

Environment Research and Technology Development Fund

環境研究総合推進費 終了研究成果報告書

廃水銀処理物の長期適正処理のための地上保管対策に関する研究
(3-1701)

平成29年度～令和元年度

Long-term Environmentally-sound Management of Treated Waste Consisting of Elemental Mercury
in an Aboveground Facility

〈研究代表機関〉

京都大学

〈研究分担機関〉

福岡大学

東京工業大学

〈研究協力機関〉

国立水俣病総合研究センター

令和2年5月

目次

I. 成果の概要	1
1. はじめに（研究背景等）	
2. 研究開発目的	
3. 研究開発の方法	
4. 結果及び考察	
5. 本研究により得られた主な成果	
6. 研究成果の主な発表状況	
7. 研究者略歴	
II. 成果の詳細	
II-1 廃水銀処理物の長期安定性評価試験・管理手法の開発 （京都大学）	16
要旨	
1. はじめに	
2. 研究開発目的	
3. 研究開発方法	
4. 結果及び考察	
5. 本研究により得られた成果	
6. 国際共同研究等の状況	
7. 研究成果の発表状況	
8. 引用文献	
II-2 廃水銀処理物の地中埋立時の水銀挙動に関する研究 （福岡大学）	39
要旨	
1. はじめに	
2. 研究開発目的	
3. 研究開発方法	
4. 結果及び考察	
5. 本研究により得られた成果	
6. 国際共同研究等の状況	
7. 研究成果の発表状況	
8. 引用文献	
II-3 廃水銀処理物の処分・保管時のリスクコミュニケーションに関する研究 （東京工業大学）	58
要旨	
1. はじめに	
2. 研究開発目的	
3. 研究開発方法	

4. 結果及び考察
5. 本研究により得られた成果
6. 国際共同研究等の状況
7. 研究成果の発表状況
8. 引用文献

Ⅲ. 英文Abstract

・ ・ ・ ・ ・ 77

I. 成果の概要

課題名 3-1701 廃水銀処理物の長期適正管理のための地上保管対策に関する研究

課題代表者名 高岡 昌輝 (京都大学大学院工学研究科都市環境工学専攻教授)

研究実施期間 平成29年度～令和元年度

研究経費(累計額) 70,092千円

(平成29年度:23,364千円、平成30年度23,364千円、令和元年度:23,364千円)

本研究のキーワード 水銀、地上保管、固型化、埋立、リスクコミュニケーション

研究体制

- (1) 廃水銀処理物の長期安定性評価試験・管理手法の開発(京都大学)
- (2) 廃水銀処理物の地中埋立時の水銀挙動に関する研究(福岡大学)
- (3) 廃水銀処理物の処分・保管時のリスクコミュニケーションに関する研究(東京工業大学)

研究協力機関

国立水俣病総合研究センター

1. はじめに(研究背景等)

2017年8月に水銀に関する水俣条約が発効し、水銀の排出・放出・利用は厳しく制限されるようになった。我が国では将来的に余剰水銀が発生し、廃水銀として長期適正管理が求められる。水銀に関する水俣条約を踏まえた廃棄物処理法施行令の一部改正により、廃水銀等の処分はあらかじめ精製・硫化・固型化することが義務付けられることとなった。硫化・固型化処理については、これまでの調査研究により一定の見通しは得られているが、廃水銀等が新たな廃棄物であることに鑑み、処理物の長期間の安定性および最適な処分方法については引き続き検証、検討を進めていくことが必要である。

硫化・固型化した廃水銀処理物は欧州連合(EU)に存在する廃岩塩鉱のような処分場所を持たない我が国や世界の多くの国では人工構造物の中で長期的に処分することを模索しなければならない。これまでの研究では最終的には人的関与ができなくなることを想定して、地中処分の研究を実施してきたが、当面のリスク管理の容易さからは地上保管を実施した上で、最終的に地中処分に移行することも想定する必要がある。しかしながら、金属水銀の長期保管は米国で実施されているものの、廃水銀等処理物の地上保管については世界的に見ても検討されていない。安定化処理した水銀の最終処分として地中処分または長期地上保管のどちらを選択するにせよ、最終処分前には廃水銀処理物の地上保管が現実的に必要となる。よって、暫定ないし長期間での地上保管における環境リスクは、適切に評価される必要がある。一方、環境リスク以外にも、最終処分対策に対する合意形成も重要である。水銀は強く嫌悪的に認知されていると考えられるが、その嫌悪感の強さや、嫌悪感が水銀の処分施設(最終処分場)建設に対する態度へ与える影響は不明である。合意形成への一助として、これらの知見が望まれている。

2. 研究開発目的

本研究では廃水銀処理物の地中処分も含めた長期適正管理を念頭に地上保管への対策を研究し、得られた研究成果から地上保管時の管理手法を提示し、水銀保管・処分施設導入に資することを目的とし、3つのサブテーマを設定して研究を進めた。

サブテーマ1では、地上保管を想定する場合では発ガスに関する対策は不可欠であり、基礎的な実験を行い、ヘッドスペース試験法を確立することを目的とした。さらに、現状では改質硫黄固化体のみが水銀廃棄物ガイドラインにて規定されているが、樹脂系固型化材としてエポキシ樹脂の適用を検討し、新たな固型化技術を開発することを目的とした。樹脂系固型化材を用いた廃水銀等処理物については、環境庁告示13号法で $0.5 \mu\text{g/L}$ 以下、大気への揮発(発ガス)は $1.0 \mu\text{g/m}^3$ 以下、一軸圧縮強度 0.98 MPa 以

上を達成することを目的とした。加えて、改質硫黄および樹脂系固型化材により作製した廃水銀等処理物に対して種々の評価試験を行い、廃水銀等処理物の凍結融解試験や耐ガス透過性、耐微生物性、紫外線の影響、耐熱性、耐腐食性、火災時の副生ガスを評価し、これらの評価試験結果により地上保管する際の管理手法を提示することを目的とした。

サブテーマ2では、製造された水銀廃棄物の処理・処分に伴う最適な水銀の環境負荷抑制を検討するため、水銀廃棄物の地上保管方法及び水銀廃棄物の埋立処分手法を検討し、埋立処分を想定した最適な地上保管の管理要件と埋立条件を提案することを目的とした。目的を達成するため、水銀廃棄物の基礎実験を通して、気化特性や共存物質等による溶出特性などの物理・化学的な影響について検討した。また、水銀廃棄物の最適な埋立条件の抽出は模擬埋立実験槽を用いて、水銀廃棄物の3種類の埋立手法の違いや埋立廃棄物違いによる影響を把握するため、5年間に亘って水銀の浸出水への流出や大気拡散等の水銀廃棄物からの流出特性を検討した。更に、埋立5年後に埋立実験槽を解体し、埋立地内での水銀廃棄物の移動特性や水銀残存量等から、埋立地における水銀収支等を把握し、水銀廃棄物の基礎実験と5年間に亘る埋立実験から水銀廃棄物の埋立特性を総合的に判定し、水銀廃棄物の最適な地上保管と埋立処分手法を提案した。

サブテーマ3では、水銀の地上保管施設における環境リスクを評価することを目的とした。地上保管ではモニタリングによるリスク管理が可能であるため、水銀が管理外となってしまうシナリオ条件を探索した。そして、地上保管施設や保管容器の損壊に伴って漏出する水銀量とその環境リスクを評価した。また、水銀の社会的認知に関する基礎的な知見として、水銀への嫌悪感や、水銀の最終処分施設に対する住民のリスク受容性について検討した。リスク受容に対する物理条件やリスクの不確実性の影響を評価した。リスク受容において重要視ないし信頼する要因についても併せて検討した。

3. 研究開発の方法

(1) 廃水銀処理物の長期安定性評価試験・管理手法の開発

1) ヘッドスペース試験方法の確立

ヘッドスペース試験は、一定条件下における生成物質上部のヘッドスペースにおける水銀濃度を測定することで大気汚染ポテンシャルを評価するとともに、硫化処理が完了しているか否かを確認するものである。水銀廃棄物ガイドラインの3.6.1 (1)硫化・固型化において、廃金属水銀等の硫化・固型化物に対して、硫化・固型化方法の諸条件が適切であったかを確認する方法の一つとして、ヘッドスペース試験方法が示され、 $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 未満であることが定められている。ヘッドスペース試験におけるパラメータ（試料量、温

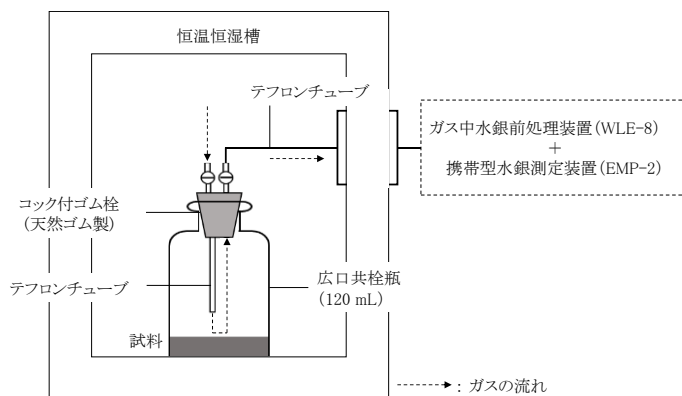


図3.1.1 ヘッドスペース試験装置の概要

度、湿度、ガス流量等）の影響を実験的に把握するため、本研究では2種類の参照サンプル（硫化水銀および水銀発生チューブ）を作製した。本研究では、ヘッドスペース試験の各パラメータの影響を実験的に調べるとともに、多成分系の熱力学的平衡状態を予測できるFactSage6.1（Thermfact and GTT-Technologies）による計算を行った。ヘッドスペース試験に用いた装置の概要を図3.1.1に示す。本研究で決定したヘッドスペース試験方法および条件を基に、3機関（機関Ⅰ～Ⅲ）で2種の水銀発生チューブを評価することで試験方法のクロスチェックを行った。

2) 樹脂系固型化技術の開発・適用

エポキシ樹脂（epoxy resin, EPR）の様々な物性は、主剤と硬化剤の組み合わせに強く依存する。本研究では、エポキシ樹脂用硬化剤メーカーにヒアリング調査を行い、実用化に向け一般的かつ比較的廉価なもので、毒劇物指定されていないものから主剤を2種類（主剤1、主剤2）と硬化剤を4種類（硬化剤

A、硬化剤B、硬化剤C、硬化剤D）の8つの組み合わせに絞り込んだ（表3.1.1）。さらに、金属水銀と硫黄を遊星ボールミルで反応させて生成した硫化水銀（HgS）の混合比を6段階（0、50、60、70、80、90wt%）に設定してエポキシ樹脂固化体（合計48種）を作製し、ヘッドスペース試験および環告13号溶出試験の結果に基づいて主剤と硬化剤を選定し、HgSの最適配合を決定した。

表3.1.1 本研究で検討した主剤および硬化剤

主剤	主用途・特性		
	1	jER828	ビスフェノールA型
硬化剤	2	ダイトサイザー DT-377	同上
	A	jERキュア ST12	芳香族ポリアミン
	B	ダイトクラール J-882	脂肪族ポリアミン
	C	ダイトクラール B-2413	脂環式ポリアミン
	D	ダイトクラール X-7000	脂肪族ポリアミン

比較対象として、水銀廃棄物ガイドライン（3.6.1中間処理基準（1）硫化・固型化の【固型化方法の例】）を参考にして改質硫黄固化体を作製し、種々の評価試験を実施した。水銀廃棄物ガイドラインに規定もしくは準じた評価試験として、一軸圧縮強度試験、環告13号溶出試験、ヘッドスペース試験、タンクリーチング試験を実施した。エポキシ樹脂を用いた固型化技術については、メチル水銀の生成可能性やビスフェノールA（BPA）溶出に係るリスクについて評価を行った。

3) 劣化試験および特性把握

地上保管時の火災を想定した試験としては、小ガス炎着火試験や熱重量-示差熱-質量（TG-DTA-MS）分析、電気炉を用いた加熱実験により耐熱性および副生ガスを評価した。最終的な地中処分も念頭に置きながら、地上保管を想定した種々の劣化試験を実施して、耐微生物性、凍結融解サイクルに対する耐久性、耐候性、耐紫外線（UV）性、耐腐食性（耐酸性、耐アルカリ性、耐有機酸性）を評価した。

（2）廃水銀処理物の地中埋立時の水銀挙動に関する研究

1) 廃水銀処理物の地中埋立時の水銀挙動に関する研究

水銀廃棄物の管理型処分場への埋立処分を想定し、水銀廃棄物からの水銀流出防止対策と環境上の安全性や、埋立処分に伴う水銀のメチル化の可能性等を把握する目的で、水銀廃棄物中の水銀の浸出水への流出や気化水銀としての大気拡散など、埋立処分に伴う水銀の埋立特性と水銀収支を検討した。

水銀廃棄物の埋立実験は12基の埋立実験槽（図3.2.1・表3.2.1参照）を用いて、3種類の水銀廃棄物（①黒色硫化水銀を廃棄物と完全混合、②黒色硫化水銀を一塊でまとめて廃棄物層の中層域に処分、③黒色硫化水銀のセメント固化物を廃棄物層の中層域に処分）と、主たる管理型廃棄物（燃え殻、汚泥）を用いて実験を行った。実験1は3種類の水銀廃棄物からの水銀の流出特性を検討するため、水銀廃棄物を混合廃棄物（燃え殻80%+汚泥20%）に充填し、浸出水への水銀流出と実験槽上部からの気化水銀の大気拡散状況を時系列的に検討した。実験2は水銀廃棄物中の水銀流出が埋立廃棄物の違いから、水銀流出が促進されるケースと抑制されるケースが想定されることから、2種類の埋立廃棄物

（燃え殻単独又は実験1の混合廃棄物）を用いて時系列的に検討した。また、5年後に埋立実験槽を解体し、実験槽に充填した水銀廃棄物の状況や深さ方向別の埋立処分層サンプルの水銀含有量（総水銀、メチル水銀）や水銀の化学形態及び水銀の溶

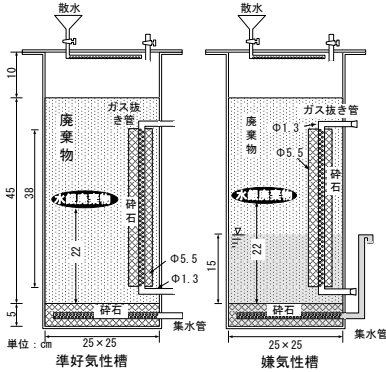


図3.2.1 水銀廃棄物の埋立槽図

表3.2.1 水銀廃棄物の埋立条件

実験槽	埋立構造	充填廃棄物(kg)		黒色硫化水銀	
		燃え殻	下水汚泥/堆肥化物	充填方法	充填量(g)
No.1	標準好気性	27.2	6.8	黒色硫化水銀(混合型)	415
No.2				黒色硫化水銀(層状型)	415
No.3				セメント固化物(層状型)	492
No.4				ブランク	—
No.5	嫌気性	27.2	6.8	黒色硫化水銀(混合型)	415
No.6				黒色硫化水銀(層状型)	415
No.7				セメント固化物(層状型)	492
No.8				ブランク	—
No.9	標準好気性	34	—	黒色硫化水銀(混合型)	415
No.10				ブランク	—
No.11				黒色硫化水銀(混合型)	415
No.12				ブランク	—

表3.2.2 廃水銀処理物の実験条件

	黒色硫化水銀	セメント固化物		改質硫黄固化物	
		未洗浄	洗浄	未洗浄	洗浄
気化実験	○	○	○	○	○
溶出試験	○	○	○	○	○

* 水銀廃棄物の破砕物は5mm以下を実験試料とした

出・気化等の調査から埋立実験槽内での水銀廃棄物中の水銀の流出要因等を検討した。

水銀廃棄物中の水銀濃度は、使用する産業廃棄物の国内での埋立処分量と埋立処分される水銀量から推定した水銀濃度の約100倍に設定した。埋立実験槽は準好気性埋立と嫌気性埋立（常時15cm滞水）とし、ガス抜き管を設置した。調査項目は浸出水中の総水銀と気化水銀（槽表面）及び、本研究に必要な項目（廃棄物等の初期値、浸出水のpH、COD、Cl⁻、ガス質等）について実施した。

2) 水銀廃棄物の基本特性の把握

水銀廃棄物が埋立処分されるプロセスの中で、水銀廃棄物の地上保管時及び埋立処分時に可能な水銀の環境負荷低減化に対応するため、水銀廃棄物中の水銀流出（溶出・気化）に与える物理的・化学的条件を検討し、地上保管時の適切な管理条件や、埋立処分後の物理的作用や共存物質等が与える影響等の基本特性を把握した。表3.2.2に水銀廃棄物の実験条件、図3.2.2に水銀気化実験の装置概要、表3.2.3に共存物質影響試験時の溶媒設定条件を示した。気化実験は図3.2.2に示したデシケータを用いて各実験試料の諸条件（放置期間、温度変化）における気化水銀特性を検討した。共存物質影響試験は陽イオン(Na⁺、K⁺、Ca²⁺)、陰イオン(Cl⁻、NO₃⁻、SO₄²⁻)、酸化剤(FeCl₃)を用いて3種類の濃度の影響を検討した。

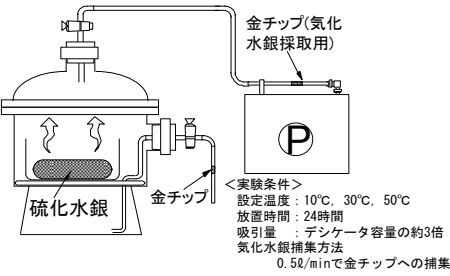


図3.2.2 水銀気化実験の装置概要

表3.2.3 共存物質影響試験の溶媒設定条件

分類	対象成分	供試薬	濃度パラメータ(mg/L)		
陽イオン	Na ⁺	NaNO ₃	100	1,000	10,000
	Ca ²⁺	Ca(NO ₃) ₂	100	1,000	10,000
	K ⁺	KNO ₃	100	1,000	10,000
陰イオン	Cl ⁻	NaCl	50	500	10,000
	NO ₃ ⁻	NaNO ₃	50	300	3,000
	SO ₄ ²⁻	Na ₂ SO ₄	50	500	2,000
酸化剤	FeCl ₃	FeCl ₃	10	500	10,000
PH	pH	HNO ₃ NaOH	3, 5, 7, 9, 11		

(3) 廃水銀処理物の処分・保管時のリスクコミュニケーションに関する研究

1) 地上保管施設の環境リスク評価

1-1) 地上保管施設の環境リスク評価スキーム

水銀排出シナリオとして、人為的ケースと非人為的ケースが考えられる。人為的ケースとしては安定化処理された水銀の運搬時における事故などが考えられるが、これらは即応の対策・処理が可能である。よって、非人為的ケースを環境リスク評価の対象とした。特に、水銀が環境中へ排出されてしまっていることを認知できず、対策に物理的限界があるシナリオを評価対象とした。よって本研究では、地震によって地上保管施設が破壊され、水銀の一部が非意図的に環境中へ移動してしまうことで管理外となり、認知されないまま環境中へ水銀を排出しつづけるシナリオが最も対策が取りづらいものと評価し、環境リスク評価の対象とした。

1-2) 地上保管施設での地震発生およびその規模の確率的評価

水銀に対して認知される嫌悪感是非常に高く、行政的な立地選定プロセスは細心の注意及び慎重さを必要とする。よって本研究では特定の立地選定シナリオを取らず、地上保管施設の立地に抛らない環境リスク評価を行った。1900年1月～2020年3月まで(120年間)、東経130～143.5度、北緯30.5～41度の範囲においてマグニチュード6.5以上の地震を抽出し(図3.3.1)、震源深さ、マグニチュード、震源までの距離(日本の各都府県の代表的な場所を都府県庁所在とし、震源までの距離を地球の真球モデルをもとに計算)の最適な統計分布をベイズ情報量規準(BIC)でもって評価した。これにより特定の経過時間における地震の発生、規模、震源までの距離を確率的に推定することが可能であり、地震波の地表最大

表3.3.1 地上保管施設からの水銀漏出シナリオ

原因	要因	モデル(統計分布)など
人為的災害 落雷による火災 洪水	一保管施設内での可燃物禁止(ゼロリスク化) 一山間部(低地以外)に保管施設を建設(ゼロリスク化)	
人為的な積み上げ 事故	発生回数	ポアソン分布。ただし、即時の事故認知および対策が可能。
台風	年間発生確率 中心位置(緯度) 中心位置(経度) 中心気圧(低下量) 進行速度	ポアソン分布 指数分布 一様分布 対数正規分布 対数正規分布 対数正規分布 対数正規分布 保管施設への台風襲来確率は評価可能。 ただし、台風による施設倒壊の可能性はゼロとする(ゼロリスク化)。
地震	発生確率 施設地点までの減衰 施設の倒壊 保管容器の落下・破壊	Brownian Passage Time分布(プレートの応力蓄積による断層の活動(=地震の発生)をブラウン運動過程とした統計モデル)。形状パラメータの不確実性を評価する必要がある。 距離に応じた揺れの減衰は様々な経験式(Fukushima et al (1990))が報告されている。震央からの距離の不確実性を評価する必要がある。 地上保管施設の構造より地震に伴う応力を構造計算する。もしくは過去の倒壊データより、倒壊率は地表最大加速度や最大速度の正規分布・対数正規分布とした報告例がある。 揺れの強さ(加速度)による最大変位量を保管容器の重量と全体重心から推定した報告例がある(橋本ら(2011))。

加速度と地表最大速度の距離減衰を考慮することで、地震に伴う地表最大加速度と地表最大速度の確率を推定した。本手法の妥当性は、J-SHIS地震ハザードステーションでの情報を用いて検証した。

1-3) 震災時に地上保管施設が全壊する確率的評価

地震波の応答スペクトルは減衰定数5%での梅村スペクトルとし、兵庫県南部地震（1995）での建物倒壊調査の知見より、地上保管施設の全壊率を求めた。

1-4) 震災後に管理外となった水銀の環境への排出に伴う人体への水銀曝露量評価

本研究では最大限に水銀が溶出されるシナリオを想定し、溶解度まで水銀が雨水へ溶出し、環境中へ排出されるとする。東京都の観測データ

（1880年～2015年までの135年間）より、降雨量は正規分布によってその確率分布を求めた。雨水へ溶出した水銀は表流水を經由して半閉鎖的水域（湖沼や海湾など）へ到達し、生物濃縮を経て、魚介類由来で人体への水銀曝露へと至るシナリオを想定した。そして、水銀摂取量がWHOによる耐用摂取量を超えた場合、水銀による健康リスクが無視できないと判断した。なお、水銀の環境動態モデルにおけるパラメータの不確実性は、BICによる最適な統計分布を考慮してモデルへ組み込んだ。図3.3.2に本研究での水銀曝露評価モデルを示す。

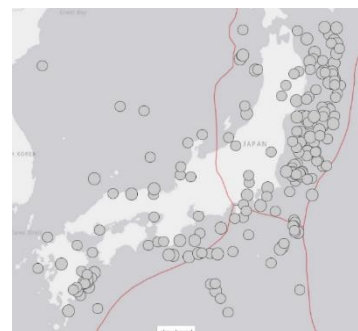


図3.3.1 確率的統計モデルに使用した地震（M6.5以上）の震源

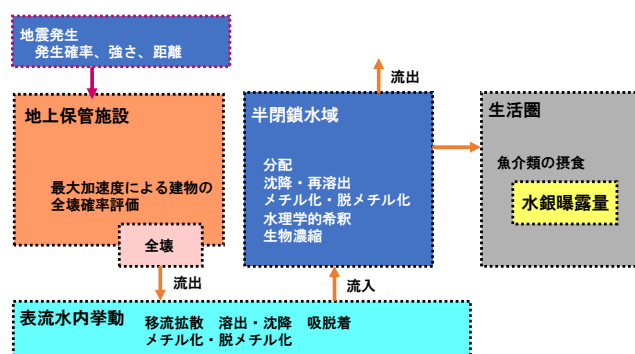


図3.3.2 本研究での水銀曝露評価モデル

2) 水銀への嫌悪感の定量的評価と水銀の最終処分場建設に対するリスク受容への影響分析

2-1) 一対比較法による嫌悪感および信頼感の定量化

嫌悪感や信頼感を、一対比較法にて定量化した。本研究では、比較を二項選択で行うThurstoneの手法および5段階のリッカートスケールを用いたScheffeの手法を用いた。Thurstoneの手法は、心理刺激に対する反応強度（興奮量）には確率変動があり、弁別過程（心理刺激に対して反応する際の心理学的過程）での興奮量は正規分布に従うと仮定した心理モデルによる定量化手法である。一方、Scheffeの手法は分散分析の手法を援用して、選択率のデータから尺度値（スコア）を統計学的に定量化する手法である。両手法ともに嫌悪感や信頼感が大きいほどスコア（尺度値）が大きくなるようにした。なお、回答のランダム性については χ^2 検定で確認し、回答データの信頼性を評価した。

2-2) ウェブアンケート調査の詳細

2018年9月～2020年3月にかけて、マクロミル社のQuickMillサービスを利用してウェブアンケート調査を実施した。回答者数は各アンケートにおいて420～1030人であり、性別は同数となるようにした（男女比＝0.5）。また、年齢層が20代、30代、40代、50代、60代において等しくなるように回答者を調整した。なお、回答者に提示される対象は、その順序がランダムに提示されている。

4. 結果及び考察

(1) 廃水銀処理物の長期安定性評価試験・管理手法の開発

1) ヘッドスペース試験方法の確立

参照サンプルとして硫化水銀と水銀発生チューブを用いて、ヘッドスペース値に及ぼすパラメータの影響を調べた結果、試料量や湿度、容器（メーカー、材質、色）の重要度は低く、温度、ガス流量、キャリアーガス中酸素割合の重要度が高いことが明らかとなった（図4.1.1および図4.1.2）。試験時間については、庫内温度に慣らす静置（1時間）は不要で、連続3時間測定で安定した試験結果を得られた。本研究で決定した基本条件は、試料量10 g、温度25℃、湿度60%RH、ガス流量0.5 L/min（空気）、試験時間3時間（静置なし）である（下線は、現行の水銀廃棄物ガイドラインに記載の条件から変更）。ヘッ

ドスペース値は、最後の1時間分(試験時間2~3時間に相当)のデータを平均して求めることを提案する。また、容器のジオメトリーについても詳細に規定し、ヘッドスペース試験方法を確立した。

ヘッドスペース試験のクロスチェックの結果、機関Ⅰの結果と比べて、機関Ⅱでは高値となった一方で、機関Ⅲではほぼ同じ値となった。機関Ⅰにおいて、機関Ⅱおよび機関Ⅲのクロスチェックで使用した水銀発生チューブも使用しながら、広口共栓瓶(メーカー4社、色:茶色/白色、材質:並ガラス/ホウケイ酸ガラス)や前処理装置の有無などについて実験的に検討を行った結果、瓶のメーカーや着色(光)、材質による影響はなかった。試験室の気圧(標高)についても検討したが、実際に試験実施時の気圧の記録はないが、3機関の標高はほぼ同じであるため、気圧の影響はないと考えられる。本研究で明らかになったように、温度とガス流量の影響を強く受けるが、今回のクロスチェックでは両パラメータは制御できていたと考えられる。機関Ⅰと比べて、機関Ⅱの結果は $\phi 4 \times 6$ mmで1.3倍、 $\phi 4 \times 7$ mmで1.2倍となっており、何らかの要因が系統的に影響しているものと考えられるが、最終的には原因を明らかにすることはできなかった。

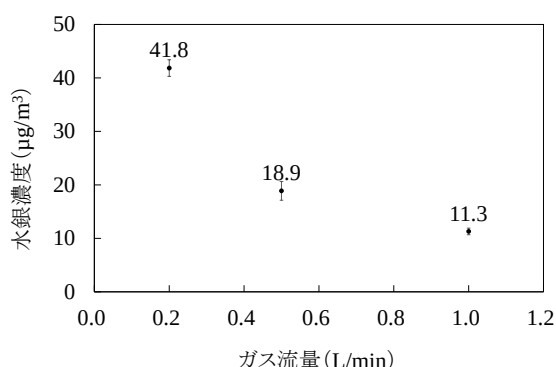


図4.1.1 ガス流量の影響(水銀発生チューブ)

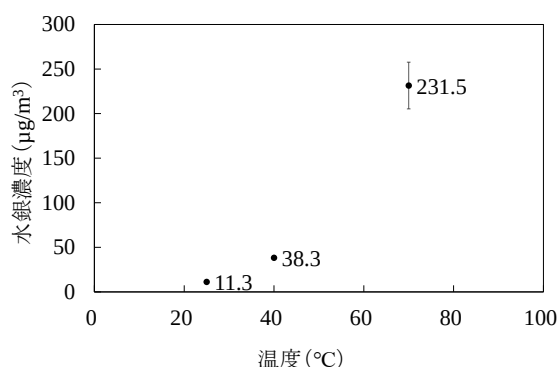


図4.1.2 温度の影響(水銀発生チューブ)

2) 樹脂系固型化技術の開発・適用

本研究では、ヒアリング調査に基づき選定した主剤2種類、硬化剤4種類から、8種類のエポキシ樹脂(少量スケール)に対して硫化水銀の配合比を6段階に振り、ヘッドスペース試験と環告13号溶出試験により最適配合を決定した。その結果、主剤1と硬化剤Cの組み合わせで、硫化水銀の配合は最大80wt%まで可能であった。エポキシ樹脂1Cのガラス転移温度(T_g)は、エポキシ樹脂1A~1Dの中で最も高く、 T_g はエポキシ樹脂、特に硬化剤の選定の際の重要な指標であると考えられた。供試体スケール($\phi 50 \times 100$ mm)のエポキシ樹脂固化体(EPR₈₀)はヘッドスペース試験、環告13号溶出試験、一軸圧縮強度試験、タンクリーチング試験において、目標値、基準値等を全て満たした。本研究で作製した改質硫黄固化体(MS₅₀)およびエポキシ樹脂固化体(EPR₈₀)の写真を図4.1.3に示す。固化体および固型化技術に対する評価結果を表4.1.1にまとめて示す。これらの結果から、水銀廃棄物ガイドラインに規定されている改質硫黄を用いた固型化技術と比べて、エポキシ樹脂を固型化材とする新たな固型化技術の優位性は十分にあると言える。

(a) 改質硫黄固化体 (b) エポキシ樹脂固化体



図4.1.3 本研究で作製した固化体

アルカリ条件の抽出溶媒(KOH+EtOH)を使用した場合、エポキシ樹脂固化体(EPR₈₀)からメチル水銀が検出された。EtOHのみやH₂Oのみを抽出溶媒とした条件ではエポキシ樹脂固化体(EPR₈₀)からメチル水銀は検出されなかった。塩酸を用いた酸性条件で抽出操作を行った結果、エポキシ樹脂固化体(EPR₈₀)および硫化水銀ともにメチル水銀は検出されなかったことから、アルカリ条件の抽出過程でメチル水銀が生成され、エポキシ樹脂固型化処理中にはメチル化反応は起きていないと考えられた。

エポキシ樹脂固化体(EPR₈₀)に対して環告13号溶出試験に準拠した溶出操作を行って得られた溶出液のBPA濃度(22 μg/L)に基づいて、ヒト健康リスクと生態リスクの評価を行った。廃水銀等処理物から溶出したBPAが地下水を経由して、経口暴露することは想定しにくい、マウスに対する一般毒性のNOAELは肝臓への影響(小葉中心性肝細胞肥大)をエンドポイントとすると3 mg/kg/dayであり、暴露マージン

(margin of exposure, MOE) が $>34,000$ となった。MOE判断基準は500であることから、ヒトの健康影響に対するリスクはほぼないと考えられた。一方で、魚類の慢性毒性について、ファットヘッドミノーの三世代試験でのF2世代の孵化率をエンドポイントとしたNOECが最も低い値 ($16 \mu\text{g/L}$) であり、MOEが7.3となった (判断基準: $\text{MOE}=10$)。総合的に判断して、廃水銀等処理物から溶出したBPAによる生態リスクは低く、水生生物 (特に魚類) の地域個体群の存続を脅かすレベルにはないと考えられた。

表4.1.1 固化体および固型化技術の比較

評価項目、指標など	目標値	改質硫黄固化体 (MS ₅₀)	エポキシ樹脂固化体 (1C, EPR ₈₀)
HgS配合 (wt%)	-	50	80
一軸圧縮強度 (MPa)	≥ 0.98	30.6	107.0
環告13号溶出試験 ($\mu\text{g/L}$)	≤ 0.5	0.05 ± 0.01	0.09 ± 0.01
ヘッドスペース試験 ($\mu\text{g/m}^3$)	≤ 1.0	< 0.1	< 0.1
タンクリーチング試験 ($\mu\text{g/L}$)	≤ 0.5	< 0.01	< 0.01
作業環境下の水銀濃度 ($\mu\text{g/m}^3$)	25 ^{*1}	Max. 5.0	Max. 1.0
材料費 (円) ^{*2, *3}	-	3,494 ^{*4}	508 ^{*5}
減容比 ^{*6}	-	1.0	0.5
ガス透過係数 ($\text{cm}^3 \cdot \text{cm} / (\text{cm}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{cmHg})$)	-	2.70×10^{-10}	3.03×10^{-11}

*1 労働安全衛生法上の管理濃度 (作業環境評価基準) ; *2 ラボでの購入実績に基づく試算であり、市場実勢価格ではないことに注意されたい。 ; *3 硫化水銀 1kgを固型化処理するのに必要な固型化材のみの費用 (使用電力料などは含まない。) ; *4 粉末硫黄、改質剤DCPDのみ ; *5 主剤1、硬化剤Cのみ ; *6 硫化水銀 1kgあたりの固化体容積 (対改質硫黄固化体)

3) 劣化試験および特性把握

本研究で実施した試験では、改質硫黄固化体 (MS₅₀) およびエポキシ樹脂固化体 (EPR₈₀) には着火性がなく、消防法上の第二類危険物 (可燃性固体) には該当しなかった。着火性のない硫化水銀が無機ファイラーとして配合されることで難燃性が向上したと考えられる。火災時を想定した試験の結果から、エポキシ樹脂固化体は200℃付近から重量減少が開始すること、主な副生ガスはCO、CO₂で硬化剤に起因するシアン化水素は少ない (<約5%) ことが明らかになった。

本研究で実施した種々の劣化試験の結果の概要をまとめて表4.1.2に示す。種々の劣化試験や特性把握を行った結果、エポキシ樹脂固化体は概ね基準値を満たし、改質硫黄固化体とほぼ同等の安定な固化体であることが確認でき、科学的に安定な廃水銀等処理物の固型化技術が開発できた。ただし、いくつか注意すべき管理要件が明らかとなった。溶出試験では固化体表面に付着している水銀によって初期の溶出濃度が高くなったり、アルカリ条件下では (樹脂劣化ではなく) 固化体表面付近にある硫化水銀が可溶化されることがあるため、固化体の表面を耐水性、耐アルカリ性の高い塗料でコーティングするなどの対策が必要である。地上保管を想定した場合、耐光性の高い樹脂であっても、紫外線劣化を防ぐための措置が必要である。エポキシ樹脂コーティング (水銀の封じ込め) に加えて、ウレタン樹脂などを用いたコーティング (上塗) をすることで、耐候性の向上が見込める。

表4.1.2 劣化試験の主な結果

		改質硫黄固化体 (MS ₅₀)		エポキシ樹脂固化体 (EPR ₈₀)
抗菌性試験	○	黄色ぶどう球菌 : $R=3.4^{*1}$ 大腸菌 : $R=0.1^{*1}$	◎	黄色ぶどう球菌 : $R > 4.2^{*1}$ 大腸菌 : $R > 5.5^{*1}$
凍結融解試験	◎	HS試験 ^{*2} 、圧縮強度、環告13号、タンクリーチング試験で基準値を達成	○	HS試験 ^{*2} 、圧縮強度、環告13号で基準値を達成。タンクリーチング試験で1条件のみ超過。
耐候性試験	◎	HS試験 ^{*2} 、圧縮強度、環告13号、タンクリーチング試験で基準値を達成	○	HS試験 ^{*2} 、圧縮強度、環告13号で基準値を達成。タンクリーチング試験で1条件のみ超過。
UV-LED促進劣化試験	◎	HS試験 ^{*2} で基準値を達成	◎	HS試験 ^{*2} で基準値を達成
耐腐食性試験	◎	酸性、アルカリ性、有機酸性条件で基準値を達成	◎	酸性、アルカリ性、有機酸性条件で基準値を達成

*1 抗菌活性値 (R) >2.0 で抗菌効果あり *2 HS試験: ヘッドスペース試験

(2) 廃水銀処理物の地中埋立時の水銀挙動に関する研究

埋立処分された水銀廃棄物中の水銀は、浸出水への流出や気化水銀として大気拡散及び埋立廃棄物への移動などが想定される。本研究は約5年間に亘って、水銀廃棄物の3種類の埋立手法の違いによる水銀の挙動や、埋立廃棄物の違いによる水銀の挙動について検討した。また、基礎実験では共存物質が水銀廃棄物に与える影響など、水銀廃棄物の埋立処分の前段での適切な中間処理による水銀の流出負荷抑制手法を検討した。埋立実験は浸出水への水銀流出や、実験槽上部からの気化水銀の大気拡散特性等について、埋立開始から56ヶ月間に亘って時系列的に調査した。そして、2019年9月に埋立実験槽を解体し、充填した水銀廃棄物の埋立地内での56ヶ月後の挙動を確認するため、解体廃棄物について水銀含有量（総水銀、メチル水銀）、水銀の化学形態、溶出試験、気化水銀の発生などを調査し、本実験における埋立処分された水銀廃棄物の埋立挙動を検討した。

本実験結果を元に、水銀廃棄物の各処分手法ごとの水銀挙動、埋立処分前の対策について以下にまとめるとともに、水銀の環境負荷抑制に最適な埋立条件の比較を表4.2.1に及び「埋立処分可能」な最適な条件となった混合廃棄物（固化物槽）の実験結果を図4.2.1に示した。

表4.2.1 水銀廃棄物の環境負荷抑制のための埋立条件

埋立廃棄物	埋立構造	水銀廃棄物の埋立方法	5年間の経時変化			解体後（5年後）の廃棄物			総合
			T-Hg (浸出水)	M-Hg (浸出水)	V-Hg (気化水銀)	T-Hg (含有)	T-Hg (溶出)	M-Hg (含有)	
混合廃棄物	準好気性槽	混合槽	×	△	×	—	×	△	×
		層状槽	△	△	○	—	△	△	△
		固化物槽	○	○	○	—	○	○	○
	嫌気性槽	混合槽	×	△	×	—	×	△	×
		層状槽	×	△	○	△	△	△	×
		固化物槽	△	△	○	△	○	△	△
燃え殻単独	準好気性槽	混合槽	×	△	×	—	×	△	×
	嫌気性槽	混合槽	△	△	×	—	×	△	×

T-Hg・V-Hg : ○規制基準値以下, △: 埋立期間中に規制基準値超え, ×: 規制基準値を超える
 M-Hg : ○メチル水銀の生成可能性が小, △: 生成の可能性・不明

1) 黒色硫化水銀を廃棄物と混合埋立する手法（混合槽）

黒色硫化水銀単体を廃棄物（混合廃棄物や燃え殻単独）と混合埋立処分した場合は、埋立構造に関係なく水銀が浸出水や大気拡散などを經由して埋立地系外へ流出し、排水基準や環境基準などの法規制値を超える可能性がある。また、黒色硫化水銀はアルカリ性環境下では二硫化水銀（ HgS_2^{2-} ）を形成し、再溶解する懸念が確認されたことから、高アルカリ領域の環境下やアルカリ廃棄物への単独埋立処分は不適である。メチル水銀も極微量生成している可能性もあることから、これらを総合的判断すると金属水銀を硫化した硫化水銀をそのまま他の廃棄物と混合して埋立てることは望ましくなく、「埋立処分不可」と判定できる。

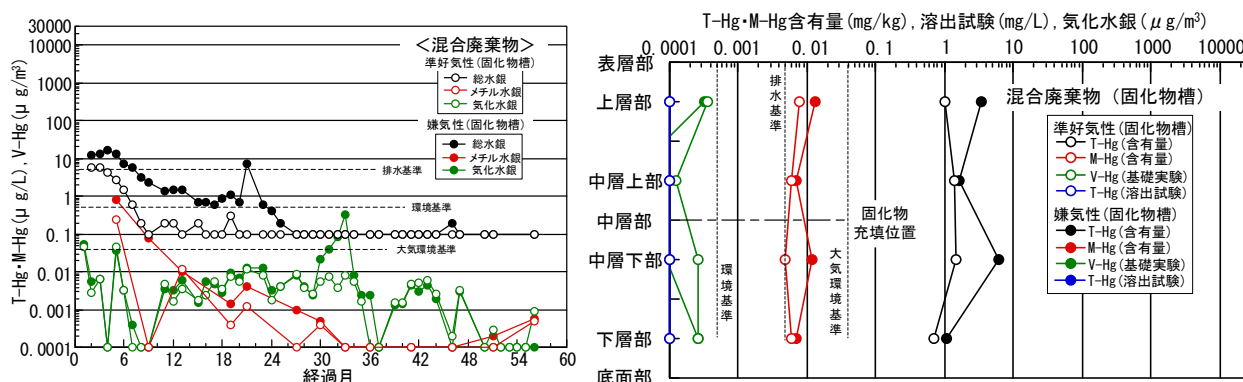
2) 黒色硫化水銀を槽中央部に一塊で埋立処分する方法（層状槽）

黒色硫化水銀を埋立実験槽中央部に一塊で埋立処分した場合、準好気性・嫌気性に関係なく、充填した黒色硫化水銀の直上又は直下の廃棄物中の水銀含有量が高くなる傾向にあり、黒色硫化水銀中の水銀が廃棄物へ移動していた。特に、実験槽下層部が帯水（15cm）した嫌気性槽では、槽上部からの散水による浸出水（保有水）の一過性による通過と、廃棄物や充填した一塊の黒色硫化水銀周辺の高含水率化により、充填した黒色硫化水銀の塊が攪乱され、その直下の廃棄物中の水銀含有量が高くなる傾向を示し、長期に亘って水銀の浸出水への流出現象も起きていたことから、嫌気性埋立の場合は「埋立処分不可」の判定である。一方で、準好気性埋立の場合は、一塊で充填した黒色硫化水銀の直下で廃棄物中の水銀含有量が高くなっているものの、浸出水への水銀流出は埋立初期にSS由来で流出しているが、その後は環境基準以下又は不検出で推移していることから、埋立初期の水銀対策等を実施することで、「条

