



IKER
GAZTE
NAZIOARTEKO
IKERKETA EUSKARAZ

V. IKERGAZTE

NAZIOARTEKO IKERKETA EUSKARAZ

2023ko maiatzaren 17, 18 eta 19a
Donostia, Euskal Herria

ANTOLATZAILEA:
Udako Euskal Unibertsitatea (UEU)



Aitortu-PartekatuBerdin 3.0

ZIENTZIAK ETA NATURA ZIENTZIAK

**Kutsatutako eraikuntza-materialen
lixibiazioz eratorritako
kutsatzaileen eraginaren
ebaluazioa ondoko lurzoruetan**

*Iñaki Vazquez de la Fuente,
Nagore Prieto Taboada,
Ainara Gradilla Altonaga,
Gorka Arana Momoitio eta
Juan Manuel Madariaga Mota*

385-391 or.

<https://dx.doi.org/10.26876/ikergazte.v.05.49>

ANTOLATZAILEA:



BABESLEAK:



LAGUNTZAILEAK:



Kutsatutako eraikuntza-materialen lixibiazioetik eratorritako kutsatzaileen eraginaren ebaluazioa ondoko lurzoruetan

Iñaki Vázquez de la Fuente, Nagore Prieto-Taboada, Ainara Gredilla Altonaga,
Gorka Arana, Juan Manuel Madariga

Kimika Analitikoa Saila, Zientzia eta Teknologia fakultatea, Euskal Herriko Unibertsitatea (UPV/EHU), P.K. 48940, Leioa, Bizkaia

inaki.vazquez@ehu.eus

Laburpena

Kontzentrazio handietan metal astunak arriskutsuak izan daitezke lurzoruetan. Horregatik, oso interesgarria da lixibiazio-egoerak aztertzea, non ur-fase batek gainazal solido bateko metal adsorbatuak mugitzen dituen. Lan honetarako lurzoruko laginak hartu ziren urtetan metatutako karga kutsatzaile handia zuen eraikin historiko baten ondoan, Punta Begoña (Bizkaia). Lurzoruan zegoen metalen kontzentrazioa Indukzio Bidez Akoplatutako Plasma - Masa Espektrometria (ICP-MS) erabilia determinatu zen. Eraikinaren oinarrian kokatutako lurretan metatutako metalak Fe, Mg, Na, Ba eta Co izan ziren bereziki, zeinak lixibiazioaren ondorioz metatu izan ahal diren. Lurzoruen Legeko (4/2015) Ebaluazio Balio Adierazgarriak (EBA balioak) kontuan hartuta, Punta Begoña Pb-z kutsatuta egoteko arriskua badagoela ondorioztatu zen.

Gako-hitzak: lurzorua, ICP-MS, metal astunak, Punta Begoña, VIE-B

Abstract

Heavy metals can be dangerous at high concentrations in the soil. Therefore, it is very interesting to study leaching situations, where an aqueous phase can mobilize the metals absorbed by a solid surface. Soil samples were taken next to a historic building with a high polluting load accumulated over the years, Punta Begoña (Bizkaia). These samples were analyzed by Inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS) to know their metallic composition. The metals accumulated at the base of the building were Fe, Mg, Na, Ba and Co, which may indicate a metallic contribution from the façade due to leaching effects. Using the VIE-B values defined in the BOE2015 for the Autonomous Community of the Basque Country, it was seen the presence of Pb contamination in Punta Begoña.

Keywords: soil, ICP-MS, Heavy metals, Punta Begoña, VIE-B

1. Sarrera eta motibazioa

Lurzorua funtsezkoa da organismo askoren biziraupenerako. Animaliek eta landareek jaten, ibiltzen, bizi, ezkututzen eta gozaten dute lurzoruan, baina lurzoruarekin hain hurbil dagoen elkarrekintza hori arriskutsua izan daiteke. Adibidez, kontzentrazio handietan toxikoak izan daitezkeen konposatuak metatzen direnean, lurzoruaren eta organismoen arteko harremana toxikoa bihurtu daiteke.

