.18 | 140.60 | 1.19 | 11.70 | 352 | 28 | 208 | 195 | 15 | 96 |
| 10月2日 | 2 | 1.88 | 177.29 | 8.44 | 12.85 | 839 | 28 | 132 | 395 | 18 | 67 |
| 10/2精密 | 2 | 1.88 | 177.29 | 8.44 | 12.85 | 890 | 20 | 150 | 390 | ND | 66 |
| 10月3日 | 1 | 1.88 | 118.08 | 1.51 | 9.05 | 1245 | 23 | 133 | 644 | 16 | 68 |
| 10月4日 | 1 | 1.69 | 82.60 | 0.43 | 9.40 | 1245 | 25 | 220 | 586 | 13 | 114 |
| 10月7日 | 1 | 2.08 | 72.81 | 0.36 | 5.98 | 589 | 30 | 288 | 291 | 14 | 136 |
| 10月8日 | 1 | 2.19 | 76.87 | 0.47 | 6.03 | 484 | 27 | 240 | 216 | 15 | 122 |
| 10月9日 | 1 | 1.84 | 65.99 | 2.12 | 4.71 | 1168 | 24 | 261 | 561 | 13 | 127 |
| 10月10日 | 1 | 1.93 | 87.43 | 0.48 | 5.61 | 938 | 23 | 299 | 483 | 16 | 132 |

表 2 の続き

| 2013年 月日 | 炉数 | 焼却量ton | | 灰重量ton | | Cs137濃度 Bq/kg | | | Cs134濃度 Bq/kg | | |
|-------------|----|--------|-------|---------|---------|---------------|----|-----|---------------|----|-----|
| | | 対象物 | 全量 | 主灰 | 飛灰 | 対象物 | 主灰 | 飛灰 | 対象物 | 主灰 | 飛灰 |
| 10月11日 | 1 | 2.05 | 81.75 | 0.48 | 7.16 | 761 | 18 | 288 | 384 | 15 | 134 |
| 10月15日 | 1 | 2.11 | 67.02 | 0.41 | 6.46 | 276 | 23 | 256 | 132 | 16 | 125 |
| 10月17日 | 1 | 1.92 | 88.75 | 0.48 | 5.78 | 462 | 28 | 166 | 226 | 17 | 76 |
| 10月18日 | 1 | 2.14 | 89.71 | 0.60 | 6.31 | 687 | 23 | 263 | 333 | 14 | 134 |
| 10月21日 | 1 | 2.16 | 80.81 | 0.51 | 5.69 | 458 | 20 | 247 | 234 | 12 | 110 |
| 10月22日 | 1 | 2.39 | 91.69 | 0.48 | 6.09 | 357 | 25 | 223 | 171 | 14 | 113 |
| 10月23日 | 1 | 2.48 | 88.03 | 0.49 | 5.66 | 479 | 17 | 174 | 221 | 10 | 83 |
| 10月24日 | 1 | 1.10 | 90.93 | 0.50 | 5.97 | 404 | 31 | 184 | 201 | 11 | 87 |
| 10月25日 | 1 | 1.93 | 88.72 | 0.48 | 7.15 | 477 | 22 | 247 | 223 | 9 | 116 |
| 10月30日 | 1 | 1.90 | 89.75 | 0.53 | 5.91 | 1059 | 21 | 97 | 515 | 13 | 48 |
| 10月31日 | 1 | 2.13 | 91.74 | no data | no data | 885 | 25 | 212 | 422 | 18 | 106 |

数値は農林業系副産物処理状況[3]、焼却灰等運搬業務月報[4]、および、ごみ焼却施設ごみ処理実績表[5]に基づく。月日欄「精密」はゲルマニウム半導体検出器による精密測定、それ以外はNaIシンチレーションスペクトロメーターによる簡易測定である。焼却対象物は、7月9日から7月30日まではしいたけ、8月8日以後は牧草である。

結果

精密測定との比較による簡易測定の精度と妥当性

表 2 の中で、ゲルマニウム半導体検出器による精密測定と NaI シンチレーションスペクトロメーターによる簡易測定の両方が行われたのは、7月30日、8月9日、9月13日、10月2日の4日である。精密測定値を説明変数、簡易測定値を目的変数にして、対象物の濃度と飛灰の濃度について回帰分析を行うと表 3 となる。散布図を図 1 と 2 に示す。また、主灰のデータは表 4 にまとめられる。表 3 および図 1、2 から、農林業系副産物（対象物）中の放射性物質濃度、および、飛灰中の放射性物質濃度の測定値は、精密測定法と簡易測定法との間で十分な正の相関と、測定値の近似性を認め、簡易測定の精度と妥当性は高い。したがって、簡易測定値を精密測定値の代用としてよい。ただし、セシウム 137 については、高濃度領域で簡易測定値が精密測定値より低い傾向がある。高濃度領域の検体は対象物であり、セシウム 137 の回収率を計算する際に簡易測定の結果を用いると、放射性物質の回収率を過大評価する危険がある。しかし、データ数が十分ではなく、対象物の簡易測定値の高濃度領域における妥当性については、今後の課題である。一方、主灰の測定値に関しては、表 4 から簡易測定の精度と妥当性が低いことは明らかである。表より読み取れることは、常に簡易測定値が精密測定値以上の値であるということである。従って、簡易測定値をそのまま用いて放射性物質の回収率を求めると、過大評価することになる。