件付きの埋立処分可能」と判定できる。

3) 水銀廃棄物の固化物を槽中央部に埋立処分する方法（固化物槽）

黒色硫化水銀をセメント固化した固化物を槽中央部に埋立処分した場合、嫌気性埋立において「層状槽」と同様に、固化物周辺の含水率が高くなっていたが、固化物自体は解体時の状況も充填時と大きな変化はなく、埋立初期にSS由来の水銀が短期間流出している程度であることから、埋立初期の対策を実施することで「条件付きの埋立処分可能」と判定できる。一方、固化物を準好気性埋立地に埋立処分した場合、埋立初期から浸出水や気化水銀などの規制値を概ね満足し、固化物中の水銀の廃棄物への移動もほとんどなく、更には、メチル水銀もほとんど生成していない状況にあることから、水銀廃棄物の固化物を準好気性埋立構造の埋立地への埋立処分は「埋立処分可能」と判定できる。



浸出水中の水銀と気化水銀の経時変化 層状別解体廃棄物中の水銀含有量・溶出試験・気化水銀
図4.2.1 黒色硫化水銀のセメント固化物を槽中央部に充填した固化物槽（準好気性・嫌気性）

4) 水銀廃棄物の固化物の埋立処分前の対策

本実験における水銀廃棄物を埋立処分する最適条件は、黒色硫化水銀をセメント固化した固化物を埋立処分する手法が適正であることが確認できたが、作成したセメント固化物は埋立処分する前に一時地上保管することが想定される。そこで、水銀廃棄物の基礎実験から得られた結果では、水銀廃棄物の物理的対策として「作成した固化物を一旦洗浄することで、固化物に付着している水銀を洗浄・除去でき、固化物からの水銀溶出量や気化水銀発生量を大幅に抑制できた」ことから、水銀廃棄物を埋立処分する際には、固化物の埋立事前に洗浄プロセスを導入することで、更に、水銀廃棄物の埋立処分に伴う水銀流出リスクを大幅に抑制できる効果が見込めることが想定できた。

5) まとめ

水銀廃棄物の埋立方式や埋立手法を変化させることで異なる埋立処分環境となった埋立実験槽ごとの結果を照合することで、水銀流出に①物理的な水銀粒子の移動、②気温変動による気化、③アルカリ pH による溶出促進、④混合廃棄物（焼却灰・汚泥）への吸着、⑤有機物による吸着阻害などが関与することが推察された。埋立実験過程で推察された水銀流出に関与する要因は、5年間の埋立実験後に解体した埋立処分層の水銀分布、水銀安定性、水銀化学形態などによって確認された。この結果、水銀廃棄物の埋立処分に伴う水銀の系外への流出率は0.1%以下で、水銀廃棄物中の水銀の大部分が埋立地内に残存していた。更に、本実験で使用した黒色硫化水銀は埋立5年後の水銀の化学形態も黒色硫化水銀であり、非常に安定していることを確認した。これらのことを踏まえ、水銀廃棄物中の水銀流出抑制の最適な埋立処分条件は「洗浄した水銀廃棄物の固化物を準好気性埋立地の中層部・上層部へ埋立処分」であった。今後は黒色硫化水銀の固化物の作成方法の違いによる埋立処分への影響も検討が必要がある。

（3）廃水銀処理物の処分・保管時のリスクコミュニケーションに関する研究

1) 地上保管施設の環境リスク評価

地震の規模は対数正規分布、震源深さも対数正規分布、震源までの距離はワイブル分布が最適であると評価された（図4.3.1）。

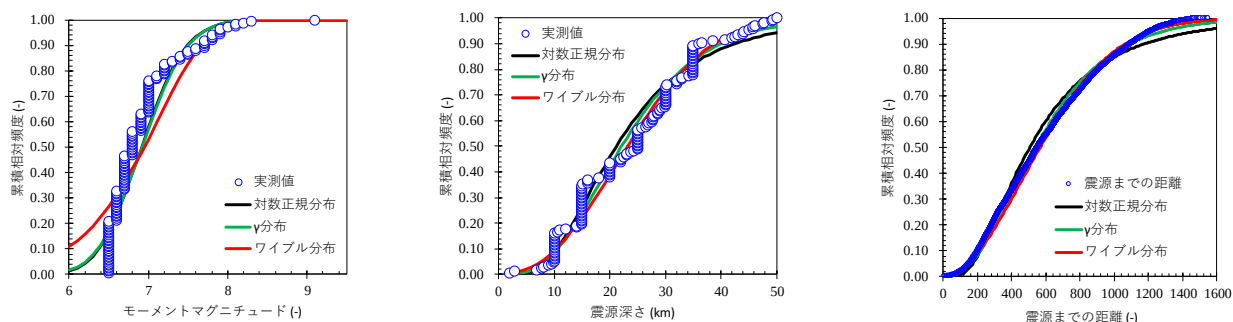


図4.3.1 地震の統計分布（左：規模、中央：震源深さ、右：震源までの距離）

各都府県庁所在地における30年間で超過確率が3%と6%、50年間で超過確率が2%、5%、10%および39%となる最大地表速度を求め、地震ハザードステーションでの報告値と比較することとした。結果を図4.3.2に示す。本研究のモデルによる予測値と地震ハザードステーションでの報告値が良い一致を示している半面、南海～東海トラフ地震の影響を多いに受けると考えられる高知、和歌山、名古屋、静岡では地表最大速度を過小評価する傾向にある。

地上保管施設付近での発生する地震について震度5弱以上の地震の100年間までの発生超過確率を図4.3.3に示す。地上保管施設の全壊が懸念される震度7の場合、25年間までに発生する確率が0.83%、50年間で1.7%、100年間で3.3%であった。次に、地上保管施設からの100年間水銀総排出量期待値を求め

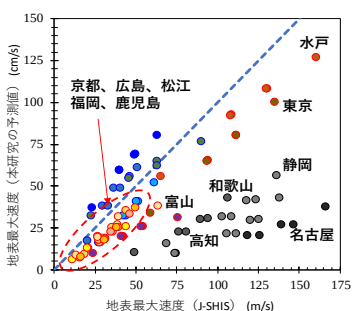


図4.3.2 都府県庁所在地での地表最大速度の比較

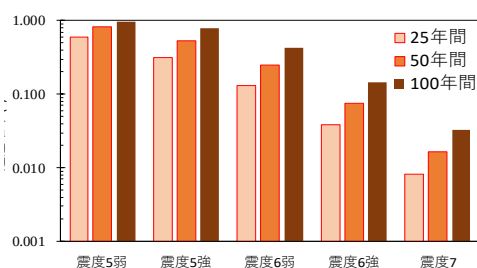


図4.3.3 地上保管施設での震度5弱以上の地震の発生超過確率

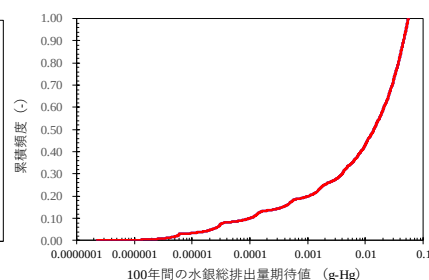


図4.3.4 100年間の水銀総排出量期待値

た（図4.3.4）。75パーセンタイル範囲は0.138 mg-Hg～41.5 mg-Hgであり、中央値は13.3 mg-Hgであった。環境中へ1000年間排出し続けると仮定してその環境リスクを評価したところ、生物濃縮係数などの大きな不確実性をすべて考慮したとき、水銀曝露量がWHOによる耐用摂取量を超える可能性は0.01%以下と推定された。水銀の安定化処理が1000年間の持続的安定を保障できれば、地震による倒壊を想定した地上保管施設からの水銀排出に寄る環境リスクは十分に小さい。よって、安定化処理の長期間持続安定性が重要であり、安定化処理の持続安定性評価が環境リスク評価の観点においても極めて重要である。

2) 水銀への嫌悪感の定量的評価と水銀の最終処分場建設に対するリスク受容への影響分析

回答データの一意性係数は0.861、一致性係数は0.233～0.441であった。一致性係数について χ^2 検定したところ、0.1%有意水準で回答のランダム性が否定された。水銀や他の有害物質（放射性廃棄物など）への嫌悪感について、Thurstone および Scheffe の両手法は良い一致を得た。水銀は放射性廃棄物に次いで強い嫌悪感を認知されており、ダイオキシンや感染性医療廃棄物への嫌悪感より強い（図4.3.5）。水銀への嫌悪感と最終処分場建設への許容度（＝スコアが高いほど許容）を比較すると（図4.3.6）、処分場建設を許容しない人ほど嫌悪感が強くなる半面、処分場建設を許容する人においても嫌悪感が強くなる傾向が見出された。最終処分場建設への態度（許容・拒絶）は、物理的距離や行政区物的距離に顕著な影響を受けていなかった。水銀溶出に対する許容度を時間と溶出確率別に定量化したところ、溶出確率が高くて時間が長い方が好まれる傾向にあった。水銀溶出への態度が許容側へ変化する

る場合、時間 1000 年で態度変化する人が多くなった（図 4.3.7）。水銀の最終処分場建設への合意形成に向けて、1000 年以上の環境溶出防止を保証することが許容的態度へ貢献することが考えられる。

最終処分場の安全性を判断するにあたり、重視する項目への信頼感（信頼性）を同じく一対比較法によって定量化した（図 4.3.5）。水銀の漏出防止対策への信頼性が最も高く、監視体制への信頼性、処分場の安全性を示す科学的証明やデータがこれに続いた。漏出防止対策や監視体制の頑健性をいかに科学的証明やデータでもって保証できるかが、許容的態度に対して重要である。

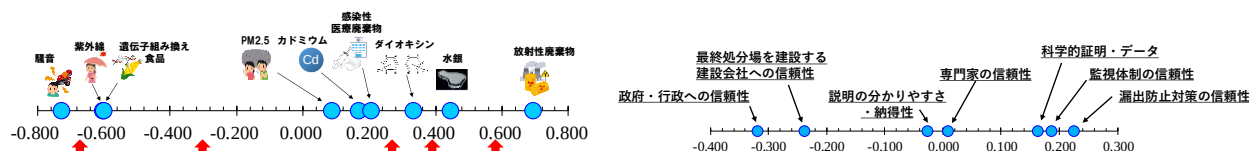


図4.3.5 水銀への嫌悪感（左）と最終処分場の安全性を判断する上で重視する信頼感（右）

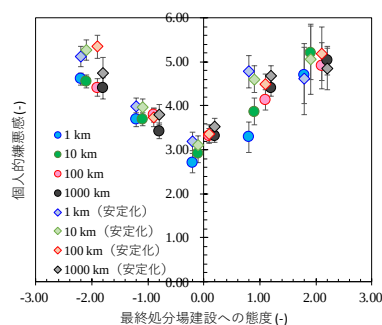


図4.3.6 水銀への嫌悪感と最終処分場建設への許容度

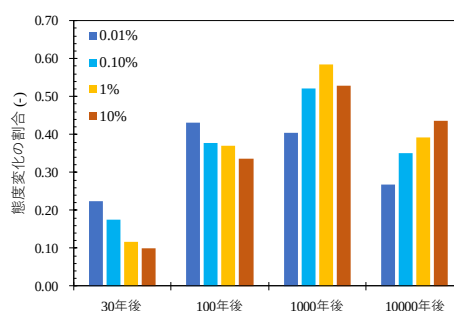


図4.3.7 水銀溶出への態度変化の割合

5. 本研究により得られた主な成果

(1) 科学的意義

廃水銀処理物の地上保管にとって重要な発ガス評価試験として、基礎的な実験を行ってヘッドスペース試験方法を確立した。決定した基本条件は、試料量10 g、温度25℃、湿度60%RH、ガス流量0.5 L/min（空気）、試験時間3時間（静置なし）である。新たな硫化水銀固型化技術として、エポキシ樹脂による固型化を検討し、最適配合（主剤1、硬化剤C、HgS 80wt%）を決定した。エポキシ樹脂の水銀抑制機能は、ガラス転移温度（ T_g ）を一つの指標として評価できた。更なる水銀の封じ込めには、固化体表面のコーティング処理が有効であった。種々の評価試験から、エポキシ樹脂固化体は概ね基準値を満たし、改質硫黄固化体とほぼ同等の安定な固化体であることが確認でき、科学的に安定な廃水銀処理物の固型化技術が開発できた。火災時対応や、アルカリとの接触、紫外線劣化等を防ぐなどの管理手法を提示した。

水銀廃棄物の埋立実験と基礎実験より、地上保管から埋立処分に至る水銀廃棄物の適正処理における水銀による環境負荷手減のための最適な条件は次の通りである。①地上保管は黑色硫化水銀の固化物に対して「水洗浄プロセス」を導入し、保管施設内での気化水銀発生の低減化や埋立処分時におけるSS性の水銀を事前に洗浄・除去し、埋立処分時の水銀負荷軽減を図る。②洗浄した固化物の埋立処分の最適条件は準好気性埋立地内の非滯水部の中層域や上層域で、アルカリ環境以外のエリアへの埋立処分である。この手法により、水銀の浸出水への流出や気化水銀による大気拡散量が水銀充填量に対して0.1%以下の流出率と極めて小さく、水銀廃棄物中の水銀はほとんど埋立実験槽内の固化物中に残存し流出を抑制できる。更に、埋立5年後の水銀の化学形態も黑色硫化水銀であり、非常に安定した状態で水銀廃棄物を適切に安全に処理・処分が可能であることが提案できた。

地震の発生確率と規模の確率のみならず、震源までの距離についても確率的統計分布を導入することで、「場所を特定しない」条件においても地震に伴う被害のリスク評価を可能とする手法を開発した。また、水銀の環境動態におけるモデルパラメータの大きな不確実性に対しても統計分布を導入し、不確実性を加味したリスク評価を可能にした。心理的嫌悪感を心理モデルおよび統計モデルの両者で定

量化し、良い一致が得られることを見出した。そして、NIMBY施設への態度は拒絶・許容ともに嫌悪感が増加する傾向にあることを見出し、許容的態度には嫌悪感と理知的判断の相克が背後にあることを見出した。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

特に記載すべきことはない。

<行政が活用することが見込まれる成果>

本研究で決定したヘッドスペース試験の方法・条件は、水銀廃棄物ガイドライン（【ヘッドスペース分析方法の例】）への反映が見込まれる。エポキシ樹脂を用いた新たな固型化技術は、水銀廃棄物ガイドライン（3.6.1 中間処理基準（1）硫化・固型化）への追記が見込まれる。エポキシ樹脂固化体に限らず、固化体の表面コーティングは、水銀の封じ込めや、固化体の耐候（光）性、耐久性などの向上に効果が見込まれるため、多重防御の観点から今後の技術開発について検討する必要がある。

3種類の水銀廃棄物の約5年間に亘る埋立実験と気化水銀の基礎実験結果から、水銀廃棄物の埋立処分に伴う水銀の環境負荷低減を確保した埋立手法を検討した。その結果、埋立処分前の水銀廃棄物への対応として、水銀廃棄物の固型化を実施すること、固化体の一時保管（地上保管）期間中に、「水洗浄プロセス」を導入すること、埋立処分においては、水銀廃棄物は固化物とし、埋立構造としては準好気性埋立構造で、固化物の埋立位置は埋立地内の非帯水域で高含水率になりにくい上層又は中層域に、アルカリ廃棄物単独や有機物の多い廃棄物との混合埋立は避けることが提案される。これらの裏付けデータや追加要件の水銀廃棄物ガイドラインへ追記が見込まれる。

地震の発生や水銀の環境動態における不確実性まで含めた上で地上保管施設の環境リスクを評価したことから、環境リスクとその不確実性を具体的な数値幅として提示することが可能となった。科学的証明やデータは、住民が最終処分場の安全性を判断する上で重要な情報と認知されており、有効的に活用できることを見込まれる。なお、最終処分場のリスク認知には水銀の溶出確率よりも溶出に至るまでの時間の方が重要視されており、安全期間の目安として1000年間の提案される。また、最終処分場建設へ許容的態度を取る場合において、嫌悪感と理知的判断の相克が背後にあり、合意形成に向けて注意深い対応を取る際に、この点を踏まえることが提案される。

6. 研究成果の主な発表状況

(1) 主な誌上発表

<査読付き論文>

- 1) 高橋史武：土木学会論文集G, Vol. 73, No. 7, III_307-III_314 (2017)
水銀の環境リスク推定における環境動態モデルシミュレーションの不確実性評価
- 2) R. Tshumah-Mutingwende, F. Takahashi, E.M. Cukrowska, J. Lusilao-Makiese: Applied Environmental Research, 40, 2, 17-31 (2018)
Cladophora sp. biosorption of metal-contaminated water
- 3) R. Tshumah-Mutingwende, F. Takahashi: Environmental Pollution, 252, 627-636 (2019)
Physio-chemical effects of freshwaters on the dissolution of elemental mercury
- 4) Y. Xiong, M. Takaoka, T. Kusakabe, K. Shiota, K. Oshita, T. Fujimori: J Mater Cycles Waste Manag., 22, 354-364 (2020)
Mass balance of heavy metals in a non-operational incinerator residue landfill site in Japan
- 5) T. Kusakabe and M. Takaoka: Global Environment Research, (2020) (in press)
Sulfurization and Solidification of Wastes Consisting of Elemental Mercury
- 6) A. Sano, K. Kawase, R. Yanase, M. Takaoka, A. Matsuyama, F. Takahashi, T. Kato: Global Environment Research, (2020) (in press)
Long-term Mercury Behavior in Stabilized/Solidified Mercury Wastes by a Simulated

Landfill Experiment Using Lysimeters (in press)

- 7) F. Takahashi: Global Environment Research, (2020) (in press)

Cognitive aversion of mercury scaled by pairwise comparison method with Thurstone's law of comparative judgement

(2) 主な口頭発表 (学会等)

- 1) R. Tshumah-Mutingwende, F. Takahashi, E. Cukrowska, J. Lusilao-Makiese: 21st Korea-Japan Joint International Session, Korea Society of Waste Management, 426, Jeonju, 11th May (2017)
"Batch reactor design for algal biosorption of mercury-contaminated acidic water in the presence of competing ions"
- 2) R. Tshumah-Mutingwende, F. Takahashi, E. M. Cukrowska: 4th EnvironmentAsia International Conference on Practical Global Policy and Environmental Dynamics "EnvironmentAsia2017", 84-92, Bangkok, 21-23rd Jun (2017)
"Batch reactor design for algal biosorption of mercury-contaminated acidic water"
- 3) F. Takahashi: 12th International Conference on Mercury as Global Pollutant "ICMGP2017", TP-134, Providence, Rhode Island, 16-21st Jul (2017)
"Impact analysis of model parameter uncertainty on mercury emission from mercury disposal landfill site and methylmercury exposures to human bodies"
- 4) 高橋史武, ロサモンド ツマームティンウェンデ: 第28回廃棄物資源循環学会研究発表会 (2017)
「回収水銀の埋立処分における環境リスク評価(その3): 水銀摂取量や体重の変動も踏まえた水銀曝露リスクの評価」
- 5) R. Tshumah-Mutingwende, F. Takahashi: 第28回廃棄物資源循環学会研究発表会 (2017)
"Simulation of mercury fate and transport in Ngwabalozi River, Zimbabwe using a simple mass balance model"
- 6) R. Tshumah-Mutingwende, F. Takahashi: 2017 CHINA-JAPAN-KOREA Joint Symposium on Energy and Environment, 24-25, Dalian, 26-28th Oct (2017)
"Effect of uncertainty of mercury fate and transport model parameters on simulated Hg exposure results"
- 7) F. Takahashi, R. Tshumah-Mutingwende: 2017 CHINA-JAPAN-KOREA Joint Symposium on Energy and Environment, 40-41, Dalian, 26-28th Oct (2017)
"The impact of uncertainty of mercury mass inflow to semi-closed water reservoir on mercury exposure to human bodies via food-chains"
- 8) 佐野彰、加藤貴史、柳瀬龍二、川瀬敬三、高岡昌輝: 第39回全国都市清掃研究・事例発表会 (2018)
「硫化処理された水銀廃棄物の水銀溶出特性」
- 9) 川瀬敬三、柳瀬龍二、松藤康司、佐野彰、高岡昌輝、高橋史武: 第39回全国都市清掃研究・事例発表会 (2018)
「水銀廃棄物固化体の埋立処分に伴う水銀気化特性の検討」
- 10) F. Takahashi, R. Tshumah-Mutingwende: 22nd Korea-Japan Joint International Session, Korea Society of Waste Management, 541, Gwangyang, 10th May (2018)
"Quantitatively scaled negative impression of mercury: A comparison with other hazardous materials and events"
- 11) F. Takahashi: 9th China-Japan Joint Conference on material recycling and waste management, 128-131, Kyoto, 25-28th Aug (2018)
"Negatively emotional intensity of mercury and other pollutants scaled quantitatively by pairwise comparison method with Thurstone's law of comparative judgement"
- 12) 宮原睦、日下部武敏、藤森崇、大下和徹、高岡昌輝: 第29回廃棄物資源循環学会研究発表会 (2018)

「廃金属水銀等の処理物質に対する大気中への安定性評価試験方法の検討」

- 13) 上西隆太、日下部武敏、塩田憲司、藤森崇、大下和徹、高岡昌輝：第29回廃棄物資源循環学会研究発表会（2018）
「エポキシ樹脂を用いた廃水銀硫化物の固型化技術の開発」
- 14) 高橋史武, R. Tshumah-Mutingwende：第29回廃棄物資源循環学会研究発表会（2018）
「回収水銀の埋立処分における環境リスク評価（その4）：湖沼の水体積と底質厚さが水銀曝露量に与える影響の評価」
- 15) R. Tshumah-Mutingwende, F. Takahashi：第29回廃棄物資源循環学会研究発表会（2018）
「Factors influencing the dark dissolution rate coefficient of elemental mercury in natural waters」
- 16) F. Takahashi, R. Tshumah-Mutingwende: 2018 Korea-China-Japan Joint Symposium on Solid wastes to Energy and Material application, 73-75, Asan, 18-20th Oct (2018)
“Uncertainty analysis of mercury exposure via food-chains in semi-closed water reservoir: The impact of reservoir volume and sediment thickness”
- 17) R. Tshumah-Mutingwende, F. Takahashi: Proceedings of the 10th Asia-Pacific Landfill Symposium “APLAS TOKYO 2018”, C1-3, Tokyo, 24-26th Nov (2018)
“Dark dissolution rate coefficient of elemental mercury in natural waters”
- 18) R. Uenishi, T. Kusakabe, K. Shiota, T. Fujimori, K. Oshita, M. Takaoka: The 10th International Conference on Combustion, Incineration/Pyrolysis, Emission and Climate Change, Bangkok, Thailand, Dec.18-21 (2018)
“Development of Solidification Technology for Sulfurized Waste Mercury using Epoxy Resin”
- 19) 柳瀬龍二, 川瀬敬三, 松藤康司, 高岡昌輝, 高橋史武：第40回全国都市清掃研究・事例発表会（2019）
「水銀廃棄物の埋立処分に伴う浸出水へのメチル水銀の流出特性」
- 20) 佐野彰, 加藤貴史, 柳瀬龍二, 川瀬敬三, 高岡昌輝：第40回全国都市清掃研究・事例発表会（2019）
「コンクリート固型化された水銀廃棄物の水銀溶出特性」
- 21) 川瀬敬三, 柳瀬龍二, 佐野彰, 高岡昌輝, 日下部武敏, 高橋史武：第40回全国都市清掃研究・事例発表会（2019）
「水銀廃棄物固化体の埋立処分に伴う水銀気化特性の検討（その2）」
- 22) Y. Xiong, T. Kusakabe, K. Shiota, K. Oshita, T. Fujimori, M. Takaoka: The 3R International Scientific Conference on Material Cycles and Waste Management, Bangkok, Thailand, Feb. 27-Mar.1 (2019)
“Mass balance of heavy metals in one closed landfill site for incinerator residue in Japan”
- 23) 高岡昌輝：水銀及び水銀廃棄物の除去・処理技術セミナー（2019）
「エポキシ樹脂を用いた廃水銀処理物の固型化技術の開発」
- 24) F. Takahashi: 2019 Japan-China-Korea joint symposium on Energy and Environment, 56, Karuizawa, 5-7th Sep (2019)
“Perceptive abhorrence of hazardous substances and events scaled by pairwise comparison method using Thurstone and Scheffe approaches”
- 25) 高橋史武：第30回廃棄物資源循環学会研究発表会（2019）
「水銀に対する嫌悪感に関する研究（その1）：嫌悪感の定量的評価」
- 26) 佐野彰, 加藤貴史, 柳瀬龍二, 川瀬敬三, 高岡昌輝：第41回全国都市清掃研究・事例発表会（2020）
「中間処理された水銀廃棄物の埋立処分環境に対する安定性評価」
- 27) 川瀬敬三, 柳瀬龍二, 松藤康司, 佐野彰, 高岡昌輝, 高橋史武：第41回全国都市清掃研究・事例

発表会（2020）

「水銀廃棄物固化体の埋立処分に伴う水銀気化特性の検討（その3）」

7. 研究者略歴

研究代表者

高岡 昌輝

京都大学大学院工学研究科修士課程修了、京都大学大学院工学研究科准教授、博士（工学）、現在、京都大学大学院工学研究科教授

研究分担者

1) 日下部 武敏

京都大学大学院工学研究科博士課程修了、京都大学大学院工学研究科附属流域圏総合環境質研究センター研究員、現在、京都大学大学院工学研究科助教

2) 柳瀬 龍二

福岡大学工学部卒業、福岡大学環境保全センター准教授、現在、福岡大学環境保全センター教授

3) 高橋 史武

東京大学大学院工学系研究科博士課程修了、九州大学大学院工学研究院助教、現在、東京工業大学大学院環境・社会理工学院 准教授

II. 成果の詳細

II-1 廃水銀処理物の長期安定性評価試験・管理手法の開発

京都大学

大学院工学研究科 都市環境工学専攻

高岡 昌輝・日下部 武敏

〈研究協力者〉

京都大学大学院工学研究科都市環境工学専攻

宮原睦（平成29～平成30年度）

京都大学大学院工学研究科都市環境工学専攻

上西隆太（平成29～令和元年度）

平成29～令和元年度研究経費（累計額）：46,692千円（研究経費は間接経費を含む）

（平成29年度：15,564千円、平成30年度：15,564千円、令和元年度：15,564千円）

〔要旨〕

水銀に関する水俣条約の発効に伴って発生する余剰水銀は廃水銀としての長期適正管理が必要である。廃水銀については硫化・固型化処理が必要であるが、新たな廃棄物であることに鑑み、処理物の長期間の安定性および最適な処分方法については引き続き検証、検討を進めていくことが必要である。当面のリスク管理の容易さからは地上保管を実施した上で、最終的に地中処分に移行することも想定する必要がある。したがって、本研究では廃水銀処理物を地上保管することを想定し、地上保管に応じた評価法の確立と新たな固型化技術を開発することを目的とした。地上保管に重要な試験方法として、大気への放出を評価するヘッドスペース試験法を確立した。基本条件は、試料量10 g、温度25℃、湿度60%RH、ガス流量0.5 L/min（空気）、試験時間3時間（静置なし）と決定した。新たな硫化水銀固型化技術として、エポキシ樹脂による固化を検討した。最適配合（主剤1、硬化剤C、HgS 80wt%）を決定した。エポキシ樹脂の水銀抑制機能は、ガラス転移温度（ T_g ）を一つの指標として評価できた。水銀廃棄物ガイドラインで規定されている改質硫黄および樹脂系固型化材により作製した廃水銀等処理物に対して種々の評価試験（耐熱性、耐腐食性、耐候（光）性、耐微生物性等）を行い、評価した。エポキシ樹脂固化体は概ね基準値を満たし、改質硫黄固化体とほぼ同等の安定な固化体であることが確認でき、科学的に安定な廃水銀処理物の固型化技術が開発できた。また、更なる水銀の封じ込めには、エポキシ樹脂を用いた固化体表面のコーティング処理が有効であった。種々の評価試験を通して、固化体の保管や処分をする際には、火災時対応や、アルカリとの接触、紫外線劣化を防ぐ措置が必要であることが明らかとなった。

〔キーワード〕

水銀に関する水俣条約、廃水銀等処理物、ヘッドスペース試験、エポキシ樹脂、長期安定性評価

1. はじめに

2017年8月に水銀に関する水俣条約が発効し、水銀の排出・放出・利用は厳しく制限されるようになった。我が国では将来的に余剰水銀が発生し、廃水銀として長期適正管理が求められる。水銀に関する水俣条約を踏まえた廃棄物処理法施行令の一部改正により、廃水銀等の処分はあらかじめ精製・硫化・固型化することが義務付けられることとなった。硫化・固型化処理については、これまでの調査研究により一定の見通しは得られているが、廃水銀等が新たな廃棄物であることに鑑み、処理物の長期間の安定性および最適な処分方法については引き続き検証、検討を進めていくことが必要である。

硫化・固型化した廃水銀処理物は欧州連合（EU）に存在する廃岩塩鉱のような処分場所を持たない我が国や世界の多くの国では人工構造物の中で長期的に処分することを模索しなければならない。これまでの研究では最終的には人的関与ができなくなることを想定して地中処分の研究が実施されてきたが、当面のリスク管理の容易さからは地上保管を実施した上で、最終的に地中処分に移行することも想定する必要がある。しかしながら、金属水銀の長期保管は米国で実施されているものの、廃水銀等処理物の地上保管については世界的に見ても検討されていない。

2. 研究開発目的

本研究では、廃水銀処理物を地上保管することを想定し、地上保管に応じた評価法の確立と新たな固型化技術を開発し、既存の改質硫黄による処理物と比較し、評価することを目的とした。硫化・固型化処理については、これまでの調査研究により一定の見通しは得られているが、地上保管を想定する場合には地中保管とは異なる要件が求められる。特に固化体からの水銀ガスの発生に関する対策は不可欠であることから、基礎的な実験を行い、大気への排出を評価するヘッドスペース試験法を確立することを目的とした。さらに、樹脂系固型化材としてエポキシ樹脂の適用を検討し、新たな固型化技術を開発した。樹脂系固型化材を用いた廃水銀等処理物については、環境庁告示13号法で $0.5 \mu\text{g/L}$ 以下、大気への揮発（発ガス）は $1.0 \mu\text{g/m}^3$ 以下、一軸圧縮強度 0.98 MPa 以上を達成することを目標とした。加えて、水銀廃棄物ガイドラインで規定されている改質硫黄および樹脂系固型化材により作製した廃水銀等処理物に対して種々の評価試験を行い、廃水銀等処理物の凍結融解試験や耐ガス透過性、耐微生物性、紫外線の影響、耐熱性、耐腐食性、火災時の副生ガスを評価し、固化体を地上保管する際の管理要件を明らかにした。

3. 研究開発方法

3.1 ヘッドスペース試験方法の確立

3.1.1 参照サンプルの作製

ヘッドスペース試験におけるパラメータ（試料量、温度、湿度、ガス流量等）の影響を実験的に把握するため、本研究では2種類の参照サンプル（硫化水銀および水銀発生チューブ）を作製した。

バッチ式遊星ボールミル改造機（BX382、栗本鐵工所製）を用いて、粉末硫黄（ $>98\%$ 、ナカライテスク）と金属水銀（ $>99.99\%$ 、野村興産）から実験室内で作製された硫化水銀を用いた¹⁾。実験室で合成された硫化水銀サンプルのうち、低ヘッドスペース値（ $0.1 \sim 0.2 \mu\text{g/m}^3$ ）の硫化水銀と高ヘッドスペース値（ $>999.9 \mu\text{g/m}^3$ ）の硫化水銀を、重量比が9:1で全量を $1,500 \text{ g}$ とし、容量 2.8 L 、内径 160 mm の磁製ポットに入れた。そこに、ステンレス製ボール（ $\phi 4 \text{ mm}$ ）を充填率が30%となるように投入し、ポットミル回転台（ANZ-100S、日陶科学）に載せて回転速度 85 rpm で3時間処理した。

水銀発生チューブは、 $\phi 4 \times 6 \text{ mm}$ （肉厚 1.0 mm ）または $\phi 4 \times 7 \text{ mm}$ （肉厚 1.5 mm ）で長さ 30 mm のシリコンチューブの内に金属水銀（ $99.5+\%$ 、和光純薬）を $0.25 \sim 0.28 \text{ g}$ 程度を入れ、チューブ両端を $\phi 5 \text{ mm}$ 、長さ 5 mm のPTFEロッドで栓をしたものであった（図3.1.2）。これにより、水銀蒸気がシリコンチューブの微細な穴から抜けて出ること、安定した水銀が気相中に発生させることができる。

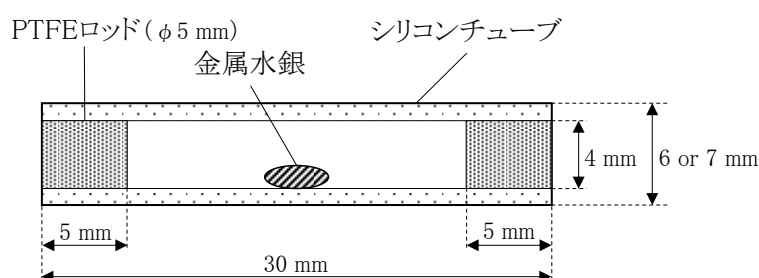


図3.1.2 水銀発生チューブの概要

3.1.2 FactSage6.1による熱力学的平衡計算

本研究では、ヘッドスペース試験の各パラメータの影響を実験的に調べるとともに、多成分系の熱力学的平衡状態を予測できるFactSage6.1（Thermfact and GTT-Technologies）による計算を行った。基本的設定は、 120 mL の容器中に空気（窒素 80% 、酸素 20% ）、黒色硫化水銀（metacinnabar, $\beta\text{-HgS}$ ）の形態で 10.0 g 存在しているとし、各種パラメータを変更させて熱力学的平衡状態に達した時の気相中水銀濃

度や固相中組成をEquilibモードで計算した。なお、FactSageによる熱力学的平衡計算では閉じた系を想定しており、ガスの流れについては考慮できないため定性的傾向を考察した。

3.1.3 ヘッドスペース試験方法

ヘッドスペース試験は、一定条件下における生成物質上部のヘッドスペースにおける水銀濃度を測定することで大気系汚染ポテンシャルを評価するとともに、硫化処理が完了しているか否かを確認するものである²⁾。水銀廃棄物ガイドラインの3.6.1 (1)硫化・固型化において、廃金属水銀等の硫化・固型化物に対して、硫化・固型化方法の諸条件が適切であったかを確認する方法の一つとして、ヘッドスペース試験方法が示され、 $1.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 未満であることが定められている³⁾。なお、気相中水銀濃度に関するEUの暫定規制基準⁴⁾は $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ で、日本の労働安全衛生法上の管理濃度(水銀及びその無機化合物、硫化水銀を除く)⁵⁾および日本産業衛生学会の許容濃度(水銀蒸気)⁶⁾はともに $25 \mu\text{g}/\text{m}^3$ である。

本研究におけるヘッドスペース試験の基本的な操作手順は次の通りであった。ヘッドスペース試験に用いる装置および容器のジオメトリを図3.1.1および図3.1.3に示す。まず、120 mLの広口共栓瓶に試料を入れ、瓶の底面に一様に分布するようにならした後、キャリアーガス流通のための接続管(コック付き)を取り付けたゴム栓で蓋をし、あらかじめ所定の温度および湿度に設定した電子冷熱恒温恒湿器(THR030FA、アドバンテック)に入れて1時間静置した(静置あり)。槽内には、槽外に設置したガス中水銀前処理装置(WLE-8、日本インスツルメンツ)と携帯型水銀測定装置(EMP-2、日本インスツルメンツ)(以下、水銀連続測定装置)に繋がっているチューブの口が設置されており、まず槽内の空気を直接吸引させてバックグラウンドを約1時間連続測定した。その後、チューブをコック(IN)に繋いでから、サンプル容器のコック(INおよびOUT)を同時に開放し、試料のヘッドスペースを経由したガスが水銀連続測定装置へ吸引されるようにした。この状態で3時間連続分析を行い、ヘッドスペース中の水銀濃度を測定した。水銀の濃度が完全に一定になるには時間がかかるが、ある程度の変動は許容することとした。データは1分間ごとの平均値として連続採取し、これらのデータの解析は、水銀濃度が比較的安定している区間1時間あたりの平均値を結果とした。

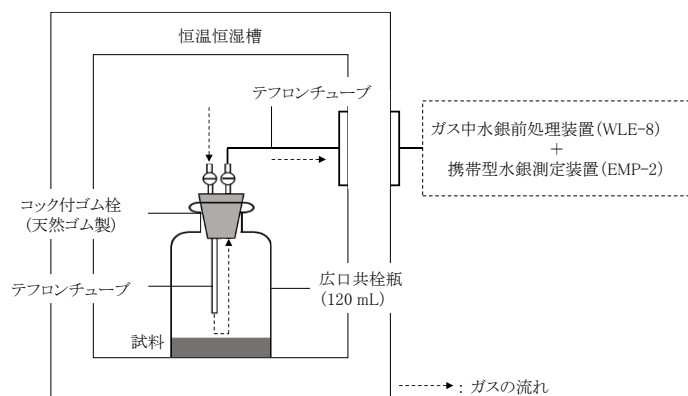


図3.1.1 ヘッドスペース試験装置の概要 (再掲)

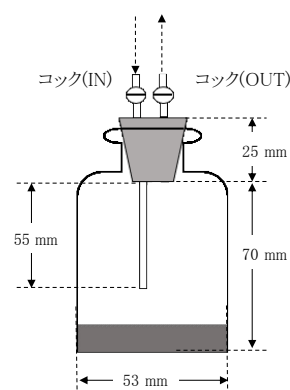


図3.1.3 容器のジオメトリ

ヘッドスペース試験の基本的な条件は、先行研究²⁾を参考にして、試料量10.0 g、温度25℃、湿度60%RHとした(以降、温度25℃、湿度60%RHを基本条件とする)。パラメータの影響は、試料量(10、30、50 g)、温度(25、40、70℃)、湿度(0、60、90%RH)、ガス流量(0.2、0.5、1.0 L/min)を変化させることで調べた。湿度0%RHの条件では、混合空気ガスボンベを用いた。ガス流量は、水銀連続測定装置の出口に精密ニードルバルブ付パーズ流量計を用いて制御し、ガス流量が1.0 L/minの場合にはエアーポンプ(MAS-01、アズワン)を用いた。また、キャリアーガス中 O_2 割合の影響を調べるため、 O_2 濃度の異なる校正用ガスボンベ(O_2 :0.100%、1.00%、10.0%、 N_2 :Balance、Air Liquide)、窒素ガスボンベ(N_2 >99.999%、 O_2 <2ppm、ZERO-A、住友精化)、実験室空気(O_2 :約21%)を用いてヘッドスペース試験を行った。本研究における全

体のフローを図3.1.4に示す。

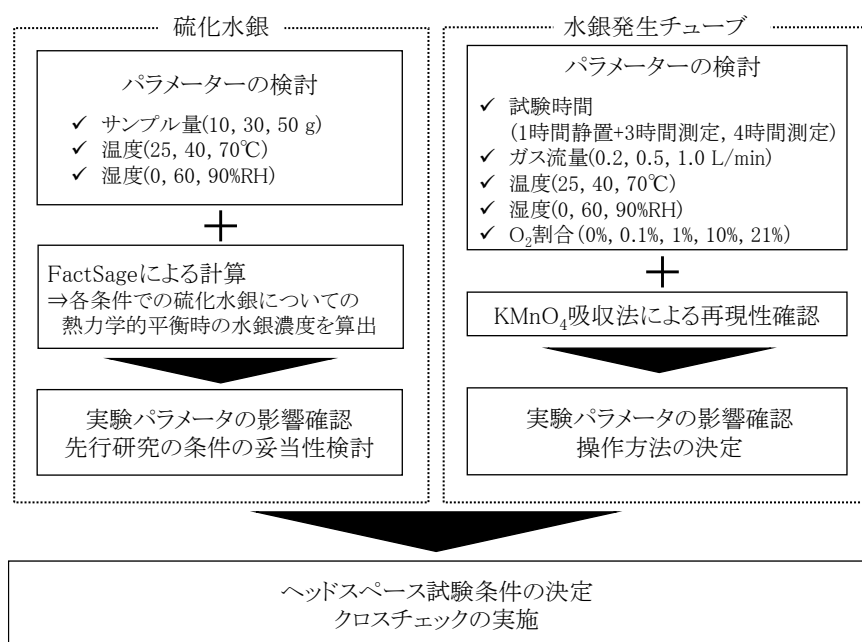


図3.1.4 ヘッドスペース試験方法の確立フロー

3.1.4 吸収法によるヘッドスペース試験

今後、ヘッドスペース試験を公定法とすることを目指す場合、水銀連続測定装置など的高額な装置を用いずに、汎用的な実験装置、器具でも評価試験を実施できるべきと考える。そこで、排出ガス中の水銀測定法の一つである吸収法⁷⁾によるヘッドスペース試験を行って結果を比較した。吸収法の概要図を図3.1.5に示す。吸収法によるヘッドスペース試験の条件は、25℃、60%RHとし、水銀発生チューブ（φ4×6 mm）を用いて実施した。水銀分析には、還元気化水銀測定装置（RA-4300、日本インスツルメンツ）を用いた。

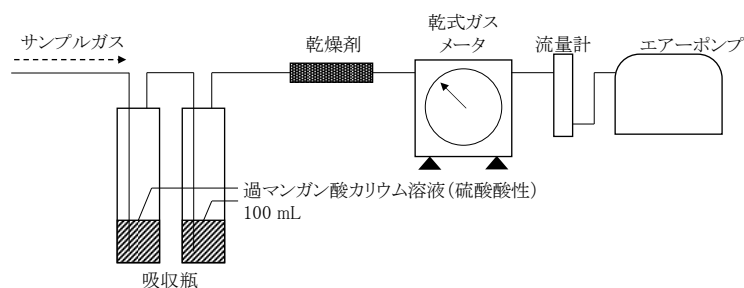


図3.1.5 吸収法の概要

3.1.5 クロスチェック

本研究で決定したヘッドスペース試験方法および条件を基に、3機関（機関Ⅰ～Ⅲ）で2種の水銀発生チューブを評価することで試験方法のクロスチェックを行った。使用した水銀発生チューブは、φ4×6 mmが10本（#01～#10）およびφ4×7 mmが6本（#11～#16）であった。各機関における試験条件等を表3.1.2に示す。ヘッドスペース試験の基本条件は、温度25℃、湿度60%RH、ガス流量0.5 L/minであった。試験時間は、連続3時間（静置なし）とし、最後の1時間の平均値をヘッドスペース値（μg/m³）として算出した。なお、機関Ⅱでのヘッドスペース値が他の2機関よりも高い値であったため、原因を探るために機関Ⅰにおいてクロスチェック実施後も繰り返し試験を実施した。試験の実施時期が異なるが、水銀発生チューブ封入から数か月が経過しており、値が安定していると考えてそれらのデータも含めて整理した。