Metal astunak, berez, lurzoruan egoten dira, jatorrizko materialen meteorizazio-prozesu geologikoetatik abiatuta, aztarnatzen hartzen diren mailetan (<1.000 mg kg⁻¹) eta gutxitan toxikoak diren mailetan. Hala ere, landa- eta hiri-inguruneetako lurzoru gehienek metal astun bat edo gehiago metatzen dituzte definitutako balioen gainetik, giza osasuna, landareak, animaliak, ekosistemak edo bestelako baliabideak arriskuan jartzeko adinako kontzentrazioetan (Wuana eta Okieimen, 2011).

Lurzoruan metatutako metal astunak iturri antropogeniko askoren ondorio izan daitezke: azkar hedatzen ari diren industria-eremuetako emisioak, inguruko meatzeak, metal-eduki handiko hondakinen ezabaketa gasolina eta beruna duten pinturen erabilera, lurrean ongarriak aplikatzea, animalien simaurra, hondakin-uren lohiak, pestizidak, ikatzaren errekuntzako hondakinak eta petrokimikoen isuriak (García-Florentino et al., 2020). Gainera, metal gehienek ez dute degradazio mikrobianoerik edo kimikorik izaten, eta horregatik lurzoruetan pilatzen dira. Lurzoru kutsatuetan dauden metal astun ohikoenak, ugarienetik gutxien agertzen dena ordenatuta, ondorengoak dira: Pb, Cr, As, Zn, Cd, Cu eta Hg. (Wuana eta Okieimen, 2011).

Lurzoruarekin gertatzen den bezala, eraikin batek ingurumenarekin elkarrekintza estua dauka. Beraz, lurzoruei eragiten dieten kutsadura-iturriek eraikin batean ere eragina izan dezakete, are gehiago mende-hasierako eraikinei buruz hitz egiten dugunean. Horrela, eraikinen materialek atmosferako kutsatzaileak xurgatzen eta pilatzen dituzte (Prieto-Taboada et al., 2013). Era berean, eraikinetan finkatutako kutsatzaileak urteak egon daitezke bertan finkatuta. Baina, badira horien mugikortasuna areagotzen duten prozesuak, adibidez lixibiazioa.

2. Arloko egoera eta ikerketaren helburuak

Lixibiazio prozesuak solutu bat bere matrize solidotik bereiztean datza, disolbatzaile likido baten eraginez. Lurzoru baten konposizio metalikoa ulertzeko beharrezkoa da ingurua aztertzea, izan ere, lurzurutik hurbil metal ezberdinen iturri diren materialak egon daitezke. Horrela, lixibatuak izan daitezkeen eta lurzuruan meta daitezkeen metalen zerrenda zehaztu daiteke. Oso aztertua izan den adibide bat trafiko nabarmena duten errepideen alboan kokatutako lurretan isurketa-uren eraginez metatzen diren metal astunen kasua da. Errepide-inguruneetan aztertu ohi diren metalak Cd, Cr, Cu, Pb, Ni eta Zn dira (Werkenthin et al., 2014). Eraikinen kasuan, ekarpen metalikoa egiturak berak duen konposizioaren ondorio izan daiteke. Esaterako, Corten altzairuaren konposizioa gehienbat burdina da, baina Cr, Cu, Ni eta P kantitate txikiak ere baditu. Lixibiazioaren eraginez, elementu horiek eraikinaren inguruko lurzuruan metatu daitezke (Kamimura et al., 2006).

Beraz, eraikin zaharrak ere kutsadura-iturri bat izan daitezke, lixibiazio-prozesuen ondorioz (Li, 2001), bereziki, industria-jarduera handiko guneetatik hurbil egon badira. Kutsadura hori egituraren konposizioaren beraren ondorio izan daiteke, edo urteetan zehar eraikinean gertatu den kutsatzaileen pilaketaren ondorioa. Bigarren kasu horren adibide bat Punta Begoña (1. irudia) galeriak dira. Eraikin hori 1918an eraikitako hormigoi armatuzko eraikina da, eta Getxoko (Bizkaia) kostaldean dago kokatua.