表 3 対象物および飛灰の精密測定値と簡易測定値の相関

| 分析対象 | Cs137 濃度 | | Cs134 濃度 | |
|------|----------|------|----------|------|
| | 対象物 | 飛灰 | 対象物 | 飛灰 |
| P 値 | 0.01 | 0.01 | 0.01 | 0.01 |
| 相関係数 | 0.99 | 0.99 | 0.99 | 0.99 |
| 寄与率 | 0.98 | 0.97 | 0.98 | 0.98 |

表 4 主灰の精密測定値と簡易測定値

| 月日 | Cs137 濃度 Bq/kg | | Cs134 濃度 Bq/kg | |
|-------|----------------|------|----------------|------|
| | 簡易測定 | 精密測定 | 簡易測定 | 精密測定 |
| 7月30日 | 18 | ND | 9 | ND |
| 8月9日 | 17 | ND | 13 | ND |
| 9月13日 | 28 | ND | 28 | ND |
| 10月2日 | 28 | 20 | 18 | ND |

ND は 10Bq/kg 以下を示す。

図 1 精密測定と簡易測定散布図；セシウム 137

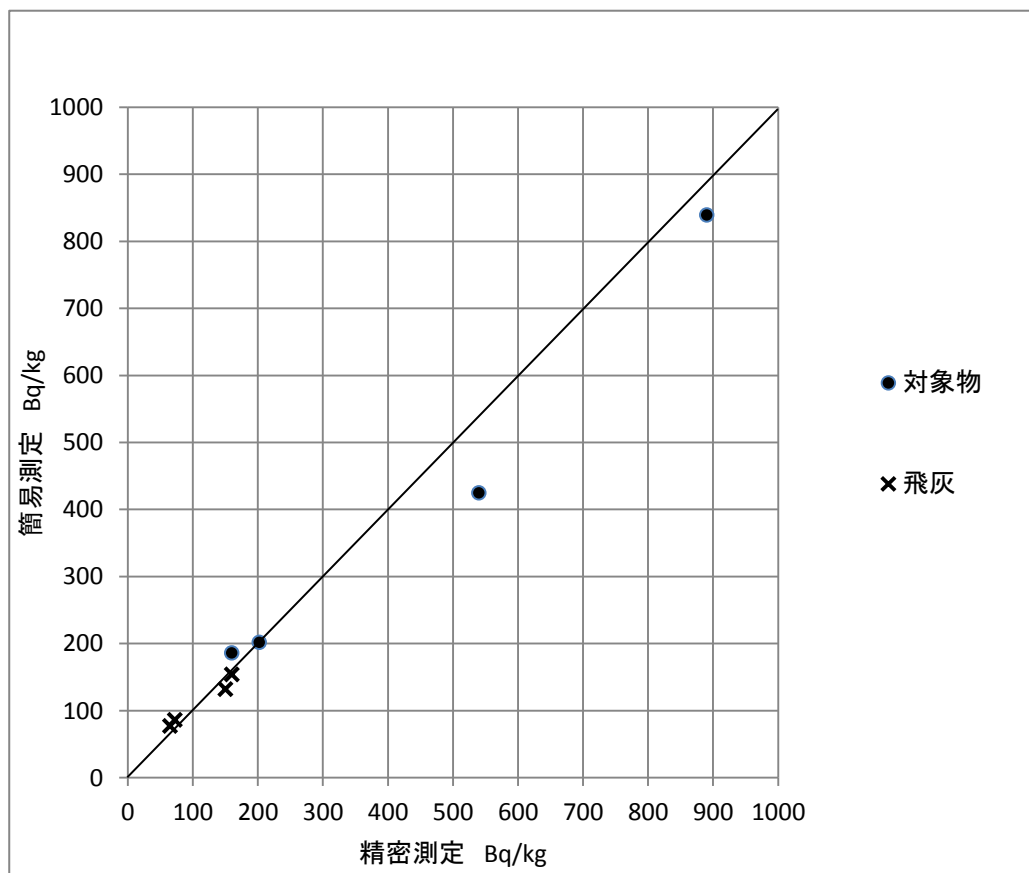
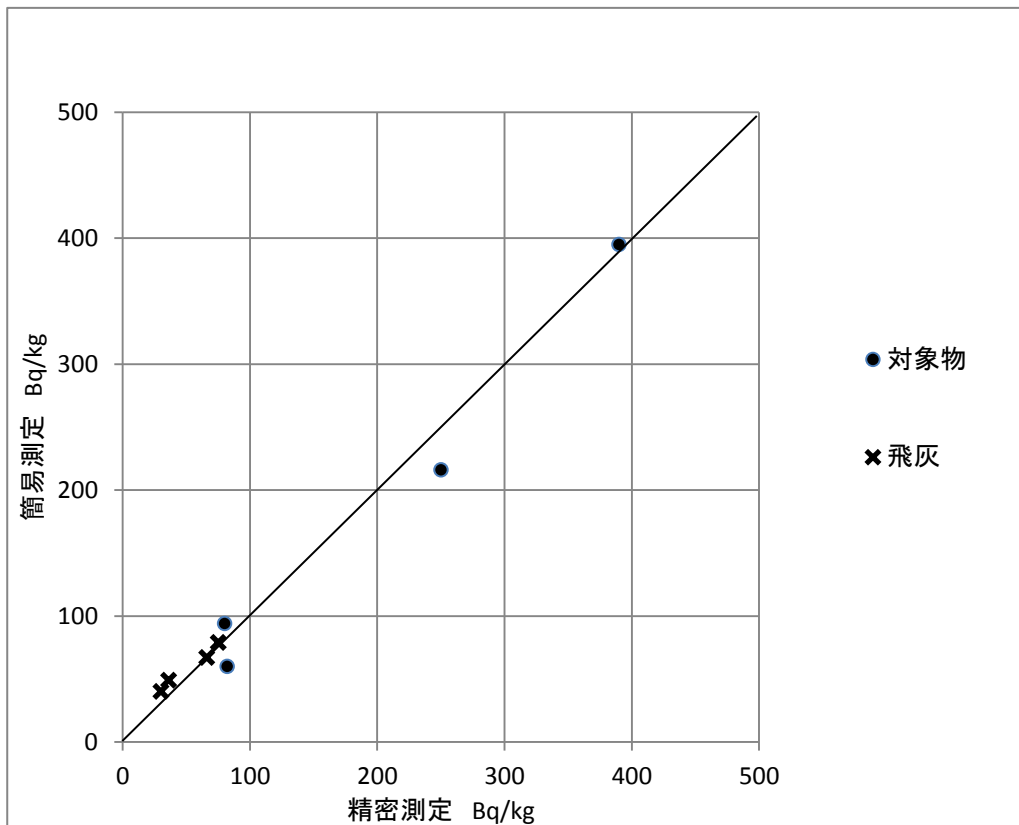