表3.1.2 ヘッドスペース試験方法のクロスチェック概要

		機関Ⅰ(大学)	機関Ⅱ(企業)	機関Ⅲ(企業)
水銀分析装置	前処理装置	WLE-8 (日本インスツルメンツ)	—	WLE-8 (日本インスツルメンツ)
	試薬溶液	塩化すず(Ⅱ)溶液 (関東化学)	—	塩化すず(Ⅱ)溶液*1 (関東化学)
		1 M KOH*1	—	2 M KOH*1
	装置本体	EMP-2 (日本インスツルメンツ)	EMP-2 (日本インスツルメンツ)	EMP-2 (日本インスツルメンツ)
恒温恒湿器		THR030FA (Advantec)	SH241 (エスベック)	IS62(恒温器) (ヤマト科学)
温度, 湿度		25℃, 60%RH	25℃, 60%RH	25℃, —
広口共栓瓶(120 mL)		A (茶色, 並ガラス)	C (白色, ホウケイ酸ガラス)	A (茶色, 並ガラス)
水銀発生チューブ (2019.9.24 封入)	φ 4×6 mm	#01, #02, #03, #10	#04, #05, #06	#07, #08, #09
	φ 4×7 mm	#11, #12	#13, #14	#15, #16
試験実施日		2019.12.4-5*2	2019.12.4-6	2019.12.5-6

*1: 試薬から調製

3.2 樹脂系固型化技術の開発・適用

3.2.1 エポキシ樹脂の選定と固型化方法

エポキシ樹脂 (epoxy resin, EPR) の様々な物性は、主剤と硬化剤の組み合わせに強く依存する。本研究では、エポキシ樹脂用硬化剤メーカーにヒアリング調査を行い、実用化に向け一般的かつ比較的廉価なもので、毒劇物指定されていないものから主剤を2種類（主剤1、主剤2）と硬化剤を4種類（硬化剤A、硬化剤B、硬化剤C、硬化剤D）の8つの組み合わせに絞り込んだ（以降、1Aのように表記）。さらに、硫化水銀（HgS）の混合比を6段階（0、50、60、70、80、90wt%）に振って、エポキシ樹脂固化体（合計48種）を作製し、主剤と硬化剤を選定し、HgSの最適配合を決定した。本研究で用いた主剤と硬化剤を表3.1.1に示す。主剤1は基本液状タイプのビスフェノールA（BPA）型エポキシ樹脂であり、主剤2は主剤1の低粘度グレードであった。

表3.1.1 本研究で検討した主剤および硬化剤（再掲）

				主用途・特性
主剤	1	jER828	ビスフェノールA型	もっとも汎用的な液状タイプ
	2	ダイトサイザー DT-377	同上	主剤1の低粘度グレード
硬化剤	A	jERキュア ST12	芳香族ポリアミン	強靱性、電気、土木、塗料、接着
	B	ダイトクラール J-882	脂肪族ポリアミン	耐衝撃性、耐熱ショック性、低粘度
	C	ダイトクラール B-2413	脂環式ポリアミン	注型用、耐熱性、高Tg、耐光性
	D	ダイトクラール X-7000	脂肪族ポリアミン	ライニング、塗料、低粘度、耐酸性

主剤と硬化剤、HgS配合を決定するため、約120 gの少量スケールでエポキシ樹脂固化体を作製した。まず、250 mLのPEボトルに主剤を秤量し、硫化水銀を所定量加え、1分間ステンレス製薬さじで手練りし、十分に主剤と硫化水銀を混合させた。次に、所定量の硬化剤を加え、同様に1分間手練りして、十分に硬化剤が混合されたことを確認した後、サミットモールド缶（φ50×100 mm）に流し込んだ。主剤と硬化剤の配合比は、主剤のエポキシ当量と硬化剤の活性水素当量のカタログ値に基づいて決定した。使用した硫化水銀は先行研究¹⁾の条件を参考に遊星型ボールミル（BX382、栗本鐵工所）を用いて実験室で硫化処理したものであった。硬化反応は、送風定温乾燥機（DRM320DD、アドバンテック）を用い、ヒアリング調査に基づいて40℃、16時間の条件で行った。

本研究では、少量スケールで作製したエポキシ樹脂固化体の評価試験（ヘッドスペース試験、環告13

号溶出試験)により、主剤1、硬化剤C、HgS 80wt%が最適配合であった(以下、EPR₈₀のように表記する)。次に、種々の評価試験を適用するため、1C、HgS 80%のエポキシ樹脂固化体(EPR₈₀)を供試体スケール(φ50×100 mm)で作製した。まず、主剤1を2,000 mLのPEボトルに401.7 g秤量し、硫化水銀2,000 gを加え、攪拌機(FBLh300、新東科学)を用いて200rpm、10分間攪拌を行い、十分に主剤と硫化水銀を混合させた(図3.1.6)。次に、硬化剤Cを98.3 g加え、同様に攪拌機を用いて200rpm、10分間攪拌を行い、十分に硬化剤が混合されたことを確認した後、サミットモールド缶(φ50×100 mm)に流し込んだ。そして、少量スケールと同様に、40℃、16時間硬化させた。いくつかの評価試験を実施する際には、HgSを含まないエポキシ樹脂固化体(EPR₀)も作製して比較評価した。



図3.1.6 攪拌機

作業環境下における水銀濃度を確認するため、水銀連続測定装置(WLE-8+EMP-2、日本インスツルメンツ)を用いて恒温器内の水銀濃度を16時間測定し、同時に熱電対を用いてサミットモールド缶中心部の温度を16時間モニタリングしてデータロガー(TR-V550、キーエンス)に記録した。

3.2.2 改質硫黄を用いた固型化方法

改質硫黄固化体は、水銀廃棄物ガイドライン(3.6.1中間処理基準(1)硫化・固型化の【固型化方法の例】)³⁾を参考にして作製した。本研究で用いた装置は混練機(ハイビスミックス2P-1型、PRIMIX)であった(図3.1.7)。改質硫黄および改質硫黄固化体の作製はビニールハウス内で行い、送風機とダクトにより排気することで負圧を保持した環境下で実施した。反応容器の開封時には活性炭排気処理装置KT-02を用いて局所排気しながら行い、揮発した有機溶媒や水銀による直接暴露を防いだ。



図3.1.7 混練機

粉末硫黄(98%、ナカライテスク)を反応容器内で熔融させた後、135℃の反応容器内にジシクロペンタジエン(DCPD)(化学用、90.0+%, Wako)を改質剤として5wt%となるように添加した。ダイヤフラム式真空ポンプ(N86KN.18、アズワン)を用いて、反応容器内を2分間真空引きした後、窒素(G2、京都帝酸)を充填することで窒素雰囲気とし、135℃、50rpm、1時間の条件で硫黄の改質反応を行った。反応容器内の生成物をサミットモールド缶(φ50×100 mm)に流し込み、室温で24時間放冷し凝固させた後、脱型して粉碎したものを改質硫黄(modified sulfur, MS)とした。次に、改質硫黄を反応容器内で熔融させた後、50wt%となるように硫化水銀を添加し、同様の窒素雰囲気下で、130℃、25rpm、1時間の条件で混合した。その後、反応容器内の混合物をサミットモールド缶に流し込み、室温で24時間放冷して凝固させた後、脱型して改質硫黄固化体(MS₅₀)を得た。いくつかの評価試験では、比較対象としてHgSを含まない改質硫黄固化体(MS₀)も供試した。

3.2.3 一軸圧縮強度試験

固化体の圧縮強度は、JIS A 1132に定める方法により作製した供試体(φ50×100 mm)に対して、JIS A 1108に定める方法により一軸圧縮強度を測定した。本試験で用いた装置は、モルタル全自動圧縮試験機(ハイアクティス-500S MIE-732-1-35、マルイ製)であった。試験結果には試験機の誤差により±1%以内の誤差が含まれていた。固化体の圧縮強度は、埋立処分を行う際における一軸圧縮強度が0.98 MPa以上であることが規定されており、水銀廃棄物ガイドラインにおいてもこの条件を満たすことが定められている。本研究における固化体の圧縮強度の基準値は0.98 MPa以上とする。

3.2.4 環境庁告示13号(環告13号)溶出試験

水系汚染の評価は、環境庁告示13号において定められている「産業廃棄物に含まれる金属等の検定方法」⁸⁾に準じて行った。特別管理産業廃棄物の埋立判定基準は溶出濃度0.005 mg/L以下と定められており、水銀廃棄物ガイドラインにおいてもこの条件を満たすことが求められている。本研究では、環告13号法で0.5 µg/L以下を目標値とした。固化体は、レシプロソーブレード(BIM48型、マキタ)を用いて切

断し、ワンダーブレンダー（WDL-1型、大阪ケミカル）でさらに粉砕した後、目開き0.5 mmと目開き4.75 mmのステンレスふるいを用いて粒径を0.5 mm以上5 mm以下としたものを環告13号溶出試験に供した。水銀分析で使用した装置は、還元気化水銀測定装置（RA-4300、日本インスツルメンツ）であった。

3.2.5 ヘッドスペース試験

固化体の大気系汚染の評価は、上記3.1.3で記した方法に準拠して実施した。試験条件は、25℃、60%RHで、粉砕サンプルは120 mLの広口共栓瓶に10 gを、固化体サンプルは1,000 mLの広口共栓瓶にそのまま入れて試験を行った。

3.2.6 タンクリーチング試験

タンクリーチング試験は、固化体試料を28日間水に浸漬した場合における溶出挙動を評価する拡散試験である⁹⁾。本研究では、土壤環境基準に従って水銀溶出濃度の目標値を0.5 µg/L以下とした。容量10 LのPEボトルに固化体（φ50×100 mm）を垂直に立てて置き、固液比1:10（重量比）となるようにイオン交換水を充填することで試料が全て水中に没するよう水浸させ、容器を密封後、20℃の恒温室内に28日間静置させた。そして28日後、容器を開封し、軽く攪拌した後、ピペットを用いて上澄み溶液を約100 mL採取し、孔径0.45 µmメンブレンフィルター（東洋濾紙）を用いてろ過して得られたろ液の水銀濃度とpHを測定した。水銀分析で使用した装置は、還元気化水銀測定装置（RA-4300、日本インスツルメンツ）であった。

3.2.7 X線CTスキャン観察

固化体内部における硫化水銀の分布を評価するため、X線CTスキャン観察を行った。使用した装置は、マイクロフォーカスX線CTシステム（inspeXio SMX-225CT FPD HR、島津製作所）であった。対象試料はエポキシ樹脂固化体（EPR₈₀）および改質硫黄固化体（MS₅₀）であった。比重の大きいHgが多い試料だとX線が透過しないため、小欠片にしてから観察した。エポキシ樹脂固化体に関しては、固化体の上部、中部および下部の3か所から厚さ5 mmの円板状の試料を切り出し、それぞれから小欠片を得ることで鉛直方向のHgS分布を評価した。得られたX線CT画像データをImageJにより二値化し、HgSの含有率（面積ベース）を数値化した。

3.2.8 ガス透過性試験

ヘッドスペース試験を確立する中で明らかになるように、酸素濃度が変化すると硫化水銀からの水銀揮発挙動は変化する。例えば、固化体に酸素が透過することで硫酸水銀が生成し、固化体の割れが発生する可能性が懸念される。本研究において地上管理のシナリオを想定した場合、固型化材のガス透過性は重要な評価項目の一つである。本試験はJIS K 7126-1「プラスチック-フィルムおよびシート-ガス透過度試験方法-第1部：差圧法」に準拠して行った。使用した装置は、ガス透過率測定装置（BT-3、東洋精機製作所）であった。対象試料はエポキシ樹脂固化体（EPR₀、EPR₅₀、EPR₈₀）と改質硫黄固化体（MS₀、MS₅₀）であった。ガス透過面積は、707 mm²であった。試験前に、紙やすりで表面を研磨して厚さを調整し、アルミテープでマスキングを施した。本試験では、試験ガスを純空気とし、試験ガス圧力100 kPa、試験温度23±2℃の条件で行った。

3.2.9 示差走査熱量（DSC）分析

エポキシ樹脂の耐熱性の指標となるガラス転移温度 T_g を評価するため、エポキシ樹脂1A～1D（40℃、16時間硬化サンプル）の4つに対してDSC分析を行った。使用した装置はDSC-60（島津製作所）、昇温速度は20 °C/minであった。

3.2.10 メチル水銀生成ポテンシャル評価

水銀廃棄物に係るリスク管理において、アルキル水銀、特にメチル水銀の生成は重要な項目の一つで

ある。硫化処理と続くエポキシ樹脂固型化処理において、メチル水銀が生成するかどうかを検討した。対象試料は硫化水銀とエポキシ樹脂固化体（EPR₀、EPR₈₀）の微粉末とし、異なる抽出条件を適用することでメチル水銀の生成可能性を探った。水酸化カリウムおよびエタノールを抽出溶媒（アルカリ条件）としたジチゾン法をベースにメチル水銀を抽出し、ECDで定量した。一方、塩酸を用いた酸性条件の抽出液に対しては、GC-ECD（6890N、Agilent）を用いてメチル水銀分析を行った。

3.2.11 ビスフェノールA溶出試験

本研究で選定したエポキシ樹脂（主剤）はビスフェノールA（BPA）型であり、最終的に地中埋立のシナリオを想定した場合、エポキシ樹脂固化体から溶出するBPAはリスク管理において重要な項目の一つとなる。BPAは、化学物質排出把握管理促進法の第一種指定化学物質等に指定され、生殖毒性や内分泌かく乱性が懸念される化学物質である。本試験では、エポキシ樹脂固化体（EPR₈₀）に対して環告13号法を適用し、得られた溶出液のBPA分析を行った。使用した装置は、LC-MS/MS（LC部：島津製作所製 Prominence、MS部：AB SCIEX製トリプル四重極型質量分析計 API3200）であった。

3.2.12 固化体の表面コーティング

本研究では、固化体中の水銀の更なる封じ込めが可能かどうかを見極めるため、エポキシ樹脂固化体の表面にコーティングを施すことを試みた。溶出試験やタンクリーチング試験では、水銀の溶出濃度が高くなる原因の一つとして、固化体表面に付着していた硫化水銀が考えられ、これを封じ込める狙いもある。コーティングの効果を調べるため、エポキシ樹脂1Cのみを用いたコーティング試料、ウレタン樹脂スプレー（スプレーブラッセン、ファインケミカルジャパン）のみを用いたコーティング試料を作製した。アミン系エポキシ樹脂には防水・防錆の性能が、フッ素樹脂やウレタン樹脂には耐候性の向上効果が期待される。後述する耐候性試験では、エポキシ樹脂1Cで表面コーティングを施したエポキシ樹脂固化体に対して、さらにウレタン樹脂スプレーで二重コーティングを施した試料も対象とした。コーティング効果の検討には、適切に硫化処理されていない硫化水銀を用い、エポキシ樹脂固型化処理および表面コーティングを施した試料に対して、ヘッドスペース試験およびタンクリーチング試験を行った。使用した硫化水銀は、ヘッドスペース値が $>999.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、環告13号溶出試験において溶出濃度が $4.1 \times 10^3 \mu\text{g}/\text{L}$ と大幅に基準値を超過した試料であった。コーティングの厚さ計測には、デジタル顕微鏡（VHX-900、VH-Z500R、キーエンス）を用いた。

3.3 劣化試験および特性把握

3.3.1 火災を想定した試験

3.3.1.1 小ガス炎着火試験

本研究において地上管理のシナリオを想定した場合、水銀廃棄物保管施設の火災を想定したリスク評価として、小ガス炎着火試験を実施した¹⁰⁾。本試験は、消防法に定められる危険物第二類・可燃性固体の判定方法である。対象試料はエポキシ樹脂固化体（EPR₀、EPR₈₀）および改質硫黄固化体（MS₀、MS₅₀）に加えて、第二類可燃性固体である粉末硫黄（98%、ナカライテスク）、固型化に使用した硫化水銀であった。試験手順は、試料に対して10秒間火炎を接触させ、試料が着火するまでの時間を測定し、着火時間が3秒以下にものを第一種可燃性固体（易着火性）、3～10秒のものを第二種可燃性固体（着火性）、10秒を超えるものを第二類の危険物に該当しない（着火性なし）と判定した。

3.3.1.2 熱重量示差熱質量（TG-DTA-MS）分析

本試験では、加熱によって生じる重量変化（TG）、示差熱（DTA）および発生ガス成分の質量（MS）から成分の同定評価を目的とした。用いた装置は、示差熱天秤-光イオン化質量分析同時測定システム（Thermo Mass Photo、リガク製）であった。測定雰囲気は疑似Air（80%He+20%O₂）で、測定温度範囲は室温～700℃、昇温速度は10℃/minであった。示差熱分析の基準物質には酸化アルミニウム（Al₂O₃）を用いた。質量分析におけるイオン化法は電子衝撃（EI）法（70 eV）で、質量範囲（SCAN）は m/z 10～300

とした。対象試料は、装置の水銀汚染を防ぐため硫化水銀を含まないエポキシ樹脂固化体（EPR₀）および改質硫黄固化体（MS₀）とした。

3.3.1.3 電気炉を用いた加熱実験

本試験では、電気炉（KTF347N1、光洋サーモシステム）を用いて加熱した試料から発生するガス濃度の測定を行った（図3.1.8）。ガス流量は0.5 L/minで、温度範囲は室温～600℃であった。用いた測定装置は、ポータブルガス分析計（PG-350、堀場製作所）であり、NO、SO₂、CO、CO₂、O₂の測定を行った。対象試料は、装置の水銀汚染を防ぐため硫化水銀を含まないエポキシ樹脂固化体（EPR₀）および改質硫黄固化体（MS₀）とした。雰囲気ガスの種類は、純空気（住友精化）と、火災時の酸素濃度が低い環境を想定した窒素（>99.999%、住友精化）の2種類とした。さらに、本研究では脂環式アミン系硬化剤（C）を選定したことから、エポキシ樹脂固化体から副生するガス中に猛毒のシアン化水素が含まれる可能性が考えられた。そこで、JIS K 0109「排ガス中のシアン化水素分析方法」に準じて、吸光光度計（DR900、東亜DKK）を用いてピリジン・ピラゾロン法によるシアン化水素濃度の測定を行った。シアン化水素の管理濃度は3ppm（労働安全衛生法）、許容濃度は5ppm（日本産業衛生学会）である。

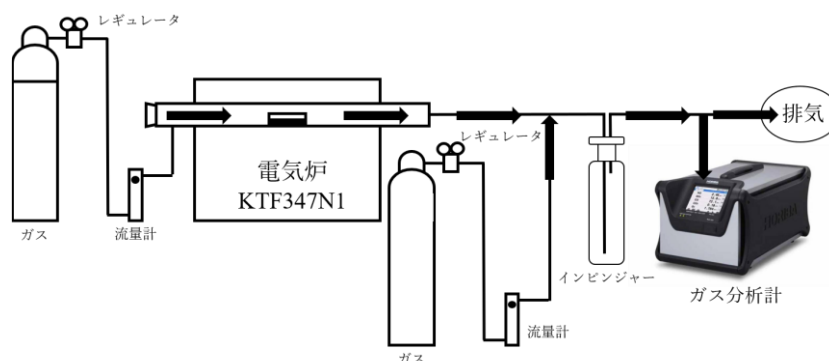


図 3.1.8 電気炉を用いた加熱試験装置の概要

3.3.2 抗菌性試験

水銀廃棄物の長期保管・処分を想定した際、微生物による固化体の劣化を評価することを目的として、JIS Z2801「抗菌加工製品-抗菌性試験方法・抗菌効果」に準拠して抗菌性試験を実施した。試験に用いた菌種は、黄色ぶどう球菌（NBRC12732、グラム陽性菌）および大腸菌（NBRC3972、グラム陰性菌）の2種であった。無加工試験片にはPEフィルムを用いた。対象試料は、エポキシ樹脂固化体（EPR₀、EPR₈₀）および改質硫黄固化体（MS₀、MS₅₀）であった。供試試料は、それぞれの固化体（φ50×100 mm）から厚さ約5 mmの円板を切り出した。本試験では、抗菌活性値（R）が2.0以上（99%以上の死滅率）で抗菌効果があると判定した。

3.3.3 凍結融解試験

本研究技術の実用化に向けて、実際の水銀廃棄物の長期保管・処分を想定し、寒冷地を想定した保管場所の温度・湿度などの影響を考慮した凍結融解作用に対する抵抗性（耐凍害性）は重要な項目の一つである。本試験は、JIS A1435「片面給水凍結融解法」（建築用外装材料の凍結融解試験方法）に準拠して行い、前処理として対象試料を温度20±2℃の水中に24時間浸漬を行った。金属製片面吸水用容器の底に厚さ10 mmのフェルト吸水材に試料を設置し、水を吸水材の2-7 mm下になるよう入れた。そして、対象試料の位置を切り



図3.1.9 凍結融解試験の様子

条件は気中 ($-20 \pm 2^\circ\text{C}$) において4時間保持、融解条件は気中 ($30 \pm 2^\circ\text{C}$) において2時間保持とし、両者を合わせて1サイクルとし、合計200サイクル実施した。100サイクルごとに外観観察および質量変化率測定を行った。対象試料は、エポキシ樹脂固化体 (EPR_0 , EPR_{80}) および改質硫黄固化体 (MS_0 , MS_{50}) であった。ヘッドスペース試験を行った試料はタンクリーチング試験に供し、圧縮強度試験を行った試料の残材を環告13号溶出試験に供した。エポキシ樹脂固化体については0サイクル、100サイクル、200サイクル実施した試料それぞれに対して、改質硫黄固化体は0サイクル、200サイクル実施後に評価試験を行った。また、HgSを含まないブランク試料 (EPR_0 , MS_0) に関しては、ヘッドスペース試験、圧縮強度試験、環告13号溶出試験の順に行った。

3.3.4 耐候性試験（屋上暴露試験）

本研究において地上管理および地中処分のシナリオを想定した場合、地上保管においては地震など自然災害による倒壊により水銀廃棄物が屋外に露出し、地中処分においては何らかの地殻変動などにより水銀廃棄物が地表に露出する可能性が考えられることから、屋上暴露試験による耐候性の評価を行った。本試験は、京都大学桂キャンパスC1-3棟屋上 ($34^\circ 58' 58.7'' \text{N}$, $135^\circ 40' 36.5'' \text{E}$) で実施した (図3.1.10)。試験期間は90日間 (2019.9.26-12.25) とし、期間中は紫外線強度計 (LUV-765C, ELSEC) を用いてUV-A (波長300~400 nm) の紫外線強度のモニタリングを行った。対象試料は、エポキシ樹脂固化体 (EPR_0 , EPR_{80}) および改質硫黄固化体 (MS_0 , MS_{50}) に加え、エポキシ樹脂固化体に関しては表面コーティングした試料も対象とした。表面コーティングに関しては、エポキシ樹脂で表面コーティングを施した試料、さらにウレタン樹脂スプレーで二重コーティングを施した試料とした。試料に触れた雨水はタンクに貯留させ、45日後および90日後に回収して水銀濃度測定を行った。また、比較対象として、同様に作製した試料を別途90日間、地下実験室に遮光して保管したものについても、試験終了後に評価試験を実施した。ヘッドスペース試験後の試料はタンクリーチング試験に使用し、圧縮強度試験を行った後の残材を環告13号溶出試験に供した。



図3.1.10 耐候性試験の様子
(手前が南側)

3.3.5 UV-LEDを用いた紫外線劣化試験

紫外線劣化を評価するため、高出力UV-LED (365 nm) を用いた促進劣化試験を実施した。用いた装置は、UV-LED光劣化装置 (RK-10375、理想計測) であった (図3.1.11)。試験条件として、波長は樹脂の紫外線劣化に効いていると考えられるUV-A (315~400 nm) 領域とし、照射光波長が365 nmのLEDを選定し、照射強度は110 mW/cm^2 に設定した。この照射強度は、JIS K 7350-2で規定される60 W/m^2 を基準にすると、18.3倍の促進率となり、約20日間で1年間の紫外線相当量となる。対象試料はエポキシ樹脂固化体 (EPR_0 , EPR_{80}) および改質硫黄固化体 (MS_0 , MS_{50}) であり、それぞれ縦20 mm×横30 mm×厚さ10 mm程度であった。照射開始後0、10、20日の試料に対して、ヘッドスペース試験を実施して、紫外線劣化によって水銀保持能が変化するかを評価した。さらに、顕微ラマン分光分析 (HR-Type TE-KC II型、堀場製作所) およびハンドヘルドFTIR分析 (4300、Agilent) による化学構造の変化 (表面劣化) を評価することで劣化機構を調べた。



図3.1.11 UV-LED光劣化装置

3.3.6 耐腐食性試験（耐酸性、耐アルカリ性、耐有機酸性）

本研究では下水道コンクリート構造物の腐食抑制技術および防食技術マニュアル¹⁰⁾を参考にして、10%硫酸水溶液（酸性）、水酸化カルシウム飽和水溶液（アルカリ性）、5%酢酸水溶液（有機酸性）による劣化具合の評価を行うため、60日間の耐腐食性試験を実施した。対象試料は、エポキシ樹脂固化体 (EPR_0 , EPR_{80}) および改質硫黄固化体 (MS_0 , MS_{50}) であった。形状は、 $\phi 50 \text{ mm}$ ×厚さ10 mm程度の円板状と $\phi 50$

mm×100 mmの供試体であった。円板状試料は、硝子シャーレ（GS-75、アズワン）内で完全に浸漬させ、顕微ラマン分光分析により試験前後の表面構造の変化を評価した。供試体試料は、500 mL口付ビーカー（アズワン）内で完全に浸漬させ、試験終了後に溶液中水銀濃度を測定した。

4. 結果および考察

4.1 ヘッドスペース試験方法の確立

4.1.1 参照サンプル

硫化水銀に対して、試料量10 g、温度25℃、湿度60%RH、ガス流量1.0 L/minの条件でヘッドスペース試験を行った結果、 $3.0 \pm 1.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (N=5) であった。本研究の目標値 ($1.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下) よりも少し高い値となったが、EU暫定基準 ($3 \mu\text{g}/\text{m}^3$) と同程度であったことから、この硫化水銀を参照サンプルとして以降の実験に供した。なお、参照サンプルとして用いた硫化水銀は、高いヘッドスペース値を示す硫化水銀試料を混合した試料であるため、硫化処理における未反応金属水銀や反応中間体が残っていると考えられる。そのため、直接的な比較はできないが、FactSageによって計算された基本条件 (10 g、25℃、60%RH) における黒色硫化水銀の気相中水銀濃度は、 $8.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。

水銀発生チューブ (φ4×6 mm) に対して、同様の条件でヘッドスペース試験を行った結果、 $11.3 \pm 0.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (N=5) であった。相対標準偏差 (RSD) は5.4%となり、硫化水銀よりも安定して水銀蒸気を発生できていることが確認された。

4.1.2 硫化水銀を用いたパラメータの検討

4.1.2.1 湿度

湿度を変化させたときのヘッドスペース値 (測定値) とFactSageによる計算結果 (計算値) を図4.1.4に示す。FactSageによる計算結果から、湿度が高くなるにつれて気相中水銀濃度が若干上昇することが分かる。測定値についてはばらつきが大きいものの、湿度が高くなるにつれてその平均値が徐々に高くなる傾向があり、測定値と計算値の定性的な傾向は一致した。本研究では、湿度を基本条件の60%RHに設定することを推奨するが、湿度がヘッドスペース値に及ぼす影響は小さく、厳密な制御は必須ではないと判断した。ただし、設備や機器の仕様により湿度を厳密に制御できない場合でも、湿度計などでモニタリングすることが望ましい。

4.1.2.2 試料量

試料量を変化させたときのヘッドスペース値 (測定値) およびFactSageによる計算結果 (計算値) を図4.1.5に示す。FactSageによる計算結果から、試料量が気相中水銀濃度には影響しないことが確認された。FactSageでは黒色硫化水銀 ($\beta\text{-HgS}$) の熱力学的平衡濃度を求めており、当然の結果と言える。試料量を変化させたときの測定値は、未反応金属水銀や反応中間体の影響があり、ばらつきが見られるも

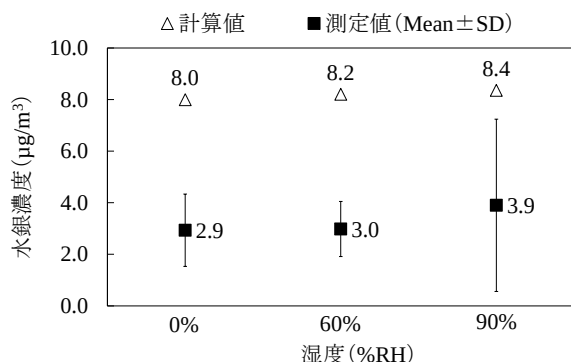


図4.1.4 湿度の影響 (硫化水銀)

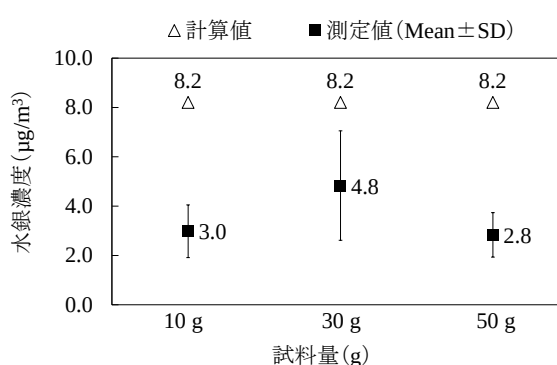


図4.1.5 試料量の影響 (硫化水銀)

の試料量が10～50 gの範囲では、試料量は気相中水銀濃度に大きく影響しないことが実験的に確認できた。本研究では、試料量を基本条件10.0 gとすることを推奨するが、試料量がヘッドスペース値に及ぼす影響はないと結論付けた。実際の試験では水銀の揮発フラックス、つまり試料とサンプルガスが接触する面積が重要であると考えられ、試料量に限りがある場合などに試料量を減らすことはやむを得ないが、広口共栓瓶の底が見えないように全面に一様に入れることが重要である。

4.1.2.3 温度

温度を変化させたときのヘッドスペース値（測定値）およびFactSageによる計算結果（計算値）を図4.1.6に示す。なお、計算値については対数軸で表している。FactSageの計算結果より、温度上昇に伴って気相中水銀濃度は指数関数的に増加することが分かった。測定値についても、温度上昇に伴い、ヘッドスペース値が高くなる傾向が見られた。先行研究²⁾においても、温度上昇（10～40℃）に伴ってヘッドスペース値が上昇する傾向が確認されており、本研究においても同様の傾向を確認できた。計算値と測定値を比較すると、測定値の方が低い値となっていることから、ヘッドスペース試験において硫化水銀

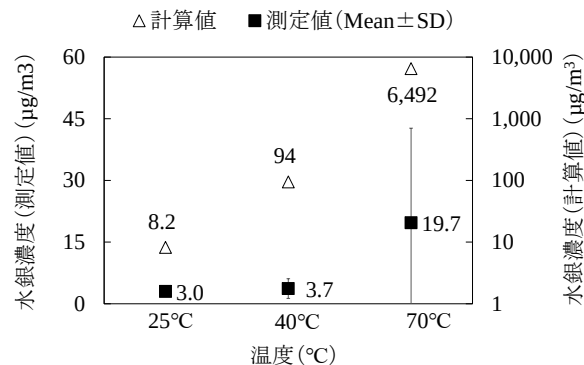


図4.1.6 温度の影響（硫化水銀）

は熱力学的平衡状態に達していないと考えられる。このことから、試験の温度と時間がヘッドスペース値に及ぼす影響は大きく、試験温度を厳密に制御することは極めて重要であると判断した。試験温度の決定にあたり、設定温度を高くして、すなわち気相中水銀濃度を高くして、試験方法の感度を高くすることも考えられる。しかしながら、試験室の標準状態の温度については、ISOやJISなどで規定されており、例えば、「JIS Z 8703-1983：試験場所の標準状態」では、標準状態の温度は、20℃、23℃又は25℃のいずれかと規定されており、試験温度を高温域に設定することは避けるべきと考えた。本研究では、温度の基本条件として25℃を採用することにした。

4.1.2.4 キャリヤーガス中O₂割合

キャリアーガス中のO₂割合を変化させたときの気相中水銀濃度をFactSageで計算した結果を図4.1.7に示す。図4.1.7より、O₂割合の増加とともに気相中水銀濃度は低下し、一方、O₂が0%では0 μg/m³に極めて近い値となることが分かった。FactSageでの計算によれば、O₂割合の増加に伴って、平衡状態では、気相中のSO₂割合と固相中のHg₂SO₄割合が増加していた。したがって、O₂割合の増加に伴って、HgSはSO₂を放出しながら、徐々にHg₂SO₄に変化していることが示唆された。一方、系内に痕跡量のO₂が存在すると気相中水銀濃度は極めて高くなり、計算した条件の中では、O₂が0.00001%のとき気相中水銀濃度は最大値（8,141 μg/m³）となった。次に、FactSageでの計算結果を実験的に検証するため、O₂濃度の異なる校正用ガスを用いたヘッドスペース試験を実施した。その結果、熱力学的平衡計算のようなきれいな傾向は見られなかったが、O₂濃度を変化させるとヘッドスペース値の濃度範囲は1～4 μg/m³で変化した。キャリアーガスに空気を用いた場合と比べて、O₂濃度0.100%の校正用ガスや窒素ガスを使用しても、極端にヘッドスペース値が高くなることはなくむしろ減少する傾向があった。さらに、12時間連続測定を行っても、ヘッドスペース値が安定しなかったことから、通常の試験時間の範囲では熱力学的平衡状態には達していないことが示唆された。以上のことから、本研究では、O₂割合の変化がヘッドスペース値を変化させ、通常のルーティン分析の時間内に安定することが見込めないことから、ヘッドスペース試験では、キャリアーガスとして試験室内の空気を用いることとした。

当初は、硫化水銀や固化体の保管雰囲気として窒素雰囲気も選択肢の一つとして考えていたが、本研究の成果により、微量なO₂の存在が気相中水銀濃度を劇的に増加させる可能性が示された。したがって、硫化水銀やその固化体の保管は空気雰囲気で行うべきである。

一方、地上保管時の火災や地中保管時の状態によっては、酸素濃度が低い状態となることが想定され

る。速やかに酸素供給が行わなければ、直接熱せられる状況下でなくても、廃水銀等処理物（硫化水銀）から水銀が排出されることが懸念される。したがって、硫化水銀をガス透過性の低い材料で固型化することや、火災時には初期消火が重要である。

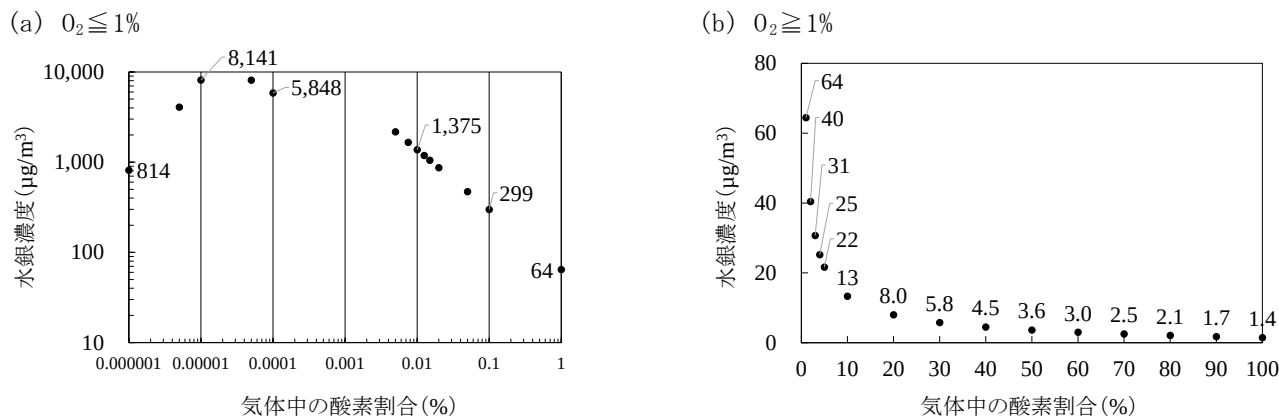


図4.1.7 サンプルガス中の酸素割合の影響

((a), (b) で軸が異なることに注意が必要である。)

4.1.3 水銀発生チューブを用いたパラメータの検討

4.1.3.1 試験時間

基本条件（25℃、60%RH）下で、水銀発生チューブを用いて、恒温恒湿器内で1時間静置させた後に3時間連続測定した場合と、4時間連続測定した場合について、気相中水銀濃度の経時変化を調べた。いずれの場合でも、約1時間後には値が落ち着くことが確認できた。したがって、水銀発生チューブを用いたパラメータ検討実験では静置なしで、連続2時間測定を行い、後半の1時間分のデータを平均してヘッドスペース値として採用した。

4.1.3.2 ガス流量

流量を変化させたときのヘッドスペース値を図4.1.1に示す。図4.1.1より、流量の減少に伴ってヘッドスペース値が上がることを確認され、ガス流量がヘッドスペース値に及ぼす影響は大きいことが分かった。これは、水銀の揮発フラックスが一定であり、キャリアーガスによる希釈効果のためと考えられる。また、検討した中で最も流量の低い0.2 L/minの条件でも、1時間で12 Lのキャリアーガスが流れており、広口共栓瓶の容積（120 mL）の100倍であることから、通気を開始してから1時間後には十分に置換されていると考えられる。本研究では、水銀発生チューブを用いたパラメータ検討実験では、ガス流量の条件として先行研究と同じ1.0 L/minを用いた。

先行研究では、ガス流量として1.0 L/minが採用されていたが、筆者らの使用している水銀分析装置（EMP-2あるいはDM-6B、日本インスツルメンツ）ではガス流量が0.5 L/minが標準的な条件となっており、ヘッドスペース試験方法のガス流量として今回0.5 L/minを採用することにした。これにより、エアポンプが不要となる。図4.1.1より、1.0 L/minから0.5 L/minへの変更はヘッドスペース値を押し上げるため、安全側の条件変更である。

4.1.3.3 湿度

硫化水銀を用いた場合と同様に、水銀発生チューブを用いた場合でも、湿度の影響は小さいことが確認できた。

4.1.3.4 温度

温度を変化させたときのヘッドスペース値を図4.1.2に示す。硫化水銀を用いた実験と同様に、温度が上昇すると、ヘッドスペース値は大きくなる傾向が確認された。

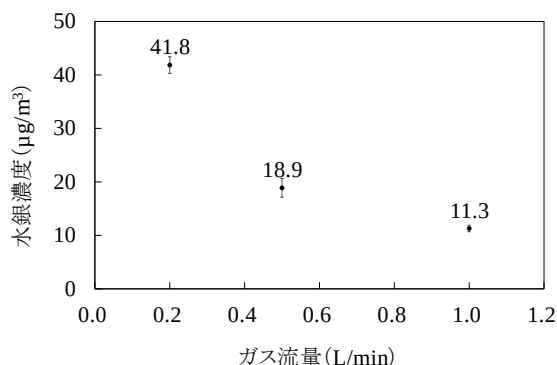


図4.1.1 ガス流量の影響（水銀発生チューブ）（再掲）

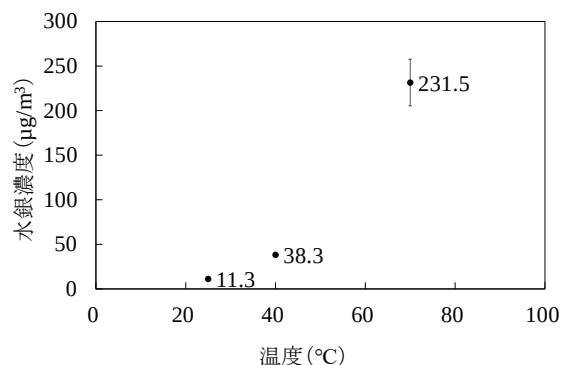


図4.1.2 温度の影響（水銀発生チューブ）（再掲）

4.1.4 KMnO₄吸収法による確認

KMnO₄吸収法では、水銀分析の感度を考慮して連続3時間で3回実施した。実測したガス流量は、 0.60 ± 0.09 L/min (N=3) であった。そこで、4.1.3.2で検討したガス流量の中で最も近い0.5 L/minの条件の結果 (18.9 ± 2.2 μg/m³, N=3) と比較する。KMnO₄吸収法で得られたヘッドスペース値は、 20.4 ± 2.3 μg/m³ (N=3) と若干高い値となったが、近い値となっており、KMnO₄吸収法によるヘッドスペース試験でも同等の結果が得られることが確認できた。ただし、今回実施した吸収法では、試験開始直後のヘッドスペース値が安定する前も含めて吸収していたために高い値となったと考えられ、ヘッドスペース値が安定するまでの間（1時間）はバイパスを使用することが必要と言える。

4.1.5 クロスチェック

ヘッドスペース試験のクロスチェック結果を図4.1.8に示す。クロスチェックの結果、機関Ⅰと比べて、機関Ⅱでは高値となった一方で、機関Ⅲではほぼ同じ値となった。なお、Smirnov-Grubbs検定（両側、 $\alpha=0.05$ ）により機関Ⅱのデータのいくつかが外れ値として検出されたが、その原因が不明であったため、今回のデータからは外していない。

機関Ⅰにおいて、機関Ⅱおよび機関Ⅲのクロスチェックで使用した水銀発生チューブも使用しながら、広口共栓瓶（メーカー4社、色：茶色／白色、材質：並ガラス／ホウケイ酸ガラス）や前処理装置の有無などについて実験的に検討を行った結果、瓶のメーカーや着色（光）、材質による影響はなかった。試験室の気圧（標高）についても検討したが、実際に試験実施時の気圧の記録はないが、3機関の標高はほぼ同じであるため、気圧の影響はないと考えられる。本研究で明らかになったように、温度とガス流量の影響を強く受けるが、今回のクロスチェックでは両パラメータは制御できていたと考えられる。

機関Ⅰと比べて、機関Ⅱの結果はφ4×6 mmで1.3倍、φ4×7 mmで1.2倍となっており、何らかの要因が系統的に影響しているものと考えられるが、最終的には原因を明らかにすることはできなかった。