1. irudia. Punta Begoña eraikinaren satellite-ikuspegia gorritz nabarmendua.



Punta Begoña eraikina aztertu zen diziplina anitzeko proiektu baten barruan (Madariaga et al., 2019; Morillas et al., 2019; Mollá et al., 2019), eta iturri kutsatzaile askoren eraginpean dagoela ondorioztatu zen. Historikoki, industriak garapen handia izan duen eremu batean dago kokatuta, eta ondorioz, iraganean kutsatzaile ugari isuri da bertako atmosferara (García-Florentino et al., 2020). Urteetan zehar industriak bilakaera izan du eta ingurumenean eragin txikiagoa duten teknikei bide eman die. Hala ere, aurreko urteetan kontzentrazio handietan atmosferara isurirako

metalak (beruna, kasu) eta kutsatzaile organikoak eraikinaren egitura pilatuz joan dira (Prieto-Taboada et al., 2013). Gainera, Punta Begoñaren inguruko industria-jarduera nabarmena da oraindik ere. Kokaleku honetako beste kutsadura-iturri batzuk trafikoa eta itsas aerosola dira. Punta Begoñaren fatxadaren metatzen diren partikuletatik datorren metal-ekarpena ere aztertu da, eta metal astunak daudela ikusi da, hala nola Fe, Cr, Ti, Pb, Zn, Ce, etab (Morillas et al., 2019).

Hori guztia kontuan hartuta, gure helburua Punta Begoñako fatxadaren ondoan dagoen lurzorua konposizio metalikoa aztertzea izan da. Horrela, eraikinak ondoko lurzoruetan izan dezakeen eragina ikertu nahi izan da.

3. Ikerketaren muina

3.1 Kokapena eta laginketa

Urteetan zehar fatxadaren metatzen joan diren kutsatzaileen kopuru handia kontuan hartuta, Punta Begoñako galeriak (PB) lixibiazio-iturri potentzial gisa aukeratu ziren. Laginketarako eremu bezala eraikinaren ipar-mendebaldeko aldea aukeratu zen errepide baten ondoan eta itsasoaren aurrean dagoelako.

6 lagin hartu ziren, haien artean 20 cm-ko tartea utzi zen (1. irudia). Lehenengo puntua PB-ko fatxadaren oinarriaren ondoan hartu zen eta iturri horretatik urrunduz hurrengoak hartu ziren. Lurzoruko laginak biltzeko, lehenik belarra aitzur batekin kendu zen, eta ondoren, eskuzko lagingailu batekin lurzoru zati bat atera zen. Horrela, 15 cm-ko sakonerako laginak lortu ziren. Lagin bakoitza 5 cm-ko zatitan banatu zen, sakonerako profila lortzeko. Azkenik, laginak lau egunez utzi ziren lehortzen erauzketa-kanpai batean, giro-tenperaturan.

2. irudia. Laginketa-puntuaren deskribapena, non laginketa-puntu bakoitzaren zenbakia eta puntuen arteko distantzia adierazten diren.



3.2 Laginaren aurretratatamendua elementu-analisirako

Lurzoru-laginetan dauden elementu metalikoen analisi kuantitatiboa induktiboki akoplatutako plasma duen masa-espektrometriaren (ICP-MS) bidez egin zen. Analisi hori egiteko laginak aurretratatatu behar izan ziren.

Partikula-tamaina homogeneizatzeko, laginak 10 minutuz bahetu ziren 2 mm-ko sare-begia duen bahetzaile automatiko bat erabiliz (OKTAGON, Endecotts). ICP-MS bidezko analisisa egiteko, erauzketa-etapa bat behar izan zen metalak fase likidora pasatzeko. Erauzketa mikrouhinen bidezko digestio azidoaren bidez egin zen, lurzoru-laginetarako optimizatutako

metodo baten bidez (Carrero et al., 2013). Metodo hori EPA 3051A metodoaren egokitzapena da, US Environmental Agency-k proposatua (acid digestion of sediments, sludges, soils and oils) (Method 3051A, 2007). Digestioaren bidez lortutako erauziak 0,45 μm Millex HV PVDF (Waters corporation) iragazkiekin iragazi ziren 50 mL-ko polipropilenoazko falcon hodi batean, eta Milli-Q urarekin parekatu ziren.