図2 精密測定と簡易測定との散布図；セシウム 134



飛灰中に回収された農林業系副産物（対象物）由来の放射性物質量の評価

2013年7月9日から10月30日の間に焼却された一般ゴミに由来する放射性物質が飛灰に残る量を決定できれば、飛灰中の放射性物質濃度から、飛灰に残った農林業系副産物の放射性物質の量が求まる。一般ゴミ焼却灰中の放射性物質濃度は、2013年1月以後安定した数値であることが表1より読み取れる。そこで、表1の2013年1月25日から2013年7月31日までデータ5組の濃度平均値を、2013年7月9日から10月30日の間に焼却された一般ゴミに由来する飛灰の放射性物質濃度と見なすことにする。セシウム137の半減期は30.1年、セシウム134の半減期は2.06年であり、上記の5組のデータを減衰率： $0.5^{(\text{期間}/\text{半減期})}$ により補正した2013年7月9日時点における一般ゴミに由来するセシウムの飛灰中濃度を求め、その平均値、標準誤差、95%信頼区間（t分布による）を算出し、表5に示す。

飛灰には対象物由来と一般ゴミ由来があり、飛灰中に存在する一般ゴミ由来灰重量Aは、 $A = (\text{全焼却重量} - \text{対象物重量}) \div \text{全焼却重量} \times \text{飛灰重量}$ として求まる。

補正一般ゴミ濃度を表5の2013年7月9日の平均濃度に減衰率を掛けて算出すると、当日の一般ゴミ由来の飛灰中放射性物質量は（A×補正一般ゴミ平均濃度）となる。また、飛灰中に存在する対象物由来の放射性物質量Bは、

$B = \text{飛灰重量} \times \text{飛灰中濃度} - A \times \text{補正一般ゴミ平均濃度}$ である。

| | Cs137 濃度 | Cs134 濃度 |
|------------|----------|----------|
| 2013年1月25日 | 53.4 | 20.6 |
| 2013年2月1日 | 56.4 | 23.3 |
| 2013年2月4日 | 46.5 | 24.3 |
| 2013年5月30日 | 57.9 | 28.9 |
| 2013年7月31日 | 65.1 | 30.6 |
| 平均値 | 55.9 | 25.6 |
| 標準誤差 | 3.0 | 1.8 |
| 95%上限値 | 64.3 | 30.7 |
| 95%下限値 | 47.5 | 20.4 |

表 5

放射性物質の減衰補正をし、2013年7月9日の濃度に換算した一般ゴミ焼却時の飛灰中放射性セシウム濃度（単位 Bq/kg）

主灰中に回収された農林業系副産物（対象物）由来の放射性物質量の評価

主灰中に存在する対象物由来の放射性物質量を表 2 の簡易測定値から推定する。表 4 において、検出限界値 10Bq/kg を考慮して、ND の値を期待値の 5 で代用し 4 日間のデータ平均値を求めると以下となる。

セシウム 137；簡易測定 22.75Bq/kg 精密測定 8.75Bq/kg 比（精密/簡易）0.385

セシウム 134；簡易測定 17.0Bq/kg 精密測定 5.0Bq/kg 比（精密/簡易）0.294

こうして得られた比の値を簡易測定値に掛けて、推定値を算出すると表 6 となる。

表 6 簡易測定値の補正により算出した主灰中放射性物質濃度の推定値

| 月日 | Cs137 濃度 Bq/kg | | | Cs134 濃度 Bq/kg | | |
|-------|----------------|------|------|----------------|------|-----|
| | 簡易測定 | 精密測定 | 推定値 | 簡易測定 | 精密測定 | 推定値 |
| 7月30日 | 18 | ND | 6.9 | 9 | ND | 2.6 |
| 8月9日 | 17 | ND | 6.5 | 13 | ND | 3.8 |
| 9月13日 | 28 | ND | 10.8 | 28 | ND | 8.2 |
| 10月2日 | 28 | 20 | 10.8 | 18 | ND | 5.3 |