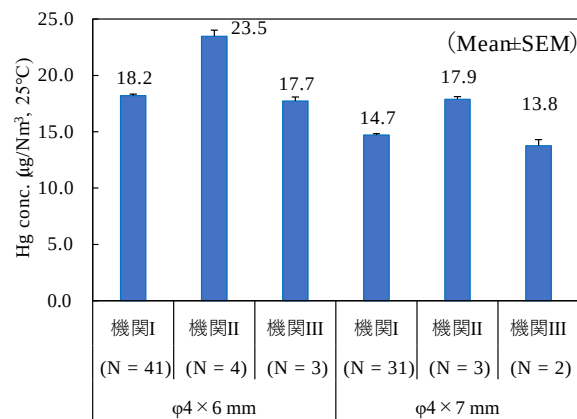


図4.1.8 クロスチェックの結果

4.2 樹脂系固型化材の適用

4.2.1 最適配合の決定とエポキシ樹脂固化体の評価

本研究では、ヒアリング調査に基づき選定した主剤2種類、硬化剤4種類から、8種類のエポキシ樹脂（少量スケール）に対して硫化水銀の配合比を6段階に振り、ヘッドスペース試験と環告13号溶出試験により最適配合を決定した。その結果、主剤1と硬化剤Cの組み合わせで、硫化水銀の配合は最大80wt%まで

可能であった。エポキシ樹脂1Cのガラス転移温度 (T_g) は、エポキシ樹脂1A～1Dの中で最も高く、 T_g はエポキシ樹脂、特に硬化剤の選定の際の重要な指標であると考えられる。供試体スケール ($\phi 50 \times 100$ mm) のエポキシ樹脂固化体 (EPR₈₀) はヘッドスペース試験、環告13号溶出試験、一軸圧縮強度試験、タンクリーチング試験において、目標値、基準値等を全て満たした。本研究で作製した改質硫黄固化体 (MS₅₀) およびエポキシ樹脂固化体 (EPR₈₀) の写真を図4. 1. 3に示す。固化体および固型化技術に対する評価結果を表4. 1. 1にまとめて示す。これらの結果から、水銀廃棄物ガイドラインに規定されている改質硫黄を用いた固型化技術と比べて、エポキシ樹脂を固型化材とする新たな固型化技術の優位性は十分にあると言える。

(a) 改質硫黄固化体 (b) エポキシ樹脂固化体



図4. 1. 3 本研究で作製した固化体（再掲）

表4. 1. 1 固化体および固型化技術の比較（再掲）

評価項目、指標など	目標値	改質硫黄固化体 (MS ₅₀)	エポキシ樹脂固化体 (1C, EPR ₈₀)
HgS配合 (wt%)	—	50	80
一軸圧縮強度 (MPa)	≥ 0.98	30.6	107.0
環告13号溶出試験 ($\mu\text{g/L}$)	≤ 0.5	0.05 ± 0.01	0.09 ± 0.01
ヘッドスペース試験 ($\mu\text{g/m}^3$)	≤ 1.0	< 0.1	< 0.1
タンクリーチング試験 ($\mu\text{g/L}$)	≤ 0.5	< 0.01	< 0.01
作業環境下の水銀濃度 ($\mu\text{g/m}^3$)	25 ^{*1}	Max. 5.0	Max. 1.0
材料費 (円) ^{*2, *3}	—	3,494 ^{*4}	508 ^{*5}
減容比 ^{*6}	—	1.0	0.5
ガス透過係数 ($\text{cm}^3 \cdot \text{cm} / (\text{cm}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{cmHg})$)	—	2.70×10^{-10}	3.03×10^{-11}

*1 労働安全衛生法上の管理濃度（作業環境評価基準）；*2 ラボでの購入実績に基づく試算であり、市場実勢価格ではないことに注意されたい。；*3 硫化水銀 1kgを固型化処理するのに必要な固型化材のみの費用（使用電力料などは含まない。）；*4 粉末硫黄、改質剤DCPDのみ；*5 主剤1、硬化剤Cのみ；*6 硫化水銀 1kgあたりの固化体容積（対改質硫黄固化体）

4. 2. 2 エポキシ樹脂固型化技術に関連する検討

4. 2. 2. 1 X線CTスキャン観察による硫化水銀の分布

水銀は原子番号と密度が大きいためX線を透過しにくく、硫化水銀の粒子はX線CT画像では白く観察される。一方、固型化材のエポキシ樹脂（有機物）や空隙は黒く観察される。X線CTスキャンの観察条件（スライス厚0.014 mm、ボクセルサイズ0.014 mm/voxel）より、極微小な硫化水銀粒子は捉えられていないが、画像全体が灰色であることから硫化水銀は全体的に分布していたと考えられる。画像データの二値化により、硫化水銀（白色）の比率を数値化した。その結果、エポキシ樹脂固化体の上部で53%、中部で55%、下部で61%となり、鉛直方向に分布の偏りがやや観察されたが大きくなかった。なお、EPR₈₀の理論的な硫化水銀比率（面積ベース）は60%と算出された。

4. 2. 2. 2 メチル水銀生成ポテンシャル

アルカリ条件の抽出溶媒 (KOH+EtOH) を使用した場合、エポキシ樹脂固化体 (EPR₈₀) からメチル水銀が検出された。EtOHのみやH₂Oのみを抽出溶媒とした条件ではエポキシ樹脂固化体 (EPR₈₀) からメチル水銀は検出されなかった。硫化水銀を含まないエポキシ樹脂 (EPR₀) や固型化に用いた硫化水銀からは、アルカリ条件で抽出してもメチル水銀は不検出であった。さらに、エポキシ樹脂の粉末と硫化水銀を混合し、アルカリ条件で抽出すると微量ではあるが明確にメチル水銀が検出された。エポキシ樹脂、硫化水銀、アルカリ条件の抽出溶媒が揃った場合にのみメチル水銀が検出されたが、メチル化反応が固型化処理中に進行したのか、アルカリ条件の抽出過程で進行したのかを判断することはできない。そこで、

塩酸を用いた酸性条件で抽出操作を行った結果、エポキシ樹脂固化体（EPR₈₀）および硫化水銀ともにメチル水銀は検出されなかった。以上のことより、アルカリ条件の抽出過程でメチル水銀が生成され、エポキシ樹脂固型化処理中にはメチル化反応は起きていないと考えられる。アルカリ側で硫化水銀の溶解度が高いことと関係があるかもしれないが、現時点では不明である。本研究では、塩基性のアミン系硬化剤を選定したが、アルカリ条件を極力避けるという意味では、酸性の酸無水物系硬化剤を検討する余地は残されている。しかし、酸無水物系硬化剤を用いたエポキシ樹脂硬化物は耐酸性に優れているが、アルカリには弱い。

最終的に地中保管に移行した場合、廃水銀等処理物は管理型最終処分場内で内部保有水との接触は想定しうる。アルカリ条件の抽出溶媒（1N KOH-EtOH溶液）のような強アルカリ条件は考えにくい、保有水が弱アルカリ性であることは十分にありうる。長期的に考えれば、弱アルカリ条件下でのメチル化反応の進行を完全には否定できない。したがって、管理型最終処分場内で廃水銀等処理物と保有水の接触は可能な限り起きないように措置が必要である。本研究では検討できていないが、一般的にエポキシ樹脂は耐水性が高く、耐薬品性、耐荷重性、耐久性にも優れていることから、コンクリート床などの防水防食のためのコーティングに使用される。また、アミン系硬化剤を用いたエポキシ樹脂硬化物は耐アルカリ性に優れている。したがって、メチル水銀生成の可能性を少しでも抑制する観点からは、エポキシ樹脂のような耐水性、耐アルカリ性の高い塗料でコーティングすることは一つの選択肢となる。

4.2.2.3 ビスフェノールA溶出濃度に基づくリスク評価

エポキシ樹脂固化体（EPR₈₀）に対して環告13号溶出試験に準拠した溶出操作を行って得られた溶出液のBPA濃度は22 µg/Lであった。廃水銀等処理物が浸入した雨水や保有水等に接触して溶出したBPAが、周辺へ漏出した際に10倍希釈されると仮定して、本研究ではBPAの予測環境中濃度（PEC）を2.2 µg/Lとした。なお、環告13号溶出試験では、エポキシ樹脂固化体を粉砕してから溶出操作を行うため、BPA溶出濃度は過大評価されている可能性がある。また、地下水・土壌中では、漏出したBPAの一部は吸着や分解（微生物分解、加水分解）により消失すると考えられる。そのため、2.2 µg/Lは安全側の設定値であると言える。産業技術総合研究所安全科学研究部門から公表されている詳細リスク評価書¹²⁾、¹³⁾を基に、ヒト健康リスクと生態リスクの評価を行った。廃水銀等処理物から溶出したBPAが地下水を經由して、経口暴露することは想定しにくい、マウスに対する一般毒性のNOAELは肝臓への影響（小葉中心性肝細胞肥大）をエンドポイントとすると3 mg/kg/dayであり、暴露マージン（margin of exposure, MOE）が>34,000となった。MOE判断基準は500であることから、ヒトの健康影響に対するリスクはほぼないと考えられた。一方で、魚類の慢性毒性について、ファットヘッドミノーの三世代試験でのF2世代の孵化率をエンドポイントとしたNOECが最も低い値（16 µg/L）であり、MOEが7.3となった（判断基準：MOE=10）。一方で、詳細リスク評価書¹²⁾の中では「20 µg/L程度までのBPAが検出された河川においても、魚類が全く生息不可能になることはない」と報告されている。総合的に判断して、廃水銀等処理物から溶出したBPAによる生態リスクは低く、水生生物（特に魚類）の地域個体群の存続を脅かすレベルにはないと考えられる。

4.2.2.4 表面コーティングの効果

適切に硫化処理されていない硫化水銀を用いて、エポキシ樹脂固型化処理およびエポキシ樹脂固化体の表面コーティングの効果を調べた。概ね厚みは300 µmであった。ヘッドスペース試験およびタンクリーチング試験による評価結果を表4.1.3に示す。エポキシ樹脂を用いた固型化処理により、両試験ともに数値が大幅に改善されているが、目標値を満たしていない。エポキシ樹脂ICによる表面コーティングにより、ヘッドスペース試験については目標値をクリアし、タンクリーチング試験に関しては目標値付近まで水銀を封じ込める効果が確認できた。ウレタン樹脂による表面コーティングにも水銀の封じ込め効果はあるものの、エポキシ樹脂と比べてその効果は小さかった。したがって、外側へ出ていこうとする水銀を封じ込めるためにはエポキシ樹脂の使用（固型化、コーティングともに）が効果的であり、外側からの刺激から固化体の劣化を防ぐためには耐候性の高いポリウレタン樹脂やフッ素系樹脂などで重塗

装するとよい。また、エポキシ樹脂等による表面コーティング処理は、エポキシ樹脂の接着性や成型性が良いことから、改質硫黄やセメント系材料による固化体にも適用可能であるため、多重防御の観点から今後検討する価値はある。

表4.1.3 エポキシ樹脂およびウレタンブレイによる水銀の封じ込め効果

	ヘッドスペース試験 (目標値: $\leq 1.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$)	タンクリーチング試験 (目標値: $\leq 0.5 \mu\text{g}/\text{L}$)
エポキシ樹脂固化体 (EPR ₈₀)	55.2 $\pm$ 73.8	32.9 $\pm$ 6.4
EPR ₈₀ +エポキシ樹脂	0.3 $\pm$ 0.2	0.6 $\pm$ 0.2
EPR ₈₀ +ウレタン樹脂	6.5 $\pm$ 3.0	23.3 $\pm$ 12.1

※使用した硫化水銀のヘッドスペース値は $>999.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、環告13号溶出試験の結果は $4.1 \times 10^3 \mu\text{g}/\text{L}$

4.3 劣化試験および特性把握

4.3.1 火災を想定した試験

4.3.1.1 小ガス炎着火試験

小ガス炎着火試験による着火性の判定結果を表4.1.4に示す。本研究で実施した試験では、固型化材（改質硫黄およびエポキシ樹脂）は着火性が確認された一方で、改質硫黄固化体 (MS₅₀) およびエポキシ樹脂固化体 (EPR₈₀) には着火性がなく、第二類危険物（可燃性固体）には該当しなかった。着火性のない硫化水銀が無機フィラーとして配合されることで難燃性が向上したと考えられる。

表4.1.4 小ガス炎着火試験に基づく判定結果

試料	判定結果		指定数量
粉末硫黄 (S)	易着火性 (2秒後)	第一種可燃性固体	100 kg
硫化水銀 (HgS)	着火性なし	第二類危険物に該当しない	-
改質硫黄 (MS ₀)	着火性 (4秒後)	第二種可燃性固体	500 kg
改質硫黄固化体 (MS ₅₀)	着火性なし	第二類危険物に該当しない	-
エポキシ樹脂 (EPR ₀)	着火性 (5秒後)	第二種可燃性固体	500 kg
エポキシ樹脂固化体 (EPR ₈₀)	着火性なし	第二類危険物に該当しない	-

4.3.1.2 TG-DTA-MS分析

エポキシ樹脂 (EPR₀) は約200℃から重量減少が開始し、600℃付近までに約100%重量減少し、390℃、540℃付近で発熱反応が確認された。エポキシ樹脂からの主な脱離ガスはH₂O (m/z 18) およびCO、CO₂ (m/z 28, 44) であり、NO、NO₂ (m/z 30, 46) およびHCN (m/z 27) の発生が示唆された。改質硫黄 (MS₀) は測定開始から650℃付近までで約99%重量減少し、270℃に発熱反応が確認された。改質硫黄からの主な脱離ガスはSO、SO₂ (m/z 48, 64) およびH₂O (m/z 18) であった。なお、これら検出されたシグナルは、有機物に起因している可能性も残されているため、上記成分のみで説明できるかの判断は困難であった。

4.3.1.3 電気炉を用いた加熱実験

TD-DTA-MS分析により発生の可能性が示されたCO、CO₂、NO、SO₂、HCNを主対象として、電気炉を用いた加熱実験を行った。エポキシ樹脂 (EPR₀) について、キャリアーガスが空気条件および窒素条件の場合、エポキシ樹脂中の炭素のそれぞれ75.3wt%および52.6wt%がCOおよびCO₂として発生していた。NO濃度は両条件ともに5ppm以下であった一方で、SO₂濃度は50ppmを超過した。本研究で選定した主剤、硬化剤の化学構造には硫黄がないことから、他の成分による干渉やエポキシ樹脂の変性剤、溶剤等に硫黄が含まれていた可能性が考えられる。改質硫黄 (MS₀) について、キャリアーガスが空気条件および窒素条件の場合、改質硫黄中の硫黄のそれぞれ15.9wt%および2.4wt%がSO₂として発生した計算となった。ここで、硫黄の融点と沸点はそれぞれ110～119℃と444℃であり¹⁴⁾、改質反応によって高分子化しているものの、温度範囲（室温～600℃）の中で多くの硫黄が気化していたことが考えられる。次に、脂環式アミン系硬化

剤Cに起因して発生するシアン化水素の測定を行った結果、 $<0.356 \text{ mg-HCN}$ ($<0.184 \text{ mg-N}$) が検出され、通気量から計算するとHCN濃度は 42.3 ppm (20°C 、 1 気圧) であった。主剤と硬化剤のCASRN (25068-38-6および2579-20-6) から調べたそれぞれの主成分の分子式 ($\text{C}_{15}\text{H}_{16}\text{O}_2=\text{BPA}$ および $\text{C}_8\text{H}_{18}\text{N}_2$) と配合比から、エポキシ樹脂の窒素含有率は約 $3.8 \text{ wt\%}$ である。本実験では試料量が 100 mg であったことから、硬化剤由来の窒素 (約 3.8 mg) の $<5\%$ 程度がシアン化水素として発生していたことが推察された。なお、実際の主剤や硬化剤には変性剤や溶剤などの他成分も含まれており、粗々の計算であることに留意が必要である。

4.3.2 抗菌性試験

4つの試料に対して実施した抗菌性試験の結果を表4.1.5に示す。エポキシ樹脂固化体 (EPR_{80}) はJISで規定されている2菌種に対して抗菌効果が確認できた。一方、改質硫黄固化体 (MS_{50}) は黄色ぶどう球菌 (グラム陽性菌) に対しては抗菌効果が確認できたが、大腸菌 (グラム陰性菌) では確認できなかった。両固化体ともに、硫化水銀の毒性による抗菌効果の向上が見られた。耐微生物性という面では、エポキシ樹脂固化体の方がよいと言える。

表4.1.5 抗菌性試験の結果

	黄色ぶどう球菌	大腸菌
改質硫黄 (MS_0)	1.8	-0.1
改質硫黄固化体 (MS_{50})	3.4	0.1
エポキシ樹脂 (EPR_0)	>3.4	>1.3
エポキシ樹脂固化体 (EPR_{80})	>4.2	>5.5

4.3.3 凍結融解試験

凍結融解サイクルに対する耐久性を凍結融解試験 (片面給水凍結融解法) で評価した結果、エポキシ樹脂固化体 (EPR_{80}) の100サイクル目の3本中1本 ($0.67 \text{ } \mu\text{g/L}$) がタンクリーチング試験で基準値 ($\leq 0.5 \text{ } \mu\text{g/L}$) を超過した。これを除く全ての試料が、圧縮強度試験、ヘッドスペース試験、環告13号溶出試験、タンクリーチング試験において目標値等を満たした。タンクリーチング試験で基準値を超過した試料に対して、再度試験を行ったところ $<0.01 \text{ } \mu\text{g/L}$ となったこと、200サイクル目の試料 (EPR_{80}) では3本とも基準値を満たしていたことから、固化体表面に水銀が付着していた可能性が考えられた。また、改質硫黄固化体 (MS_0 、 MS_{50}) およびエポキシ樹脂固化体 (EPR_{80}) については、底面に剥離が認められたが、他の試料に割れ、ひび、膨れ、剥離は観察されなかった。エポキシ樹脂固化体 (EPR_{80}) の質量変化率 (200サイクル目) は $-0.03\% \sim 0.00\%$ の範囲にあり、エポキシ樹脂の耐水性が高く、固化体内部に水が浸入しにくいいため、凍結融解サイクルに対する耐久性は高かったと考えられる。一方、改質硫黄固化体 (MS_{50}) の質量変化率 (200サイクル目) は $-0.19\% \sim -0.01\%$ の範囲にあり、吸水性は低く耐久性は高いが、脆く欠けが生じやすい特徴がある。

4.3.4 耐候性試験 (屋上暴露試験)

本試験では、試料に割れやひび、膨れ、剥離などは認められなかった。試験開始から約30日経過したころ、表面コーティングを施した試料の表面には白い模様が観察された。硫化水銀が含まれていない試料でも観察されたため、コーティング剤が何らかの要因で変化したものと考えられる。試験期間中の紫外線照射量は $1,560 \text{ kJ/m}^2$ であった。ヘッドスペース試験の結果、全ての試料が目標値 ($\leq 1.0 \text{ } \mu\text{g/m}^3$) を満たしていた。タンクリーチング試験の結果、エポキシ樹脂固化体の0日目試料は全て基準値 ($\leq 0.5 \text{ } \mu\text{g/L}$) を満たしていたが、90日目試料の3本中2本は基準値を超過した。90日後の3本の平均溶出濃度は、エポキシ樹脂固化体 (EPR_{80}) で $1.84 \text{ } \mu\text{g/L}$ 、一重コーティング試料 ($\text{EPR}_{80}+\text{エポキシ樹脂}$) で $0.05 \text{ } \mu\text{g/L}$ 、二重コーティング試料 ($\text{EPR}_{80}+\text{エポキシ樹脂}+\text{ウレタン樹脂}$) で $0.02 \text{ } \mu\text{g/L}$ であった。このことから、コーティングによる水銀溶出抑制効果と耐候性の向上が確認できた。改質硫黄固化体に関しては、耐候性試験後も基準値を満たしていた。圧縮強度試験、環告13号溶出試験では、全ての試料が基準値を満たした。

タンクに貯水していた溶液の水銀濃度は、目標値（ $\leq 0.5 \mu\text{g/L}$ ）を満たしていたが、雨水中の水銀濃度（約10～50 ng/L）と比べると、固化体から極微量の水銀が溶出したと考えられる。

4.3.5 UV-LEDを用いた紫外線劣化試験

照射開始から0、10、20日経過した試料のヘッドスペース試験の結果、全ての試料が目標値（ $\leq 1.0 \mu\text{g/m}^3$ ）を満たしており、紫外線劣化による水銀の保持能力の低下は確認できなかった。顕微ラマン分光分析では官能基の変化は捉えられなかったが、ハンドヘルドFTIR分析の結果から、UV-A照射量に応じてカルボニル基（ $1,715 \text{ cm}^{-1}$ ）が若干多くなる傾向が見られた。本研究で選定した硬化剤C（1,3-BAC）の特長の一つは、透明性が高く、優れた耐UV性である。しかし、エポキシ樹脂（EPR₀）は紫外線による酸化劣化、黄変が始まっていたと考えられる。したがって、地上保管時には紫外線（特にUV-A）による劣化を防ぐための措置が必要である。

4.3.6 耐腐食性試験（耐酸性、耐アルカリ性、耐有機酸性）

耐腐食性試験の結果、改質硫黄固化体（MS₅₀）およびエポキシ樹脂固化体（EPR₈₀）は、酸性条件および有機酸性条件では水銀の溶出がなく（ $< 0.01 \mu\text{g/L}$ ）、アルカリ性条件のみ水銀が溶出した。いずれも溶出濃度の目標値（ $\leq 0.5 \mu\text{g/L}$ ）を満たしていた。アミン系硬化剤を用いたエポキシ樹脂は耐アルカリ性が高いこと¹⁵⁾、改質硫黄固化体（MS₅₀）からも水銀溶出が見られたことから、アルカリ性条件下でエポキシ樹脂が劣化したというよりは、アルカリ性条件で硫化水銀が可溶化されたと考えるべきであろう。したがって、アルカリ性条件下での廃水銀等処理物の保管や処分は避けるべきである。

4.3.7 劣化試験および特性把握のまとめ

本研究では、種々の劣化試験や特性把握を行った結果、エポキシ樹脂固化体は概ね基準値を満たし、改質硫黄固化体とほぼ同等の安定な固化体であることが確認でき、科学的に安定な廃水銀等処理物の固化技術が開発できた（表4.1.2）。ただし、いくつか注意すべき管理要件が明らかとなった。更なる水銀の封じ込めには、エポキシ樹脂を用いた固化体表面のコーティング処理は有効である。エポキシ樹脂は基材との接着性が良いため、改質硫黄固化体やセメント系固化体などへの適用に期待できる。エポキシ樹脂、硫化水銀、アルカリが共存する条件下では、メチル水銀が生成する可能性があり、廃水銀等処理物を保管、処分する環境がアルカリ条件にならないような措置が必要である。溶出試験では固化体表面に付着している水銀によって初期の溶出濃度が高くなったり、アルカリ条件下では（樹脂劣化ではなく）固化体表面付近にある硫化水銀が可溶化されることがあるため、固化体の表面を耐水性、耐アルカリ性の高い塗料でコーティングするなどの対策が必要である。地上保管を想定した場合、耐光性の高い樹脂であっても、紫外線劣化を防ぐための措置が必要である。エポキシ樹脂コーティング（水銀の封じ込め）に加えて、ウレタン樹脂などを用いたコーティング（上塗）をすることで、耐光性の向上が見込める。

表4.1.2 劣化試験の主な結果（再掲）

		改質硫黄固化体（MS ₅₀ ）		エポキシ樹脂固化体（EPR ₈₀ ）
抗菌性試験	○	黄色ぶどう球菌：R=3.4 ^{*1} 大腸菌：R=0.1 ^{*1}	◎	黄色ぶどう球菌：R >4.2 ^{*1} 大腸菌：R >5.5 ^{*1}
凍結融解試験	◎	HS試験 ^{*2} 、圧縮強度、環告13号、タンクリーチング試験で基準値を達成	○	HS試験 ^{*2} 、圧縮強度、環告13号で基準値を達成。タンクリーチング試験で1条件のみ超過。
耐候性試験	◎	HS試験 ^{*2} 、圧縮強度、環告13号、タンクリーチング試験で基準値を達成	○	HS試験 ^{*2} 、圧縮強度、環告13号で基準値を達成。タンクリーチング試験で1条件のみ超過。
UV-LED促進劣化試験	◎	HS試験 ^{*2} で基準値を達成	◎	HS試験 ^{*2} で基準値を達成
耐腐食性試験	◎	酸性、アルカリ性、有機酸性条件で基準値を達成	◎	酸性、アルカリ性、有機酸性条件で基準値を達成

*1 抗菌活性値（R）>2.0で抗菌効果あり *2 HS試験：ヘッドスペース試験

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

廃水銀等処理物の地中処分も含めた長期適正管理を念頭に置き、これまでに世界的に見ても検討されていない廃水銀等処理物の地上保管を想定し、発ガス評価法（ヘッドスペース試験法）の確立と新たな樹脂系固型化技術の開発、および地上保管時の管理要件の提示を行った。本研究により得られた成果は以下の通りである。

1) ヘッドスペース試験方法の確立

試験パラメータのうち、試料量や湿度、容器（メーカー、材質、色）がヘッドスペース値に及ぼす影響は小さい一方で、温度、ガス流量、キャリアーガス中 O_2 割合については大きな影響を及ぼしていることを明らかにした。試験時間については、庫内温度に慣らす静置（1時間）は不要で、連続3時間測定で安定した試験結果が得られる。本研究で決定した基本条件は、試料量10 g、温度25℃、湿度60%RH、ガス流量0.5 L/min（空気）、試験時間3時間（静置なし）である（下線は、現行の水銀廃棄物ガイドラインに記載の条件から変更）。ヘッドスペース値は、最後の1時間分（試験時間2～3時間に相当）のデータを平均して求めることとする。また、容器のジオメトリー（図3.1.3）についても詳細に規定することとした。水銀発生チューブを用いた試験結果から、安定して水銀蒸気を発生させることが確認できた。したがって、水銀発生チューブを活用し、硫化・固型化を行う処理業者間で定期的にヘッドスペース試験方法のクロスチェックを実施することが可能となった。

2) 樹脂系固型化技術の開発・適用

水銀廃棄物ガイドラインに規定されている改質硫黄固型化と比較した結果、エポキシ樹脂を用いた新たな固型化技術の優位性は十分にある。エポキシ樹脂は、主剤や硬化剤、変性剤の組み合わせの自由度が高く、さまざまな性能要求に応えることができる。水銀の封じ込めの点では、ガラス転移温度（ T_g ）を一つの指標として条件（主剤、硬化剤、硬化反応）を選定することが望ましい。更なる水銀の封じ込めには、エポキシ樹脂を用いた固化体表面のコーティング処理は有効である。エポキシ樹脂は基材との接着性が良いため、改質硫黄固化体やセメント系固化体などへの適用に期待できる。エポキシ樹脂、硫化水銀、アルカリが共存する条件下では、メチル水銀が生成する可能性があり、廃水銀等処理物を保管、処分する環境がアルカリ条件にならないような措置が必要である。

3) 劣化試験および特性把握

火災を想定した試験から、エポキシ樹脂固化体は消防法上の第二類危険物（可燃性固体）には該当しないが、200℃付近から重量減少が開始すること、主な副生ガスはCO、CO₂で硬化剤に起因するシアニ化水素は少ない（＜約5%）ことを明らかにした。火災時の初期消火の重要性に鑑み、火災報知機や防火設備、消防設備を設置するとともに、火災発生時の対応マニュアルを整備しておく必要がある。種々の劣化試験や特性把握を行った結果、エポキシ樹脂固化体は概ね基準値を満たし、改質硫黄固化体とほぼ同等の安定な固化体であることが確認でき、科学的に安定な廃水銀等処理物の固型化技術が開発できた。ただし、いくつか注意すべき管理要件が明らかとなった。溶出試験では固化体表面に付着している水銀によって初期の溶出濃度が高くなったり、アルカリ条件下では（樹脂劣化ではなく）固化体表面付近にある硫化水銀が可溶化されることがあるため、固化体の表面を耐水性、耐アルカリ性の高い塗料でコーティングするなどの対策が必要である。地上保管を想定した場合、耐光性の高い樹脂であっても、紫外線劣化を防ぐための措置が必要である。エポキシ樹脂コーティング（水銀の封じ込め）に加えて、ウレタン樹脂などを用いたコーティング（上塗）をすることで、耐光性の向上が見込める。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

<行政が活用することが見込まれる成果>

- ・本研究で決定したヘッドスペース試験の方法・条件は、水銀廃棄物ガイドライン（【ヘッドスペース分析方法の例】）への反映が見込まれる。
- ・水銀発生チューブを活用して、処理業者間でクロスチェックを行うことで、ヘッドスペース試験の結果の信頼性を確認することができる。
- ・エポキシ樹脂を用いた新たな固型化技術は、水銀廃棄物ガイドライン（3.6.1 中間処理基準（1）硫化・固型化）への追記が見込まれる。
- ・エポキシ樹脂固化体に限らず、固化体の表面コーティングは、水銀の封じ込めや、固化体の耐候（光）性、耐久性などの向上に効果が見込まれるため、多重防御の観点から今後の技術開発について検討する必要がある。

6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

7. 研究成果の発表状況

（1）誌上発表

<論文（査読あり）>

- 1) Y. Xiong, M. Takaoka, T. Kusakabe, K. Shiota, K. Oshita, T. Fujimori: J Mater Cycles Waste Manag., 22, 354-364 (2020)
Mass balance of heavy metals in a non-operational incinerator residue landfill site in Japan
- 2) T. Kusakabe and M. Takaoka: Global Environment Research, (2020) (in press)
Sulfurization and Solidification of Wastes Consisting of Elemental Mercury
- 3) A. Sano, K. Kawase, R. Yanase, M. Takaoka, A. Matsuyama, F. Takahashi, T. Kato: Global Environment Research, (2020) (in press)
Long-term Mercury Behavior in Stabilized/Solidified Mercury Wastes by a Simulated Landfill Experiment Using Lysimeters

<その他誌上発表（査読なし）>

特に記載すべき事項はない。

（2）口頭発表（学会等）

- 1) 川瀬敬三、柳瀬龍二、松藤康司、佐野彰、高岡昌輝、高橋史武：第39回全国都市清掃研究・事例発表会（2018）
「水銀廃棄物固化体の埋立処分に伴う水銀気化特性の検討」
- 2) 佐野彰、加藤貴史、柳瀬龍二、川瀬敬三、高岡昌輝：第39回全国都市清掃研究・事例発表会（2018）
「硫化処理された水銀廃棄物の水銀溶出特性」
- 3) 宮原睦、日下部武敏、藤森崇、大下和徹、高岡昌輝：第29回廃棄物資源循環学会研究発表会（2018）
「廃金属水銀等の処理物質に対する大気中への安定性評価試験方法の検討」
- 4) 上西隆太、日下部武敏、塩田憲司、藤森崇、大下和徹、高岡昌輝：第29回廃棄物資源循環学会研究発表会（2018）
「エポキシ樹脂を用いた廃水銀硫化物の固型化技術の開発」
- 5) R. Uenishi, T. Kusakabe, K. Shiota, T. Fujimori, K. Oshita, M. Takaoka: The 10th International Conference on Combustion, Incineration/Pyrolysis, Emission and Climate Change, Bangkok, Thailand, Dec.18-21 (2018)
“Development of Solidification Technology for Sulfurized Waste Mercury using Epoxy

Resin”

- 6) 柳瀬龍二、川瀬敬三、松藤康司、高岡昌輝、高橋史武：第40回全国都市清掃研究・事例発表会（2019）
「水銀廃棄物の埋立処分に伴う浸出水へのメチル水銀の流出特性」
- 7) 佐野彰、加藤貴史、柳瀬龍二、川瀬敬三、高岡昌輝：第40回全国都市清掃研究・事例発表会（2019）
「コンクリート固型化された水銀廃棄物の水銀溶出特性」
- 8) Y. Xiong, T. Kusakabe, K. Shiota, K. Oshita, T. Fujimori, M. Takaoka: The 3R International Scientific Conference on Material Cycles and Waste Management, Bangkok, Thailand, Feb. 27- Mar.1（2019）
“Mass balance of heavy metals in one closed landfill site for incinerator residue in Japan”
- 9) 川瀬敬三、柳瀬龍二、佐野彰、高岡昌輝、日下部武敏、高橋史武：第40回全国都市清掃研究・事例発表会（2019）
「水銀廃棄物固化体の埋立処分に伴う水銀気化特性の検討（その2）」
- 10) 高岡昌輝：水銀及び水銀廃棄物の除去・処理技術セミナー（2019）
「エポキシ樹脂を用いた廃水銀処理物の固型化技術の開発」
- 11) 佐野彰、加藤貴史、柳瀬龍二、川瀬敬三、高岡昌輝：第41回全国都市清掃研究・事例発表会（2020）
「中間処理された水銀廃棄物の埋立処分環境に対する安定性評価」
- 12) 川瀬敬三、柳瀬龍二、松藤康司、佐野彰、高岡昌輝、高橋史武：第41回全国都市清掃研究・事例発表会（2020）
「水銀廃棄物固化体の埋立処分に伴う水銀気化特性の検討（その3）」

（3）知的財産権

特に記載すべき事項はない。

（4）「国民との科学・技術対話」の実施

- 1) 高岡昌輝：夢ナビライブ「水銀？人類が使わないことを決めた元素」（主催：FROMPAGE、2017年10月21日、マリンメッセ福岡、高校生約154名）にて講義
- 2) 高岡昌輝、日下部武敏：京大アカデミックデイ2018（主催：京都大学、2018年9月22日、京都大学吉田キャンパス百周年時計台記念館、来場者437名）にて成果紹介
- 3) 高岡昌輝：平成30年度 廃棄物資源循環学会セミナー「有害重金属廃棄物の長期管理・処分に関するセミナー」（主催：環境研究総合推進費3-1701、3-1802、（一社）廃棄物資源循環学会、2019年3月18日、京都大学東京オフィス、参加者61名）にて主催、概要説明
- 4) 日下部武敏：平成30年度 廃棄物資源循環学会セミナー「有害重金属廃棄物の長期管理・処分に関するセミナー」（主催：環境研究総合推進費3-1701、3-1802、（一社）廃棄物資源循環学会、2019年3月18日、京都大学東京オフィス、参加者61名）にて講演

（5）マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

（6）その他

- 1) 宮原睦、第29回廃棄物資源循環学会研究発表会優秀ポスター賞（2018）
- 2) Yiqun Xiong, Excellent Research Award (Poster Presentation), The 3R International Scientific Conference on Material Cycles and Waste Management（2019）

8. 引用文献

- 1) S. Nakamura, T. Kusakabe, A. Sano, Y. Choi, Y. Mizuno, T. Kawaguchi, M. Takaoka: Scale-

up effect on sulfide processing of waste elemental mercury using a planetary ball mill. Proceedings of the 13th International Conference on Mercury as a Global Pollutant (ICMGP2017), Providence, Rhode Island, USA (2017)

2) 高岡昌輝, 福田尚倫: 第2章金属水銀の常温乾式安定化試験, 循環型社会における回収水銀の長期安全管理に関する研究 (K22062), H22年度環境研究総合推進費終了成果報告書 (2011)

3) 環境省環境再生・資源循環局廃棄物規制課: 水銀廃棄物ガイドライン第2版 (2019)

4) BiPRO: Requirements for facilities and acceptance criteria for the disposal of metallic mercury. Final report, 07.0307/2009/530302 (2010)

5) 公益社団法人日本作業環境測定協会: 作業環境測定の基礎知識, <https://www.jawe.or.jp/sokutei/sokuteikiso.html?id=sokutei> (2020年5月16日閲覧)

6) 日本産業衛生学会: 許容濃度等の勧告 (2019年度), 産衛誌, 61(5), 170-202 (2019)

7) 環境省: 排ガス中の水銀測定法, 平成28年環境省告示第94号 (2016)

8) 環境省環境再生・資源循環局廃棄物規制課: 産業廃棄物の検定方法に係る分析操作マニュアル (第2版) (2019)

9) 建設省: 「セメント及びセメント系固化材を使用した改良土の六価クロム溶出試験実施要領(案)」(別紙), 「セメント及びセメント系固化材の地盤改良への使用及び改良土の再利用に関する当面の措置について」の運用について, 建設省技調発第49号, 建設省営建発第10号 (2000)

10) 総務省: 危険物の試験及び性状に関する省令 (平成元年自治省令第一号), 別表第五 (第二条関係), 小ガス炎着火試験 (1989)

11) 地方共同法人日本下水道事業団編著: 下水道コンクリート構造物の腐食抑制技術及び防食技術マニュアル (2017)

12) 中西準子, 宮本健一, 川崎一共著: ビスフェノールA, 詳細リスク評価書シリーズ6, 丸善, 東京 (2005)

13) 中西準子監修: ビスフェノールAの有害性評価 (アップデート版) (2011)

14) A.M.O. Mohamed, M.M. El Gamal: Sulfur Concrete for the Construction Industry: A Sustainable Development Approach. J. Ross Publishing (2010)

15) 久保内昌敏: エポキシ樹脂の化学構造と酸・アルカリ環境下での腐食・劣化特性, 日本接着学会誌, Vol. 46, No. 11 (2010)

Ⅱ－２ 廃水銀処理物の地中埋立時の水銀挙動に関する研究

福岡大学

環境保全センター

柳瀬 龍二

<研究協力者>

福岡大学工学部化学システム工学科

佐野 彰

福岡大学環境保全センター

川瀬 敬三

国立水俣病総合研究センター

松山 明人

平成29年度～令和元年度研究経費（累計額）：11,700千円（研究経費は間接経費を含む）

（平成29年度：3,900千円、平成30年度：3,900千円、令和元年度：3,900千円）

【要旨】

実際の埋立環境下で硫化処理や固化処理を行った水銀廃棄物の安定性が長期的に確保されるかを明らかにするために、水銀廃棄物の種々の埋立条件・埋立環境を模擬した埋立実験を5年間に亘って実施した。水銀廃棄物の埋立処分に伴う水銀流出特性は、①物理的な水銀粒子の移動、②気温変動による気化、③アルカリpHによる溶出促進、④混合廃棄物（焼却灰・汚泥）の吸着、⑤有機物による吸着阻害などが関与することが推察された。この埋立実験過程で推察された水銀流出に関与する要因は、5年間の埋立実験後に解体した埋立処分層の水銀分布、水銀安定性、水銀化学形態などによって確認された。これらの実験結果より、水銀廃棄物の埋立処分に伴う水銀廃棄物中の水銀は埋立廃棄物中へ移流拡散が一部で確認されたが、その大部分が埋立地内に残存し、埋立地系外への水銀流出率は0.1%以下と極めて小さいことが確認できた。更に、本実験で使用した黒色硫化水銀は埋立5年後の水銀の化学形態も黒色硫化水銀であり、非常に安定していることを確認した。これらのことを踏まえ、水銀廃棄物中の水銀流出抑制の最適な埋立処分条件は「洗浄した水銀廃棄物の固化物の準好気性埋立地の中層部・上層部へ埋立処分」であった。今後は、黒色硫化水銀の固化物の作成方法の違いによる埋立処分への影響を検討する必要がある。

【キーワード】

嫌気性、準好気性、セメント固化、硫化水銀、メチル水銀

1. はじめに

国内で発生した不要水銀含有製品や水銀含有廃棄物は金属水銀に精製され、製品として国内外へ流通していた。しかし、2013年の水俣条約により、2020年以降は水銀の輸出入が原則禁止となり、水銀含有廃棄物等から回収した水銀が国内に蓄蔵することになる。水銀の最終処分に関する法整備の中で、回収した水銀は特別管理廃棄物に指定され、①埋立処分前に水銀の硫化物化後に固化する、②環境省令で定めた基準を適用し、その判定結果により管理型処分場又は遮断型処分場に埋立処分される。これに先駆け、これまでに乾電池の埋立処分に伴う水銀の挙動を20年間に亘って調査研究し、水銀の埋立特性について検討してきた。このような埋立地における水銀流出特性は長期的な検討は必須であり、水銀の最終処分における安全・安心のための多重防護を十分に把握しておくことが重要である。

2. 研究開発目的

水銀廃棄物の埋立処分に伴う環境保全上の適切な処分手法の確立は急務であり、水銀廃棄物を埋立処分した際の水銀の挙動を把握するため、本実験は、実処分場を模擬した埋立実験槽を用いて、水銀廃棄物の埋立処分に伴う水銀（総水銀、メチル水銀）の浸出水への流出や大気拡散などを5年間に亘って検討し、水銀廃棄物の埋立処分に伴う環境対策を把握した。また、埋立5年後に埋立実験槽を解体し、埋立廃棄物中の水銀残存量や化学形態分析等から、埋立処分した5年後の水銀廃棄物中の水銀挙動を把

握した。次に、埋立処分される水銀廃棄物に与える共存物質等の埋立環境を想定し、作成した水銀廃棄物（黒色硫化水銀、その固化物）が水銀の溶出や気化に与える影響等を検討した。

以上より、これら水銀廃棄物の調査研究から、管理型処分場への水銀廃棄物の埋立処分を想定し、埋立廃棄物の違いや水銀廃棄物の埋立処分方法の違いによる、水銀廃棄物の最適な埋立手法を提案すること、同時に、埋立処分的前提となる水銀廃棄物の地上保管時における最適な管理条件を提案することを目的とした。

3. 研究開発方法

3.1 実環境を模擬した処分場セルを用いた水銀廃棄物の長期評価

(1) 埋立実験方法と各埋立実験槽の条件設定

水銀廃棄物の埋立実験は12基の実験槽を用意し、表3.2.1に示すように本実験の埋立条件を設定した。No.1～No.8までの埋立実験槽では、混合廃棄物（燃え殻80%+下水汚泥堆肥化物20%）を充填し、水銀廃棄物の埋立条件として①黒色硫化水銀を混合廃棄物と完全混合した条件（No.1、No.5）の「混合槽」、②黒色硫化水銀をまとめて一塊で埋立実験槽中央部に埋立てた条件（No.2、No.6）の「層状槽」、③黒色硫化水銀のセメント固化物を埋立実験槽中央部に埋立てた条件（No.3、No.7）の「固化物槽」の3パターンの水銀廃棄物の埋立方法とした。比較対象として混合廃棄物のみを充填した条件（No.4、No.8）「ブランク槽」も設計した。No.9～No.12までの埋立実験槽は、水銀廃棄物と埋立廃棄物の組合せを上述の①黒色硫化水銀を埋立廃棄物と完全混合で、使用する埋立廃棄物を燃え殻単独に変更した埋立方法とした。そして、各埋立方法に対して、準好気性埋立と嫌気性埋立に埋立構造を分けて、長期埋立実験を実施した。

使用した水銀廃棄物量は国内で回収された廃水銀が、全て管理型処分場に埋立処分されることを前提に、下記の条件で試算し、廃棄物中の水銀含有量を約100倍の過負荷状態とした（表3.2.4）。