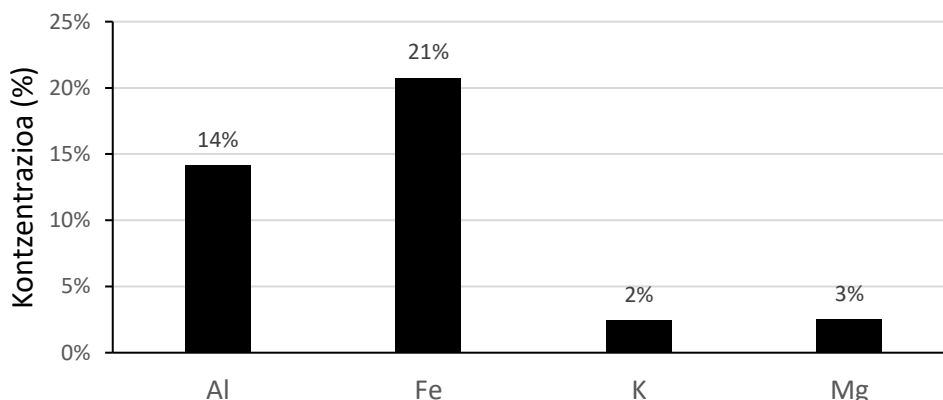
Estraktuak HNO_3 -aren kontzentrazioa %1 izateko diluitu ziren espektrometroan sartu baino lehen. IPS-MS bidezko analisirako NexION 300 (PerkinElmer) masa-espektrometroa erabili zen. Espektrometroak lau polo hirukoitz ditu eta 100 klaseko gela garbi batean dago. ^7Li , ^{27}Al , ^{88}Sr , ^{98}Mo , ^{107}Ag , ^{120}Sn , ^{121}Sb , ^{137}Ba , ^{184}W , ^{202}Hg , ^{205}Tl eta ^{208}Pb isotopoak aztertu ziren. Kinetic energy diskrimination (KED) moduan, berriz, ^{23}Na , ^{24}Mg , ^{39}K , ^{44}Ca , ^{47}Ti , ^{59}Co , ^{63}Cu , ^{66}Zn , ^{75}As , ^{111}Cd , ^{51}V , ^{52}Cr , ^{55}Mn , ^{56}Fe , ^{60}Ni eta ^{78}Se izan ziren. KED metodoarekin talka moduan He erabiltzen da interferentzia poliatomikoak kentzeko. Azkenik, NexION 1.5 (Nexion Software) softwarea erabiliz datuak aztertu ziren elementuen analisi kuantitatiboa egiteko.

4. Ondorioak

4.1 Metalen konposizio-analisia

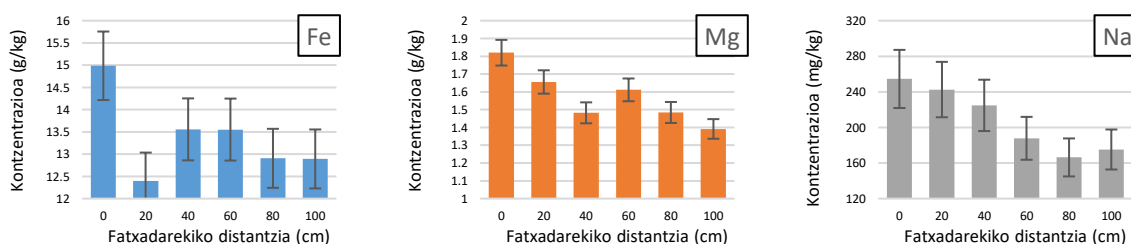
Konposizioari buruzko datuak aztertuz gero, lagin guztien elementu nagusiak Al eta Fe izan ziren (% 14 eta % 21). Ondoren, K eta Mg ziren ugariak (3. irudia).

