

原著

安定型最終処分場における硫化水素発生対策と経時的モニタリング

平川周作・志水信弘・鳥羽峰樹・池浦太荘・桜木建治・大久保彰人

硫化水素ガスによる事故が発生した安定型最終処分場について、場内で発生するガス及び水質の経時的変化を調査し、硫化水素ガス発生対策の効果や変動要因を考察した。ガス抜きによる埋立層の好気化措置や雨水分離措置により、事故から2年後には硫化水素ガス濃度が顕著に低減し、両対策の効果が認められた。しかし、事故から6年後、二期埋立地拡張部における硫化水素ガス濃度が上昇し、浸透水の水質の悪化がみられた。水の滞留により廃棄物層内が嫌気的環境になっていたことが原因と考えられ、現在は覆土による雨水排除などの対策措置によって改善が認められている。また、ガスと水質の相関解析を実施したところ、浸透水の有機物量が多く、嫌気的であるほど最終処分場の硫化水素ガス濃度が高くなることが示唆された。そのため、浸透水の水質から最終処分場における硫化水素ガス濃度を予測するモデル式を作成した。

[キーワード：安定型最終処分場、嫌気的環境、硫化水素、BOD]

1 はじめに

平成11年10月、福岡県内の安定型最終処分場において、浸透水の送水槽内で作業中の従業員が硫化水素中毒と疑われる症状によって死亡する事故が発生した。福岡県では、事故発生後直ちに最終処分場内の大気及び水質の調査を実施し、原因調査や周辺環境への影響調査を開始した。また、事故の原因解明のため、学識者で構成した事故調査委員会が設置された。平成11年12月より処分場内のボーリングを実施し、処分場の地質、廃棄物の性状、水の流れ及び収支、水質、土壌、ボーリング孔内のガス組成等を調査した。

安定型最終処分場における高濃度の硫化水素ガスの発生には、①硫酸塩還元菌の存在、②硫酸塩の存在、③硫酸塩還元菌が増殖するための有機物の存在、④硫酸塩還元菌が増殖するのに適当な温度・水分・嫌気的状態の保持、⑤発生した硫化水素と結合する物質が少ない、といった条件が挙げられる¹⁾。当該事故調査委員会の検討においても、埋立層内が湿潤状態で嫌気的性状を示しており、廃棄物層に有機物が10%程度含まれていたことが明らかとなった。このことから、微生物による有機物の分解に伴って、より嫌気的な状態となり、硫酸塩還元菌の活動が活発化することによって、廃棄物層内の硫酸塩が硫化水素に還元されたものと考えられた²⁾。

安定型最終処分場では、有害物質や有機物等を含まず性状が安定しているとされる安定5品目（廃プラスチック類、ゴムくず、金属くず、ガラスくず・コンクリートくず、

がれき類）及びこれらに準ずるものとして環境大臣が指定した品目を埋め立てるようになっている。しかし、このように埋め立て品目が限定された最終処分場であるにもかかわらず、全国的に硫化水素ガスの発生や悪臭問題に関する報告がある²⁾。硫化水素ガス発生の原因となる有機物や硫黄成分の供給源として、石膏ボードからの影響が報告されており^{1, 3)}、平成18年6月には安定型最終処分場への埋め立てが全面的に禁止されている。志水らは、廃プラスチック類の抽出有機物を用いた培養試験により、硫酸塩還元菌が主に親水性の有機物を利用して木質と同程度の硫化物イオンを発生させることを明らかにし、廃プラスチック類が硫化水素ガスの発生原因となる可能性を指摘している⁴⁾。

福岡県では、当該硫化水素ガス発生事故後の安定型最終処分場の状況と周辺環境への影響を把握するため、継続的にガス及び水質の調査を実施している。本研究は、最終処分場の適正管理及び早期安定化に寄与することを目的として、場内で発生するガスと水質の経時的変化を調査し、その関係を解析することにより、硫化水素ガス発生対策による効果や変動要因を考察した。