①1年間の廃水銀の埋立処分量は77 t（2010年ベース）と仮定

②管理型処分場への燃え殻と汚泥の処分量＝燃え殻約49万t、汚泥（12万t）への埋立処分

③埋立処分される廃棄物中の水銀濃度の推定

・混合廃棄物の場合＝157mg/kg ・燃え殻単独の場合＝122mg/kg

使用した埋立実験槽の概要を図3.2.3に示す。埋立実験は塩ビ製の実験槽（25cm×25cm×60cm）を使用し、埋立密度を1.2t/m³とした。埋立作業の様子を図3.2.4に示す。集水管やガス抜き管を調整することで、埋立環境を準好気性と嫌気性を制御した。日平均降雨量5mm/日を2回/週にまとめて散水し、埋立実験槽の維持管理をした。

サンプリングは、実験槽底部から流出した浸出水と実験槽上部に充滿したガスを対象とし、1回/月の頻度で実施した。メンブランフィルターでろ過した浸出水サンプルは、総水銀、溶解性水銀、メチル

表3.2.1 水銀廃棄物の埋立条件(再掲)

実験槽	埋立構造	充填廃棄物 (kg)		黒色硫化水銀	
		燃え殻	下水汚泥堆肥化物	充填方法	充填量 (g)
No. 1	準好気性	27.2	6.8	黒色硫化水銀 (混合型)	415
No. 2				黒色硫化水銀 (層状型)	415
No. 3				セメント固化物 (層状型)	492
No. 4				ブランク	—
No. 5	嫌気性	27.2	6.8	黒色硫化水銀 (混合型)	415
No. 6				黒色硫化水銀 (層状型)	415
No. 7				セメント固化物 (層状型)	492
No. 8				ブランク	—
No. 9	準好気性	34	—	黒色硫化水銀 (混合型)	415
No. 10				ブランク	—
No. 11	嫌気性			黒色硫化水銀 (混合型)	415
No. 12				ブランク	—

表3.2.4 埋立実験槽に充填した水銀量

実験槽	水銀充填量(g/槽)			
	燃え殻	下水汚泥堆肥化物	黒色硫化水銀	合計
No.1 硫化水銀(混合型)	0.0030	0.0045	355.3	355.3
No.2 硫化水銀(層状型)			355.3	355.3
No.3 硫化水銀固化体(層状型)			421.5	421.5
No.4 ブランク			—	0.0075
No.5 硫化水銀(混合型)	0.0030	0.0045	355.3	355.3
No.6 硫化水銀(層状型)			355.3	355.3
No.7 硫化水銀固化体(層状型)			421.3	421.3
No.8 ブランク			—	0.0075
No.9 硫化水銀(混合型)	0.0037	—	355.3	355.3
No.10 ブランク			—	0.0037
No.11 硫化水銀(混合型)			355.3	355.3
No.12 ブランク			—	0.0037

廃棄物中の水銀濃度(湿潤): 燃え殻=0.11mg/kg, 下水汚泥堆肥化物=0.66mg/kg

水銀や各種水質
(pH、COD、 Cl^-)
の分析に供した。
備え付けのガス抜
き管（測定時のみ
コックを開）か
ら、実験槽上部の
空間部（6.25L）の
ガスを吸引し
（10L：0.5L/分×
20分）、ガス中の
水銀を金チップに
捕集した。その捕
集した水銀を日本

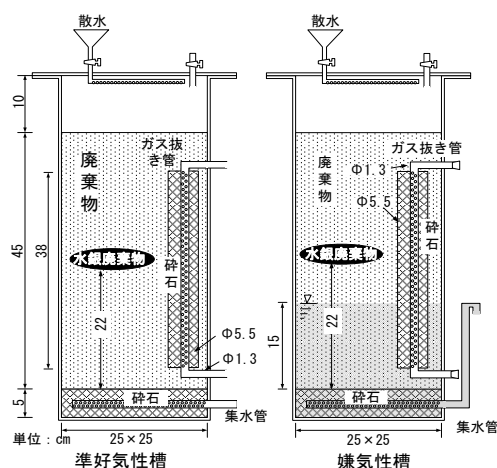


図3.2.3 水銀廃棄物の埋立槽図および埋立実験槽の設置状況

インストルメント製加熱気化全自動水銀測定装置MA-3000により測定した。

（２）５年に亘る実験後の埋立実験槽の解体と埋立処分層を用いた分析および試験

埋立実験開始から56ヶ月後の2019年9月に埋立実験槽を解体し、埋立廃棄物及び水銀廃棄物を回収し、物理試験や化学試験（水銀含有量等）に供した。



廃棄物の混合（燃え殻：堆肥＝8：2） 廃棄物に黒色硫化水銀を添加廃棄物と黒色硫化水銀の完全混合



埋立実験槽（充填前）

黒色硫化水銀（層状槽）の充填

セメント固化物（層状槽）の充填

図3.2.4 埋立実験槽への水銀廃棄物の充填状況

① 実験槽解体：2019年9月11日（埋立56ヶ月後）

② 解体廃棄物層の採取

図3.2.5に示すように、深さ方向に対して8ヶ所の廃棄物層試料を採取することとした。水銀廃棄物は採取位置4地点に充填しており、セメント固化物はそのものを回収し、黒色硫化水銀を一塊で充填したNo.2とNo.6は可能な範囲で全量回収した。

③ 解体廃棄物の分析および試験

- ・含水率 ・総水銀およびメチル水銀含有量
- ・溶出試験（後述） ・気化試験（後述）
- ・水銀形態の同定：高輝度放射光によるX線吸収微細構造分析（XAFS分析）

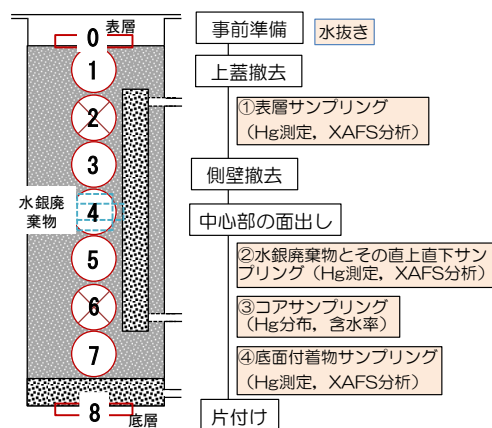


図3.2.5 解体後の埋立廃棄物採取位置

3.2 水銀廃棄物の基礎実験

水銀廃棄物が埋立処分された場合の最適な埋立条件や、地上に保管された場合の適切な管理手法を把握するため、埋立実験に使用した水銀廃棄物（黒色硫化水銀、セメント固化物、改質硫黄固化物）、燃え殻、汚泥が水銀の流出（溶出や気化）に与える影響を検討するため、水銀廃棄物の基礎実験を実施した。ここで、水銀廃棄物の固化物（セメント固化物、改質硫黄固化物）は、黒色硫化水銀をセメント又は硫黄で固化するプロセスで、空気に曝露されるなどその表面の水銀化学形態や水銀分布が異なる可能性があり、ア）固化物を埋立処分する前段での地上保管時に同固化物からの気化水銀の発生が想定される点や、イ）埋立処分後に固化物表面に付着した黒色硫化水銀による埋立地への影響等を想定し、固化物の表面を未洗浄と洗浄後の水銀の特性を検討した。

（１）水銀気化試験

水銀廃棄物の中で埋立実験に使用した埋立廃棄物（燃え殻、汚泥）、黒色硫化水銀、セメント固化物及び改質硫黄固化物を現物のまま、図3. 2. 2に示す気化試験装置を用いて、気化条件（放置期間、温度）を変化させて、水銀気化特性を検討した。

＜実験条件＞

- ・ 設定温度 : 10℃、30℃、50℃
- ・ 放置期間 : 1日、2日、4日、7日
- ・ 吸引流量 : 21 L（デシケータ容量（7L）の約3倍（0.5L/min×42min））
- ・ 試料量 : 黒色硫化水銀、燃え殻＝50g、汚泥＝30g、セメント固化体＝1,192g
改質硫黄固化体＝411.5g

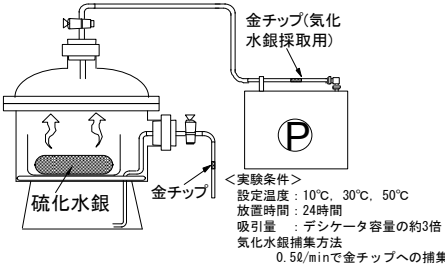


図3. 2. 2 水銀気化試験の装置概要（再掲）

（２）共存物質影響試験

水銀廃棄物が埋立地内で想定される環境下における水銀流出への影響を、陽イオン(Na^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+})、陰イオン(Cl^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-})、酸化剤(FeCl_3)を対象に検討した（表3. 2. 3）。

＜実験条件＞

- ・ 試験試料
 - 黒色硫化水銀黒色 (n=3)
 - セメント固化物（未洗浄と洗浄） (n=1)
 - 改質硫黄固化物（未洗浄と洗浄） (n=1)
- ・ 溶出条件と溶出方法
 - 液固比 (L/S比) : 10
 - ロータリーミキサー (30rpm)、恒温槽25℃、ろ過 (0.45 μm メンブレンフィルター)
- ・ 水銀分析 : 加熱気化水銀測定装置 (NIC製MA-3000)
- ・ 溶出時間 : pH、陽イオン・陰イオン（6時間）、酸化剤（1、3、6、24時間）

表3. 2. 3 共存物質影響試験の溶媒の設定条件（再掲）

分類	対象成分	供試薬	濃度パラメータ(mg/L)		
陽イオン	Na^+	NaNO_3	100	1,000	10,000
	Ca^{2+}	$\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$	100	1,000	10,000
	K^+	KNO_3	100	1,000	10,000
陰イオン	Cl^-	NaCl	50	500	10,000
	NO_3^-	NaNO_3	50	300	3,000
	SO_4^{2-}	Na_2SO_4	50	500	2,000
酸化剤	FeCl_3	FeCl_3	10	500	10,000
PH	pH	HNO_3 NaOH	3, 5, 7, 9, 11		

4. 結果及び考察

4.1 実環境を模擬した処分場セルを用いた水銀廃棄物の長期評価

4.1.1 水銀廃棄物の埋立実験における経時変化

（１）浸出水水質

埋立処分された水銀廃棄物中の水銀の挙動は、埋立廃棄物中の汚濁成分の洗い出しや有機物の分解等、共存物質の影響を受ける可能性があることから、本埋立実験における浸出水の主な水質挙動をまとめた。

浸出水のpHの経時変化を図4. 2. 2に示す。混合廃棄物の埋立実験から準好気性埋立実験槽（No. 1～No. 4）における浸出水のpHは4槽とも8～9の範囲で変動し、比較的安定したpHを呈した。一方、嫌気性埋立実験槽（No. 5～No. 8）は埋立初期から3ヶ月後までpHが8から9前後まで高くなり、その後のpHは一

時的に9.5前後まで上昇するが、最終的には8.5前後で推移した。焼却灰単独槽（No. 9～No. 12）のpHは9.5～10.5の範囲で変動し、準好気性よりも嫌気性槽の方が高い傾向にあった。

図4.2.3に示す Cl^- の経時変化において、混合廃棄物の準好気性・嫌気性実験槽とも埋立初期に、 Cl^- が50,000mg/L前後の高濃度で検出されたが、埋立2年以降は全槽とも50～100mg/Lまで低下し、実験終了まで低濃度で推移した。これは、埋立廃棄物中に存在した Cl^- が散水によって洗い

出されたためであり、その大部分は約2年間の洗い出しによって収束した。燃え殻単独槽も混合廃棄物と同傾向を示した。図4.2.4に示す浸出水中のCODの経時変化より、前述した Cl^- の流出傾向と同様であった。COD成分も初期の洗い出しによる浸出水への移行が要因であるが、COD濃度を比較すると、準好気性槽の方が嫌気性槽よりも浸出水中のCOD濃度は低く、埋立実験槽内の有機物分解は準好気性埋立構造の方でより分解が進んでいた。一方、焼却灰単独槽は有機物量が少

ないため、埋立初期からCOD100mg/Lと低濃度で、約1年間で10mg/Lするなど有機物の水銀に与える影響は混合廃棄物よりも小さいことが想定される。

（2）浸出水中の水銀の経時変化

埋立実験槽から流出した浸出水の水質（pH、 Cl^- 、COD等）の経時変化から、散水による洗い出しや有機物の分解等が確認された中で、水銀の挙動を検討した。

各埋立実験槽から流出した浸出水中の総水銀濃度の経時変化を図4.2.5に示す。混合廃棄物における準好気性埋立実験槽（No. 1～No. 4）を比較すると、黑色硫化水銀を埋立廃棄物と完全混合したNo. 1槽（混合槽）は、最終的にも排水基準値以下まで水銀濃度は低下しなかった。これは、廃棄物と黑色硫化水銀が完全混合されているため、散水による洗い出しによって、実験槽下層部にも散在する硫化水銀粒子自体が流出したことが想定される。これに対し、黑色硫化水銀を埋立実験槽の中央部に一塊でまとめて充填したNo. 2（硫化物層状槽）と黑色硫化水銀のセメント固化物を充填したNo. 3（固化物槽）から流出した浸出水中の水銀は、埋立初期にNo. 2で0.07mg/L、No. 3で0.006mg/L検出されたが、埋立3ヶ月以降は排水基準値以下、埋立6ヶ月後には環境基準値（0.0005mg/L）以下となり、埋立2年後以降は不検出となるなど、水銀が流出しない状況で収束した。

続いて、準好気性埋立実験槽（No. 1～No. 4）と嫌気性埋立構造実験槽（No. 5～No. 8）を同条件ごとに比較すると、黑色硫化水銀とセメント固化物のいずれにおいても、嫌気性埋立構造の方が浸出水中

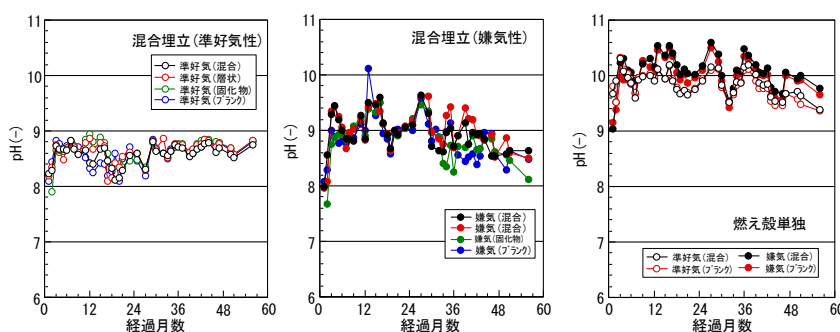


図4.2.2 浸出水のpHの経時変化

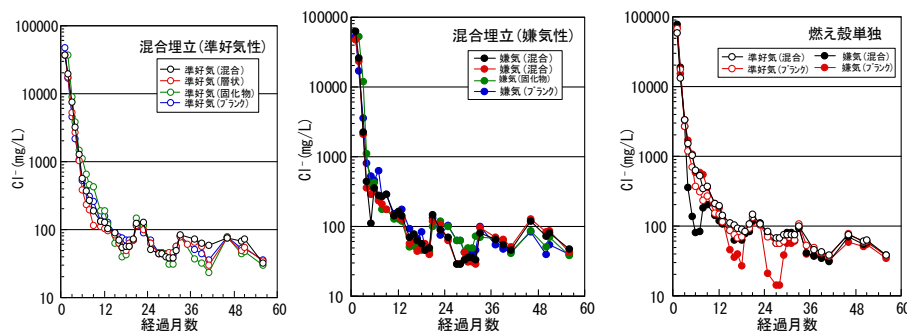


図4.2.3 浸出水中の Cl^- の経時変化

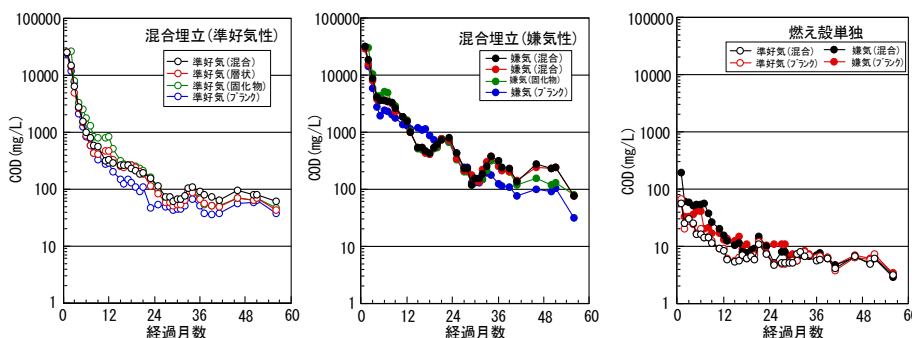


図4.2.4 浸出水中のCODの経時変化

の水銀濃度は高く検出された。これは、嫌気性埋立実験槽の底部15cmは常に滞水しているので、廃棄物と浸出水との接触時間が長く、SS性水銀や溶解性水銀が流出しやすい構造が寄与したと考えられる。さらに、黒色硫化水銀を実験槽中央部に充填したNo.6（硫化物層状槽）は埋立3ヶ月の0.07mg/Lをピークに徐々に低下し、埋立1年後には一時的に排水基準以下まで低下したものの、その後、0.005mg/L～0.07mg/Lまで上昇する等、他の実験槽と異なる傾向を示した。また、嫌気性埋立構造に固化物を充填したNo.7（固化物槽）は埋立初期から半年間は排水基準を超えて流出しているが、その後は徐々に低下し2年後には環境基準以下まで低下した。

燃え殻に黒色硫化水銀を完全混合した埋立実験（No.9～No.12）において、準好気・嫌気の埋立構造によらず、埋立4年後は同程度まで低下しているものの、混合槽よりも単独槽の方が水銀の流出は低くなっていた。これは、焼却灰（燃え殻）には水銀を吸着し、再溶出しにくい特性があることから¹⁾、焼却灰の存在が水銀流出抑制に作用した可能性があった。一方で、水銀の浸出水への流出は嫌気性<準好気性と混合廃棄物ケールと異なる傾向を示した。この要因として、燃え殻単独槽はpHがアルカリであり、黒色硫化水銀が二硫化水銀（ HgS_2^{2-} ）として再溶解している可能性があるものの²⁾、燃え殻は水銀吸着能がある点及び準好気性槽は浸出水が一過性で廃棄物槽内を通過するのに対し嫌気性槽は槽底部の滞水部で流出ま

での滞水時間が長い点を踏まえると、水銀の再溶解するリスクよりも、滞水部の燃え殻に吸着され水銀の流出が抑制され効果の方が高かったことが想定された。

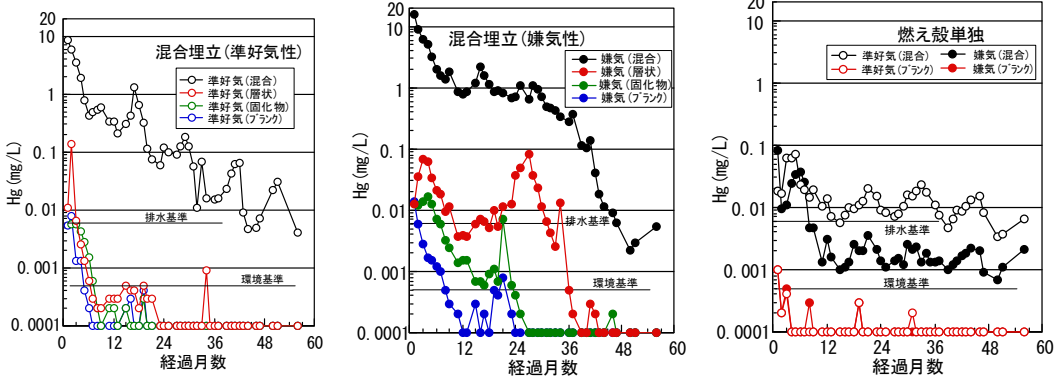


図4.2.5 浸出水中の総水銀の経時変化

（3）浸出水中の水銀のメチル化について

無機水銀は自然環境条件によってメチル水銀に変化する可能性があり、埋立処分過程におけるメチル水銀生成について検討されている³⁾。長期に亘って水銀廃棄物を埋立処分した場合、水銀廃棄物の安定性や埋立構造等の環境条件の違いによってメチルの生成が懸念される。図4.2.6に浸出水中のメチル水銀濃度と総水銀濃度の経時変化を示した。有機物を含有する混合廃棄物において、埋立初期のメチル水銀濃度は、準好気性埋立実験槽群（No.1～No.4）が1μg/L以下、嫌気性埋立実験槽群（No.5～No.8）が10μg/L以下の極微量であったが、その後は、総水銀と同様に埋立経過とともに徐々に低下する傾向

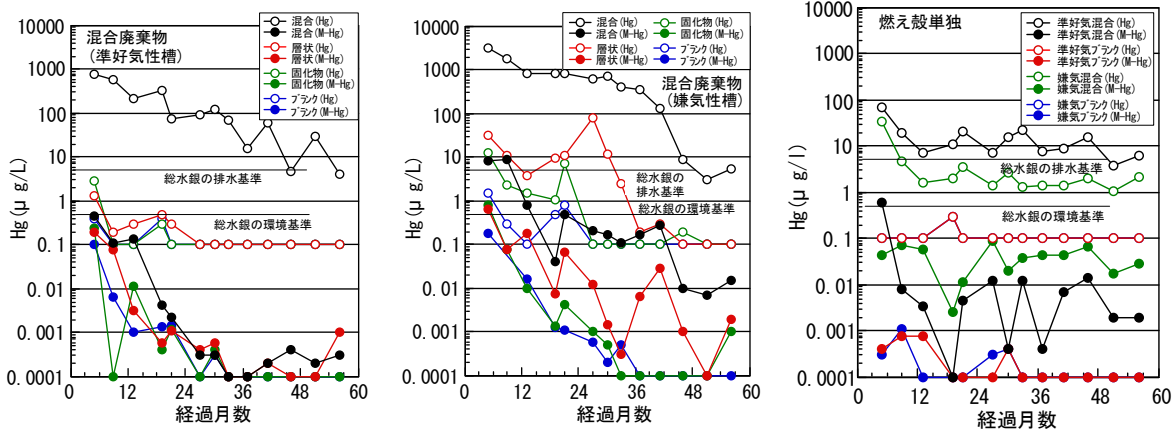


図4.2.6 浸出水中の総水銀とメチル水銀の経時変化

にあった。検出されたメチル水銀濃度は総水銀濃度の1/100～1/1000と非常に低い濃度であり、埋立実験期間中に埋立実験槽内でメチル水銀が明らかに生成している状況を確認できなかったものの、嫌気性埋立の方がメチル水銀は高い傾向が見られた。有機物の少ない燃え殻単独槽におけるメチル水銀も低濃度であり、メチル水銀の生成状況を確認できなかった。

(4) 埋立実験槽からの水銀気化

実験槽上部から気化した水銀濃度の経時変化を図4.2.7に示す。気化水銀濃度は混合廃棄物と黑色硫化水銀を完全混

合したNo.1が300～2,000ng/m³、No.5が10～9,000ng/m³と、燃え殻と完全混合したNo.9が40～1,000ng/m³、No.11が10～1,000ng/m³と、大気環境基準

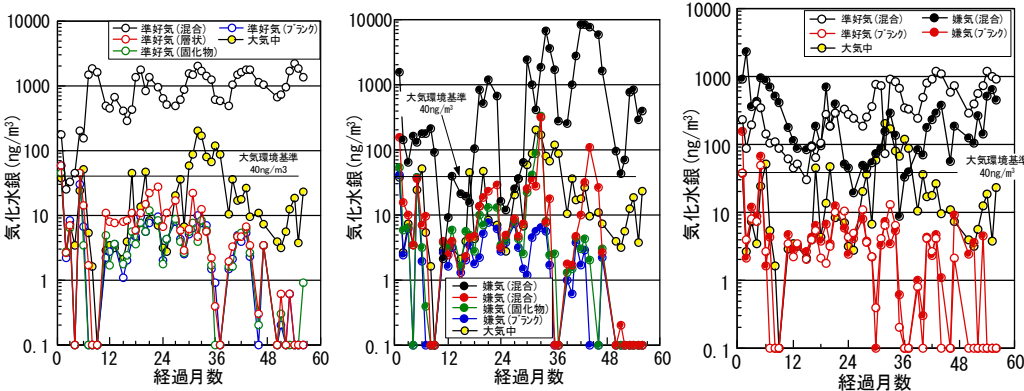


図4.2.7 埋立実験槽からの気化水銀濃度の経時変化

(40ng/m³)を

超える濃度で検出された。一方、黑色硫化水銀やその固化物が廃棄物層中(中層域)に存在する場合は、発生する気化水銀は低濃度でブランク槽(No.4、No.8、No10、No.12)や大気中の濃度と同程度であった。このことから、黑色硫化水銀と廃棄物を完全混合した場合は槽表面に存在する黑色硫化水銀から発生した気化水銀が大気拡散されるのに対し、廃棄物層中に存在する場合は気化水銀がほとんど大気拡散されない傾向にあることが確認できた。また、気温差が埋立処分層内のガス流れに影響する報告がされているが⁴⁾、本研究では、図4.2.8に温度(外気温)に対する気化水銀濃度のプロットを示すように、埋立実験槽においても気化水銀は温度に関係する知見が得られた。

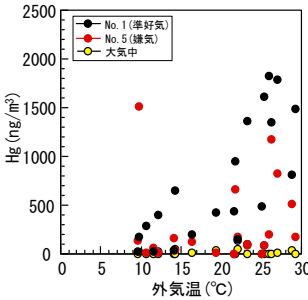


図4.2.8 気化水銀と温度の関係

(5) 埋立実験における埋立実験槽系外への水銀流出率

埋立実験槽に充填した水銀廃棄物と埋立廃棄物中の初期水銀総量に対し、埋立実験開始から実験終了までの56ヶ月間に浸出水に流出した水銀積算量と実験槽上部から捕集された気化水銀積算量から、水銀流出率を算出した(表4.2.2)。浸出水への水銀流出率は最も多かった黑色硫化水銀と廃棄物を完全混合したNo.5で0.091%、気化水銀の流出率は最大で0.00004%であり、実験槽系外への水銀流出率(浸出水+大気拡散)は最大でNo.5の0.091%と、充填した総水銀の99%以上が埋立地内に残存し、ほとんど実験

槽内に留まることが確認できた。また、水銀の系外への流出は大気拡散よりも浸出水への流出が大部分を占めることが判明

表4.2.2 水銀廃棄物の埋立実験における水銀の系外への流出量(56ヶ月間)

実験槽		水銀量	水銀充填量(g/槽)				浸出水への水銀流出量(56ヶ月)		気化水銀の大気拡散量(56ヶ月)		実験槽系外への流出量(56ヶ月)	
			燃え殻	下水汚泥堆肥化物	黑色硫化水銀	合計	(mg)	(%)	(mg)	(%)	(mg)	(%)
混合廃棄物	標準気	No.1 硫化水銀(混合型)	0.0030	0.0045	355.3	355.3	148.7	0.042	0.0484	0.00001	148.75	0.042
		No.2 硫化水銀(層状型)			355.3	355.3	1.19	0.0003	0.0004	<0.00001	1.19	0.0003
		No.3 硫化水銀固化体(層状型)			421.5	421.5	0.14	<0.0001	0.0002	<0.00001	0.14	<0.0001
		No.4 ブランク			—	0.0075	0.11	1.51	0.0002	0.00325	0.11	1.51
	嫌気性	No.5 硫化水銀(混合型)	0.0030	0.0045	355.3	355.3	323.0	0.091	0.0626	0.00002	323.06	0.091
		No.6 硫化水銀(層状型)			355.3	355.3	3.89	0.0011	0.0010	<0.00001	3.89	0.0011
		No.7 硫化水銀固化体(層状型)			421.3	421.3	0.54	0.0001	0.0007	<0.00001	0.54	0.0001
		No.8 ブランク			—	0.0075	0.14	1.84	0.0002	0.00244	0.14	1.84
燃え殻単独	標準気	No.9 燃え殻(標準気性)	0.0037	—	355.3	355.3	4.17	0.0012	0.0203	0.00001	4.19	0.0012
		No.10 燃え殻(標準気性)			—	0.0037	0.04	0.946	0.0002	0.00619	0.04	0.952
	嫌気性	No.11 燃え殻(嫌気性)	0.0037	—	355.3	355.3	1.48	0.0004	0.1446	0.00004	1.63	0.0005
		No.12 燃え殻(嫌気性)			—	0.0037	0.04	0.946	0.0004	0.0103	0.04	0.956

した。更に、埋立構造の違いからは、No. 1槽<No. 5槽と準好気性埋立実験槽の方が、埋立手法の違いからは、固化物槽（No. 3/No. 7）<層状槽（No. 2/No. 6）<混合（No. 1/No. 5）槽の順に、系外への流出が小さかった。

4.1.2 埋立5年間ににおける水銀廃棄物の埋立特性

埋立実験開始から56ヶ月を経過した2019年9月に埋立実験槽を解体し、実験槽内の埋立廃棄物を上層から下層部まで層状別に採取、また、充填していた水銀廃棄物も回収し、水銀含有量調査、溶出試験、気化水銀発生等の調査を実施し水銀の挙動を検討した。

（1）埋立実験槽の解体時の充填した水銀廃棄物の様子と含水率

埋立実験槽解体後の上部から下層までの埋立廃棄物中の含水率分布を図4.2.9に示した。嫌気性槽群は15cmの滞水部があるため、実験槽解体前1週間に亘って滞水部の浸出水を排水し、浸出水が流出しない状況を確認してから埋立実験槽を解体している。混合廃棄物を充填した8槽は準好気性の4槽は上層部が30～33%、下層部が30～36%と徐々に下層ほど徐々に高い含水率となっている。嫌気性槽も上層が33%前後から下層部35～38%と下層部が高い含水率となっている。更に、嫌気性槽は滞水部（下層部）の上段（中層下段）の非滞水部の含水率も下層部と同程度の含水率となっている。燃え殻単独槽は4槽と上層部が20～25%、下層部が25%前後と、混合廃棄物充填槽よりも低含水率となっている。

このため、燃え殻は保水性が小さく、浸出水が短時間で埋立廃棄物層を通過し流出するのに対し、20%汚泥を含む混合廃棄物は保水性が高く、浸出水の廃棄物との接触時間がより長くなっている状況にあると言える。

次に、埋立実験槽の解体におい

て、黑色硫化水銀

を実験槽中央部に一塊で充填した層状槽（No. 2、No. 6）の解体時の状況を図4.2.10に示す。準好気性槽

（No. 2）は埋立56ヶ月後においても、黑色硫化水銀が充填時の状態を維持されており、散水に伴う浸出水（保有水）の浸透

による黑色硫化水銀の下層部へ移動は確認できなかった。これに対し、嫌気性槽

（No. 6）は黑色硫化水銀が周囲に浸潤した状況にあり、充填時の状態を維持でき

ていなかった。埋立廃棄物の含水率が準好気性槽（No. 2）よりも、嫌気性槽（No. 6）で約10%高かったことから、上部からの浸出水等の浸透や充填箇所の高含水化によって埋立廃棄物の強度が低下するなどの要因が想定された。さらに、嫌気性槽（No. 6）については、黑色硫化水銀の塊の中心部が黒色から赤色に変化する興味深い現象が確認された。

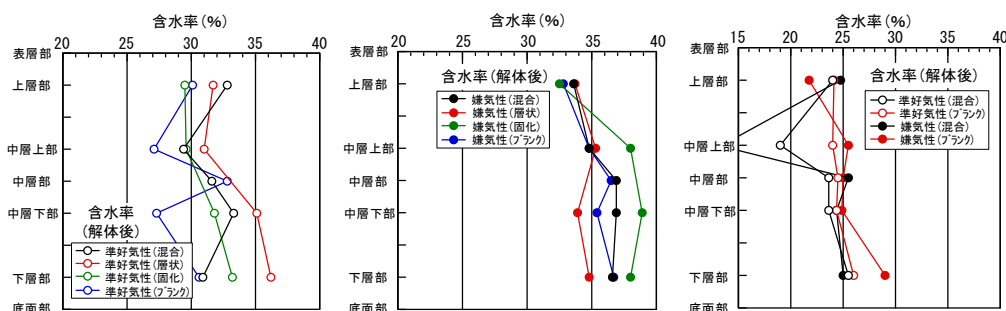


図4.2.9 解体後の埋立廃棄物の深度別含水率分布



No. 2 (外装)

No. 6 (外装)

No. 6 (内部)

図4.2.10 槽中央部に一塊で充填した黑色硫化水銀の状況



No. 3 (準好気性槽)

No. 7 (嫌気性槽)

図4.2.11 槽中央部に充填したセメント固化物の状況

図4.2.11に、解体時のセメント固化物（No.3、No.7）の状況を示すように、準好気・嫌気に関係なく、セメント固化物は解体時も充填時と変化がない状態であった。

（２）水銀化学形態分析による埋立実験槽における水銀動態の検証

１）埋立5年後の水銀のマイクロオーダー分布

埋立実験に使用した水銀廃棄物（黑色硫化水銀又はその固化物）が、埋立5年間でどの程度廃棄物へ移行し、水銀の存在形態がどのように変化しているかを確認するため、高輝度放射光によるX線を用いて、マイクロビームによるマッピングを行い、槽内の黑色硫化水銀からの水銀の移流・拡散状況を確認した、更に、その対象層の均一性を判断した上で、マイクロビームではX線吸収微細構造分析（XAFS）のスペクトルをとるのが難しいことからマイクロビームに絞らず水銀の形態分析を行った。

図4.2.12に混合廃棄物と黑色硫化水銀を完全混合した混合廃棄物槽において、準好気性槽（No.1：1-XAFS）のHg粒子分布例を示す。埋立実験槽の表層部（0番）、中層部（4番）、最下層部（8番）の試料から、50 μm ×100 μm の範囲ではいくつかのHgが濃集している粒子や粒子群が認められた。その一つの粒子（群）に絞ってマッピングしたもの

を図中の右側に埋立実験槽の表層部

（0番）の詳細を示す。縦5～7 μm ×横3～5 μm の粒子が多いが、様々なサイズであった。これらは黑色硫化水銀の凝集の程度によるものと考えられた。粒子の移動やその粒子から水銀が移流・拡散している可能性はあったが、その移動量は大きくはなく、その濃淡の広がり方から推測すると全体的に溶解して広がっているとは考えにくいことがわかった。なお、中層、下層においても同様の結果であった。

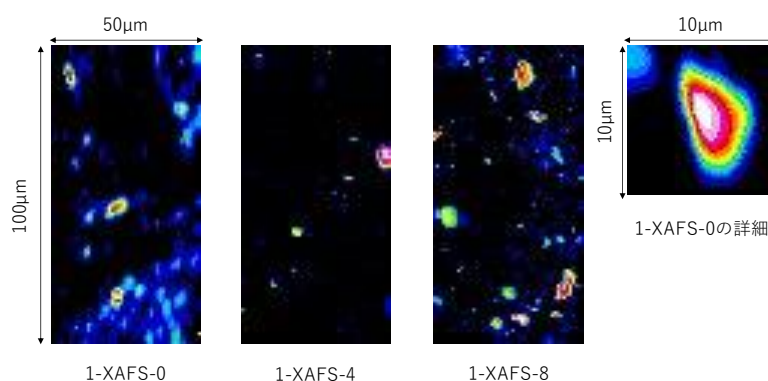


図4.2.12 混合廃棄物槽（混合・準好気性槽：1-XAFS）におけるHg粒子の分布

また、埋立実験槽の中央部に黑色硫化水銀を一塊で充填した準好気性槽（層状・準好気性：No.2：2-XAFS）と嫌気性槽（層状・嫌気性：No.6：6-XAFS）、黑色硫化水銀のセメント固化物を充填した準好気性槽（固化物・準好気性：No.3：3-XAFS）は最下層部のHg粒子分布、また、セメント固化物の嫌気性槽（固化物・嫌気性：No.7：7-XAFS）は最下層から認められなかったことから中層下部の粒子を図4.2.13に示した。Hg粒子は水銀廃棄物を充填した部位の下層域の範囲で、極めて少数（1～2個）の1 μm 程度の粒子が散見され、黑色硫化水銀を廃棄物と完全混合した場合と大きく異なった。このため、これらは埋立廃棄物由来又は槽中央部に充填した黑色硫化水銀から流出したHg粒子やセメント固化物の表面に付着していたHg粒子が、上流部からの散水に伴う浸出水の通過に伴い下層部へ移動していることも想定された。

次に、これらのマッピング結果を基に、埋立槽の各層における水銀処理物の存在数を検討した。ブランク槽から得られた廃棄物由来の水銀の数値を境界値として、各層における水銀廃棄物の存在率を計算した結果、黑色硫化水銀と汚泥の混合埋立の場合は表層、中層、下層にかけてあまりその傾向ははっきりせず、燃え殻の場合は中層で高かつ



図4.2.13 槽中央部に水銀廃棄物を充填した埋立実験槽の最下層部の水銀粒子の検出

（左側：No.2層状・準好気，No.3固化物・準好気，No.6層状・嫌気，No.7固化物・嫌気）

たが、やはりサンプルの不均一によるものと思われた。また、層状、セメント固化では下層においてブランク以上の画素を示したものはなかった。

以上、埋立実験槽の表層部（0番）、中層部（4番）又は中層下部（5番）及び最下層部（8番）のマッピング結果から、水銀廃棄物（黑色硫化水銀又はそのセメント固化物）を充填した埋立実験槽において、充填した水銀粒子はほとんど動いていないことがわかった。これは、後述する、埋立処分層の水銀含有量の分析結果とおおむね一致する結果となった。

2) 埋立5年後の水銀廃棄物および各埋立処分層における水銀の化学形態の確認

埋立5年後に解体した水銀廃棄物（黑色硫化水銀又はセメント固化物）を充填した埋立実験槽（ブランク槽以外）の中層部の解体廃棄物中の水銀の化学形態を同定するため、各種水銀の標準物質のXANESスペクトル化学種と比較した結果を図

4.2.14に示す。このうち、混合廃棄物槽群の中で黑色硫化水銀を一塊で充填した嫌気性槽（層状・嫌気性No.6：6-XAFS-4）のサンプルは図4.2.10で明らかに内側と外側において色調の変化が見て取れたため、それぞれの部位について線形重ね合わせの結果、この色調の変化が現れた内側の部位のみ、赤色硫化水銀が32%含まれており、この部位で何らかの結晶構造変化が生じた可能性があったと考えられる。

その他の測定結果はすべての部位で黑色硫化水銀が100%であったことから、この埋立期間中においてXAFSで検知できるレベルでは充填時の黑色硫化水銀が埋立5年後も化学的な変化がなく、安定した状態でそのままの存在していることも確認できた。

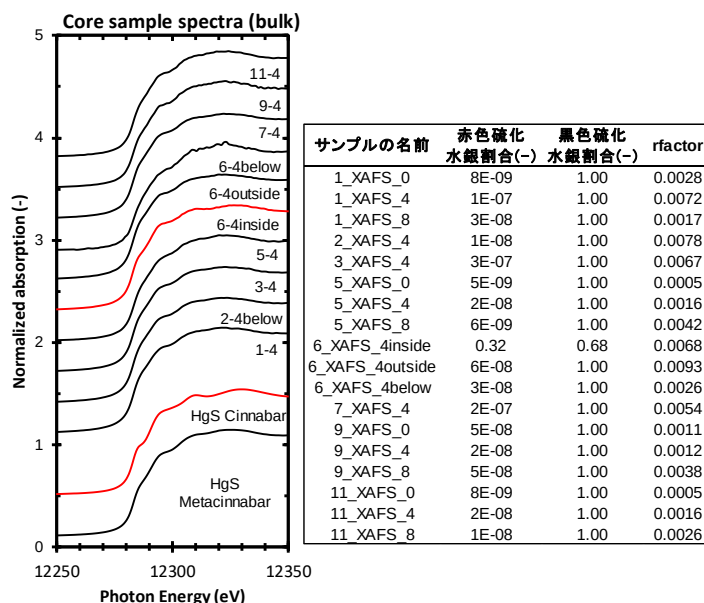


図4.2.14 各埋立実験槽の中層部廃棄物中の水銀のLIII吸収端XANESスペクトルと線形重ね合わせ結果

(3) 埋立5年後の水銀廃棄物の水銀の移動・拡散と埋立地系外への水銀流出特性の比較

埋立処分された水銀廃棄物中の水銀の埋立特性把握するため、埋立5年間に亘る浸出水への水銀流出や気化水銀として大気拡散調査及び、解体後の水銀廃棄物の埋立廃棄物への移動・拡散状況等を解体廃棄物について水銀含有量、溶出試験、気化水銀の発生などを調査し、本実験における埋立処分された水銀廃棄物の埋立特性を総合的に評価した。

1) 黑色硫化水銀と混合廃棄物を完全混合した混合槽（準好気性と嫌気性）

黑色硫化水銀を混合廃棄物と完全混合埋立処分を行った混合槽の準好気性槽（No.1）と嫌気性槽（No.5）に関する浸出水への流出（総水銀、メチル水銀）、気化水銀の経時変化及び解体廃棄物の上層から下層までの層別水銀含有量（総水銀、メチル水銀）とその基礎実験（溶出試験、気化試験）結果を図4.2.15に整理した。

総水銀は埋立56ヶ月後の解体廃棄物中の水銀含有量の層別分布と、浸出水へ流出した水銀の経時変化を比較した。解体廃棄物中の水銀含有量は準好気性槽（No.1）と嫌気性槽（No.5）とも10,000mg/kg前後で、下層部の方が低い傾向にある。また、XAFSスペクトルによる解析可能なレベルの結果から、マイクロオーダーレベルでも水銀は解体廃棄物中に留まっており、水銀の移動はほとんどない傾向にあり、その水銀形態は充填時と同じ黑色硫化水銀で存在していた。