セシウム 137 の簡易測定値が 28 を記録した 2 日について、その精密測定値は ND (5) と 20 であり、平均値は 12.5 になる。表 6 の推定値 10.8 は 12.5 の代用として妥当なものである。また、精密測定値が ND を示した他の計測値の推定値は 10 未満となっており、観察された簡易測定値と精密測定値の違いを説明できている。以上の考察から、主灰中のセシウム 137 の濃度は、簡易測定値に補正係数 0.385 を掛け、セシウム 134 の濃度は補正係数 0.294 を掛けて求めるのが妥当である。次に、飛灰中放射エネルギーの算定結果から得られた、飛灰中総放射エネルギーに占める対象物由来の総放射エネルギーの割合を 2 つの同位体で別々に求め、この割合を主灰中の放射エネルギーに乗じることで、主灰中にある対象物由来の放射エネルギーを求めることができる。

測定誤差の検討によるデータの選別

放射性セシウム濃度測定時における測定値の妥当性をセシウム 137 とセシウム 134 の放射能濃度比で評価する。表 1 の飛灰中濃度の精密測定値を減衰補正して 2013 年 7 月 9 日の濃度に換算し、セシウム 137 と 134 の比を計算した結果を表 7 に示す。

表 7 セシウム 137 と 134 の濃度比 (2013 年 7 月 9 日換算)

| | Cs137 Bq/kg | Cs134 Bq/kg | Cs137/Cs134 |
|------------------|-------------|-------------|-------------|
| 2011 年 7 月 21 日 | 124.2 | 56.7 | 2.19 |
| 2011 年 9 月 9 日 | 74.8 | 39.4 | 1.90 |
| 2011 年 11 月 10 日 | 64.5 | 30.3 | 2.13 |
| 2012 年 1 月 12 日 | 84.1 | 41.8 | 2.01 |
| 2012 年 5 月 30 日 | 107.2 | 46.1 | 2.32 |
| 2012 年 9 月 27 日 | 72.7 | 33.8 | 2.15 |
| 2013 年 1 月 25 日 | 53.4 | 20.6 | 2.59 |
| 2013 年 2 月 1 日 | 56.4 | 23.3 | 2.42 |
| 2013 年 2 月 4 日 | 46.5 | 24.3 | 1.92 |
| 2013 年 5 月 30 日 | 57.9 | 28.9 | 2.00 |
| 2013 年 7 月 31 日 | 65.1 | 30.6 | 2.13 |

飛灰の精密測定による濃度比 Cs137/Cs134 の値は平均値 2.16、標準偏差 (Estimated standard deviation) は 0.214 である。表 2 の対象物中濃度と飛灰中の濃度について、濃度比 Cs137/Cs134 の値が、精密測定の平均値±(標準偏差の 2 倍) の範囲、つまり、1.731 から 2.588 の間に対象物中濃度と飛灰中濃度の両方が入っているデータを、測定誤差が小さいデータとして選別すると、表 8 の 41 日分が該当する。

表 8 セシウム濃度比(Cs137/Cs134)が精密測定値に近いデータ

| 月日 | 対象物 | 飛灰 | 月日 | 対象物 | 飛灰 | 月日 | 対象物 | 飛灰 |
|-------|------|------|-------|------|------|--------|------|------|
| 7月10日 | 2.35 | 1.82 | 9月10日 | 1.88 | 1.87 | 10月8日 | 2.07 | 1.82 |
| 7月12日 | 2.16 | 1.80 | 9月11日 | 1.94 | 1.96 | 10月9日 | 1.92 | 1.90 |
| 8月8日 | 1.93 | 2.04 | 9月12日 | 1.90 | 1.95 | 10月10日 | 1.79 | 2.09 |
| 8月26日 | 1.84 | 2.04 | 9月13日 | 1.86 | 1.84 | 10月11日 | 1.83 | 1.98 |
| 8月27日 | 1.88 | 1.85 | 9月18日 | 1.77 | 1.85 | 10月15日 | 1.92 | 1.88 |
| 8月28日 | 1.78 | 1.82 | 9月19日 | 2.03 | 1.90 | 10月17日 | 1.88 | 2.00 |
| 8月29日 | 1.91 | 1.86 | 9月24日 | 1.80 | 1.86 | 10月18日 | 1.89 | 1.80 |
| 8月30日 | 1.91 | 1.95 | 9月25日 | 1.81 | 1.98 | 10月21日 | 1.79 | 2.05 |
| 9月2日 | 2.08 | 1.82 | 9月26日 | 1.80 | 1.82 | 10月22日 | 1.91 | 1.80 |
| 9月3日 | 2.06 | 2.06 | 9月27日 | 1.87 | 1.88 | 10月23日 | 1.98 | 1.91 |
| 9月4日 | 1.96 | 1.92 | 10月2日 | 1.97 | 1.83 | 10月24日 | 1.83 | 1.93 |
| 9月5日 | 1.96 | 1.96 | 10月3日 | 1.80 | 1.82 | 10月25日 | 1.95 | 1.94 |
| 9月6日 | 1.94 | 1.99 | 10月4日 | 1.97 | 1.79 | 10月30日 | 1.87 | 1.83 |
| 9月9日 | 1.92 | 1.91 | 10月7日 | 1.87 | 1.96 | | | |