2 調査方法

2・1 対象処分場の概要・調査対象地点

調査対象の最終処分場は、面積約90,000 m²、容積約1,375,000 m³である。安定型最終処分場として平成元年から産業廃棄物の埋立を開始していた。しかし、平成17年に許可が取り消されている。最初に埋め立てられた地点か

ら順に、一期（平成元年～平成5年）、二期（平成5年～平成11年）、二期拡張（平成11年～平成17年）と埋め立ての範囲が広がられており、浸透水を処理・放流するための調整池や水処理施設も設置されている。

硫化水素ガス発生事故後の対策について、埋立廃棄物と雨水の接触を避けるための雨水分離措置（一期埋立地：平成12年9月工事完了、二期埋立地拡張部：平成13年5月工事完了）、ガス抜きによる好気化措置（平成12年8月工事完了、同年12月ガス抜き追加工事）が実施された。

解析に用いたガス及び水質の調査地点と調査期間、調査頻度を表1に示す。本研究では、平成26年3月までのデータを使用した。

表1 ガス及び水質の調査地点と調査期間、調査頻度

対象	分類	調査地点	調査期間	調査頻度
ガス	ボーリング孔(一期)	B-1, B-7, B-8	平成12年10月～平成15年6月	月1回
	ボーリング孔(二期)	B-2, B-9, B-10	平成12年10月～平成26年3月	月1回
	ボーリング孔(二期拡張)	B-3, B-11, B-12	平成12年10月～平成15年1月	月1回
	通気管(二期拡張)	101, 102	平成15年4月～平成26年3月	月1回
	通気管(二期拡張)	103	平成15年4月～平成19年2月	月1回
水質	浸透水(一期)	S-1, S-2	平成11年11月～平成26年3月	月1回
	浸透水(二期、二期拡張)	S-3	平成11年10月～平成26年3月	月1回
	処理水(二期、二期拡張)	S-4	平成12年1月～平成26年3月	月1回

表2 水質の測定項目及び分析方法^a

測定項目	分析方法	調査頻度
pH	JIS K0102 (ガラス電極法)	月1回
溶存酸素(DO)	JIS K0102 (隔膜電極法)	月1回
電気伝導率(EC)	JIS K0102 (電気伝導度計)	月1回
酸化還元電位(Eh)	白金電極法	月1回
硫化水素(H ₂ S)	環境庁告示第9号 ² 別表第2	月1回
化学的酸素要求量(COD)	JIS K0102 (100°Cにおける過マンガン酸カリウムによる酸素消費量)	月1回
生物学的酸素要求量(BOD)	JIS K0102 (隔膜電極法)	月1回
浮遊物質量(SS)	環境庁告示第59号 ³ 付表8	月1回
Na ⁺ , K ⁺ , Mg ²⁺ , Ca ²⁺ , Cl ⁻ , SO ₄ ²⁻	JIS K0102 (イオン chromatography)	月1回
HCO ₃ ⁻ , CO ₃ ²⁻	環境省自然環境局鉱泉分析法指針(改訂) (分離滴定法)	月1回
ノルマルヘキサン抽出物質	環境庁告示第64号 ⁴ 付表4	年2回
カドミウム, 鉛	JIS K0102 (ICP質量分析法)	年2回
全シアン	JIS K0102 (4-ピリジンカルボン酸-ピラゾロン吸光光度法)	年2回
六価クロム	JIS K0102 (ジフェニルピリドン吸光光度法)	年2回
砒素, セレン	JIS K0102 (ICP質量分析法)	年2回
総水銀	環境庁告示第59号 ³ 付表1	年2回
アルキル水銀	環境庁告示第59号 ³ 付表2	年2回
有機磷	環境庁告示第64号 ⁴ 付表1	年2回
PCB	環境庁告示第59号 ³ 付表3	年2回
トリクロロエチレン, テトラクロロエチレン, シクロロタン, 四塩化炭素, 1,2-ジクロロエタン, 1,1-ジクロロエチレン, 1,2-ジクロロエチレン, トランス-1,2-ジクロロエチレン, 1,1,1-トリクロロエタン, 1,1,2-トリクロロエタン, 1,3-ジクロロプロパン, ペンゼン	JIS K0125 (ヘッドスペース-ガスクロマトグラフ質量分析法)	年2回
チウラム	環境庁告示第59号 ³ 付表4	年2回
シマジン, チオベンカルブ	環境庁告示第59号 ³ 付表5	年2回
硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素	JIS K0102 (イオン chromatography)	年2回
ボウ素	JIS K0102 ICP発光分光分析法	年2回
フッ素	JIS K0102 (ランタン-アリザリンコンプレキソン吸光光度法)	年2回
鉄, マンガン	JIS K0102 (ICP質量分析法又はICP発光分光分析法)	年2回
全窒素	JIS K0102 (紫外線吸光光度法)	年2回
1,4-ジオキサン	環境庁告示第59号 ³ 付表7	年2回
塩化ビニルモノマー	環境庁告示第10号 ⁵ 付表	年2回