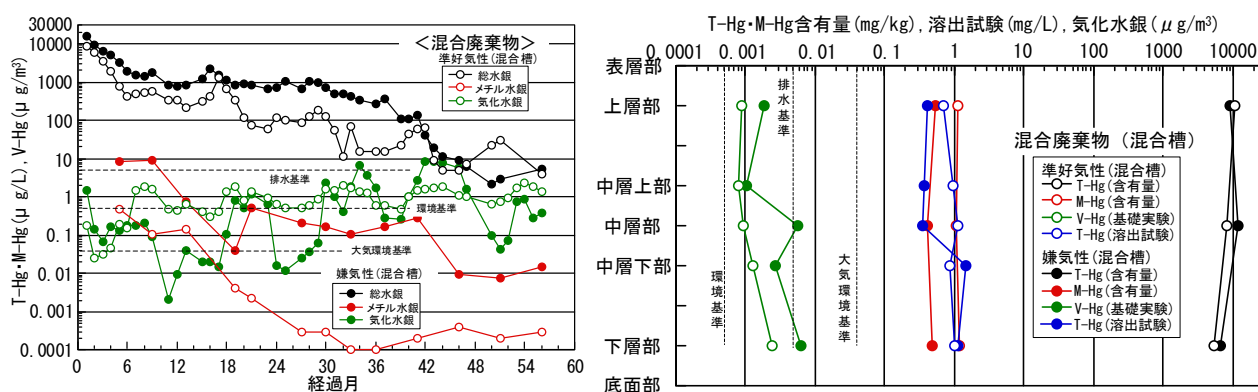
埋立期間中に浸出水へ流出した総水銀は準好気性・嫌気性槽の両槽とも、4年間に亘って排水基準を大幅に超える高濃度で長期に流出している。これは、下層部の解体廃棄物中の水銀含有量が低くなっていることから、浸出水へ流出した水銀は下層部の水銀が流出していることが考えられた。更に、埋立実験槽が不安定な埋立初期に黑色硫化水銀を含むSS由来の水銀流出が想定されるが、特に、嫌気性槽は常に廃棄物層が15cm帯水している点と、解体後の嫌気性槽が全体的に高含水率・高pHの環境下にある点が

影響して、浸出水中の水銀濃度が準好気性槽よりも高く検出されていることが想定される。

メチル水銀は解体廃棄物の上層から下層まで、準好気性槽が1mg/kg前後、嫌気性槽が0.5mg/kg前後検出された。メチル水銀含有量が嫌気性槽<準好気性槽と還元雰囲気環境下にある嫌気性槽の方が低い点は不明であるが、浸出水中のメチル水銀は総水銀の1/100～1/1000程度検出され、徐々に濃度が低下し、不検出（公的機関の不検出=0.5 μ g/L）となっている点を踏まえると、埋立地内ではメチル水銀が生成している可能性があるものの、浸出水へのメチル水銀の流出はほとんどないことが想定される。

解体廃棄物の溶出試験結果から、総水銀は56ヶ月後においても上層から下層まで、溶出基準を超える濃度で流出する傾向にあった。また、準好気性槽は上層から下層まで同程度の濃度で溶出しているが、嫌気性槽は下層部の滞水域で溶出濃度が高くなる傾向にあり、これは滞水域が嫌気的環境下であるものの、溶出pHも10弱あることが水銀の溶出に影響していることが想定された。

56ヶ月に亘り実験槽表面から大気拡散した気化水銀濃度は大気環境基準（0.04 μ g/m³）を超える濃度で継続的に発生していたが、解体廃棄物からの気化水銀発生は、準好気性槽・嫌気性槽とも大気環境基準より低く、上層部よりも下層部の方が高く検出されていることから、実験槽表面から発生した気化水銀は、実験槽上層部の水銀に大きく由来しているものと考えられる。



浸出水中の水銀と気化水銀の経時変化

層状別解体廃棄物中の水銀含有量・溶出試験・気化水銀

図4.2.15 黒色硫化水銀を混合廃棄物と完全混合した混合槽（準好気性・嫌気性）

2）黒色硫化水銀を槽中央部に一塊で充填した層状槽（準好気性と嫌気性）

黒色硫化水銀を実験槽中央部に一塊で充填した層状槽の準好気性槽（No. 2）と嫌気性槽（No. 6）に関する浸出水への流出（総水銀，メチル水銀）、気化水銀の経時変化及び解体廃棄物の層状別水銀含有量（総水銀，メチル水銀）とその基礎実験（溶出試験，気化試験）結果を図4.2.16に整理した。

層状槽解体時に槽中央部に一塊で充填した黒色硫化水銀は図4.2.10の解体時の状況や、図4.2.9の廃棄物の含水率の分布状態から、準好気性槽（No. 2）は散水により槽中央部の黒色硫化水銀を一過性で通過しながら浸出水が流出するプロセスのため、56ヶ月後の実験槽解体時も、解体廃棄物の含水率が30～35%で、黒色硫化水銀も充填時の状態を維持した状況にあった。これに対し、嫌気性槽は準好気性槽と同様に、散水に伴う一過性の通過に加え、下層部が常時滞水した状況にあるため、黒色硫化水銀を充填した位置から直上部（中層上部）から下層部までの廃棄物中の含水率が埋立期間中常に35%以上であると想定される（実験槽解体時に1週間に亘って水抜きを実施後の含水率）ことから、充填していた黒色硫化水銀がこれらの影響を受け、攪乱された状況になっていることが想定される。

このような状況下で、解体後の総水銀の層状別分布において、準好気性槽が5～20mg/kgの範囲で分布し、黒色硫化水銀を充填した中層部の直下（中層下部）の水銀含有量が高くなっていることから、黒色硫化水銀中の水銀が下部へ移動しているものの、下層部までは達していないことが想定される。これに対し、嫌気性槽は黒色硫化水銀を充填した位置よりも下部（中層下部，下層部）において、図4.2.10にあるように、解体時の黒色硫化水銀の一塊の内側が赤く、外側が黒い色調を示していたが、XAFSスペクトルによる水銀の化学形態の解析の結果、外側は黒色硫化水銀、内側は赤色硫化水銀であり、全体の約30%が要因は不明であるが赤色硫化水銀に変化していた。また、マイクロオーダーによる解析では水銀

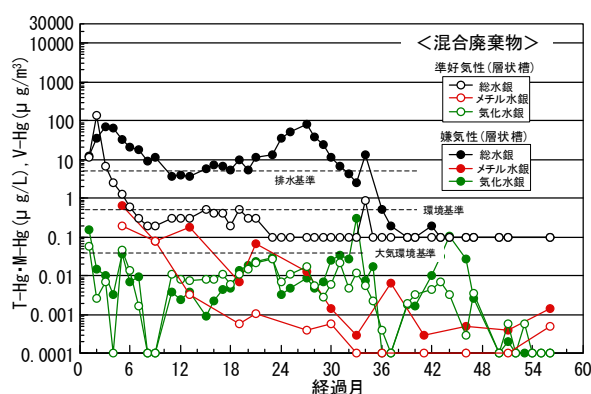
移動はほとんど確認されなかったものの、水銀含有量分析結果からは高くなる傾向が見られた。これは前述したように、滞水等による含水率が高い影響を受け、充填した黑色硫化水銀が攪乱され、下層部へ水銀が移動していることが想定された。

この点は、浸出水中の水銀の経時変化からも、準好気性槽は埋立初期のみ水銀の流出が確認されたが、嫌気性槽は長期に亘って水銀が高濃度で流出してきた要因とも一致する傾向にあった。

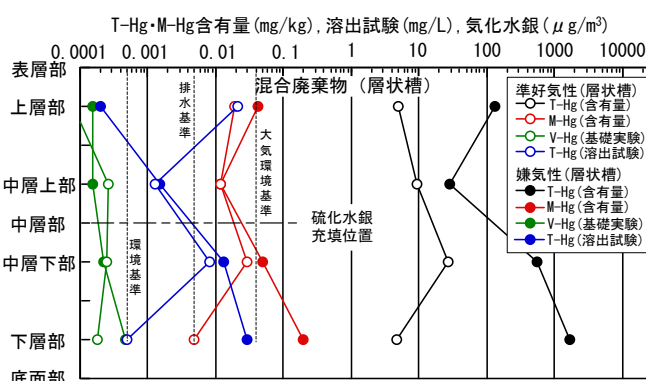
メチル水銀は解体廃棄物の上層から下層まで、両槽とも0.01~0.1mg/kgの範囲で検出され、上層から下層まで総水銀濃度と同傾向の濃度分と示し、総水銀の1/1000程度検出されている。また、浸出水へ流出したメチル水銀濃度は両槽とも埋立初期の0.7 μ g/Lを除いて、0.1 μ g/L以下で推移するなど、ほとんど不検出（公的機関の不検出=0.5 μ g/L）にあった。更に、解体廃棄物中のメチル水銀含有量を混合槽（No. 1, No. 5）と層状槽（No. 2, No. 6）を比較すると、層状槽のメチル水銀含有量は混合槽の1/10~1/100と更に低濃度であることから判断して、層状槽は槽中央部に一塊で充填した黑色硫化水銀に由来するメチル水銀の生成は極めて小さいことが想定される。

解体廃棄物の溶出試験結果は解体廃棄物の層状別水銀含有量と同傾向で、1/1000以下の溶出となっている。また、準好気性槽（No. 2）は黑色硫化水銀を充填した直下（中層下部）で排水基準を超えて溶出しているが、下層部からは環境基準前後と低く、これは、浸出水への水銀流出（ほとんど不検出）にも影響していることが想定される。一方、嫌気性槽（No. 6）は解体廃棄物からの水銀溶出が中層下部から下層部に亘って、排水基準を超えるなど比較的高濃度で溶出し、浸出水中の水銀流出も長期に亘っていることから、充填した黑色硫化水銀が流出してきていることが想定された。

解体廃棄物からの気化水銀発生量は解体廃棄物中の水銀含有量や充填した黑色硫化水銀に関係なく、0.0005 μ g/m³以下と極微量の発生に留まっていた。



浸出水中の水銀と気化水銀の経時変化



層状別解体廃棄物中の水銀含有量・溶出試験・気化水銀

図4.2.16 黑色硫化水銀を槽中央部に一塊で充填した層状槽（準好気性・嫌気性）

3）黑色硫化水銀のセメント固化物を槽中央部に充填した固化物槽（準好気性と嫌気性）

黑色硫化水銀のセメント固化物を実験槽中央部に充填した固化物槽の準好気性槽（No. 3）と嫌気性槽（No. 7）に関する浸出水への流出（総水銀、メチル水銀）、気化水銀の経時変化及び解体廃棄物の層状別水銀含有量（総水銀、メチル水銀）とその基礎実験（溶出試験、気化試験）結果を図4.2.1に整理した。

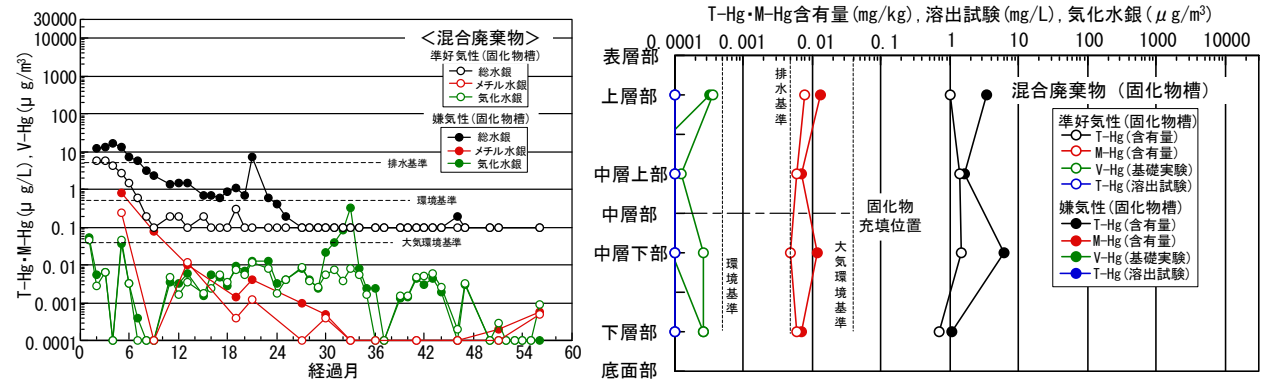
固化物槽は黑色硫化水銀のセメント固化物を槽中央部に充填したが、解体時のセメント固化物の状況は図4.2.11に示すように、準好気性槽・嫌気性槽とも充填時の形状で存在し、浸出水との接触や滞水等による高含水化による影響等を受けず、XAFSスペクトルによる水銀の化学形態も黑色硫化水銀であり、化学的変化も起きていなかった。

このような状況下で、解体後の総水銀の層状別分布において、準好気性槽が上層部から下層部まで1mg/kg前後で分布し、固化物中の水銀流出はほとんどなかったと言える。これに対し、嫌気性槽は1~8mg/kgの範囲で分布し、固化物を充填している直下（中層下部）の含有量が若干高くなっている点や、

浸出水中の水銀濃度が準好気性槽よりも長い期間高く検出されている点から、固化物中の水銀は高含水率の影響を受け下層部までは移動していないものの、一部の水銀が流出し中層下部に留まっている又はその一部が浸出水へ流出している可能性も考えられた。

メチル水銀は両槽とも上層から下層まで0.01mg/kg前後で検出され、前述した層状槽のメチル水銀濃度が低いことから、固化物中の水銀由来のメチル水銀はほとんど生成していないことが想定された。

固化物の溶出試験は現在測定中であるが、解体廃棄物の溶出試験は両槽とも不検出であり、固化物中の水銀が廃棄物中へ移動し溶出する現象も起きていないと考えられる。気化水銀も上層から下層まで極低濃度で発生しているが固化物により影響を受けていない。



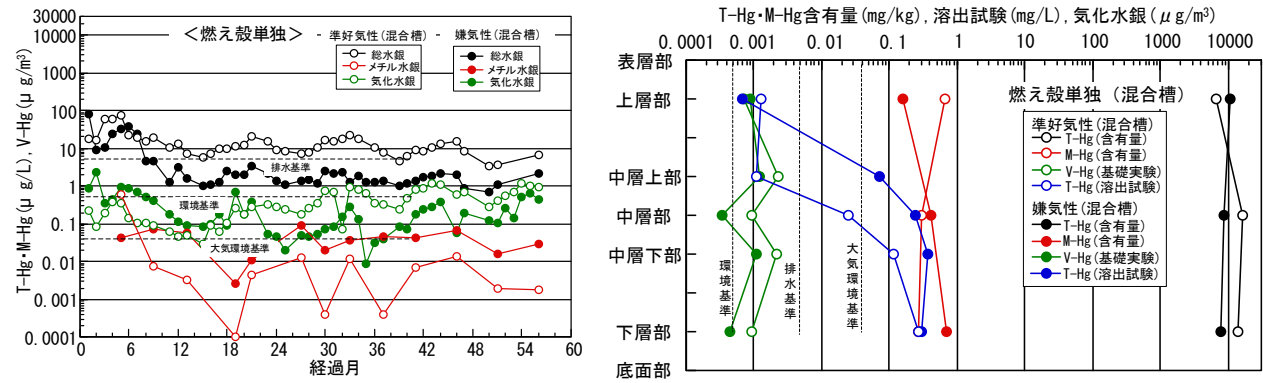
浸出水中の水銀と気化水銀の経時変化 層状別解体廃棄物中の水銀含有量・溶出試験・気化水銀
図4.2.1 黒色硫化水銀のセメント固化物を槽中央部に充填した固化物槽（準好気性・嫌気性）（再掲）

4）黒色硫化水銀と燃え殻単独を完全混合した混合槽（準好気性と嫌気性）

黒色硫化水銀を燃え殻単独と完全混合し埋立処分を行った混合槽の準好気性槽（No. 9）と嫌気性槽（No. 11）に関する浸出水への流出（総水銀，メチル水銀）、気化水銀の経時変化及び解体廃棄物の層状別水銀含有量（総水銀，メチル水銀）とその基礎実験（溶出試験，気化試験）結果を図4.2.17に整理した。

総水銀は埋立56ヶ月後の解体廃棄物中の水銀含有量の層状別分布と、浸出水へ流出した水銀の経時変化から、解体廃棄物中の水銀含有量は準好気性槽（No. 9）と嫌気性槽（No. 11）とも10,000mg/kg前後で、混合廃棄物と同程度の含有量であった。また、混合廃棄物（No. 1, No. 5）の場合は水銀含有量が下層部の方が若干低い傾向にあったが、燃え殻単独では上層から下層までの濃度差が小さかったことから、黒色硫化水銀の廃棄物層内の移動はほとんど確認できなかった。これは、XAFSスペクトルの解析も同様の結果であり、解体廃棄物中の水銀形態は黒色硫化水銀で充填時と同じ水銀形態であった。

浸出水への水銀の流出において、準好気性槽では排水基準を長期期亘って流出し、嫌気性槽も排水基



浸出水中の水銀と気化水銀の経時変化 層状別解体廃棄物中の水銀含有量・溶出試験・気化水銀
図4.2.17 黒色硫化水銀を燃え殻単独と完全混合した混合槽（準好気性・嫌気性）

準から環境基準の間で長期に亘って流出している状況で、解体廃棄物の燃え殻の溶出試験結果においても、中層上部から下層部まで0.03～0.3mg/Lの水銀が溶出し、特に下層部では0.2mg/Lと高濃度で検出されていた。これは、図4.2.18に示した燃え殻の溶出pHが準好気性槽が9.5～10、嫌気性槽が9～11と弱アルカリ又は高アルカリ性を示していることから、黑色硫化水銀がアルカリ成分によって二硫化水銀イオンの錯体となって溶解している可能性があり、この結果が、浸出水中の水銀流出に大きく影響していることが考えられた。しかし、pHは準好気性槽<嫌気性槽であるため、嫌気性槽はpHの影響よりも、燃え殻が一部滞水状態にあるため、一旦、二硫化水銀となって流出した水銀が結果的に滞水部で再度、水銀の硫化物化や燃え殻への再吸着現象等が起きている可能性も考えられた。

メチル水銀は解体廃棄物の上層から下層まで、両槽とも0.1～0.8mg/kgの範囲で検出された。メチル水銀含有量は総水銀含有量の1/10,000以下の生成率で、浸出水へのメチル水銀濃度も徐々に低濃度し、不検出（公的機関の不検出=0.5 μ g/L）となっている点を踏まえると、有機物の少ない燃え殻単独の埋立地内ではメチル水銀が生成していないことが想定される。

56ヶ月に亘り実験槽表面から大気拡散した気化水銀濃度は大気環境基準（0.04 μ g/m³）を超える濃度で継続的に発生していたが、解体廃棄物（燃え殻）からの気化水銀発生は準好気性槽・嫌気性槽とも上層から下層まで0.001 μ g/m³前後と大気環境基準より低い傾向にあった。実験槽表面から発生した気化水銀は実験槽上層部の水銀の気化に由来していると考えられるが、顕著な傾向は確認できなかった。

4.2 埋立処分環境を想定した水銀廃棄物の基礎実験

4.2.1 水銀廃棄物と埋立廃棄物の水銀気化特性

水銀廃棄物の気化水銀は黑色硫化水銀単体、黑色硫化水銀のセメント固化物（未洗浄・洗浄）と改質硫黄固化物（未洗浄・洗浄）及び埋立廃棄物（燃え殻、汚泥）を対象にした気化試験の結果を図4.2.19に示す。黑色硫化水銀単体、燃え殻、汚泥からの水銀気化速度は水銀含有量に関係なく、温度に対して正の相関が得られた。次に、埋立処分前に作成した黑色硫化水銀の固化物（セメント固化物、改質硫黄固化物）を水洗浄前の状態

（未洗浄）と洗浄後の状態（洗浄）における水銀気化に対する洗浄の効果を確認したところ、セメント固化物のみ洗浄によって水銀気化が低減された。未洗浄のセメント固化物からの水銀気化速度は黑色硫化水銀よりも高く、セメント固化物の表面に存在する水銀は不安定な形態であることが推察された。また、セメント固化（洗浄）の温度依存性は黑色硫化水銀と同程度であったが、改質硫黄固化物の温度依存性は低く、改質硫黄による固化は水銀の気化リスクを低減できることが分かった。

4.2.2 水銀廃棄物の溶出特性

埋立廃棄物は燃え殻等のアルカリ性廃棄物や汚泥・破碎残渣等の中性廃棄物、分解に伴い酸性化する廃棄物など種々の埋立廃棄物があることから、埋立地から発生する浸出水（保有水）のpHを弱酸性からアルカリ性までの範囲で想定し、pHの影響試験ではpHを3～11の範囲で変化させて溶出試験した結果を図4.2.20に示す。黑色硫化水銀、未洗浄のセメント固化物、改質硫黄固化物のいずれも、pH領域に関係なく溶出基準以下であり、水銀廃棄物はpHの影響を受けにくい傾向にあった。しかし、黑色硫化水銀

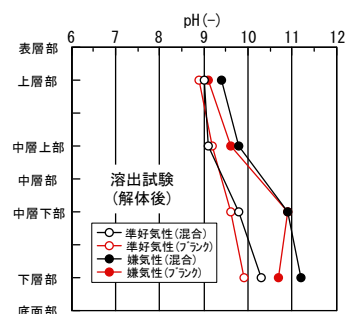


図4.2.18 燃え殻単独槽の層別溶出試験結果（pH）

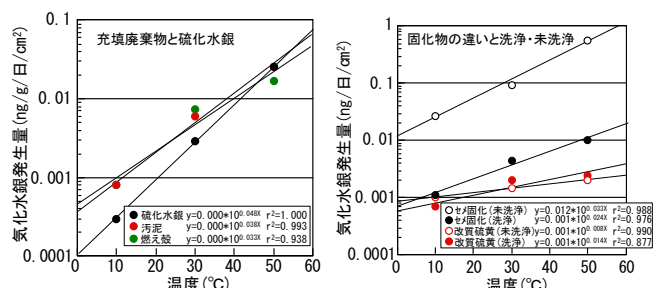
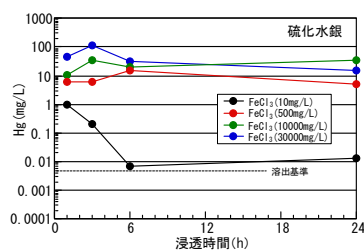


図4.2.19 水銀廃棄物・埋立廃棄物からの水銀気化

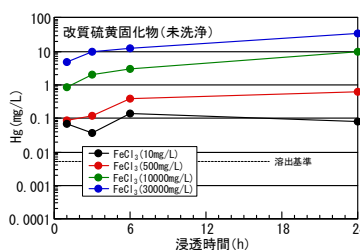
単体からはアルカリ領域で水銀が溶出しやすい傾向にあり⁵⁾、前述した燃え殻単体の埋立実験槽におけるアルカリ領域での黒色硫化水銀中の水銀の流出が想定されたことから、黒色硫化水銀単体のアルカリ領域では水銀溶出の可能性が想定される。これに対し、黒色硫化水銀の固化物からの水銀溶出はpHの影響が小さく、前述したセメント固化物の埋立実験槽において準好気性構造の方が浸出水中の水銀濃度が低かった要因と考えられる。

埋立廃棄物や埋立地から流出する浸出水の水質等から、想定される共存物質（陽イオン： Na^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 、陰イオン： NO_3^- 、 Cl^- 、 SO_4^{2-} ）の濃度を変化させて溶出試験を行ったところ、いずれのイオンも黒色硫化水銀やその固化物に影響を及ぼさなかった。

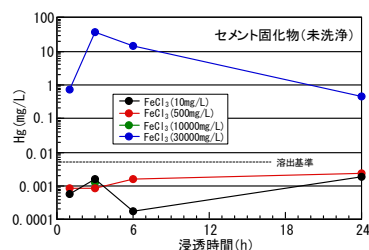
金属水銀は酸化剤（ FeCl_3 等）が存在するとイオン化する特性を有し、最終処分場に埋立処分される埋立廃棄物中には、鉄イオンや塩素イオンなど酸化剤となり得る物質が存在することから、酸化剤として FeCl_3 を用いて溶出試験を行った。図4.2.21に各廃棄物への酸化剤の影響を示す。黒色硫化水銀と改質硫黄固化物は微量の酸化剤（ FeCl_3 ：10mg/L）でも影響を受け、基準値を超えて溶出した。しかし、セメント固化物は高濃度になると溶出するが、酸化剤の影響を受けにくいことが分かった。



（黒色硫化水銀）



（改質硫黄固化物）



（セメント固化物）

図4.2.21 酸化剤の影響

4.3 水銀廃棄物の本埋立実験における5年間の挙動の総括

水銀廃棄物の埋立処分に伴う水銀の環境に与える影響と負荷を検討するため、約5年間に亘って種々の条件で、埋立地における水銀廃棄物の挙動を検討してきた結果を以下にまとめた。

（1）水銀廃棄物の埋立処分に対する最適条件の抽出

水銀廃棄物の埋立実験を通して得られた実験結果から、水銀廃棄物の3種類の埋立処分手法による水銀の環境負荷抑制に最適な埋立条件を表4.2.1に示した。

1）黒色硫化水銀を廃棄物と混埋立する手法（混合槽）

黒色硫化水銀単体を廃棄物（混合廃棄物や燃え殻単体）と混埋立処分した場合は、埋立構造に関係なく水銀が浸出水や大気拡散などを經由して埋立地系外へ流出し、排水基準や環境基準などの法規制値を超える可能性がある。また、黒色硫化水銀はアルカリ性環境下では二硫化水銀に再溶解する懸念が確認されたことから、高アルカリ領域の環境下やアルカリ廃棄物への単独埋立処分は不適である。メチル水銀も極微量生成している可能性も否定できないことから、これらを総合的判断すると「埋立処分不可」と判定できる。

2）黒色硫化水銀を槽中央部に一塊で埋立処分する方法（層状槽）

黒色硫化水銀を埋立実験槽中央部に一塊で埋立処分した場合、準好気性・嫌気性に関係なく、充填した黒色硫化水銀の直上又は直下の廃棄物中の水銀含有量が高くなる傾向にあり、黒色硫化水銀中の水銀が廃棄物へ移動している。特に、実験槽下層部が帯水（15cm）した嫌気性槽では、槽上部からの散水による浸出水（保有水）の一過性による通過と、廃棄物や充填した一塊の黒色硫化水銀周辺の高含水率化により、充填した黒色硫化水銀の塊が攪乱され、その直下の廃棄物中の水銀含有量が高くなる傾向を示し、長期に亘って水銀の浸出水への流出現象も起きていることから、嫌気性埋立の場合は「埋立処分不

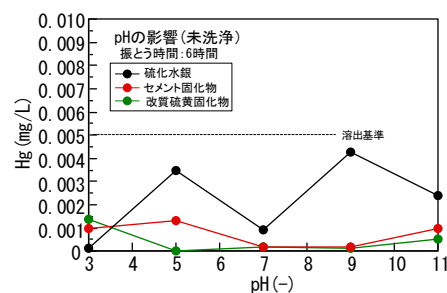


図4.2.20 水銀廃棄物のpHの影響

可」の判定である。一方で、準好気性埋立の場合は、一塊で充填した黒色硫化水銀の直下で廃棄物中の水銀含有量が高くなっているものの、浸出水への水銀流出は埋立初期にSS由来で流出しているが、その後は環境基準以下又は不検出で推移していることから、埋立初期の水銀対策等を実施することで、「条件付きの埋立処分可能」と判定できる。

3) 水銀廃棄物の固化物を槽中央部に埋立処分する方法（固化物槽）

黒色硫化水銀をセメント固型化した固化物を槽中央部に埋立処分した場合、嫌気性埋立において「層状槽」と同様に、固化物周辺の含水率が高くなっているが、固化物自体は解体時の状況も充填時と大きな変化はなく、埋立初期にSS由来の水銀が短期間流出している程度であることから、埋立初期の対策を実施することで「条件付きの埋立処分可能」と判定できる。一方、固化物を準好気性埋立地に埋立処分した場合、埋立初期から浸出水や気化水銀などの規制値を概ね満足し、固化物中の水銀の廃棄物への移動もほとんどなく、水銀の化学形態も充填時と同じ黒色硫化水銀で安定した状況にあった。更には、メチル水銀もほとんど生成していない状況にあることから、水銀廃棄物の固化物を準好気性埋立構造を有する埋立地への埋立処分は「埋立処分可能」と判定できる。

表4.2.1 水銀廃棄物の環境負荷抑制のための埋立条件（再掲）

埋立 廃棄物	埋立構造	水銀廃棄物の埋立方法	5年間の経時変化			解体後（5年後）の廃棄物			総合
			T-Hg (浸出水)	M-Hg (浸出水)	V-Hg (気化水銀)	T-Hg (含有)	T-Hg (溶出)	M-Hg (含有)	
混合 廃棄物	準好気性槽	混合槽	×	△	×	—	×	△	×
		層状槽	△	△	○	—	△	△	△
		固化物槽	○	○	○	—	○	○	○
	嫌気性槽	混合槽	×	△	×	—	×	△	×
		層状槽	×	△	○	△	△	△	×
		固化物槽	△	△	○	△	○	△	△
燃え 殻単 独	準好気性槽	混合槽	×	△	×	—	×	△	×
	嫌気性槽	混合槽	△	△	×	—	×	△	×
T-Hg・V-Hg : ○規制基準値以下、△：埋立期間中に規制基準値超え、×：規制基準値を超える M-Hg : ○メチル水銀の生成可能性が小、△：生成の可能性・不明									

4) 水銀廃棄物の固化物の埋立処分前の対策

本実験における水銀廃棄物を埋立処分する最適条件は、黒色硫化水銀をセメント固型化した固化物を埋立処分手法が適正していることが確認できたが、作成したセメント固化物は埋立処分する前に一時地上保管する事が想定される。そこで、本研究の基礎実験から得られた結果、「作成した固化物を一端洗浄することで、固化物に付着している水銀を洗浄・除去でき、固化物からの水銀溶出量や気化水銀発生量を大幅に抑制できる」ことから、水銀廃棄物の埋立処分の最適条件に、固化物の埋立事前洗浄プロセスを導入することで、更に、水銀廃棄物の埋立処分に伴う水銀リスクを大幅に抑制できる効果が見込めることが想定できる。

(2) 水銀廃棄物の最適な埋立条件

本埋立実験と基礎実験より得られた結果から、浸出水への水銀流出や水銀の大気拡散によって埋立地系外へ流出した水銀量は浸出水への流出が大部分を占め、充填水銀量に対する水銀流出率は最大で0.1%以下であり、水銀廃棄物中の水銀はほとんど埋立実験槽内に残存し、流出しにくいことが確認できた。また、埋立処分前の固化物の洗浄対策は、同時に浸出水への水銀流出を抑制対策としても重要と考えられることから、固化物の事前洗浄による水銀の流出抑制効果が得られている。

以上、3種類の水銀廃棄物と廃棄物の約5年間に亘る埋立実験と気化水銀の基礎実験結果から、水銀廃棄物の埋立処分に伴う水銀の環境負荷低減を確保した埋立手法の最適条件は下記のとおりである

- 第一段階（地上保管：埋立処分前の水銀廃棄物への対応）

ア) 水銀廃棄物は黒色硫化水銀を成形した固化物

イ) 成形した固化物の一時保管（地上保管）期間中に、「水洗浄プロセス」を導入

●第二段階（埋立処分：固化物の埋立条件）

ア) 埋立処分する水銀廃棄物：固化物

イ) 埋立構造：準好気性埋立構造

ウ) 水銀廃棄物の埋立位置：埋立地内の非帯水域で高含水率になりにくい上層又は中層域

エ) 埋立廃棄物：アルカリ廃棄物単独や有機物の多い廃棄物は不適

以上の条件をまとめると「水銀廃棄物の最適な埋立環境の概要」は図4.2.22となる。

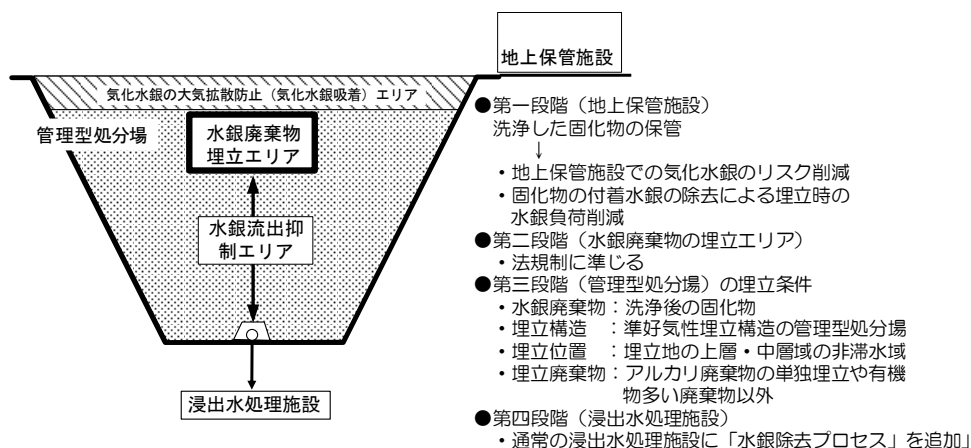


図4.2.22 水銀廃棄物の最適な埋立環境の概要

5. 本研究により得られた成果

（1）科学的意義

水銀廃棄物の埋立実験と基礎実験より、地上保管から埋立処分に至る水銀廃棄物の適正処理における水銀による環境負荷手減のための最適な条件を提案できた点に科学的意義がある。

第一は、地上保管は黒色硫化水銀の固化物に対して「水洗浄プロセス」を導入し、保管施設内での気化水銀発生の低減化は保管施設の管理上の環境保全対策に貢献できる。また、埋立処分時におけるSS性の水銀を事前に洗浄・除去し、埋立処分時の溶出しやすい水銀の流出抑制を図ることができる。

第二は、洗浄した固化物の埋立処分の最適条件は①準好気性構造を有する埋立地を対象とする、②埋立地内の非帯水部の中層域や上層域への埋立処分を基本とする、③埋立地内部がアルカリ環境以外のエリアへの埋立処分を基本とする。

これらの水銀廃棄物の処理・処分対策により、水銀の浸出水への流出や気化水銀による大気拡散量が水銀充填量に対して0.1%以下の流出率と極めて小さく制御され、水銀廃棄物中の水銀はほとんど埋立実験槽内の固化物中に残存し流出を抑制できる。更に、埋立5年後の水銀の化学形態も黒色硫化水銀であり、非常に安定した状態で水銀廃棄物を適切に安全に処理・処分が可能であることが提案できた。

（2）環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

<行政が活用することが見込まれる成果>

本埋立実験と基礎実験より得られた研究結果から、水銀廃棄物の固化物の地上保管から埋立処分における水銀廃棄物の適正処理における水銀による環境負荷手減のための最適な条件を提案する。

埋立処分された水銀廃棄物中の水銀は、浸出水への水銀流出や水銀の大気拡散によって埋立地系外へ流出し、流出した水銀量は浸出水への流出が大部分を占め、充填水銀量に対する水銀流出率は最大で0.1%以下であり、水銀廃棄物中の水銀はほとんど埋立実験槽内に残存し、流出しにくいことが確認で

きた。更に、本実験で使用した黒色硫化水銀は埋立5年後の水銀の化学形態も黒色硫化水銀であり、非常に安定していることを確認した。一方で、埋立処分前の固化物の洗浄対策は、同時に浸出水への水銀流出を抑制対策としても重要と考えられることから、固化物の事前洗浄による水銀の流出抑制効果が得られている。

3種類の水銀廃棄物と廃棄物の約5年間に亘る埋立実験と気化水銀の基礎実験結果から、水銀廃棄物の埋立処分に伴う水銀の環境負荷低減を確保した埋立手法として、次の事柄が提案される。埋立処分前の水銀廃棄物への対応として、水銀廃棄物の固型化を実施すること、固化物の一時保管（地上保管）期間中に、「水洗浄プロセス」を導入すること、埋立処分においては、水銀廃棄物は固化物とし、埋立構造としては準好気性埋立構造で、固化物の埋立位置は埋立地内の非帯水域で高含水率になりにくい上層又は中層域に、アルカリ廃棄物単独や有機物の多い廃棄物との混合埋立は避けることが提案された。

これら水銀廃棄物の埋立処分に関する裏付けデータや最適な埋立処分条件は、水銀廃棄物ガイドラインへ追記が見込まれる。

6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文（査読あり）>

- 1) A. Sano, K. Kawase, R. Yanase, M. Takaoka, A. Matsuyama, F. Takahashi, T. Kato: Global Environment Research, (2020) (in press)
Long-term Mercury Behavior in Stabilized/Solidified Mercury Wastes by a Simulated Landfill Experiment Using Lysimeters

<査読付論文に準ずる成果発表>

特に記載すべき事項はない。

<その他誌上発表（査読なし）>

特に記載すべき事項はない。

(2) 口頭発表（学会等）

- 1) 川瀬敬三、柳瀬龍二、松藤康司、佐野彰、高岡昌輝、高橋史武：第39回全国都市清掃研究・事例発表会（2018）
「水銀廃棄物固化体の埋立処分に伴う水銀気化特性の検討」
- 2) 佐野彰、加藤貴史、柳瀬龍二、川瀬敬三、高岡昌輝：第39回全国都市清掃研究・事例発表会（2018）
「硫化処理された水銀廃棄物の水銀溶出特性」
- 3) 柳瀬龍二、川瀬敬三、松藤康司、高岡昌輝、高橋史武：第40回全国都市清掃研究・事例発表会（2019）
「水銀廃棄物の埋立処分に伴う浸出水へのメチル水銀の流出特性」
- 4) 佐野彰、加藤貴史、柳瀬龍二、川瀬敬三、高岡昌輝：第40回全国都市清掃研究・事例発表会（2019）
「コンクリート固型化された水銀廃棄物の水銀溶出特性」
- 5) 川瀬敬三、柳瀬龍二、佐野彰、高岡昌輝、日下部武敏、高橋史武：第40回全国都市清掃研究・事例発表会（2019）
「水銀廃棄物固化体の埋立処分に伴う水銀気化特性の検討（その2）」
- 6) 佐野彰、加藤貴史、柳瀬龍二、川瀬敬三、高岡昌輝：第41回全国都市清掃研究・事例発表会（2020）
「中間処理された水銀廃棄物の埋立処分環境に対する安定性評価」
- 7) 川瀬敬三、柳瀬龍二、松藤康司、佐野彰、高岡昌輝、高橋史武：第41回全国都市清掃研究・事例

発表会（2020）

「水銀廃棄物固化体の埋立処分に伴う水銀気化特性の検討（その3）」

（3）出願特許

特に記載すべき事項はない。

（4）「国民との科学・技術対話」の実施

1) 柳瀬龍二：平成30年度 廃棄物資源循環学会セミナー「有害重金属廃棄物の長期管理・処分に關するセミナー」（主催：環境研究総合推進費3-1701、3-1802、（一社）廃棄物資源循環学会、2019年3月18日、京都大学東京オフィス、参加者61名）にて講演

（5）マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

（6）その他

特に記載すべき事項はない。

8. 引用文献

- 1) 柳瀬 龍二 (2005) 廃棄物埋立地内における使用済み乾電池中の水銀挙動に関する研究. 福岡大学博士論文.
- 2) Svensson, M., Düker, A. and Allard, B. (2006) Formation of cinnabar-estimation of favorable conditions in a proposed Swedish repository. *Journal of Hazardous Materials*, 136(3), 830–836.
<https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2006.01.018>
- 3) Chai, X., Hao, Y., Li, Z., Zhu, W. and Zhao, W. (2015) The dependence of the *methylation* of mercury on the *landfill* stabilization process and implications for the *landfill* management. *Chemosphere*, 119, 828-834.
<http://dx.doi.org/10.1016/j.chemosphere.2014.08.004>
- 4) Zhang X., Jiang C., Shan Y., Zhang X., and Zhao Y. (2019) Influence of the void fraction and vertical gas vents on the waste decomposition in semi-aerobic landfill: Lab-scale tests. *Waste Management*, 100, 28-35.
<https://doi.org/10.1016/j.wasman.2019.08.039>
- 5) Clever, H. L, Johnson S. A. and Derrick M. E. (1985) The Solubility of Mercury and Some Sparingly Soluble Mercury Salts in Water and Aqueous Electrolyte Solutions. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 631, <https://doi.org/10.1063/1.555732>

Ⅱ－３ 廃水銀処理物の処分・保管時のリスクコミュニケーションに関する研究

国立大学法人 東京工業大学

環境・社会理工学院 融合理工学系

高橋 史武

平成29年度～令和元年度研究経費（累計額）：11,700千円（研究経費は間接経費を含む）

（平成29年度：3,900千円、平成30年度：3,900千円、令和元年度：3,900千円）

【要旨】

安定化処理した水銀の地上保管における環境リスクを評価した。水銀が管理外となることへの認知および対策が難しいシナリオを探索した結果、地上保管施設が地震によって全壊し、水銀処理物が管理外となり、環境中へ水銀が溶出して最終的に人体曝露へ至るリスクを評価対象とした。日本のどこかに地上保管施設を建設する場合、50年間のうちに震度7の地震が発生する確率は約1.7%と推定された。水銀の100年間溶出量は75パーセントイルで0.138 mg-Hg～41.5 mg-Hgであり、水銀曝露量が耐容摂取量を超過する確率は0.01%以下と小さい。水銀への嫌悪感は放射性廃棄物に次いで大きく、水銀の最終処分場建設を許容する態度であっても嫌悪感を強く感じる傾向にあった。水銀溶出へのリスク認知は溶出までの時間が重要であり、態度変化の視点では1000年間が目安として提案される。

【キーワード】

水銀、地上保管、震災時のリスク、嫌悪感、リスク認知

1. はじめに

水銀はその毒性が広く認知されているが、石炭火力発電などの水銀排出源から大気排出された水銀が地球規模で拡散・移動すること、局所的には小規模金採掘にて河川への水銀排出が野放図になされていること、そして環境中へ排出された水銀は生物濃縮を経て無視できない健康リスクを引き起こす可能性が改めて懸念されつつある。これより、水銀の国際的な規制、管理と回収、環境安全な最終処分に関して定めた水俣条約が2015年に採択され、2017年8月には発効に至っている。これより、現在しようされている水銀が廃棄・回収される際、リサイクルではなく地上長期保管ないしは地中処分といった最終保管（最終処分）をする必要が現れることを意味している。

水銀の環境安全な最終処分がどのような技術および行政的対策のパッケージとなるかは2020年3月時点で決定されていないが、最終的な処分を地中処分とする場合、水銀の安定化処理から地中処分までの間に、地上保管施設にて暫定的に保管することは現実的な対策プロセスであると考えられる。また、水銀の永続的保管が環境安全に継続されているか監視することを重視する場合、処分後のモニタリングが困難である地中処分よりもモニタリングが行いやすい地上保管を選択することも考慮される。よって、水銀の最終処分方法が地中保管であれ、地上保管であれ、暫定ないし長期間での地上保管における環境リスクは、適切に評価される必要がある。また、最終処分方法として地中保管もしくは地上保管のどちらを選択するか行政的意思決定をする際、多くの行政的、社会的、科学的要因が考慮されねばならないが、環境リスクは不可欠な判断材料の一つとなるため、この側面でも環境リスク評価の必要性は高い。

一方、地中保管と地上保管の選択においては環境リスク以外にも、社会的要因として最終処分対策に対する合意形成も重要であることが挙げられる。水俣病を通じて水銀の毒性は広く認知されており、地中処分のための最終処分場や地上保管施設は近隣住民にとってNIMBY (Not In My Backyard) 施設とみなされる可能性が高い。近い将来、最終処分場ないし地上保管施設が水銀の最終処分のために必要となるが、その建設に対して合意形成を得ることは困難性が高いと考えられる。合意形成がハードルの高い行政的課題となることは予想されるが、その困難性の高さ以前に、水銀がどのように社会的に認知されているかですらあまり知られていない。例えば水銀は強く嫌悪的に認知されていると考えられるが、その