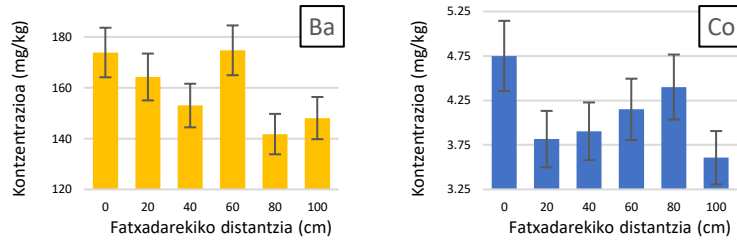
3. irudia. Punta Begoña inguruko lurzoruko-laginetan dagoen Al, Fe, K eta Mg elementuen ehunekoen batez bestekoa.



Azterketa espaziala egiteko (4. Irudian adierazten dena) ez ziren sakonera desberdineko laginak desberdindu eta batez bestekoa egin zen puntu bakoitzean sakonera desberdinetarako lortutako kontzentrazioekin. Punta Begoñako fatxadatik gertu metaketa handiena zuten metalak Fe, Mg, Na, Ba eta Co izan ziren, 4. irudian ageri den bezala. Kontzentrazio handiena "0" puntuan jaso zen, fatxadatik hurbilen zegoen laginean. Aldiz, eraikinetik urruntzean hauen presentzia txikitzen zen.

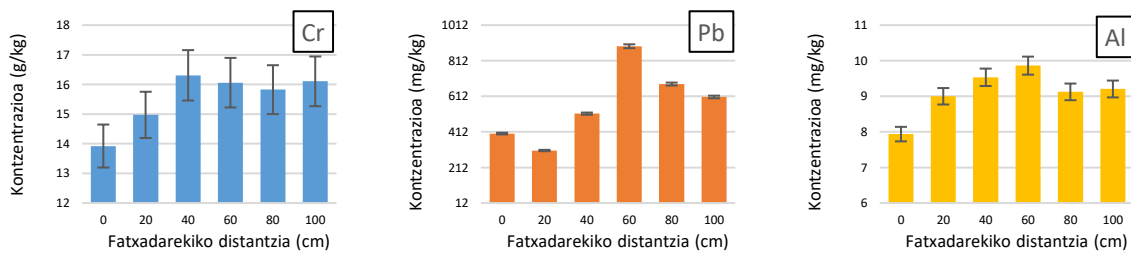
4. irudia. Laginketan presentzia handiena erakutsi zuten elementuen kontzentrazioak. Desbiderapen estandar erlatiboaren batez bestekoa % 8,54 izan zen.





Beraz, metaketa hau adierazten du Punta Begoña fatxadatik ekarpen metaliko bat dagoela lixibiazio prozesuengatik. Aldiz, Punta Begoñako fatxadatik urruntzean kontzentrazioa handitzen zuten metalak Cr, Pb eta Al izan ziren, 5. irudian ikus daitekeen bezala. Metal horiek iturri kutsatzaile desberdinetatik etor daitezke, hala nola hurbileko errepidetik, industria-jardueratik edo itsasoko aerosoletik.

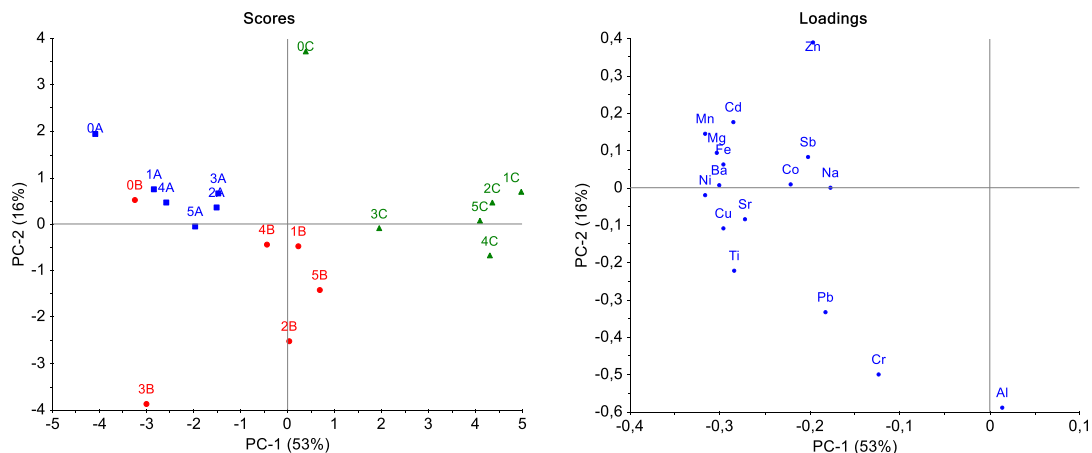
5. irudia. Punta Begoñako fatxadatik urruntzean kontzentrazioa handitzen zuten elementuen kontzentrazioak. Desbiderapen estandar erlatiboa % 6 baino gutxiago izan zen.