数値は減衰率で 2013 年 7 月 9 日の濃度に補正したセシウム濃度比(Cs137/Cs134)である。

対数正規分布による outlier の除外

環境中にある有害重金属（鉛、カドミウム、マンガンなど）は、様々な測定対象物において、その濃度が対数正規分布することが知られている[6,7]。また、チェルノブイリ原発事故後、周辺に住む動物の体内放射性セシウム濃度も対数正規分布している[8]。したがって、表 8 に採用された牧草（8月8日から10月30日）について、これらの牧草が同一母集団からのサンプルと考え、牧草濃度に対数正規分布を仮定してよい。39日分の牧草中放射性セシウム濃度の自然対数変換後ヒストグラムを図 3 に示す。

図 3 牧草中放射性セシウム濃度の対数変換後ヒストグラム（個数 39）

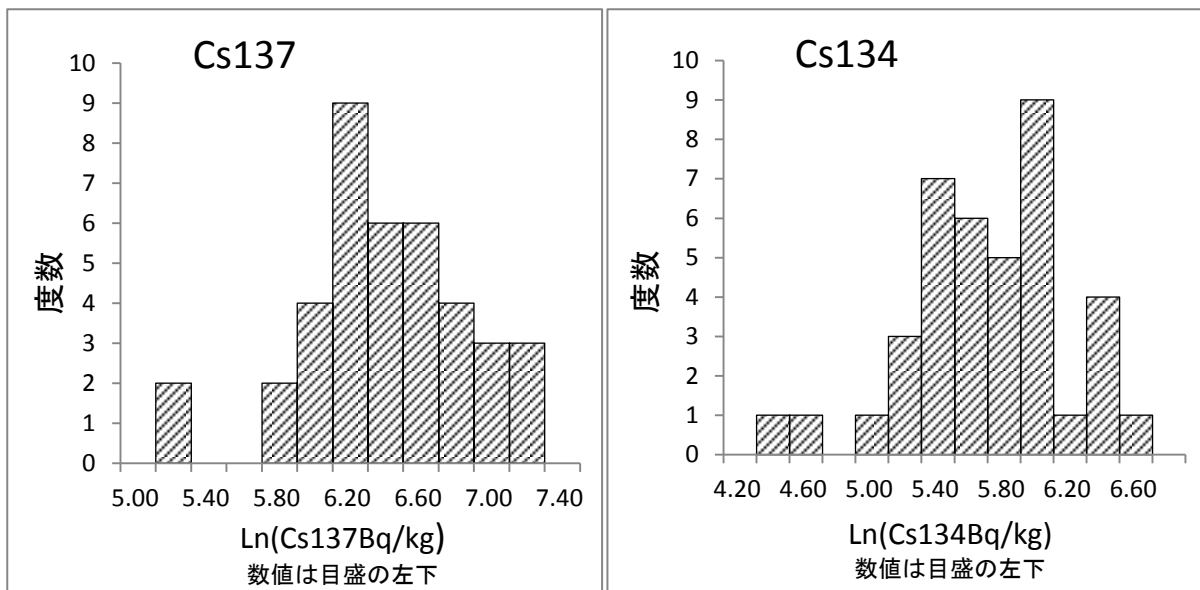


図 3 より、ヒストグラムの左方に位置する 2 個のデータは、明らかに飛び離れたデータ (outlier) であり、その日付はセシウム 137 と 134 で一致し、8月26日と9月12日である。よって、表 8 で採用した月日から、さらに、この 2 日のデータを除いた 39 日分のデータが放射性セシウムの回収率評価に適した候補である。

回収率の算出

上記の方法で選別された 39 日分のデータの日々のセシウム 137 の回収率を上記に述べた方法で求めると表 9 の結果となる。回収率が 130%以上の日が 6 日分ある。これは対象物等からのサンプリングが適切に行われず、測定対象の代表値としてはサンプル値に大きな誤差があることによると考えられる。回収率が小さい日については、より小さい数値から 6 日分を誤差が大きいサンプルとみなすことにする。以上の 12 日分を除いた 27 日分のデータが、回収率の評価に、より適したものと判断する。これら 27 日分のデータにより回収率を算出すると、表 10 の結果が得られる。表 10 の総灰の上限下限、および、回収率の上限下限は、一般ゴミ中放射性セシウム濃度の下限上限を用いて算出した数値である。

表 9 セシウム 137 の一日毎の灰中回収率 (39 日分)

| 月日 | 回収率 | 月日 | 回収率 | 月日 | 回収率 |
|--------|-----|--------|------|--------|------|
| 10月30日 | 13% | 10月2日 | 67% | 9月26日 | 105% |
| 8月8日 | 23% | 9月19日 | 67% | 10月8日 | 106% |
| 10月3日 | 31% | 9月18日 | 69% | 10月11日 | 107% |
| 10月9日 | 46% | 10月17日 | 73% | 10月21日 | 111% |
| 9月10日 | 47% | 10月4日 | 74% | 9月3日 | 113% |
| 7月10日 | 47% | 10月10日 | 76% | 10月7日 | 114% |
| 9月4日 | 55% | 7月12日 | 79% | 10月22日 | 121% |
| 9月27日 | 56% | 10月18日 | 90% | 8月30日 | 137% |
| 9月13日 | 56% | 9月6日 | 92% | 9月25日 | 140% |
| 10月23日 | 57% | 9月5日 | 94% | 10月25日 | 150% |
| 9月9日 | 59% | 9月2日 | 99% | 10月24日 | 174% |
| 8月27日 | 61% | 8月28日 | 99% | 8月29日 | 185% |
| 9月24日 | 61% | 9月11日 | 103% | 10月15日 | 225% |