嫌悪感の強さがどの程度か、また、嫌悪感が水銀の処分施設（最終処分場）建設に対する受容ないし拒絶へ与える影響は不明である。よって、処分施設（最終処分場）建設への合意形成支援の一助として、水銀の社会的認知（特に嫌悪感）やその影響を検討することは必要であると考えられる。

2. 研究開発目的

本研究では、水銀の地上保管施設における環境リスクを評価することを目的とした。地上保管ではモニタリングによるリスク管理が可能であるため、水銀が管理外となってしまうシナリオ条件を探索した。そして、地上保管施設や保管容器の損壊に伴って漏出する水銀量とその環境リスクを評価した。また、水銀の社会的認知に関する基礎的な知見として、水銀への嫌悪感や、水銀の最終処分施設に対する住民のリスク受容性について検討した。リスク受容に対する物理条件やリスクの不確実性の影響を評価した。リスク受容において重要視ないし信頼する要因についても併せて検討した。

3. 研究開発方法

3.1 地上保管施設の環境リスク評価スキーム

地上保管施設から水銀が環境中へ排出されるケースとして、人為的ケースと非人為的ケースが考えられる（表3.3.1）。人為的ケースとしては安定化処理された水銀の運搬時における事故、保管施設の火災、盗難などが考えられる。ただし火災については地上保管施設に可燃性のものを併置しないことで対策可能であり、盗難については水銀そのものに経済的価値が無いことからその可能性は無視できると考えた。運搬時の事故が最も蓋然性が高いシナリオであるが、事故が生じたことを即座に認知できるため、事故への速やかな対策も可能である。よって、本研究では人為的ケースではなく、非人為的ケースを環境リスク評価の対象とした。特に、水銀が環境中へ排出されてしまっていることを認知できないシナリオ（つまり対策が取れないシナリオ）を、その評価対象とする。

非人為的ケースでの水銀排出シナリオとしては、津波、台風に伴う洪水、または地震によって地上保管施設が破壊され、それに伴って水銀が環境中へ非意図的に移動し、管理外となることが考えられる。ただし、津波や洪水は地上保管施設の選定時に根本的な対策が可能であることから、環境リスク評価の対象から外した（海岸傍や河川付近の低地を選定場所としない）。よって本研究では、地震によって地上保管施設が破壊され、水銀の一部が非意図的に環境中へ移動してしまうことで管理外となり、認知されないまま環境中へ水銀を排出しつづけるシナリオを、環境リスク評価の対象とする。

これより環境リスク評価のためのステップは、①地上保管施設での地震発生およびその規模の確率的評価、②震災時に地上保管施設が全壊する確率的評価、③震災後に管理外となった水銀の環境への排出に伴う人体への水銀曝露量評価、の3段階となる。

表3.3.1 地上保管施設からの水銀漏出シナリオ(再掲)

原因	要因	モデル(統計分布)など
人為的・火災 落雷による火災 洪水	→保管施設内での可燃物禁止（ゼロリスク化） →山間部（低地以外）に保管施設を建設（ゼロリスク化）	
人為的な積み上げ 事故	発生回数	ポアソン分布。ただし、即時の事故認知および対策が可能。
台風	年間発生確率 中心位置（緯度） 中心位置（経度） 中心気圧（低下量） 進行速度	ポアソン分布 指数分布 一様分布 対数正規分布 対数正規分布 保管施設への台風襲来確率は評価可能。ただし、台風による施設倒壊の可能性はゼロとする（ゼロリスク化）。
地震	発生確率 施設地点までの減衰 施設の倒壊 保管容器の落下・破壊	Brownian Passage Time分布（プレートの応力蓄積による断層の活動（＝地震の発生）をブラウン緩和振動過程とした統計モデル）。形状パラメータの不確実性を評価する必要がある。 距離に応じた揺れの減衰は様々な経験式（Fukushima et al (1990)）が報告されている。震央からの距離の不確実性を評価する必要がある。 地上保管施設の構造より地震に伴う応力を構造計算する。もしくは過去の倒壊データより、倒壊率は地震最大加速度や最大速度の正規分布・対数正規分布とした報告例がある。 揺れの強さ（加速度）による最大変位量を保管容器の重量と全体重心から推定した報告例がある（樹木ら (2011)）。

3.2 地上保管施設での地震発生およびその規模の確率的評価

3.2.1 地震の発生およびその規模の確率的評価の考え方

地震とは地下で起きる岩盤のズレにより発生する現象であり、プレート同士が接するプレート境界およびプレート内での岩盤のズレにより発生するものに大別される。また、火山活動に由来して生じる地震もある。地震の発生確率は、概ね2つの手法で推定されている¹⁾。主要な活断層帯での地震や海溝型地震の場合、これらは繰り返し発生することからその活動間隔が BPT 分布（Brownian Passage Time 分布）に従うと考え、地震の発生確率を求めている。プレートの応力蓄積による断層の活動（＝地震の発

生)をブラウン緩和振動過程とした統計モデルであり、想定する地震発生周期(μ)と分布のばらつき(α)を形状パラメータとする(式3.3.1)。このモデルでは経過時間が想定する発生周期に近づくほど地震の発生確率密度が高くなり、発生周期を超えると発生確率密度が小さくなる傾向となる。一方、過去の活動時期が不明な地震の場合、地震の発生はランダムに発生するポアソン過程であると仮定し、「平均的には何年間隔で地震が発生するか」という情報のみを用いて地震発生確率を推定する。ポアソン分布は、地震の発生確率(=平均的な地震発生期間の逆数)と期間内での発生回数を形状パラメータとする(式3.3.2)。この場合、どの経過時間においても地震の発生確率は一定である。

$$f(t, \mu, \alpha) = \int_0^t \left(\frac{\mu}{2\pi\alpha^2 t^3} \right)^{\frac{1}{2}} \exp \left\{ -\frac{(t-\mu)^2}{2\mu\alpha^2 t} \right\} dt \quad (\text{式3.3.1})$$

($f(t, \mu, \alpha)$)は t 時間経過時の発生確率、 t は経過時間、 μ は発生周期、 α はばらつきの度合い)

$$f(t, \lambda, k) = 1 - \left(\frac{\lambda^k}{k!} \exp(-\lambda) \right)^t \quad (\text{式3.3.2})$$

($f(t, \lambda, k)$)は t 時間経過時の発生確率、 t は経過時間、 λ は平均的な発生確率、 k は発生回数($=0$)

地震の発生確率をBPT分布もしくはポアソン分布で推定する際、これらは地震の規模について一切の説明を行わない。よって地震の規模については別途、推定する必要がある。地震の規模と発生頻度の間には一定の相関が見出されており(Gutenberg-Richter則)、地震の規模(マグニチュード)と発生頻度の対数の間に線形性(傾きの絶対値は地域依存性を持つが、概ね 1.0 ± 0.6 前後)が報告されている²⁾。マグニチュードは地震のエネルギーの大きさを対数で表記したものであることから、地震の規模と発生確率を対数化したものは線形的に表記可能である。よって、地震の規模に応じた発生確率は、地震の規模の確率と地震の発生確率の積で表記できることを示唆している。

3.2.2 地震ハザード情報と地上保管施設の立地選定シナリオの妥当性

防災科学研究所が想定される地震の種類、震源までの距離、地質などを考慮して日本各地(250 mメッシュ)における地震ハザード情報を整備、公開している(J-SHIS 地震ハザードステーション)³⁾。最も信頼できる地震ハザード情報であり、水銀の地上保管施設の立地候補を選定した上で、そこでの地震ハザード情報をもとに環境リスクを評価することが学術的に最も妥当である。ただし、立地選定の妥当性は別途、評価する必要がある、この妥当性評価が極めて困難である。本報告書にて後述するが、水銀に対して認知される嫌悪感是非常に高く、行政的な立地選定プロセスは繊細な慎重さを必要とする。環境リスク評価のための立地選定がそのまま行政的な立地選定へ直結するわけではないが、そのような誤解、混乱を避けることが社会的・行政的側面から求められる。つまり、特定の立地選定シナリオを取ることは望ましくない。地震波による地面の揺れ(地震動)は距離に伴って減衰するため⁴⁾、震源までの距離は環境リスク評価において極めて重要である。しかし本研究では、日本のどこかに地上保管施設を立地し、日本のどこかで地震が発生した場合での環境リスク評価を行わねばならない。

3.2.3 立地選定シナリオに依存しない地震の発生・規模・距離の確率的統計モデル

3.2.1節にて述べた通り、地震の規模に応じた発生確率は地震の規模の確率と地震の発生確率の積で表記できると考え、地震規模および発生の確率分布を求めることにした。アメリカ地質調査所の地震カタログデータベース⁵⁾より、1900年1月～2020年3月まで(120年間)、東経130～143.5度、北緯30.5～41度の範囲においてマグニチュード6.5以上の地震を抽出し(図3.3.1)、その位置、震源深さ、マグニチュードデータを得た。震源深さおよびマグニチュードの統計分布は対数正規分布(式3.3.3)、 γ 分布(式3.3.4)、ワイブル分布(式3.3.5)のどれかで近似できると考え、最適な統計分布をベイズ情報量規準(BIC)でもって評価した(式3.3.6)。日本の各都府県の代表的な場所を都府県庁所在とし、震源までの距離を地球の真球モデルをもとに計算した上で、日本全国および都府県別に整理した。距離の統計分布についても対数正規分布、 γ 分布、ワイブル分布のどれかで近似できると考え、同様にベイズ情報量

規準でもって最適な統計分布を評価した。

これにより特定の経過時間における地震の発生、規模、震源までの距離を確率的に推定できることになり、地震波の地表最大加速度と地表最大速度の距離減衰（式3.3.7）⁴⁾を考慮することで、地震に伴う地表最大加速度と地表最大速度の確率を推定できる。これにより、この手法の妥当性をJ-SHIS 地震ハザードステーションでの情報を用いて検証することとした。各都府県庁所在地の250 mメッシュにおける地震ハザードデータを抽出し、30年間で超過確率が3%と6%となる最大地表速度および50年間で超過確率が2%、5%、10%および39%となる最大地表速度の地域的平均値を求め、同様の超過確率において本手法で推定される各都府県庁所在地での最大地表速度と比較した。また、南海トラフ地震が想定されている地域として和歌山市を選択し、本手法で推定される地震の発生確率がBPT分布によって再現されるか確認することとした。なお、都府県別の統計分布は本手法の妥当性評価のみに用いており、以降の環境リスク評価において、震源までの距離は日本全国での統計分布を用いて計算している。

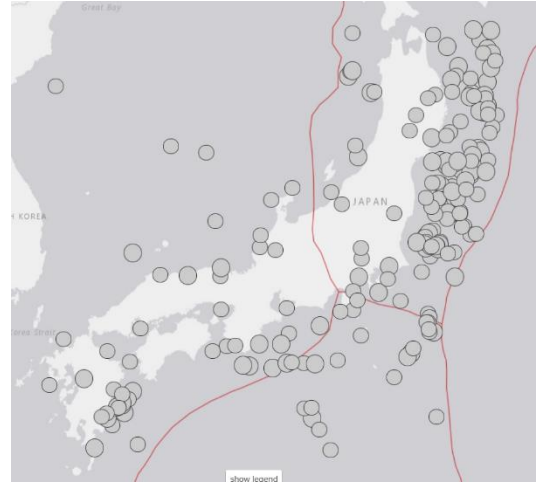


図3.3.1 確率的統計モデルに使用した地震（M6.5以上）の震源地図（再掲）

$$f(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma x} \exp\left\{-\frac{(\ln(x) - \mu)^2}{2\sigma^2}\right\} \quad (\text{式3.3.3})$$

(f(x)は確率密度、xは地震パラメータ（震源深さ、マグニチュード、距離）、 μ は平均、 σ は標準偏差)

$$f(x) = \frac{\lambda^k}{\Gamma(k)} x^{k-1} \exp(-\lambda x) \quad \text{ただし、} \Gamma(k) = \int_0^\infty t^{k-1} \exp(-t) dt \quad (\text{式3.3.4})$$

(f(x)は確率密度、xは地震パラメータ（震源深さ、マグニチュード、距離）、kは形状パラメータ、 λ は尺度パラメータ)

$$f(x) = \frac{m}{\eta} \left(\frac{x}{\eta}\right)^{m-1} \exp\left(-\left(\frac{x}{\eta}\right)^m\right) \quad (\text{式3.3.5})$$

(f(x)は確率密度、xは地震パラメータ（震源深さ、マグニチュード、距離）、mはワイブル係数、 η は尺度パラメータ)

$$BIC = -2\ln(L) + k\ln(n) \quad (\text{式3.3.6})$$

(BICはベイズ情報量規準、Lは尤度関数、kは独立変数の数、nはサンプルサイズ)

震源深さ（D） ≤ 30 kmの場合

$$\log PGA = (0.59M_w + 0.0023D + dS_i + 0.02) - \log(X + 0.0060 \cdot 10^{0.5M_w}) - 0.003X \quad (\text{式3.3.7a})$$

震源深さ（D） > 30 kmの場合

$$\log PGA = (0.59M_w + 0.0023D + dS_i + 0.02) + 0.6\log(1.7D + 0.0060 \cdot 10^{0.5M_w}) - \log(X + 0.0060 \cdot 10^{0.5M_w}) - 0.003X \quad (\text{式3.3.7b})$$

震源深さ（D） ≤ 30 kmの場合

$$\log PGV = (0.65M_w + 0.0024D + dS_i - 1.77) - \log(X + 0.0028 \cdot 10^{0.5M_w}) - 0.002X \quad (\text{式3.3.7c})$$

震源深さ（D） > 30 kmの場合

$$\log PGV = (0.65M_w + 0.0024D + dS_i - 1.77) + 0.6\log(1.7D + 0.0028 \cdot 10^{0.5M_w}) - \log(X + 0.0028 \cdot 10^{0.5M_w}) - 0.002X \quad (\text{式3.3.7d})$$

ここでPGAは地表最大加速度（cm/s²）PGVは地表最大速度（cm/s）、M_wはモーメントマグニチュード（-）、Xは震源までの距離（km）、S_iは地震のタイプ、dは地震のタイプ別係数（PGAで0（地殻由来）、0.08（プレート間）、0.30（プレート内）、PGVで0（地殻由来）、0.05（プレート間）、0.15（プレート内））である。

3.3 震災時に地上保管施設が全壊する確率的評価

地震波は加速度、速度、変位ともに周期別にスペクトルを有する複合体と言える。地震による建物への影響を検討するには、建物の構造と地盤を一体の連成系とし、El centro地震での地震波などスペクトルが既知である告示波を初期条件として与え、揺れや破壊などの物理的影響を構造力学に則って計算することが最も妥当である。ただしこれは複雑な計算を要するため、耐震設計において限界耐力計算のために一連の近似式が提示されている。本研究ではそれらを援用し、地震波の応答スペクトルは減衰定数5%での梅村スペクトルとし（式3.3.8）、地上保管施設の限界水平耐力（レベル2：非常に稀な地震の場合）の入力に使用される表層地盤での加速度応答スペクトルと比較することとした（式3.3.9）。なお、レベル2での工学的基盤における加速度応答スペクトル（式3.3.10）と表層地盤増幅率は、地上保管施設の安全限界固有周期によって決定され、安全限界固有周期は建物の有効質量、一階の層せん断力、建物の代表変位によって求められる。ただし本研究で想定する地上保管施設は1階層で高さが5～6 m程度のRC造を想定しており、表層地盤増幅率は最大値の1.5、工学的基盤での加速度応答スペクトルも最大値となる800 cm/s²となる（表層地盤での加速度応答スペクトルが1200 cm/s²）。

一方、地震による加速度応答スペクトルが限界水平耐力計算で想定した加速度応答スペクトルを超えたとしても、これが建物の崩壊に直結するわけではない。兵庫県南部地震（1995）での建物倒壊調査より、地震の強さ（作用震度＝地表最大加速度と重力加速度の比）が一定値を超えると建物（非木造）の全壊率は地震の強さの正規分布とみなせることや（式3.3.11）、作用震度が2.7を超えると建物の大破率が100%となることが地方自治体の震災時における建物被害予測で使用されている（前者が兵庫県、後者が山口県）⁶⁾。そこで両者を用いて地上保管施設の全壊率を求めた。なお、前者ではすべての地震を対象に地表最大加速度から地上保管施設の全壊率を求め、地震の発生確率より地上保管施設の全壊確率を求めるのに対し、後者では作用震度が2.7を超える地震が発生する確率がそのまま地上保管施設の全壊確率になると考えていることになる。

$$S_A(T) = 3.6 \cdot PGA \quad (T \leq 0.5 \text{ sec}) \quad S_A(T) = \frac{1.8PGA}{T} \quad (0.5 < T \leq 0.5 \text{ sec}) \quad S_A(T) = \frac{5.4PGA}{T^2} \quad (T \geq 3 \text{ sec})$$

（式3.3.8） (S_A(T)は応答加速度 (cm/s²)、PGAは最大表面加速度 (cm/s²)、Tは周期 (s))

$$S_{A0}(T) = G_s(T) \cdot Z \cdot S_0(T) \quad \text{（式3.3.9）}$$

(S_{A0}(T)は表層地盤での応答加速度スペクトル (cm/s²)、G_s(T)は表層地盤増幅率 (-)、S₀(T)は工学的基盤での応答加速度スペクトル (cm/s²))

$$S_0(T) = 320 + 3000T \quad (T \leq 0.16 \text{ sec}) \quad S_0(T) = 160 \quad (0.16 < T \leq 0.64 \text{ sec}) \quad S_0(T) = \frac{1024}{T} \quad (T \geq 0.64 \text{ sec})$$

（式3.3.10） (S₀は工学的基盤での応答加速度スペクトル (cm/s²)、Tは建物の安全限界固有周期 (s))

$$P(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \int_{-\infty}^x \exp\left\{-\frac{(x-K)^2}{2\sigma^2}\right\} dx \quad \text{（式3.3.11）}$$

(P(x))は建物の全壊率 (-)、xは作用震度 (-)、Kは建物被害を及ぼさない最小作用震度 (=0.79) (-)、σは標準偏差 (=0.075) (-))

3.4 震災後に管理外となった水銀の環境への排出に伴う人体への水銀曝露量評価

3.4.1 地上保管施設全壊後の水銀の環境へ排出

地震によって地上保管施設が全壊した後、保管容器の破損とその衝撃に伴って水銀（安定化処理された硫化水銀）が環境中へ直接的な排出されるシナリオや、保管容器へ水銀が留まるものの保管容器への雨水浸透によって水銀が環境中へ排出されるシナリオ、保管容器の破損部から気化した水銀が大気排出されるシナリオなどが想定される。シナリオの生起確率を評価することが困難であることと、環境リスクの過大評価は過小評価よりも望ましいとの視点から、本研究では最大限に水銀が溶出されるシナリオ

を想定する。過去の研究⁷⁾より安定化処理された硫化水銀の環境への排出フラックスは大気経由（気相への気化）よりも水経由（水への溶解）の方が圧倒的に大きいことが分かっていることから、ここでは雨水によって供給される水に対して溶解度まで溶出し、環境中へ排出されるとする。保管容器から排出された水銀が窪地などへ移動し、そこに雨水が流入、水銀の溶出後に周辺環境へ流出するようなシナリオとなる。

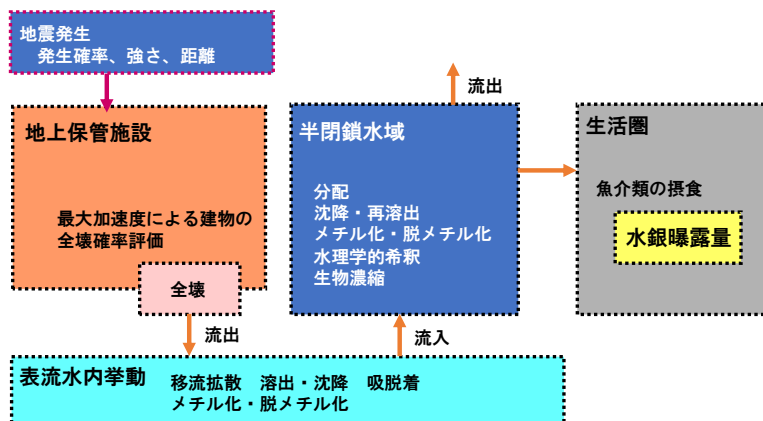


図3.3.2 本研究での水銀曝露評価モデル（再掲）

3.4.2 地上保管施設付近での降水量の確率的統計分布

3.4.1節での述べた水銀の環境溶出シナリオでは、地上保管施設付近での降水量が水銀溶出量を決定する。東京都の観測データ（1880年～2015年までの135年間）より降雨量の統計分布は正規分布が高い再現性を持つことを確認した（図3.3.3）。このとき、平均降水量(μ)は1534 mm/yr、標準偏差は257 mm/yrである。よって降水量は、正規分布よりその確率的分布を求めた。

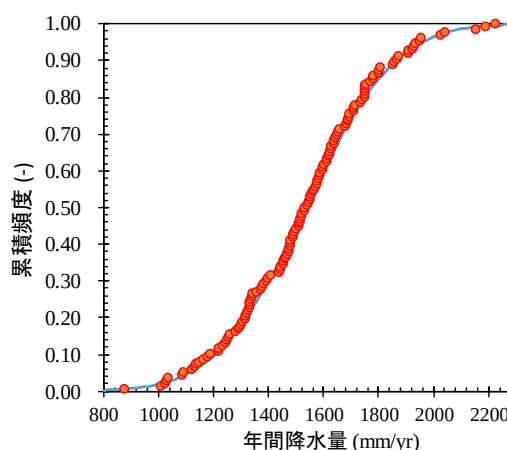


図3.3.3 降水量の分布（135年間）

3.4.3 環境へ排出された水銀の人体曝露量評価

環境中へ排出された水銀が環境中を移動し、最終的に人体へと曝露されるシナリオを想定する（図3.3.3）。雨水へ溶出した水銀は表流水を経由して半閉鎖的水域（湖沼や海湾など）へ到達する。表流水および半閉鎖的水域でメチル化細菌によるメチル化反応、脱メチル化細菌による脱メチル化反応を受ける。半閉鎖的水域では無機水銀、メチル水銀ともに水相と底質間で沈積および再溶出を繰り返しており、半閉鎖的水域の水相では魚介類へメチル水銀が生物濃縮される。なお、無機水銀の生物濃縮は考えず、半閉鎖的水域の水は一部、水域外へと排出されるとする（＝水理学的希釈）。水相（表流水や半閉鎖的水域）および底質（固相）でのメチル化反応、脱メチル化反応は一次反応であるとした。水相および底質間の水銀移動は平衡状態とし、分配定数支配とした。水理学的希釈において底質の流出は無視している。生物濃縮により水銀に汚染された魚介類を人間が摂取することで、人体への水銀曝露へと至る。水銀曝露は、魚介類の摂取による経路のみを考慮する。日本人の一日あたりの魚介類摂取量に魚介類中の水銀濃度を乗じ、一日あたりの水銀摂取量とした。水銀摂取量（1週間換算（ $\mu\text{g/kg-weight/week}$ ））とWHOによる耐用摂取量（ $1.6 \mu\text{g-Hg/kg-weight/week}$ ）を比較し、水銀摂取量が耐用摂取量を超えた場合、水銀による健康リスクが無視できないと判断した。

過去の研究より、水銀の環境動態モデルで用いるパラメータは環境依存性が大きく、その報告値がオーダー単位（数桁単位）で異なっている⁸⁾。妥当なパラメータ値を見出すことは困難であるため、パラメータごとに最適な統計分布をベイズ情報量規準で評価し、得られた統計分布をもとにパラメータ値を再離散化させ、有限個のパラメータ値を用いてシミュレーションを実施した。なお、メチル化反応速度係数と脱メチル化反応速度係数は γ 分布、無機水銀およびメチル水銀の分配定数、生物濃縮係数および半閉鎖的水域の水の滞留時間は対数正規分布が最適であることを見出している⁸⁾。魚介類摂取量はワイブル分布、体重は正規分布を想定した⁹⁾。半閉鎖的水域では魚介類への水銀濃縮が進行していくが、どの程度の蓄積まで生存可能か報告した研究例はない。そこでネズミでの半致死量（ $\text{LD}_{50}=20 \text{ mg-Hg/kg-rat}$ ）を魚介類が生存可能な上限値とした⁹⁾。

3.5 水銀への嫌悪感の定量的評価と水銀の最終処分場建設に対する態度への影響分析

3.5.1 水銀への嫌悪感や最終処分場への態度、安全性認知に重視される信頼感を定量化する意味

合意形成に大きな影響を与える要因はリスク認知、期待される便益、態度であり¹⁰⁻¹¹⁾、信頼性や知識、個人差も重要な要因である¹²⁾。リスク認知について、Slovic (1987)¹³⁾は「恐ろしさ (dread)」と「未知性 (unknown)」を基本2因子とするモデルを提案しており、水銀は放射性廃棄物やカドミウムと同じく恐ろしさが強く、未知性が高いハザードとして認知されているとしている。一方、水銀に対してどのくらい強い嫌悪感が認知されているか研究した例はなく、嫌悪感が水銀の最終処分場建設に対する態度に与える影響は分かっていない。また、埋立処分の安全性について何を重視し、どのくらい信頼されているか定量的に評価した研究例はない。これらは合意形成に大きな影響を与える可能性があることから、定量的に評価・分析することは重要である。

3.5.2 一対比較法による定量化

3.5.2.1 嫌悪感および信頼感評価の対象

水銀への嫌悪感を評価するにあたり、同様に嫌悪感を受けると予想される有害物質を比較対象とした。東日本大震災（2011年）より国家的課題となっている「放射性廃棄物」、発がん性があり、焼却施設ではその排出対策が義務化されている「ダイオキシン」、人への感染が懸念される「感染性医療廃棄物」、イタイイタイ病を引き起こしたカドミウム、大気汚染を引き起こす浮遊性微粒子物質である「PM2.5」、オゾン層破壊に伴って増加し、皮膚がんなどを引き起こす「紫外線」、生活公害の1つである「騒音」である。有害物質ではないが健康や生態系への根強いリスク懸念から嫌悪感を受けている「遺伝子組み換え食品」も比較対象とした。

水銀の埋立処分における安全性を判断する情報、手段として「科学的証明やデータへの信頼性」、「監視体制の信頼性」、「漏出防止対策への信頼性」、「専門家（学者）の信頼性」、「政府・役所の信頼性」、「処分場建設を担う建設会社の信頼性」、「説明の分かりやすさ・納得性」を比較対象とした。

3.5.2.2 Thurstoneの比較判断の法則を用いた一対比較法での定量化

3.5.2.1で述べた嫌悪感や信頼感を、一対比較法にて定量化した。本研究では、比較を二項選択で行うThurstoneの手法および5段階のリッカートスケールを用いたScheffeの手法を用いた。Thurstoneの手法の場合、調査する対象に対し、全ての組み合わせをランダムな順序で回答者に提示し、回答者に「より強く嫌悪感（信頼感）を感じる」対象を選択させた。そして回答者の選択結果を集計し、対象が選ばれた割合である選択率を計算した。Thurstoneは心理刺激に対する反応強度（興奮量）には確率変動があり、弁別過程（心理刺激に対して反応する際の心理学的過程）での興奮量は正規分布に従うと仮定することで、対象に対する興奮量（心理刺激）をスコア化するモデルを提案している¹⁴⁾。本研究では、嫌悪感や信頼感が興奮量（心理刺激）に該当している。ここで、嫌悪感（信頼感）をスコア化する手法の概念図を図3.3.4に示す。縦軸は選択率、横軸は興奮量（嫌悪感や信頼感）の差である。このとき、興奮量と選択率の関係は累積正規分布で表現される（Thurstoneの比較判断の法則）¹⁴⁾。Thurstoneは状況に応じて5種類のケースを提案しているが、本研究では「嫌悪感の差」の平均値がゼロ、両対象の嫌悪感が持つ分散は等しいとするケースに該当している（ケース5）。なお、興奮量のスコア（尺度値）は原点を任意に選べるため、分散を1.0とするのが通常である。選択率を累積正規分布関数の逆関数を用いて変換することで、興奮量の差を計算される。興奮量の平均値がゼロとなるとき、興奮量の差の平均値が嫌悪量そのものと等しくなる。これにより、嫌悪感や信頼感が

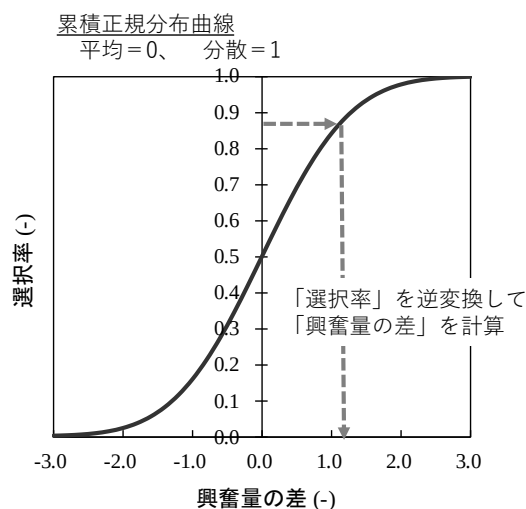


図3.3.4 選択率と興奮量の差の関係
(Thurstoneの比較判断の法則)

定量化される。なお、興奮量が大きいほどスコア（尺度値）が大きくなるようにした。

3.5.2.3 回答者の一貫性の検討（一意性係数）

一対比較法で心理刺激（嫌悪感など）をスコア化（尺度化）する際、回答者が一貫した比較選択をしているか検討することができる。例えば3つの比較対象の場合（A、B、C）、二項選択のための組み合わせはA-B、A-C、B-Cの3通りである。回答者がその嫌悪感の大きさについて、A>B、B>Cと答えていた場合、論理的にはA>Cとならねば整合性がとれない。A<Cと答えた場合、A>B>C>Aとなり、嫌悪感の大小関係が一巡したものとなる（一巡三角形）。Kendallは回答者が首尾一貫した選択をしているか評価するため、組み合わせ確率論の立場から一意性係数を提案している¹⁵⁾。回答データより計算された一巡三角形の数をdとすると、一意性係数 ζ は「理論上最大の一巡三角形の数」に対する「最大値と実際の一巡三角形の数の差の比」で表される（式3.3.12）。

$$\text{対象の数 (K) が奇数の場合} \quad \zeta = \frac{\frac{1}{24}(K^3 - K) - d}{\frac{1}{24}(K^3 - K)} = 1 - \frac{24d}{K^3 - K} \quad (\text{式3.3.12a})$$

$$\text{対象の数 (K) が偶数の場合} \quad \zeta = \frac{\frac{1}{24}(K^3 - 4K) - d}{\frac{1}{24}(K^3 - 4K)} = 1 - \frac{24d}{K^3 - 4K} \quad (\text{式3.3.12b})$$

一意性係数 ζ は、回答者の回答が一貫しているほど1.0に近くなり、回答の一貫性が悪い場合ほどゼロに近づく。Kendallは回答者がランダムに回答（選択）していると仮定した場合、統計量 χ^2 は以下の自由度（df）の χ^2 分布に従うとしている（式3.3.13）。つまり、ランダムに回答されていない（＝一貫性をもって回答しようとしている）か χ^2 検定で検定することができる。

$$\chi^2 = \frac{8}{K-4} \left\{ \frac{K(K-1)(K-2)}{24} - d + \frac{1}{2} \right\} + df \quad (\text{式3.3.13a})$$

$$df = \frac{K(K-1)(K-2)}{(K-4)^2} \quad (\text{式3.3.13b})$$

本研究では、回答者の回答データについて一意性係数を計算した。なお本研究の場合、一巡三角形が14個以下であれば、5%有意水準において回答はランダムでないと判定される。

3.5.2.4 回答者間の一致性の検討（一致性係数）

Kendallは各回答者の回答が、互いに一致しあっているか統計的に検定する手法を提案している¹⁵⁾。ある対象AとBについて、回答者はより強い興奮量を感じる対象を選択する（AもしくはB）。任意の回答者を2人選んだとき、選択した対象が同じ回答者同士の組み合わせとなるか、選択した対象が異なる回答者の組み合わせとなる。そこで各回答者の回答（選択）はまったくランダムに行われると仮定した場合、回答者の組み合わせ総数（ $N C_2 = 1/2 N(N-1)$ 、ただしNは回答者数）に対して選択した対象が同じであった回答者同士の組み合わせ総数の比を考えたとき、以下の一致性係数（u）が導かれる（式3.3.14）。ただし、回答者間の回答が完全に一致した場合に1.0、一致しなくなるほどゼロに近づくように調整されている。

$$u = \frac{\frac{1}{2}KN(K-1)(N-1) + 2\sum_{j>i} X_{ij}^2 - 2N\sum_{j>i} X_{ij}}{\frac{1}{4}NK(K-1)(N-1)} - 1 \quad (\text{式3.3.14})$$

ここでKは興奮量評価の対象の数、Nは回答者数、iとjは興奮量評価の対象番号、 X_{ij} は対象iとjの比較の際に対象iが選ばれた数である。

各回答者の回答（選択）はまったくランダムに行われると仮定した場合、以下の統計量 χ^2 は以下の自由度（df）の χ^2 分布に従うとしている（式3.3.15）。つまり、ランダムに回答されておらず、回答者間の回答に一致性があるかどうかを χ^2 検定で検定することができる。

$$\chi^2 = \frac{4}{N-2} \left\{ \frac{1}{4} KN(K-1)(N-1) + \sum_{j>i} X_{ij}^2 - N \sum_{j>i} X_{ij} - \frac{KN(K-1)(N-1)(N-3)}{8(N-2)} \right\} \quad (\text{式3.3.15a})$$

$$df = \frac{KN(K-1)(N-1)}{2(N-2)^2} \quad (\text{式3.3.15b})$$

3.5.2.5 Scheffeの手法による一対比較法での定量化

3.5.2.2節で述べたThurstoneの手法が弁別過程での心理モデルにもとづいて興奮量を定量化するものに対し、Scheffeは分散分析の手法を援用して、選択率のデータから尺度値（スコア）を統計学的に定量化する手法を提案している（式3.3.16）¹⁶⁾。Thurstoneの手法が二項選択であるのに対し、Scheffeの手法では多段階のリッカートスケールを用いた選択であり、本研究では5段階とした。

$$Z_{i,j,m} = (A_i - A_j) + (\alpha_{i,m} - \alpha_{j,m}) + Y_{i,j} + \varepsilon_{i,j,m} \quad (\text{式3.3.16})$$

ここで $Z_{i,j,m}$ は対象 i と j の比較を回答者 m が行った時の選択スコア（5段階の場合-2～+2）であり、 A_i は対象 i の興奮量スコア、 $\alpha_{i,m}$ は回答者 m における興奮量平均スコアからの個人差、 $Y_{i,j}$ は対象 i と j の組み合わせ効果、 $\varepsilon_{i,j,m}$ は回答者 m が対象 i と j の比較を行う際の誤差である。Scheffeの手法では定量化した興奮量スコアの差が有意であるか統計検定することが可能であり、興奮量スコアの差がYardstickより大きい場合、有意な差があるとする（式3.3.17）。

$$Y = q_{(K, df, \alpha)} \sqrt{\frac{U_{Error}}{KN}} \quad (\text{式3.3.17})$$

ここで Y はYardstick、 K は評価対象の数、 N は回答者の数、 df は分散分析での誤差項の自由度（式3.3.18a）、 α は有意水準、 $q_{(K, df, \alpha)}$ はスチューデント化された範囲、 U_{Error} は分散分析での誤差項の不偏分散値（式3.3.18b）である。

$$df = \frac{1}{2}(K-1)(K-2)(N-1) \quad (\text{式3.3.18a})$$

$$U_{Error} = \frac{1}{\frac{1}{2}(K-1)(K-2)(N-1)} \left\{ \sum_{m=1}^N \sum_{i=1}^{K-1} \sum_{j>i}^K Z_{i,j,m}^2 + \frac{1}{KN} \sum_{i=1}^K \left(\sum_{m=1}^N \sum_{j=1}^K Z_{i,j,m} \right)^2 - \frac{1}{K} \sum_{m=1}^N \sum_{i=1}^K \left(\sum_{j=1}^K Z_{i,j,m} \right)^2 - \frac{1}{N} \sum_{i=1}^{K-1} \sum_{j>i}^K \left(\sum_{m=1}^N Z_{i,j,m} \right)^2 \right\} \quad (\text{式3.3.18b})$$

3.5.3 ウェブアンケート調査の詳細

2018年9月～2020年3月にかけて、マクロミル社のQuickMillサービスを利用してウェブアンケート調査を実施した。回答者数は各アンケートにおいて420～1030人であり、性別は同数となるようにした（男女比＝0.5）。また、年齢層が20代、30代、40代、50代、60代において等しくなるように回答者を調製した。なお、回答者に提示される対象は、その順序がランダムに提示されている。

4. 結果及び考察

4.1 地上保管施設からの水銀排出における環境リスク評価

4.1.1 地震の規模、震源深さ、震源までの距離の統計分布

1990年1月～2020年3月までの120年間において、モーメントマグニチュードが6.5以上の地震は198回生じている。その内、30回は震源の深さが50 km以上であり、距離減衰の評価の不確実性より解析データから除外することとした。よって168回の地震が対象であり、1年間に平均で1.29回の地震発生回数となる。本研究では、以降の解析において年間に1.29回の地震が対象地域（図3.3.1）のどこかで生じている

との想定のもと、地震結果を推定することとする。

地震の規模、震源深さ、震源までの距離の最適な統計分布をベイズ情報量規準により評価した結果、地震の規模は対数正規分布（図4.3.8）、震源深さも対数正規分布（図4.3.9）、震源までの距離はワイブル分布（図4.3.10）が最適であると評価された。各分布の最適化された形状パラメータは、地震の規模において平均が1.93（モーメントマグニチュード）、標準偏差が0.063である。震源深さにおいて、平均が3.05（km）、標準偏差が0.55であり、震源までの距離においてワイブル係数(m)が1.91、尺度パラメータ(η)が686である。これらの統計分布から計算される確率密度をもって、地震の規模、震源の深さ、震源までの距離における確率密度とすることにした。

なお、震源までの距離において、日本全国ではワイブル分布が最適と評価されたが、都府県庁の各所在地における震源までの距離では、対数正規分布の方が適していると判断されるケースも見出された。ただしそのような場合でも、次節の解析において距離の確率密度はワイブル分布から求め、日本全国での解析と整合性を取ることにした。

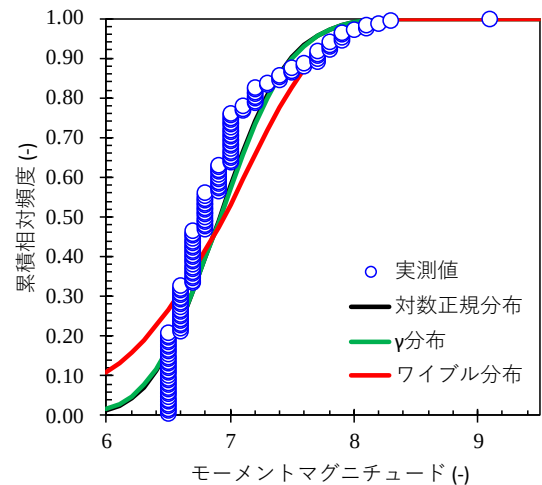


図4.3.8 地震の規模の統計分布

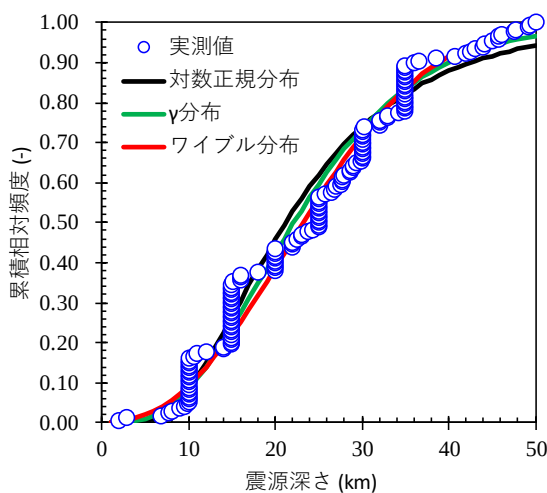


図4.3.9 震源の深さの統計分布

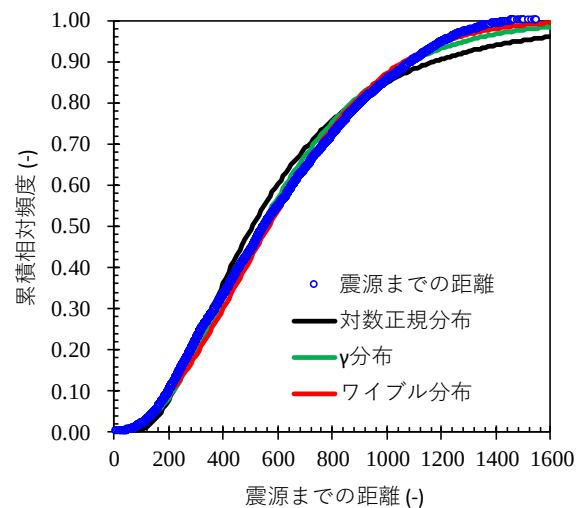


図4.3.10 震源までの距離の統計分布

4.1.2 J-SHIS 地震ハザードステーションでのハザード情報との比較による本手法の妥当性の評価

各都府県庁所在地において、4.1.1節で求めた統計分布より30年間で超過確率が3%と6%となる最大地表速度および50年間で超過確率が2%、5%、10%および39%となる最大地表速度を求め、地震ハザードステーションでの報告値と比較することとした。結果を図4.3.11aに示す。青森や新潟、仙台、前橋では本研究のモデルによる予測値と地震ハザードステーションでの報告値が良い一致を示している半面、他の都府県庁所在地では本研究の予測値が小さい傾向にある（つまり、地震による影響を過小評価する傾向にある）。本研究では式3.3.7において地震のタイプ別係数(d)は、地殻内地震、プレート間地震、プレート内地震の平均値を用いており、プレート間地震に近い値を使用している。実際はプレート内地震の方が多くを考え、地震のタイプ別係数(d)をプレート内地震の値に変更した結果が図4.3.11bである。多くの都府県庁所在地において本研究のモデル予測値は地震ハザードステーションでの報告値と良い一致を示した。しかし南海～東海トラフ地震の影響を大いに受けると考えられる高知、和歌山、名古屋、静岡では未だに地表最大速度を過小評価する傾向にある。本研究でのモデルは1900年以前の大地震が統計分布の最適化に反映されておらず、地質の影響も考慮されていない。このことが過小評価を主に