^a平成25年度に実施した調査の測定項目と分析方法
^b昭和47年5月30日環境庁告示第9号(特定悪臭物質の測定の方法)
^c昭和46年12月28日環境庁告示第59号(水質汚濁に係る環境基準について)
^d昭和49年9月30日環境庁告示第64号(排水基準を定める省令の規定に基づく環境大臣が定める排水基準に係る検定方法)
^e平成9年3月13日環境庁告示第10号(地下水の水質汚濁に係る環境基準について)

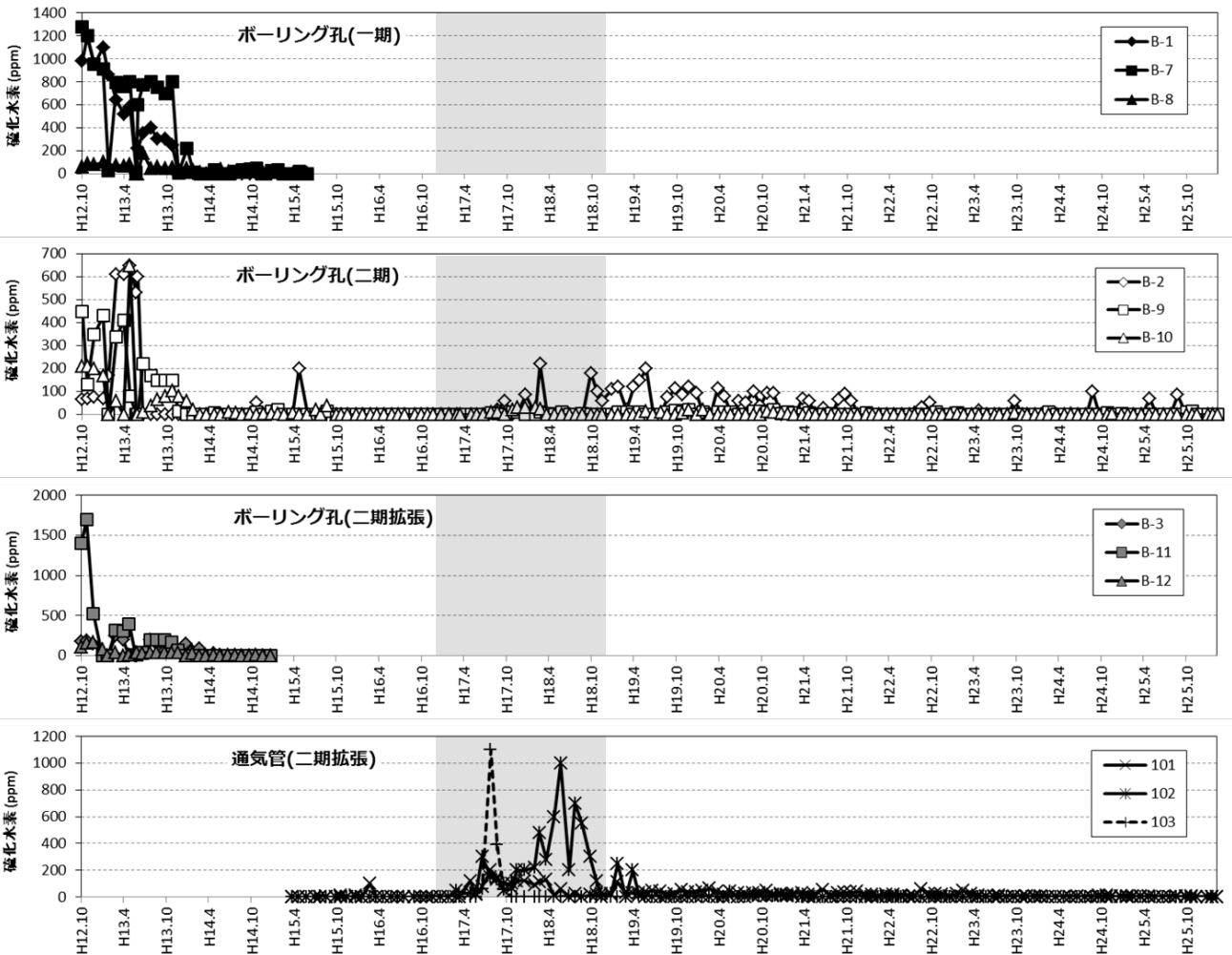


図1 硫化水素ガス濃度の経時的変化

2・2 調査項目・分析方法

ガスの調査項目は、温度、吹出速度（ボーリング孔のみ）、硫化水素、二酸化炭素、メタンである。硫化水素と二酸化炭素は検知管（株式会社ガステック）により、メタンはテドラーバッグにガスを捕集して水素炎イオン化検出器付ガスクロマトグラフ法で測定した。水質の調査項目及び分析方法は表2に示す。

2・3 統計解析

統計解析はエクセル統計2010（株式会社社会情報サービス）とIBM SPSS Statistics 20（日本アイ・ビー・エム株式会社）を用いた。相関解析は、スピアマンの順位相関係数を用い、有意水準は5%とした。重回帰分析は、F値の有意確率（ <0.05 ）を基準としたステップワイズ法を適用し、変数選択をおこなった。なお、全ての解析において、測定値が報告下限値未満の場合は、解析から除外した。

3 結果および考察