回収率がサンプリングの誤差により不適格と判断した月日数値を斜体で示す。

表 10 焼却した農林業系副産物由来の放射能回収率 (27 日分)

| | Cs137 | Cs134 |
|-------------|----------|----------|
| 対象物 Bq | 46751470 | 23195160 |
| 主灰 Bq | 490968 | 284876 |
| 飛灰 Bq | 36775428 | 19179939 |
| 総灰 Bq | 37266396 | 19464815 |
| 総灰 95%下限 Bq | 35052408 | 18186228 |
| 総灰 95%上限 Bq | 39480384 | 20743403 |
| 回収率 | 79.7% | 83.9% |
| 回収率 95%下限 | 75.0% | 78.4% |
| 回収率 95%上限 | 84.4% | 89.4% |

95%上限下限値は、表 5 の一般ゴミ中放射能濃度の下限上限を用いて算出した値である。

セシウム 137 の回収率は 79.7%、セシウム 134 の回収率は 83.9%で、2 つの同位体の対象物中放射エネルギーで加重した平均回収率は 81.1%である。

対象物中放射エネルギーを説明変数、総灰に回収された放射エネルギーを目的変数にして、日々のデータについて回帰分析を行った結果の回帰直線と散布図を図 4、5 に示す。対象物中放射エネルギーと総灰に回収された放射エネルギーの相関は、セシウム 137 が $P < 10^{-6}$ 、相関係数 0.81、セシウム 134 が $P < 10^{-7}$ 、相関係数 0.84 である。原点通過モデルによる線形回帰式の X の係数は、回収率の指標となり、表 10 の値に近い。

表 9 の全データ 39 日分で算出した放射能回収率は、セシウム 137 が 78.3%、134 が 82.4% であり、対象物中放射エネルギーと総灰に回収された放射エネルギーの相関は、セシウム 137 が $P = 5.5 \times 10^{-5}$ 、相関係数 0.60、セシウム 134 が $P = 1.1 \times 10^{-5}$ 、相関係数 0.64 である。