Sakonera-profilak aztertzeko Osagai Nagusien Analisia (PCA, *Principal Component Analysis*) erabili zen. Jasotako lurzoruko laginak 5 cm-ko sakonerako hiru zatitan banatu ziren, eta kasu honetan laginak honela izendatu ziren: A azaleratik hurbilen dagoen eremua, B tarteko eremua eta C sakonera handieneko eremua. Datu-matrizea autoeskalatu ondoren, bi osagaiekin osatutako PCA ereduak aukeratu zen, bariantza osoaren %69 azaltzen zuelarik.

PC1-PC2 scores grafikoan (6. irudia) ikusi daitekeen moduan, laginen sakoneraren arabera multzokatzea antzematen da. Loadings grafikoan oinarrituz esan dezakegu lehenengo osagai nagusiak laginak aztertutako elementuen presentziaren arabera (Al izan ezik) banatzen dituela scores-en grafikoan zehar. Horrela, lodings-en eremu negatiboan agertzen diren laginak erlazio zuzena izango dute scores-en grafikoan eremu berean dauden laginekin. Era berean, PC2 bereizten ditu B eremuaren lagin batzuk (3B, 2B eta 5B) Al, Cr eta Pb kontzentrazioaren arabera.

6. irudia. Punta Begoñan jasotako lurzoruko laginekin egindako PCA azterketa, sakoneraren arabera sailkatuta, non A sakonera txikieneko eremua den eta C sakonera handienekoa.