3・1 ガスモニタリング調査

ボーリング孔及び通気管の硫化水素ガスについて、平成12年10月から平成26年3月の調査結果を図1に示す。事故後に実施された改善対策の結果、硫化水素ガス濃度は低減傾向を示し、特に平成13年11月から12月に顕著な減少が認められた。メタンや二酸化炭素濃度、吹出速度についても、硫化水素ガス濃度ほど大きな変化はなかったが、同様に低下する傾向がみられた。一方、平成17年から平成18年にかけて、二期埋立地拡張部に設置されている通気管の調査結果において、硫化水素ガス濃度の上昇が認められた（図1）。

二期埋立地拡張部通気管について、有機物の嫌氣的分解に伴って発生するメタン及び二酸化炭素の濃度変動と硫化水素ガスを比較したところ、同時期に濃度が上昇していた（図2）。また、現地調査によって、二期埋立地拡張部に保有水が滞留していることが明らかとなった。これらの結果から、集排水管の管理が適切でなかったため、廃棄物の埋立層内に滞留水が生じ、嫌氣的な環境が形成されていたことが硫化水素ガス発生の一因と推察された。

対策措置として、平成18年から覆土による雨水排除などが実施された結果、平成19年には硫化水素ガス濃度の減少が認められ、以降は安定した状態が継続している。しかし、二期埋立地のB-2では断続的に硫化水素ガスが発生しており、二期埋立地拡張部の101でも低濃度であるが継続して硫化水素ガスが確認されている。このことから、依然として埋立層内で微生物活動が起こっていることが考えられる。

