

青森・岩手県境地域における産廃不法投棄現場周辺で採取した水系及び 土壌試料の ICP-MS 分析 (2)

鈴木 達也*・村中 健**

Analysis of Water and Soil Samples Collected around an Illegal Dumping Site of Industrial Waste at the Boundary between Aomori and Iwate Prefectures by ICP-MS (2)

Tatsuya SUZUKI* and Takeshi MURANAKA**

Abstract

Industrial waste dumped illegally had been discovered at the boundary area between Aomori and Iwate prefectures. We investigated the trace and toxic elements in water and soil samples collected around this illegal dumping site. Samples were collected 8 times in total between 2008 to 2009 and four elements of arsenic, selenium, cadmium and lead were analyzed by ICP-MS. As the result, the concentration in almost all samples showed below the environmental criterion value of $10 \mu\text{g/L}$. Among water samples, those collected at the wellhead near the dumping site showed the concentration in the range of 0.22 to $0.56 \mu\text{g/L}$ for selenium. The correlated variation was confirmed for the concentration of lead in soil samples collected at the dumping site and at the wellhead near the site.

Keywords: illegal dumping site, trace toxic elements, water and soil samples, ICP-MS

1. はじめに

青森・岩手県境地域の産廃不法投棄現場より流出する滲出水の性状と現場周辺水系に及ぼす影響について、現場近くに設置されている滲出水処理施設の導入水（滲出水）と処理水を含めた現場周辺水系試料、及び現場周辺の表層土壌試料について、誘導結合プラズマ質量分析法（以下 ICP-MS）を用いた調査を 2004 年度より行っている¹⁾。

本報告では、2008 年、2009 年に採取した水系試料及び土壌試料の As、Se、Cd、Pb 濃度に関する分析結果を報告する。

2. 試料採取

Fig.1 に試料採取地点を示す²⁾。カッコ内に採取地点の高度 (m) を示した。各地点の詳細は文献³⁾に報告されている。水系試料は②の処理施設内より導入水と処理水、③の湧水、④及び⑤の河川水を採取した。⑤は杉倉川上流に位置するため、投棄現場の影響がない BG 試料として採取した。土壌試料は①、③、④の地点で採取を行った。



Fig.1 試料採取地点

①産廃投棄現場 ②滲出水処理施設 ③旧水源 ④平成橋付近
⑤杉倉川橋付近

3. 実 験

3.1 器具及び試薬

実験で繰り返し使用するガラス製器具及びプラスチック製器具は中性洗剤、アセトンの順で洗浄後、硝酸 (1+3) に半日以上浸したのち、超純水で洗浄、乾燥させて使用した。

As、Se、Cd、Pb の標準原液は、SPEX 製の ICP 汎用混合液 XSTC-469 を使用した。内標準として使用した In および Pt の標準原液は、和光純薬製の原子吸光分析用標準液を用いた。サンプル調製等に用いた硝酸は和光

* 大学院工学研究科機械・生物化学工学専攻

** 大学院工学研究科機械・生物化学工学専攻 / バイオ環境工学科・教授 / 異分野融合科学研究所併任

純薬製の超微量分析用試薬を用いた。洗浄に使用したアセトン、硝酸は関東科学製の特級試薬を用いた。実験に使用した超純水製造器は東洋製作所製のRFU354TAである。

3.2 試料前処理

採取した水系試料は、試料 1L に対し、硝酸を 10mL 添加し、よく攪拌したのち、孔径 0.45 μ m のメンブレンフィルターで減圧吸引濾過を行い、これを検液とした。

土壌試料の前処理は土壌汚染対策法で定められた土壌溶出試験に基づいて行った。土壌試料の検液作成方法の詳細は文献⁴⁾に報告されている。検液作成後、水系試料と同様に硝酸を添加したが、沈殿物が生じたため、孔径 0.45 μ m のメンブレンフィルターで再度減圧吸引濾過を行い、沈殿物を除去した。

3.3 測定

測定の概要を Table1 に示す。測定に用いた ICP-MS は、パーキンエルマー製 Elan DRC-e である。この装置はダイナミックリアクションセル（以下 DRC）という分子イオン除去システムを装備している。定量下限値、検出下限値については文献⁴⁾に報告されている値を使用した。全ての測定元素において内部標準法を用い、As と Se は多原子イオン干渉を抑制するため DRC モードによる測定を行った。DRC のセルガスとしてメタンガスを用いた。