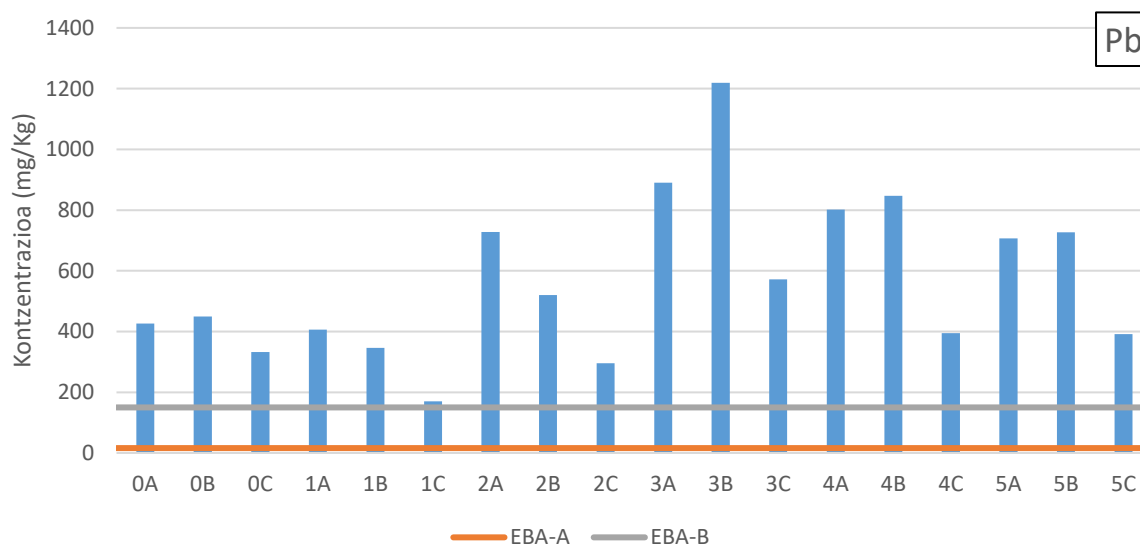


4.2 Euskal Autonomia Erkidegoko lurzoruetarako ebaluazio-balio adierazleak

Aztertutako lurzoruen poluzio-maila ebaluatzeko, Lurzoruen Legeko (4/2015) Ebaluazio Balio Adierazgarriak (EBA balioak) erabili dira erreferentzia gisa. Dokumentu honetan bi kontzentrazio-muga zehazten dira lurzoruentzat, A eta B ebaluazioko balio adierazleak (EBA-A eta EBA-B). Substantzia jakin bat Euskal Autonomia Erkidegoko lurzoruetan modu naturalean aurkitzen den kontzentrazio-tartearen goi-muga definitzen duen estandarra da EBA-A. Kontzentrazio-muga handiagoak dituen EBA-B estandarra da, eta kontzentrazio horren gainetik lurzorua aldatuta dagoela eta kutsatuta egon daitekeela esan liteke. EBA-B lurzorua erabilera desberdinetarako definitzen da; beraz, gure lurzoruak ebaluatzeko, “hiri-ingurune” balioak erabili ziren.

EBA-A mugak Ba, Pb, Cu, Zn eta Cb elementuetarako gaintitu ziren fatxadarekiko distantzia guztietan eta sakonera guztietan. EBA-B mugei dagokienez, Pb metalarentzat bakarrik gaintitu zen (>150 mg/kg). Aztertutako puntu guztiek sakonera guztietarako kontzentrazio-muga gaintitu zuten, 7. irudian ikus daitekeen bezala. Gainera, berun-ekarpina denboran zehar eman dela ikus daiteke, sakonera guztietan mantentzen da eta. Beraz, ez dirudi berun-ekarpen hori gertaera puntuala izan denik. Nolanahi ere, argi dago beruna lurzorua lehen zentimetroetan metatzen dela (A eta B). Beraz, berunaren kontzentrazio-balio horiek ez dira lurzorua konposizioaren berezkoak eta horrek kanpoko ekarpena adierazten du. Bereziki bi kutsadura-iturri desberdinek eragin dezakete hori. Alde batetik, aldameneko errepidean dabilzan ibilgailuen ekarpen (trafikoa) historikoa, eta bestetik, inguruko portuaren jardura handiaren ekarpen zuzena.

7. irudia. Punta Begoñako lurzoruetako berunaren kontzentrazioa. Euskal Autonomia Erkidegorako definitutako Ebaluazio Balio Adierazgarriak (EBA-A eta EBA-B mugak) adierazi dira.



5. Etorkizunerako planteatzen den norabidea

Lan honetan, Punta Begoñako fatxadaren ondoko lurzoruan metatu izan diren zenbait metal aztertu dira. Metal hauen jatorri bezala, lurzoruek berez izan dezaketen eduki metalikoaz gain, 3 iturri posible desberdinu dira (aztergai den elementuaren arabera aldatzen direnak): i) Punta Begoñako fatxada bera lixibiazioz egindako ekarpena, ii) aztergai den eremutik hurbil dagoen trafikoa (egungoa eta historikoa), eta iii) eraikinaren inguruan ematen den portu jarduerarekin erlazionatuta dagoena.

Etorkizunean, kutsadura-iturri desberdinak dituzten lurzoruak azter litezke, beste kontzentrazio-gradiente batzuk aztertzeko, hala nola errepideetatik edo egitura metalikotik gertu dauden lurzoruak. Gainera, interesgarria litzateke iturri kutsagarrien eraginpean egon ez diren lurzoruak aztertzea.

Azkenik, lan honetan ikusi den berunaren presentzia nabarmena sakonkiago aztertu beharko litzateke; izan ere, lagin batzuek metal horretarako definitutako EBA-B balioak laukoiztu egin zituzten.