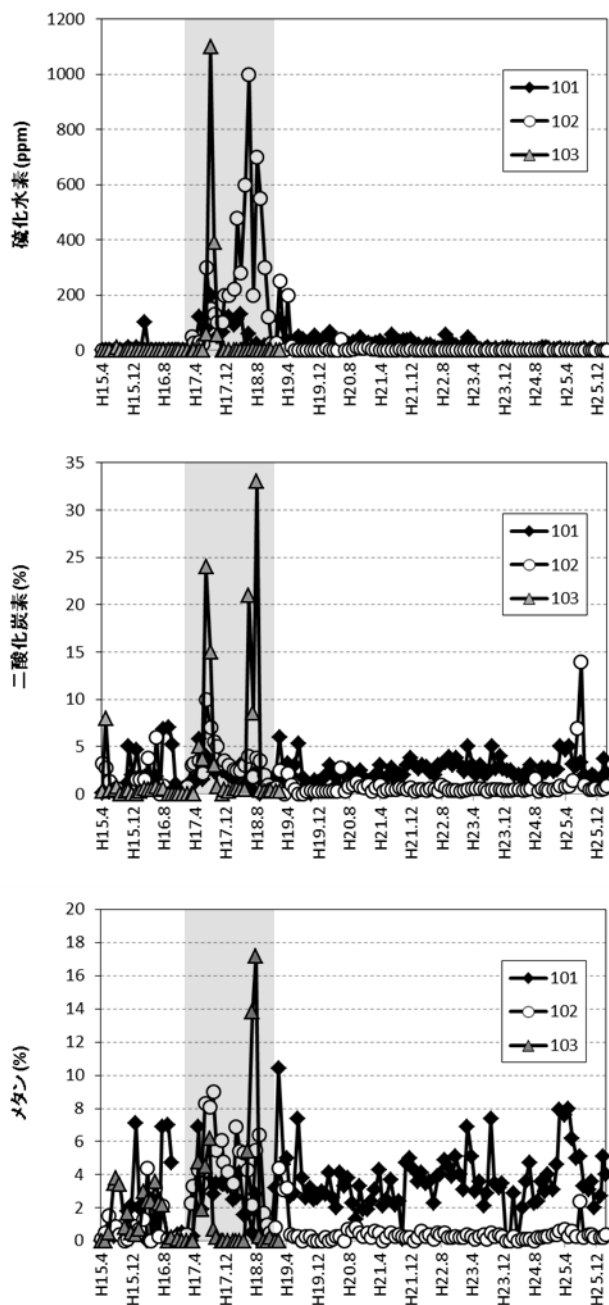


図2 二期埋立地拡張部通気管における硫化水素、二酸化炭素、メタンの経時的変化

3・2 水質モニタリング調査

浸透水（S-1-S-3）及び処理水（S-4）の水質について、有機物汚濁の指標であるCODとBODの経時的な変化を図3に示す。

一期埋立地の浸透水（S-1、S-2）は、時間の経過と共にCOD、BOD濃度の低下傾向が認められており、平成19年8月以降は、安定型最終処分場の維持管理基準（COD:40 mg/L、BOD:20 mg/L）を超過することなく推移している。

二期・二期埋立地拡張部の浸透水（S-3）と処理水（S-4）のCOD、BODは、平成17年から平成18年にかけて水質の

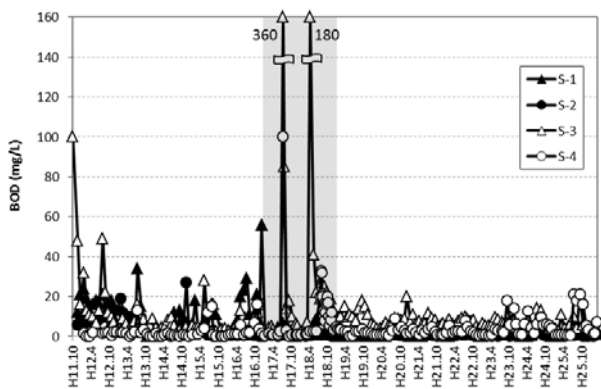
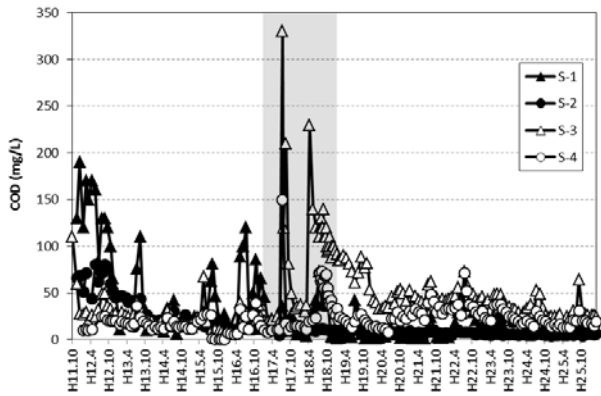