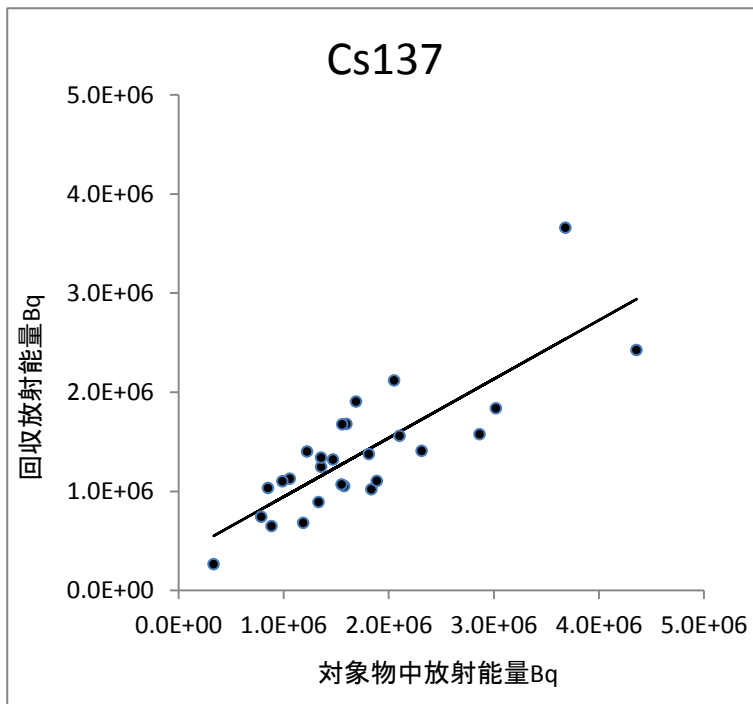


図 4

対象物中放射エネルギーと回収放射エネルギーの散布図；セシウム 137

N=27

相関の有意性 $P < 10^{-6}$

相関係数 0.81

線形回帰式：

$$Y = 352000 + 0.59X \quad (\text{図示})$$

原点通過モデル線形回帰式：

$$Y = 0.76X$$

$P < 10^{-15}$ 相関係数 0.96

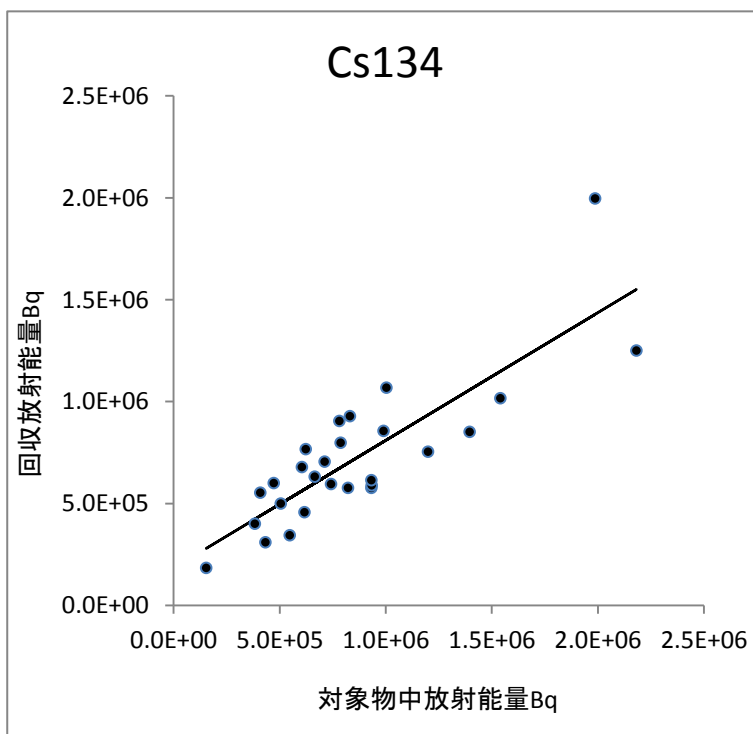


図 5

対象物中放射エネルギーと回収放射エネルギーの散布図；セシウム 134

N=27

相関の有意性 $P < 10^{-7}$

相関係数 0.84

線形回帰式：

$$Y = 183000 + 0.63X \quad (\text{図示})$$

原点通過モデル線形回帰式：

$$Y = 0.79X$$

$P < 10^{-15}$ 相関係数 0.97

考察

測定誤差およびサンプリング時の誤差を補正することにより、焼却された対象物中放射エネルギーと回収量の間には強い正の相関が認められ、表 10 に示した回収率の推定値の妥当性は高いと考えられる。さらに、セシウム 137 と 134 の 2 つの同位体で別々に算出した回収率がほぼ同じであったことは、算出した推定値の再現性がよいことを意味している。対象物中放射エネルギー総量（セシウム 137 と 134 の合計）に対する灰中の放射エネルギー総量の割合は、回収率の加重平均値と同じで、81.1%である。

計算に用いた 27 日間に灰中に回収されたセシウム 137 の総量は 52028948Bq、セシウム 134 の総量は 25853051Bq であるので、2 種類の同位体に対して同じ回収率 81.1%を用いると、焼却された一般ゴミと農林業系副産物すべてに由来する放射性物質のうち、セシウム 137 は 12120036Bq、セシウム 134 は 6022415Bq が灰に回収できていない。これらの放射能は、排ガスを通して大気中に漏出したと考えるべきである。回収率算出に用いた 27 日間の稼働時間を算出すると 964 時間炉となる。1 炉あたりの平均乾き排ガス流量を 20000m³/hr と仮定すると総流量は 19280000 m³ であるので、乾き排ガス中のセシウム 137 の濃度は 0.63Bq/ m³、セシウム 134 の濃度は 0.31Bq/ m³ と推定される。

他施設での回収率のデータとして、福島県鮫川村で行われた農林業系副産物等処理実証事業の確認運転結果の放射能収支を表 11 に示す[9]。ばいじん濃度は公表された 2 つの数値のうち、より正確な値と考えられる高い数値を表に示した。鮫川村焼却施設での放射能回収率は 75.2%であり、宮古市の回収率と近似している。鮫川村では、焼却灰全量の放射能に占めるもえがら（主灰）中の放射能の割合が 0.84%である。一方、宮古市では、セシウム 134 と 137 を合計した総セシウム放射能について、焼却灰全量の放射能に占める主灰中放射能の割合は 1.37%である。2 つの値が近似し、加えて、宮古市での割合が大きいことは、宮古市の主灰中放射能濃度を評価する際に用いた算出方法が妥当であり、その濃度を過小評価していないことを示している。鮫川村の放射能回収率は 75.2%よりさらに低いと考えられるが、5600Bq/kg と 1520Bq/kg の放射能濃度を示したばいじんの割合が不明であるため正確な数値を算出できない。また、回収率の検査としては 1 回のみの検査であり再現性について検討すべきであるが、濃度が測定された対象物を処理しており、1 回だけの試験であっても回収率値の妥当性は高いと思われる。

表 11 鮫川村実証事業による焼却前後の放射能量

| 測定対象物 | 放射性セシウム濃度(Bq/kg) | 重量(kg) | 放射能量(Bq) |
|----------------|------------------|--------|----------|
| 焼却対象物 7 月 16 日 | 52 | 200 | 10400 |
| 焼却対象物 7 月 17 日 | 52 | 800 | 41600 |
| 焼却対象物 7 月 18 日 | 620 | 910 | 564200 |
| 焼却灰（もえがら） | 650 | 6 | 3900 |
| 焼却灰（ばいじん） | 5600 | 82 | 459200 |
| 焼却前セシウム総量 | | | 616200 |
| 焼却後セシウム総量 | | | 463100 |
| 回収率 | | | 75.2% |

ばいじん濃度のもう一つの値は 1520Bq/kg。

環境省によるバグフィルターの放射性セシウムの除去率は 99%以上と報告されている[10]。データを収集した福島市あらかわクリーンセンターでは、捕捉が期待された 3 つの部分、すなわち、ろ紙部、ドレン部、および、活性炭部について放射能量測定をしている。放射能が測定できたのはろ紙部のみである。このことから、福島市のデータが明らかにし

たエビデンスとは、放射性セシウムのうち、ろ紙に捕捉できる大きさの粒子として存在するセシウムであれば、99%以上バグフィルターで除去されることであり、ろ紙に捕捉されない大きさの粒子で存在する放射性セシウムの除去率については未定であることになる。何故なら、ドレン部において放射能が検出されなかった原因には、ろ紙に捕捉されない粒径の放射性セシウムが排ガス中に存在しなかった場合と、排ガス中に小さい放射性粒子が存在するにもかかわらずドレン部で放射性セシウムを捕捉計測することができなかった場合の2つの可能性があるからである。したがって、宮古市および鮫川村における灰への回収率の結果は、バグフィルターやろ紙で捕捉できない小さい粒径の放射性セシウムが排ガス中に多量に存在するというを示していると考えれば、宮古市と鮫川村の回収率結果と、福島市の除去率の結果との間に矛盾はないのである。