6. Erreferentziak

- Agencia Estatal Boletín Oficial del Estado (2015). Ley 4/2015, de 25 de junio, para la prevención y corrección de la contaminación del suelo. Boletín Oficial del Estado (BOE-A-2015-8272), 178, 62274-62310. <https://www.boe.es/boe/dias/2015/07/24/pdfs/BOE-A-2015-8272.pdf>
- Carrero J.A., Arrizabalaga I., Bustamante J., Goienaga N., Arana G., Madariaga J.M. (2013). Diagnosing the traffic impact on roadside soils through a multianalytical data analysis of the concentration profiles of traffic-related elements. *Science of The Total Environment*, 458–460, 427–434. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2013.04.047>
- García-Florentino C., Maguregui M., Ciantelli C., Sardella A., Bonazza A., Queralt I., Carrero J.A., Natali C., Morillas H., Madariaga J.M., et al. (2020). Deciphering past and present atmospheric metal pollution of urban environments: The role of black crusts formed on historical constructions. *Journal of Cleaner Production*, 243, 118594. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2019.118594>
- Kamimura T., Hara S., Miyuki H., Yamashita M., Uchida H. (2006). Composition and protective ability of rust layer formed on weathering steel exposed to various environments. *Corrosion Science*, 48(9), 2799–2812. <https://doi.org/10.1016/j.corsci.2005.10.004>
- Li X. (2001). Heavy metal speciation and leaching behaviors in cement based solidified/stabilized waste materials. *Journal of Hazardous Materials*, 82(3), 215–230. [https://doi.org/10.1016/S0304-3894\(00\)00360-5](https://doi.org/10.1016/S0304-3894(00)00360-5)
- Madariaga I., Lama E., Calparsoro E, Prieto-Taboada N., Arana G., Rodríguez Laso M.D., Madariaga J.M. (2019). Enhancement and recovery of the tiles affected by atmospheric pollutants in the Galleries of Punta Begoña, Getxo (Bizkaia). *Boletín de la Sociedad Española de Cerámica y Vidrio*, 58(4), 161–170. <https://doi.org/10.1016/j.bsecv.2018.11.001>
- Mollá L.D., Zabaleta A., Uriarte J.Á., Aranburu A., Sagarna M. (2019). Geología y patrimonio cultural construido: enfoque transdisciplinar en las Galerías Punta Begoña (Getxo, Bizkaia). *Geogaceta*, 66, 123-126.
- Morillas H., Marcaida I., Maguregui M., Upasen S., Gallego-Cartagena E., Madariaga J.M. (2019). Identification of metals and metalloids as hazardous elements in PM2.5 and PM10 collected in a coastal environment affected by diffuse contamination. *Journal of Cleaner Production*, 226, 369–378. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2019.04.063>
- Prieto-Taboada N., Ibarondo I., Gómez-Laserna O., Martínez-Arkarazo I., Olazabal M.A., Madariaga J.M. (2013). Buildings as repositories of hazardous pollutants of anthropogenic origin. *Journal of Hazardous Materials*, 248-249, 451-460. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2013.01.008>
- U.S. EPA. (2007). “Method 3051A (SW-846): Microwave Assisted Acid Digestion of Sediments, Sludges, and Oils,” Revision 1. Washington, DC.
- Werkenthin M., Kluge B., Wessolek G. (2014). Metals in European roadside soils and soil solution – A review. *Environmental Pollution*, 189, 98–110. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2014.02.025>
- Wuana R.A., Okieimen F.E. (2011). Heavy Metals in Contaminated Soils: A Review of Sources, Chemistry, Risks and Best Available Strategies for Remediation. *ISRN Ecology*, 2011, 1–20. <https://doi.org/10.5402/2011/402647>

7. Eskerrak eta oharrak

Lan hau Espainiako Ikerketa Agentziaren AIE (MINEICO/FEDER-UE) bidez finantzatutako DEMORA (Grant No. PID2020-113391GB-I00) proiektuek babestu dute