図3 浸透水及び処理水におけるCOD、BODの経時的変化

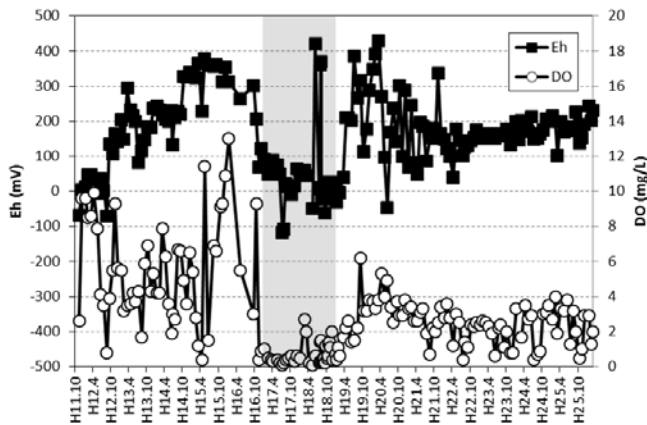


図4 浸透水 (S-3) におけるEh、DOの経時的変化

悪化が認められた。CODは濃度が急激に上昇した時期以降、平成16年までの平均値と比較して高くなっていたが、時間の経過と共に徐々に低減する傾向がみられた。一方、BODはCODに比べて早い時期に濃度が低下し、改善が認められた。要因の一つとして、覆土による雨水排除やガス抜きによる好気化措置が実施されたことにより、易分解性の有機物の分解が進行し、BODが低下したことが考えられる。しかし、BODは、平成25年の調査においても変動が認められていることから、その要因の解明には更なる調査が必要

である。

次に、S-3における酸化還元電位(Eh)と溶存酸素量(DO)の変化を調査したところ、平成17年から平成18年にかけて低下しており、嫌気的環境への移行が示唆された(図4)。この期間は、ガスモニタリング調査において二期埋立地拡張部の硫化水素ガス濃度が上昇した時期と重なっており、廃棄物の埋立層内に嫌気的環境が形成されたとする考察と一致していた。

3・3 硫化水素ガスと浸透水水質の関係

硫化水素ガスと浸透水の関係を調査するため、二期埋立地ボーリング孔及び二期埋立地拡張部通気管の硫化水素ガス濃度とその下流の浸透水(S-3)の水質項目について、相関解析を実施した(表3)。解析の結果、二期埋立地拡張部通気管(101、102)の硫化水素と浸透水の有機物指標(COD、BOD)に有意な正の相関関係があり、さらに浸透水の採取場所に最も近い通気管(102)の硫化水素はDOやEhと有意な負の相関関係が認められた。これらの結果は、浸透水の有機物量が多く、嫌気的であるほど廃棄物埋立地の硫化水素濃度が高くなることを示唆しており、硫化水素の発生条件と一致していた¹⁾。