環境省の「広域処理情報サイト；よくあるご質問；安全性について」には以下の記載がある[11]。「排ガス中の灰の平均的な大きさは数 10 ミクロンです。バグフィルターは 0.1 ミクロンレベルまでの微粒子を除去可能な装置であり、ほぼすべての灰を除去することができます。災害廃棄物を燃やすと、災害廃棄物に含まれているセシウムは気体になって排ガス中に含まれます。ただし、排ガスはバグフィルターの手前で 200℃以下に冷やされるため、排ガス中のセシウムは気体から固体（融点約 650℃の塩化セシウム等）に戻り、排ガス中の灰に付着します。この微粒子の灰がバグフィルターで除去されるため、大気中へのセシウムの放出を防ぐことができます。」 JIS 規格 Z8808:2013 によれば、ダスト捕集器は、ろ紙によってろ過捕集するものを用い、性能は、JIS K 0901 によって 0.3 μm の試験粒子を 99 %以上捕集し、使用状態で化学変化を起こさないものでなければならないとされている[12]。バグフィルターが粒径 0.1 μm レベルまでの粒子を除去できるのならば、JIS 規格ろ紙を用いて排ガス中放射能を測定した際に、放射能除去率が 99%以上となるのは自然な結果である。環境省による安全性についての中にある「数 10 ミクロン」という数値が、排ガス中の灰の平均的な大きさについてであり、排ガス中に存在する塩化セシウムの平均的な大きさではないことは注意を要する。塩化セシウム 137 の化学式量は 172.36 であり、密度は 4.085g/cm³である。この数値より、2つの成分原子各々10000個からなる塩化セシウム 137 の結晶が球体となって存在するときの直径は 0.011 μm と算出される。この大きさの固体の塩化セシウム 137 は、単独で存在する状態では、容易にバグフィルター、および、測定用ろ紙を通過すると考えられる。このようなバグフィルターを通り抜ける大きさの放射性物質粒子が無数に存在し、宮古市や鮫川村での回収率が不十分な値となったと推測される。今後、排ガス中のセシウムが灰に付着する割合が具体的にどれだけのかについて研究し、灰付着により除去される放射性セシウムの割合を調べる必要がある。

微粒子を捕捉するフィルター等についての性能測定は粒径 0.3 μm の粒子を用いることに規格されており、これに従って、HEPA フィルターや集塵ろ紙などの性能表示がなされている。粒径 0.3 μm 未満の微粒子で気体中に存在する放射性セシウムの濃度測定については、確立した方法がないのが現状であると思われる。非常に小さい粒径で存在する放射性物質を正確に検出できる測定方法を用い、検出下限値を十分低くして排ガス中の放射能濃度を測定し、焼却に伴う放射エネルギーの収支を正確に把握する必要がある。

Acknowledgments We are grateful to Mr. H. Satoh for useful comments.

Conflict of interest The authors declare that they have no conflict of interest.

Open Access This article is distributed under the terms of the Creative Commons Attribution License which permits any use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original authors and the source are credited.

文献資料

1. 宮古地区広域行政組合 放射性濃度等モニタリング結果 宮古清掃センター・焼却灰等検査結果 <http://www.miyako-kouiki.jp/osirase/hai.pdf>
2. 宮古市産業振興部農林課 農林業系副産物の試験焼却の状況について <http://www.city.miyako.iwate.jp/norin/shikensyokyaku.html> 内 H25年2月27日住民説明会資料.pdf
3. 宮古地区広域行政組合 農林業系副産物処理状況 <http://www.miyako-kouiki.jp/osirase/syori.pdf>
4. 宮古市 焼却灰等運搬業務月報 平成25年7、8、9、10月。(情報開示請求)
5. 宮古市 ごみ焼却施設ごみ処理実績表 平成25年7、8、9、10月。(情報開示請求)
6. Watanabe T, Nakatsuka H, Ikeda M. Cadmium and lead contents in rice available in various areas of Asia. *The Science of the Total Environment*. 1989;80:175-184.
7. Iwami O, Watanabe T, Moon CS, Nakatsuka H, Ikeda M. Motor neuron disease on the Kii Peninsula of Japan: excess manganese intake from food coupled with low magnesium in drinking water as a risk factor. *The Science of the Total Environment*. 1993;149:121-135.
8. Yablokov AV, Nesterenko VB, Nesterenko AV, Preobrazhenskaya NE. Chernobyl: Consequences of the catastrophe for people and the environment. *Annals of the New York Academy of Sciences*. 2009;Vol 1181:255-280.
9. 環境省指定廃棄物対策チーム 農林業系副産物等処理実証事業の確認運転結果(全体報告) 平成25年8月6日 http://www.vill.samegawa.fukushima.jp/cms/data/doc/1375945306_doc_1_1.pdf
10. 環境省 平成23年度福島県内災害廃棄物処理に係る業務調査 焼却施設及び最終処分場における測定結果について http://kouikishori.env.go.jp/faq/pdf/faq_02.pdf
11. 環境省 広域処理情報サイト <http://kouikishori.env.go.jp/faq/#Safety>
12. 日本工業規格 JIS Z8808:2013 排ガス中のダスト濃度の測定法