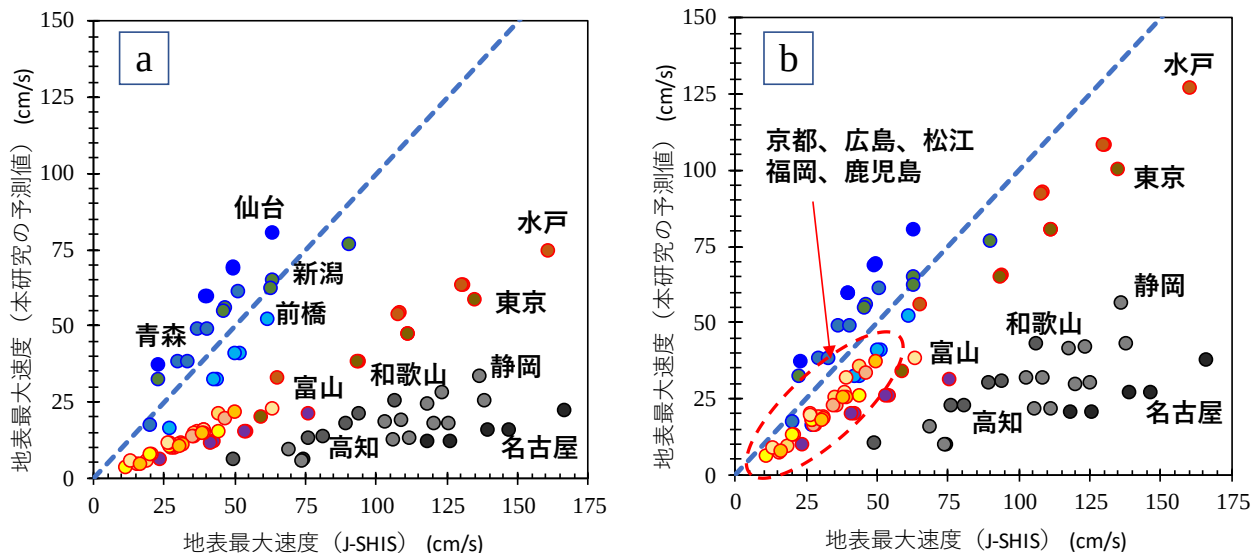


図4. 3. 11 都府県庁所在地での地表最大速度の比較

([a] 地震のタイプ別係数で平均値を使用 [b] 地震のタイプ別係数でプレート間を使用)

引き起こしている原因と考えられるが、今後の検討が必要である。

南海トラフ地震は、周期88.2年、ばらつきを表すパラメータ（ α ）が0.2～0.24でのBPT分布によって発生確率が予測されている（式3.3.1）。南海トラフ地震に大きな影響を受ける和歌山市を選定して、本研究で予測される地震の発生確率が、BPT分布による発生確率予測と整合性を持つか検討することにした。なお、本研究のモデルで予測する地表最大速度は過小評価されているため、地震の距離減衰式（式3.3.7）を調整して地震ハザードステーションでの報告値と良い一致を示すようにしてから検討している。地震ハザードステーションでは、和歌山市において50年間で超過確率39%となる地表最大速度を49.3 cm/sとしている。本研究のモデルにおいて、和歌山市での地表最大速度が49.3 cm/sを超える地震の発生確率の経時変化は図4.3.5のとおりに推定される。これは、周期88.2年、ばらつき（ α ）が0.2～0.24のBPT分布で計算される地震の発生確率とは大きく異なっている。BPT分布による発生確率予測では、一つの地震だけを対象に、経過時間が周期に近いほど地震の発生確率密度が増加するとしている。一方、本研究のモデルは年間に1.29回の地震が日本のどこかで発生しており、規模と震源深さ、震源までの距離が対数正規分布やワイブル分布に従うとしている。そこで周期88.2年±90%の範囲にある地震が日本のどこかで発生しており、一つ一つの地震の発生確率はBPT分布に従うと仮定して、和歌山市にて地表最大速度が49.3 cm/sを超える確率の経時変化を求めた。図4.3.12に示す通り、周期が一樣分布に従うとすると、BPT分布から求めた確率の経時変化は本研究での予測値と良い一致を示した。これより、本研究での手法は既往の統計的手法と一定の整合性を有していると考えられる。

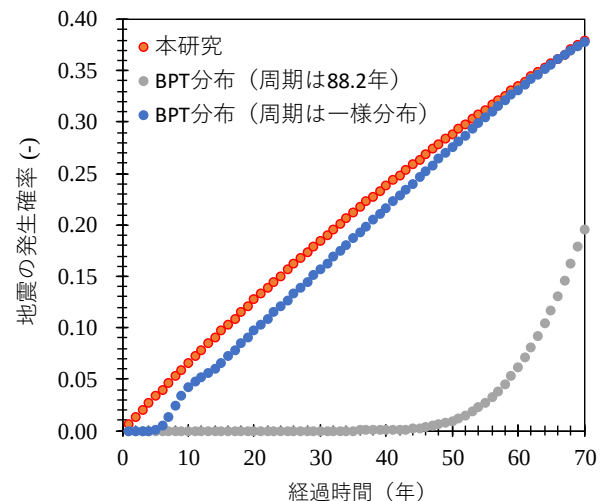


図4.3.12 地表最大速度が49.3 cm/sを超える確率の経時変化（和歌山市の場合）

4.1.3 地上保管施設付近における地震の震度階級分布

地表での最大加速度とモーメントマグニチュードにより、計測震度が推定される（式4.3.1）¹⁷⁾。

$$I = -0.122 + 0.114M_w + 1.682\log(PGA) + 0.069(\log(PGA))^2 \quad (\text{式4.3.1})$$

ここでIは計測震度、 M_w はモーメントマグニチュード、PGAは地表最大加速度（ cm/s^2 ）である。

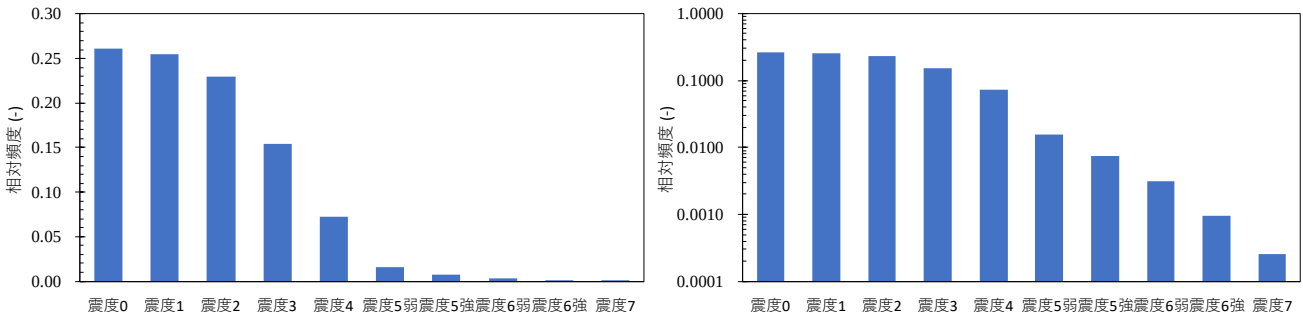


図4.3.13 震度階級の分布（左：通常表記 右：対数表記）

震度階級の分布を図4.3.13に、震度5弱以上の地震の100年間までの発生超過確率を図4.3.3に示す。1回の地震が発生する際、それが震度4以下である可能性は97%を占めており、震度5弱で1.5%、震度5強で0.74%、震度6弱で0.31%程度である。100年間までの発生超過確率を見たとき、震度5弱の地震は25年間で59%の確率で発生し、100年間までに97%の確率で発生すると予測された。地上保管施設の全壊が懸念される震度7の場合、25年間までに発生する確率が0.83%、50年間で1.7%、100年間で3.3%である。つまり、日本のどこかに地上保管施設を建設する場合、確率1.7%で50年間のうちに震度7の地震が発生するリスクを考慮しなければならない。

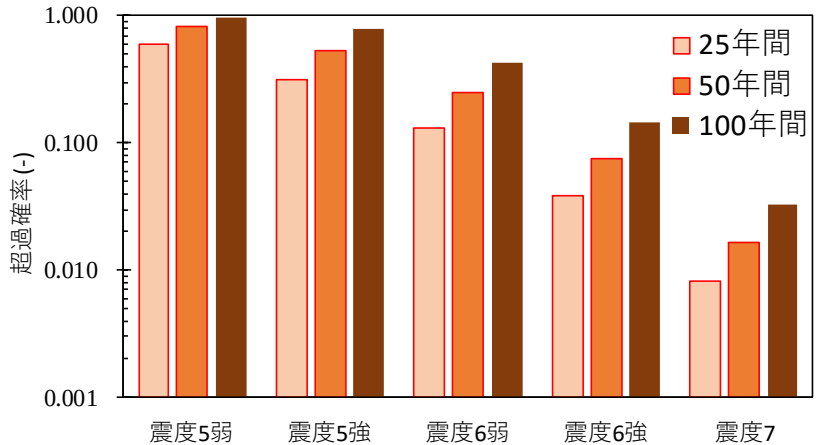


図4.3.3 地上保管施設での震度5弱以上の地震の発生超過確率（再掲）

4.1.4 地震による地上保管施設の全壊確率評価

地上保管施設の全壊が、作用震度（最大加速度/重力加速度）2.7以上で生じるとしたときの超過確率と、一定の最大加速度以上のときに全壊確率が正規分布に従うとしたとき（式3.3.11）の超過確率を図4.3.14に示す。両者は異なる判断基準でもって全壊確率を決定しているが、超過確率の経時変化は良い一致を示した。地上保管施設が全壊する地震が50年以内に発生する確率は概ね4.9～5.4%と推定された。全壊の可能性が高い震度7の地震が発生する確率は1.7%であり、これより高い数値が全壊確率とされることは不自然である。地上保管施設の全壊を判定する手法はどちらも兵庫県南部地震（1995）での建物倒壊調査をもとにしており、耐震性が弱い昔の建物による全壊が寄与している。よって新たな耐震設計での建築物に対しては全壊率を過大評価していると考えられ、本研究においても震度7の地震発生確率より全壊確率が高い結果となったと考えられる。本研究では計算の複雑さやシミュレーション資源の制限から諦めたが、構造計算にもとづいて地上保管施設の全壊判定を行うことが、より精度の高いリスク評価には必要である。

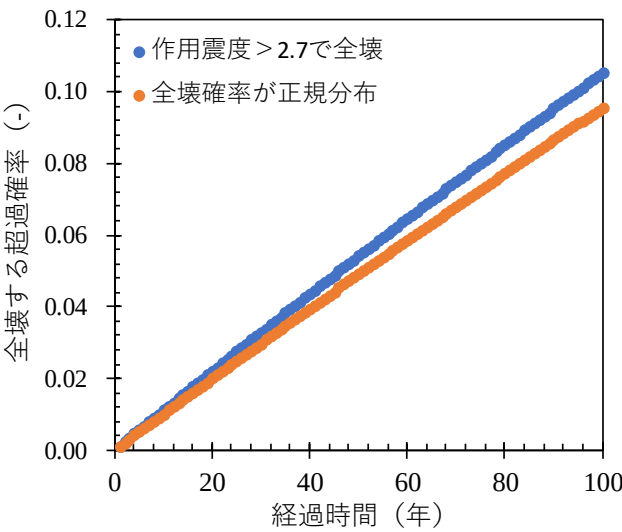


図4.3.14 地上保管施設が全壊する超過確率

4.1.5 地上保管施設からの100年間水銀総排出量期待値の累積頻度分布

4.1.4節にて、過大評価されていると考えられるものの地上保管施設が全壊する超過確率が推定されたことから、地上保管施設からの水銀排出量期待値を求めた（図4.3.4）。100年間での総排出量の期待値である。100年間総排出量の75パーセンタイル範囲は0.138 mg-Hg～41.5 mg-Hgであり、中央値は13.3 mg-Hgであった。95パーセンタイル範囲まで広げても、その上限値は50.4 mg-Hgである。地上保管施設の全壊確率が過大評価されていることを考慮すると、地上保管施設からの水銀排出量は相当に小さいと考えられる。ただし、本研究では硫化水銀へ安定化された水銀は硫化水銀として安定化し続けると仮定しており、生物学的反応などにより硫化水銀から他の化学形態へ変化した場合、水銀排出量がオーダーレベルで変化する可能性は無視できない。この点は今後の検討課題である。

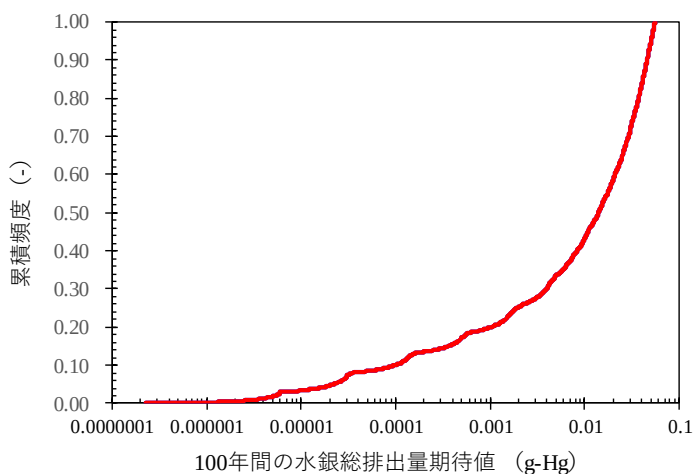


図4.3.4 100年間の水銀総排出量期待値(再掲)

4.1.6 地上保管施設からの水銀排出における環境リスク評価

地上保管施設からの100年間水銀排出量の最大値が52.7 mg-Hgであった。年間で5.27 mg-Hgで環境中へ1000年間排出し続けると仮定して、その環境リスクを評価した（図4.3.15）。生物濃縮係数などの大きな不確実性をすべて考慮したとき、水銀曝露量がWHOによる耐用摂取量を超える可能性は0.01%以下と推定された。水銀の安定化処理が1000年間の持続的安定を保障できれば、地上保管施設からの水銀排出に寄る環境リスクは十分に小さい。よって、安定化処理の長期間持続安定性が重要であり、安定化処理の持続安定性評価が環境リスク評価の観点においても極めて重要である。

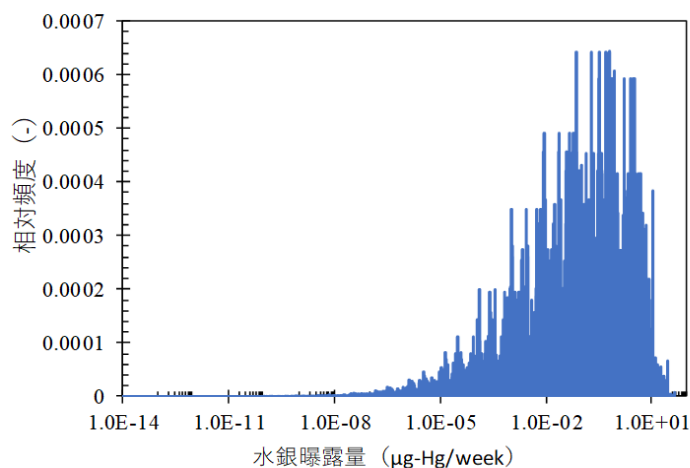


図4.3.15 1000年後の水銀曝露量

4.2 水銀への嫌悪感の定量的評価と水銀の最終処分場建設に対するリスク受容への影響分析

4.2.1 アンケートデータのランダム性評価

一意性係数は全体で0.861であり、男女で大きな差は見られなかった。20代男性や30代男性のみ一意性係数が12%程度低い、他の性別、年齢層の回答者において一意性係数は概ね等しい結果となった。なお、一意性係数が0.8以上であれば回答が論理的に行われているとされており、本研究での回答データはこれを満足している。一方、男性（20代、30代、40代、50代、60代）および女性（20代、30代、40代、50代、60代）において、一致性係数は0.233～0.441の間にあった。一致性係数について χ^2 検定したところ、すべての回答者グループ（各年齢層の男性および女性グループ）において0.1%有意水準で帰無仮説が棄却された。すなわち、ランダムに回答されておらず、回答者間の回答には良い一致性があると言える。

4.2.2 ThurstoneおよびScheffeの方法で定量化した嫌悪感の比較

Thurstoneは心理モデルにもとづいて興奮量（嫌悪感や信頼感）を定量化しており、Scheffeの方法で

は心理モデルは一切考慮せず、統計的手法により興奮量を定量化している。両者の手法で定量化された嫌悪感を比較し、手法の妥当性を検討した。なお、Thurstoneの手法で得られたスコアは相対的なものであり、スコアの絶対値は意味を持たない。そこで最小および最大のスコア差がScheffeでのスコア差と同じになるように調整した上で、両者を比較した（図4.3.16）。両者は良い一致を示しており、本研究で定量化された嫌悪感のスコアは信頼性が有すると考えられる。以降の分析では、Scheffeの方法で定量化された嫌悪感（および信頼感）を分析に使用することとする。

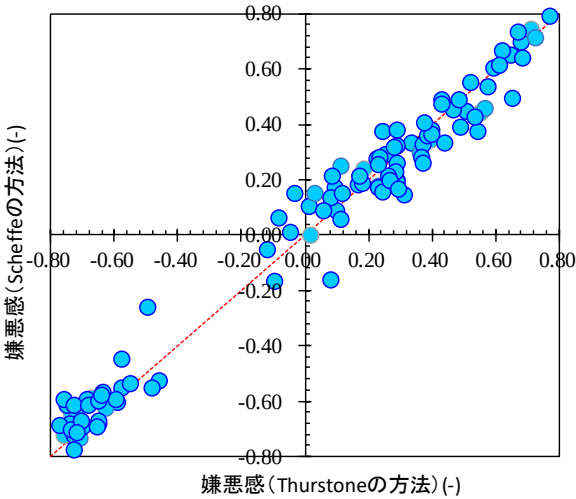


図4.3.16 ThurstoneおよびScheffeの方法で定量化された嫌悪感の比較

4.2.3 水銀への嫌悪感

水銀および他の有害性物質への嫌悪感を図4.3.17に示す。水銀は放射性廃棄物に次いで強い嫌悪感を認知されており、ダイオキシンや感染性医療廃棄物、カドミウムへの嫌悪感より強い。水銀への嫌悪感に対して性別および年齢に着目して比較してみると（図4.3.18）、男女の差による明確な差は見られず、男性では年齢の影響も見出されない半面、女性では年齢の増加とともに嫌悪感が減少する傾向が見出された。

4.2.4 水銀への認知と嫌悪感、最終処分場建設へのリスク受容に対する影響

水銀への認知度と水俣病の認知度は極めて高い正の相関性を示しており（図4.3.19）、水俣病の学習を通じて水銀への認知度を高めていることが示唆される。前節では集団で認知されている水銀への嫌悪感を対象としたが、個々人が感じている水銀への嫌悪感と水銀の認知度を比較してみると、水銀の認知度が低い場合、水銀への個人的嫌悪感に差が無いが、認知度が増加するほど個人的嫌悪感も増加する傾向を示している。個人的嫌悪感と水銀の最終処分場建設への許容度（＝スコアが高いほど許容）を比較

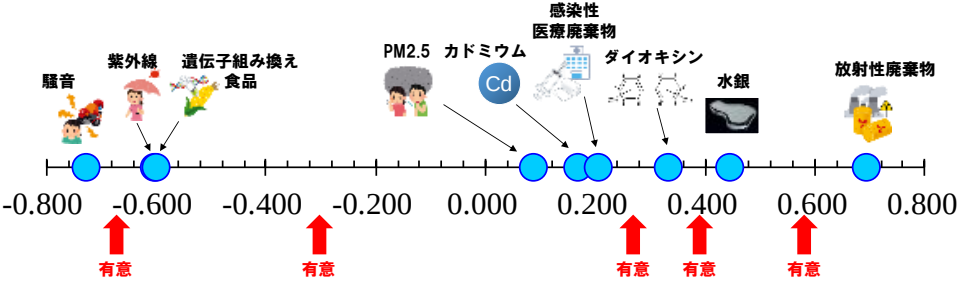


図4.3.17 水銀および他の対象物への嫌悪感

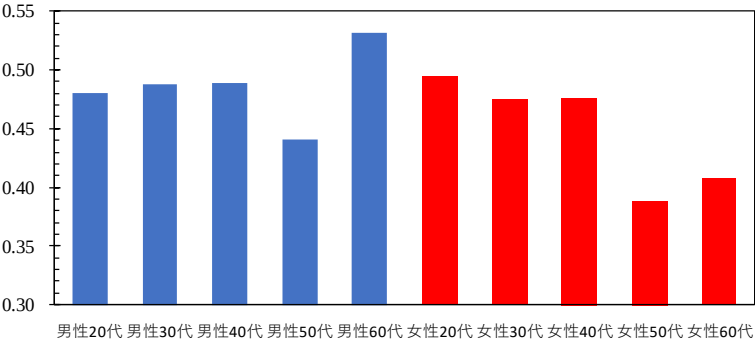


図4.3.18 水銀への嫌悪感（性別・年齢別）

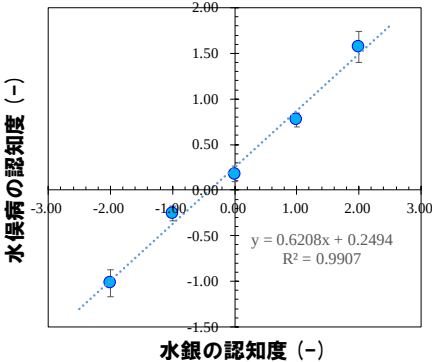


図4.3.19 認知度と嫌悪感

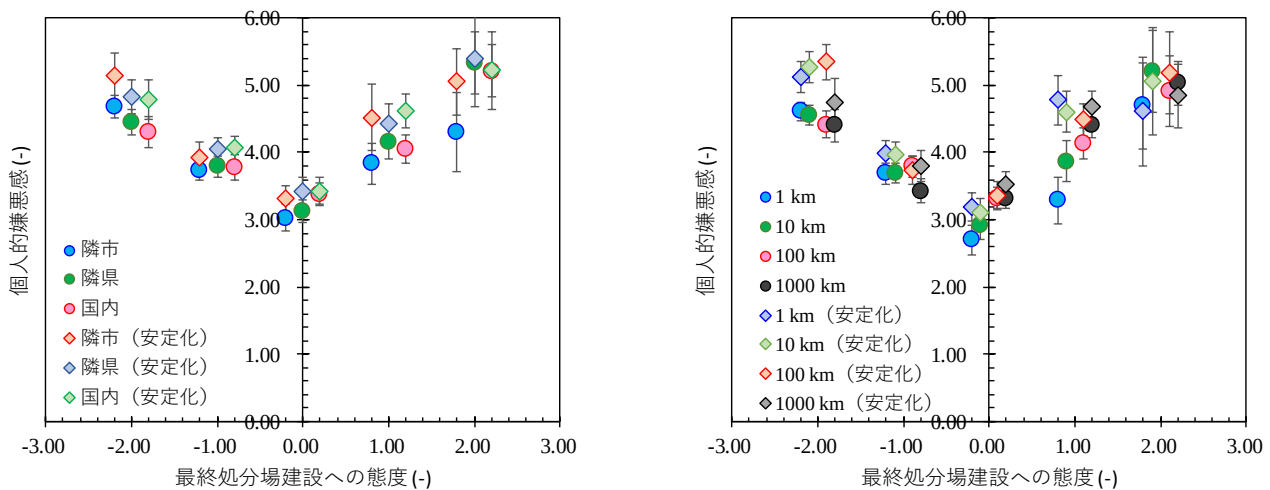


図4.3.20 水銀への嫌悪感と最終処分場建設への許容度（値が高いほど許容）

すると（図4.3.20）、処分場建設を許容しない人ほど嫌悪感が強くなる半面、処分場建設を許容する人においても嫌悪感が強くなる傾向が見出された。これは、水銀に対して嫌悪感を強く感じる反面、社会的必要性などを鑑み、処分場建設への態度を決めていることを示唆している。なお、最終処分場までの距離や行政区画（隣市、隣県など）が離れるほど許容する人の割合が増加する傾向にあったが、個人的嫌悪感と処分場建設への態度に影響は与えてなかった。また、水銀を安定化処理した場合についても認知的变化が生じるか検討したが、個人的嫌悪感と最終処分場建設への態度の関係に顕著な影響は与えていなかった。

4.2.5 環境への水銀溶出に対するリスク認知

水銀の溶出確率（0.01～10%）と溶出に至る時間（10～10000年）を変化させ、水銀溶出に対する許容度を一対比較法で定量化した（図4.3.21）。溶出への許容度は溶出確率よりも期間（時間）に強い影響を受けており、同一リスクであっても時間が長い（＝溶出確率が高い）方が好まれる傾向にある。水銀溶出への態度が不許容からやや許容、やや許容から許容へ変化する場合、どの時間が多く現れるか示したものが図4.3.22である。溶出確率が低い（0.01%）と100～1000年の時間で態度変化する人が多く、それより溶出確率が高いと1000年で態度変化する人が多くなる。水銀の最終処分場建設への合意形成に向けて、1000年以上の環境溶出防止を保証することが許容的態度へ貢献することが考えられる。

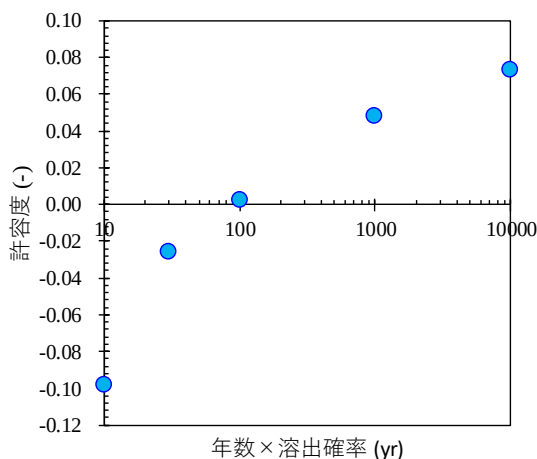
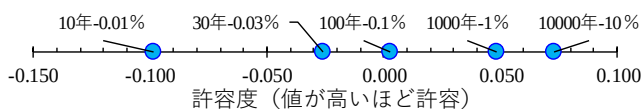


図4.3.21 水銀溶出への許容度

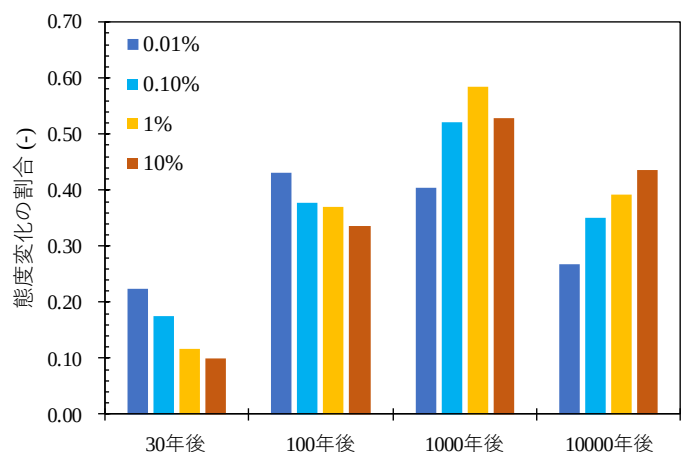


図4.3.22 水銀溶出への態度変化の割合

4.2.6 最終処分場の安全性認知に重視される信頼感評価

最終処分場の安全性を判断するにあたり、重視する項目への信頼感（信頼性）を同じく一対比較法によって定量化した（図4.3.23）。水銀の漏出防止対策への信頼性が最も高く、監視体制への信頼性、処分場の安全性を示す科学的証明やデータがこれに続いた。専門家の信頼性や説明の分かりやすさ・納得性はあまり重視されておらず、政府・行政への信頼性については最も重視されていなかった。前節にて1000年以上の環境溶出防止を保証することが許容的態度へ貢献すると述べたが、漏出防止対策への信頼性が最も高いという結果はこれに合致する。漏出防止対策や監視体制の頑健性をいかに科学的証明やデータでもって保障できるかが、許容的態度に対して重要である。水銀への嫌悪感やリスクに対する態度が信頼感へ影響を与えている可能性があり、許容的態度へのボトルネックになっている心理的要因を明らかにしていくことが、最終処分場建設への合意形成支援に向けて必要である。

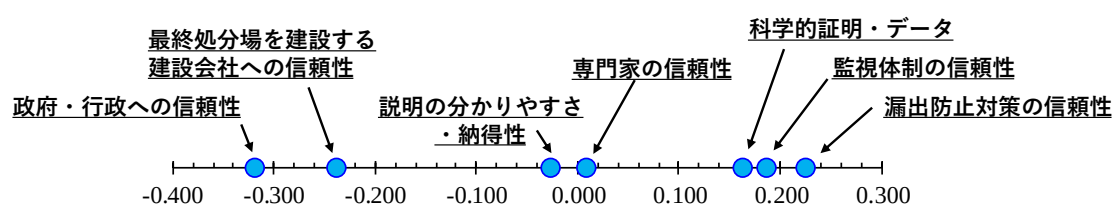


図4.3.23 最終処分場の安全性を判断する上で重視する信頼感（値が高いほど重要・信頼）

5. 本研究により得られた成果

（１）科学的意義

地震の発生確率と規模の確率のみならず、震源までの距離についても確率的統計分布を導入することで、「場所を特定しない」条件においても地震に伴う被害のリスク評価を可能とする手法を開発した。また、水銀の環境動態におけるモデルパラメータの大きな不確実性に対しても統計分布を導入し、不確実性を加味したリスク評価を可能にした。心理的嫌悪感を心理モデルおよび統計モデルの両方で定量化し、良い一致が得られることを見出した。そして、NIMBY施設への態度は拒絶・許容ともに嫌悪感が増加する傾向にあることを見出し、許容的態度には嫌悪感と理知的判断の相克が背後にあることを見出した。

（２）環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

<行政が活用することが見込まれる成果>

地震の発生や水銀の環境動態における不確実性まで含めた上で地上保管施設の環境リスクを評価したことから、環境リスクとその不確実性を具体的な数値幅として提示することが可能となった。科学的証明やデータは、住民が最終処分場の安全性を判断する上で重要な情報と認知されており、有効的に活用することが見込まれる。なお、最終処分場のリスク認知には水銀の溶出確率よりも溶出に至るまでの時間の方が重要視されており、安全期間の目安として1000年が提案される。また、最終処分場建設へ許容的態度を取る場合において、嫌悪感と理知的判断の相克が背後にあり、合意形成に向けて注意深い対応を取る際に、この点を踏まえることが提案される。

6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文（査読あり）>

- 1) 高橋史武: 土木学会論文集G, Vol.73, No.7, III_307-III_314 (2017) 水銀の環境リスク推定における環境動態モデルシミュレーションの不確実性評価, DOI: 10.2208/jscej.73.III_307
- 2) Rosamond Tshumah-Mutingwende, Fumitake Takahashi, Ewa M. Cukrowska, Julien Lusilao-Makiese: Applied Environmental Research, Vol.40, No.2, 17-31 (2018) Cladophora sp. biosorption of metal-contaminated water, DOI: 10.35762/AER.2018.40.2.2
- 3) Rosamond R.M.S Tshumah-Mutingwende, Fumitake Takahashi: Environmental Pollution, Vol.252, 627-636 (2019), Physio-chemical effects of freshwaters on the dissolution of elemental mercury, DOI: 10.1016/j.envpol.2019.05.130
- 4) Fumitake Takahashi: Global Environment Research, (2020) (in press)
Cognitive aversion of mercury scaled by pairwise comparison method with Thurstone's law of comparative judgement

<査読付論文に準ずる成果発表>

特に記載すべき事項はない。

<その他誌上発表（査読なし）>

- 1) 高橋史武: INDUST, Vol.34, No.10, 45-47, 全国産業資源循環連合会 (2019)
廃棄物最終処分場に対する社会心理学的評価：嫌悪感という視点,

(2) 口頭発表（学会等）

- 1) 高橋史武, ロサモンド ツマームティンウェンデ: 廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集, Vol.28, 469-470 (2017)
「回収水銀の埋立処分における環境リスク評価（その3）：水銀摂取量や体重の変動も踏まえた水銀曝露リスクの評価」
- 2) Tshumah-Mutingwende Rosamond, Takahashi Fumitake: 廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集, Vol.28, 582-583 (2017)
「Simulation of mercury fate and transport in Ngwabalozi River, Zimbabwe using a simple mass balance model」
- 3) 高橋史武, Tshumah-Mutingwende Rosamond: 廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集, Vol.29, 499-500 (2018)
「回収水銀の埋立処分における環境リスク評価（その4）：湖沼の水体积と底質厚さが水銀曝露量に与える影響の評価」
- 4) Tshumah-Mutingwende R.M.S Rosamond, Takahashi Fumitake: 廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集, Vol.29, 617-618 (2018)
「Factors influencing the dark dissolution rate coefficient of elemental mercury in natural waters」
- 5) 高橋史武: 廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集, Vol.30, 495-496 (2019)
「水銀に対する嫌悪感に関する研究（その1）：嫌悪感の定量的評価」
- 6) Rosamond Tshumah-Mutingwende, Fumitake Takahashi, Ewa Cukrowska, Julien Lusilao-Makiese: 21st Korea-Japan Joint International Session, Korea Society of Waste Management, 426, Jeonju, 11th May (2017)
“Batch reactor design for algal biosorption of mercury-contaminated acidic water in the presence of competing ions”

- 7) Rosamond Tshumah-Mutingwende, Fumitake Takahashi, Ewa M. Cukrowska: 4th EnvironmentAsia International Conference on Practical Global Policy and Environmental Dynamics "EnvironmentAsia2017", 84-92, Bangkok, 21-23rd Jun (2017)
"Batch reactor design for algal biosorption of mercury-contaminated acidic water"
- 8) Fumitake Takahashi: 12th International Conference on Mercury as Global Pollutant "ICMGP2017", TP-134, Providence, Rhode Island, 16-21st Jul (2017)
"Impact analysis of model parameter uncertainty on mercury emission from mercury disposal landfill site and methylmercury exposures to human bodies"
- 9) Rosamond Tshumah-Mutingwende, Fumitake Takahashi: 2017 CHINA-JAPAN-KOREA Joint Symposium on Energy and Environment, 24-25, Dalian, 26-28th Oct (2017)
"Effect of uncertainty of mercury fate and transport model parameters on simulated Hg exposure results"
- 10) Fumitake Takahashi, Rosamond Tshumah-Mutingwende: 2017 CHINA-JAPAN-KOREA Joint Symposium on Energy and Environment, 40-41, Dalian, 26-28th Oct (2017)
"The impact of uncertainty of mercury mass inflow to semi-closed water reservoir on mercury exposure to human bodies via food-chains"
- 11) Fumitake Takahashi, Rosamond Tshumah-Mutingwende: 22nd Korea-Japan Joint International Session, Korea Society of Waste Management, 541, Gwangyang, 10th May (2018)
"Quantitatively scaled negative impression of mercury: A comparison with other hazardous materials and events"
- 12) Fumitake Takahashi: 9th China-Japan Joint Conference on material recycling and waste management, 128-131, Kyoto, 25-28th Aug (2018)
"Negatively emotional intensity of mercury and other pollutants scaled quantitatively by pairwise comparison method with Thurstone's law of comparative judgement"
- 13) Fumitake Takahashi, Rosamond Tshumah-Mutingwende: 2018 Korea-China-Japan Joint Symposium on Solid wastes to Energy and Material application, 73-75, Asan, 18-20th Oct (2018)
"Uncertainty analysis of mercury exposure via food-chains in semi-closed water reservoir: The impact of reservoir volume and sediment thickness"
- 14) Rosamond R M S Tshumah-Mutingwende, Fumitake Takahashi: Proceedings of the 10th Asia-Pacific Landfill Symposium "APLAS TOKYO 2018", C1-3, Tokyo, 24-26th Nov (2018)
"Dark dissolution rate coefficient of elemental mercury in natural waters"
- 15) Fumitake Takahashi: 2019 Japan-China-Korea joint symposium on Energy and Environment, 56, Karuizawa, 5-7th Sep (2019)
"Perceptive abhorrence of hazardous substances and events scaled by pairwise comparison method using Thurstone and Scheffe approaches"

(3) 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

(4) 「国民との科学・技術対話」の実施

- 一般公開セミナー「有害重金属廃棄物の長期管理・処分に関するセミナー」（主催：廃棄物資源循環学会, 2019年3月18日, 京都大学東京オフィス, 参加者約40名, 有害廃棄物処分の合意形成に関する研究と題して講演）
- 一般公開セミナー「埋立処分委託契約書・最終処分場維持管理マニュアル説明会」（主催：全国産業資源循環連合会, AP浜松町, 2019年10月11日, 参加者約200名, 廃棄物最終処分場に対する社会心理学的評価－嫌悪感という視点－と題して基調講演）

(5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

(6) その他

- 1) 土木学会 第54回環境工学研究フォーラム・論文賞: 高橋史武 (2018) 水銀の環境リスク推定における環境動態モデルシミュレーションの不確実性評価, 土木学会論文集G, Vol.73, No.7, III_307-III_314.
- 2) 優秀ポスター賞: Rosamond Tshumah-Mutingwende, Fumitake Takahashi, Ewa Cukrowska, Julien Lusilao-Makiese (2017) Batch reactor design for algal biosorption of mercury-contaminated acidic water in the presence of competing ions, 21st Korea-Japan Joint International Session, Korea Society of Waste Management, Jeonju, 11th May.
- 3) 優秀ポスター賞: Rosamond Tshumah-Mutingwende, Fumitake Takahashi (2017) Effect of uncertainty of mercury fate and transport model parameters on simulated Hg exposure results, Proceedings of 2017 CHINA-JAPAN-KOREA Joint Symposium on Energy and Environment, 24-25, Dalian, 26-28th Oct.
- 4) 優秀ポスター賞: Rosamond Tshumah-Mutingwende, Fumitake Takahashi (2018) Impact of small-scale gold mining amalgamation techniques on uncertainty analysis of mercury exposure to humans via diet, 平成29年度廃棄物資源循環学会 関東支部研究発表会, 東京, 3月23日

8. 引用文献

- 1) 野村俊一 (2015) 統計数理, 63(1), 83-104.
- 2) 尾形良彦 (2015) 統計数理, 63(1), 3-27.
- 3) 防災科学技術研究所: J-SHIS 地震ハザードステーション, Web site: <http://www.j-shis.bosai.go.jp/>
- 4) 翠川三郎, 大竹雄 (2003) 日本地震工学会論文集, 3(1), 59-70.
- 5) USGS: Search Earthquake Catalog, Web site: <https://earthquake.usgs.gov/earthquakes/search/>
- 6) 損害保険料率算出機構 (2006) 地震保険研究, Vol.8, 自治体の地震被害想定における被害予測手法の調査, 第III章
- 7) 高岡昌輝, 貴田晶子, 守富寛, 高橋史武, 浅利美鈴, 小口正弘 (2013) 環境研究総合推進費補助金研究事業研究報告書: 水銀など有害金属の循環利用における適正管理に関する研究 (K113001)
- 8) 高橋史武 (2017) 土木学会論文集G, 73(7), III_307-III_314.
- 9) Lin F.M., Malaiyandi M., Sierra C. R. (1975) Bull Environ Contam Toxicol., 14(2), 140-148.
- 10) Alhakami, A.S., Slovic, P. (1994) Risk Anal., 14(6), 1085-1096.
- 11) Slovic, P., Flynn, J.H., Layman, M. (1991) Science, 254(5038), 1603-1607.
- 12) Gupta, N., Fischer, A.R.H., Frewer, L.J. (2012) Public Underst. Sci., 21(7), 782-789.
- 13) Slovic, P. (1987) Science, 236(4799), 280-285.
- 14) Thurstone, L.L. (1927) Psychological Review, 34, 273-286.
- 15) Kendall, M.G. (1985) Rank correlation methods, 2nd ed. Griffin, Chapter 11 and 12.
- 16) Scheffé, H. (1952) J. Am. Stat. Assoc., 147, 381-400.
- 17) 藤本一雄, 翠川三郎 (2010) 日本地震工学会論文集, 10(2), 1-11.

III. 英文Abstract

Long-term Environmentally-sound Management of Treated Waste Consisting of Elemental Mercury in an Aboveground Facility

Principal Investigator: Masaki Takaoka

Institution: Kyoto University

Kyotodaigaku-Katsura, Nishikyo-ku, Kyoto 615-8540,

JAPAN

Tel: +81-75-383-3335 / Fax: +81-75-383-3338

E-mail: takaoka.masaki.4w@kyoto-u.ac.jp

Cooperated by: Fukuoka University, Tokyo Institute of Technology

[Abstract]

Key Words: Mercury, Aboveground storage, Solidification, Landfill, Risk communication

The Minamata Convention on Mercury entered into force on 16 August 2017, which notably decreased the demand for mercury and changed the global supply-demand balance. Inevitably, the mercury recovered from mercury waste and industrial processes is in excess. Therefore, long-term environmentally sound management of elemental mercury is necessary. This study examined the long-term management of treated waste consisting of elemental mercury in an aboveground facility as well as a landfill site with suitable storage and treatment facilities.

The atmospheric release of mercury from treated waste in aboveground facilities is important. Therefore, a head space test was developed, and specific conditions and operations were proposed. The solidification of treated waste consisting of elemental mercury using epoxy resin was examined in terms of weathering, gas emission, and microbiological deterioration, as well as thermal, corrosion, and freeze-thaw resistance. This showed that material solidified using epoxy resin is similar to or better than that processed using dicyclopentadiene modified sulfur.

Landfill experiments using lysimeters were conducted to understand mercury dissolution and diffusion in mercury waste. These processes were simulated using powdered mercury sulfide or material solidified with cement and mixed with incineration ash with organic sludge compost. In all experiments, little mercury was released from the simulated waste and the amount of mercury leached exceeded that volatilized in the landfill experiments. Mercury sulfide solidified using cement was more stable than non-solidified mercury waste. Therefore, the solidification of mercury waste is key. In addition, basic solidified mercury waste experiments indicated that washing before landfill disposal effectively removed the remaining powdered mercury sulfide on the

surface. Landfill temperature, pH (alkaline), and oxidant levels all affected the stability of the mercury waste.

The environmental risk of long-term mercury stored in the ground from earthquakes was assessed using a statistical probability distribution approach. The model indicates that a large “class 7” earthquake may occur within 50 years with 1.7% probability, but the risk of mercury leaching after the earthquake is low. Unacceptable mercury exposure may happen with less than 0.01% probability. This study also found that people have strong perceptive aversion to mercury. Even when people accept the need for a mercury-disposal landfill site, they still feel a very strong aversion.