最終処分場浸透水からの硫化水素の発生を調査した文献によると、硫化水素ガスの発生条件にBODと硫酸イオン(SO₄²⁻)濃度が高いことが挙げられている⁵⁾。さらに、

表3 硫化水素ガスと浸透水水質項目の相関係数

浸透水水質項目	硫化水素ガス				
	B-2	B-9	B-10	101	102
水温	0.079 (n=98)	-0.26* (n=86)	-0.45*** (n=69)	0.079 (n=117)	-0.24 (n=61)
pH	-0.10 (n=98)	0.18 (n=86)	0.093 (n=69)	-0.088 (n=117)	-0.43*** (n=61)
DO	0.032 (n=98)	0.28** (n=85)	0.22 (n=69)	-0.12 (n=116)	-0.57*** (n=60)
EC	0.31** (n=98)	0.053 (n=86)	-0.25* (n=69)	0.53*** (n=117)	0.27* (n=61)
Eh	-0.15 (n=95)	0.014 (n=83)	-0.13 (n=68)	-0.13 (n=115)	-0.57*** (n=60)
COD	0.29** (n=98)	-0.068 (n=86)	-0.33** (n=69)	0.47*** (n=117)	0.31* (n=61)
BOD	0.28** (n=98)	0.065 (n=86)	-0.24 (n=69)	0.21* (n=117)	0.28* (n=61)
SS	0.11 (n=86)	0.089 (n=78)	0.092 (n=60)	-0.22* (n=105)	0.11 (n=54)
Na ⁺	0.18 (n=98)	-0.19 (n=86)	-0.52*** (n=69)	0.38*** (n=117)	0.20 (n=61)
K ⁺	-0.0012 (n=98)	-0.18 (n=86)	-0.43*** (n=69)	-0.094 (n=117)	0.14 (n=61)
Mg ²⁺	0.32** (n=98)	-0.0016 (n=86)	-0.20 (n=69)	0.56*** (n=117)	0.45*** (n=61)
Ca ²⁺	0.30** (n=98)	-0.041 (n=86)	-0.23 (n=69)	0.48*** (n=117)	0.43*** (n=61)
Cl ⁻	0.45*** (n=98)	0.40*** (n=86)	0.42*** (n=69)	0.62*** (n=117)	0.70*** (n=61)
SO ₄ ²⁻	0.012 (n=98)	-0.17 (n=86)	-0.45*** (n=69)	0.13 (n=117)	-0.50*** (n=61)
HCO ₃ ⁻	0.10 (n=98)	-0.11 (n=86)	-0.40*** (n=69)	-0.008 (n=117)	0.14 (n=61)

*p<0.05, **p<0.01, ***p<0.001

林らは硫酸塩還元菌の培養試験により、硫化物生成に対する寄与は硫酸イオンよりも有機物質の方が大きく、また、硫酸イオン濃度を一定とした場合、BOD濃度が上昇するほど硫化水素転換率は高くなることを示している⁹⁾。本研究において、通気管（102）の硫化水素ガスと浸透水の硫酸イオンには有意な負の相関関係が認められている。このことから、廃棄物埋立地内部で硫酸イオンが還元され、硫化水素を発生する状態を反映しているものと考えられる。

次に、最終処分場における硫化水素ガス濃度の変動について、浸透水の水質データを用いて予測を試みた。二期埋立地拡張部の通気管（102）を対象として、硫化水素ガス濃度を目的変数に、表3に示す水質項目を説明変数に適用し、重回帰分析をおこなったところ、次の回帰式が得られた（寄与率 = 0.68）。

$$\text{硫化水素 (ppm)} = -3.7 \times \text{SO}_4^{2-} (\text{mg/L}) + 2.9 \times \text{Ca}^{2+} (\text{mg/L}) + 0.66 \times \text{Eh (mV)} - 38 \times \text{DO (mg/L)} + 510$$

硫酸イオンやEh、DOが説明変数として適用されており、硫酸塩や嫌気的環境の指標となる水質項目が硫化水素ガスの濃度予測に有用と考えられる。また、カルシウムイオンは、ステップワイズ法により変数として選択されたが、浸透水の水質項目間の関係を解析した結果、COD ($r = 0.66$, $p < 0.001$) やBOD ($r = 0.44$, $p < 0.001$) と有意な正の相関関係が認められたことから、これには有機物による影響

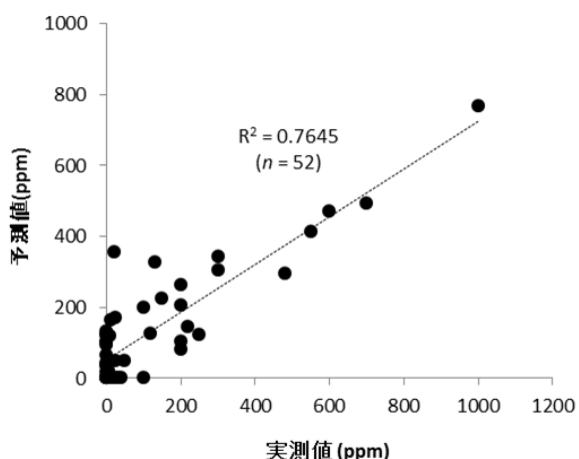


図5 通気管（102）における硫化水素ガス濃度の実測値と浸透水水質から算出した予測値の関係

も含まれていると推察される。

回帰式から算出した予測値と実測値の散布図（ $n = 52$ ）を図5に示す。なお、予測値が負の値となる場合は、値をゼロとした。本モデル式は当該通気管における硫化水素ガス濃度の予測に役立つと考えられる。一方、廃棄物の埋立層内は均質な環境ではないため、硫化水素ガス濃度の予測に関与する因子は、調査地点によって異なっていることが考えられる。そのため、対象とする調査地点ごとに適した水質項目を変数として選択することで、より有効な予測ができると考えられる。

4 まとめ

福岡県内で発生した安定型最終処分場の硫化水素ガス発生事故に関連して、ガス及び水質のモニタリング調査を継続して実施した。経時的な変化を調査したところ、事故後に実施した対策により、2年後には硫化水素ガス濃度の顕著な低減が認められた。その後、平成17年から平成18年にかけて、二期埋立地拡張部における硫化水素ガス濃度の上昇及び水質の悪化が認められた。廃棄物埋立層内が嫌気的環境になっていたことが原因と考えられ、現在は対策措置によって改善されている。

硫化水素ガスと浸透水水質の関係を解析したところ、浸透水の有機物量が多く、嫌気的であるほど硫化水素ガス濃度が高くなることが示唆された。また、継続的に実施してきたモニタリングデータを用いることにより、浸透水の水質から最終処分場における硫化水素ガス濃度を予測するモデル式を作成した。

文献

- 1) 井上雄三：国立環境研究所研究報告，188，2005.
- 2) 厚生省：廃棄物最終処分場における硫化水素対策検討会報告書，2000.
- 3) 菊池憲次ら：日本化学会誌，12，705-713，2001.
- 4) 志水信弘ら：福岡県保健環境研究所年報，40，76-80，2014.
- 5) 浜口知敏：徳島県保健環境センター年報，25，27-28，2007.
- 6) 林ら：日本環境衛生センター所報，36，74-79，2009.

(英文要旨)

Monitoring and Measuring Hydrogen Sulfide Generation in the Least-controlled Landfill Site

**Shusaku HIRAKAWA, Nobuhiro SHIMIZU, Mineki TOBA,
Taso IKEURA, Kenji SAKURAGI and Akito OHKUBO**

*Fukuoka Institute of Health and Environmental Sciences,
Mukaizano 39, Dazaifu, Fukuoka 818-0135, Japan*

We investigated temporal change in gas and water quality in the least-controlled landfill site, which had an accidental generation of hydrogen sulfide. As a result of countermeasures, including formation of an aerobic environment in the waste layer and separation of rainwater, the concentration of hydrogen sulfide was noticeably reduced by 2 years. However, the concentration of hydrogen sulfide in the landfill site had increased, and the quality of the leaching water had deteriorated in 2005-2006. The suspected cause was the anaerobic environment formed by retention of water in the waste layer, and it has been improved. The correlated analysis of gas and water quality suggested that the concentration of hydrogen sulfide in landfill sites increases with the amount of organic matter and more anaerobic conditions of leaching water. In addition, we created a model equation to predict the concentration of hydrogen sulfide in landfill sites from the quality of leaching water.

[Key words; least-controlled landfill site, anaerobic environment, hydrogen sulfide, BOD]