Table1 ICP-MS 測定の概要

測定元素	As	Se	Cd	Pb
測定質量数	75	78	111	208
環境基準値 (μ g/L)	10	10	10	10
測定モード	DRC	DRC	標準	標準
セルガス流量 (mL/min)	0.1	0.2	0	0
検出下限値 (μ g/L)	0.007	0.018	0.002	0.094
定量下限値 (μ g/L)	0.08	0.17	0.03	0.16
内標準元素	In	In	In	Pt

4. 測定結果

4.1 測定値の妥当性について

4.1.1 検量線

各測定元素の検量線は 0.1 ~ 10.0 μ g/L の範囲で 5 点調製し、試料測定直前に作成した。得られた検量線は決定係数 0.998 以上の良好な直線性を示した。

4.1.2 添加回収試験

測定値の信頼性を確認するために添加回収試験³⁾を行った。添加濃度は 2 μ g/L とし、添加試料と未添加試料の測定値から回収率を求めた。2009 年 5 月採取の水系試料と 2008 年 11 月採取の土壌試料を対象に行い、回収率として As:79 ~ 119%, Se:95 ~ 128%, Cd:83 ~ 102%, Pb:98 ~ 117% の範囲の値が得られた。

4.2 水系試料の測定結果

Table2-1 ~ Table2-4 に水系試料の測定結果を示す。N.D. は定量下限値未満を示す。2009 年 11 月に採取した導入水の Pb を除いた全ての試料において、環境基準値を超える濃度は検出されなかった。

平成橋付近と杉倉川橋付近の As 濃度において濃度変動が比較的大きい。これは河川水が降雨の影響を受けやすいためだと考えられる。

Cd は導入水以外のほぼ全ての試料において定量下限値未満を示した。導入水においても 1 μ g/L 未満を示し、産廃からほとんど流出していない元素ではないかと判断できる。

Pb は導入水において比較的大きく変動していることが確認できる。また、2009 年 11 月に採取した導入水では環境基準を上回った。これは産廃撤去作業の影響によるものではないかと推測できる。

Table2-1 水系試料の As 濃度測定結果

採取年月	② 導入水	② 処理水	③ 旧水源	④ 平成橋 付近	⑤ 杉倉川橋 付近	
2008	5	2.02	0.86	1.40	3.38	1.63
	7	1.67	0.79	1.35	1.71	2.25
	9	3.49	0.57	1.38	1.80	2.73
	11	3.26	0.80	1.40	0.88	1.46
2009	5	2.74	1.32	1.13	1.43	1.42
	8	2.33	1.07	1.24	1.17	1.42
	9	2.50	1.08	1.45	1.87	2.11
	11	2.23	1.23	1.15	0.74	0.94

(μ g/L)

Table2-2 水系試料の Se 濃度測定結果

採取年月	② 導入水	② 処理水	③ 旧水源	④ 平成橋 付近	⑤ 杉倉川橋 付近	
2008	5	0.70	0.40	0.53	0.17	N.D.
	7	0.63	0.36	0.32	N.D.	N.D.
	9	2.00	0.47	0.56	N.D.	0.20
	11	1.09	0.63	0.53	N.D.	N.D.
2009	5	2.02	1.45	0.28	0.22	N.D.
	8	2.37	1.39	0.35	N.D.	N.D.
	9	3.10	1.67	0.49	0.23	N.D.
	11	1.67	1.13	0.22	N.D.	N.D.

(μ g/L)

Table2-3 水系試料の Cd 濃度測定結果

採取年月	② 導入水	② 処理水	③ 旧水源	④ 平成橋 付近	⑤ 杉倉川橋 付近	
2008	5	0.09	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
	7	0.19	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
	9	0.03	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
	11	0.46	N.D.	N.D.	0.03	N.D.
2009	5	0.13	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
	8	0.14	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
	9	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
	11	0.28	0.03	N.D.	N.D.	N.D.

(μ g/L)

Table2-4 水系試料のPb濃度測定結果

採取年月	② 導入水	② 処理水	③ 旧水源	④ 平成橋 付近	⑤ 杉倉川橋 付近
2008	5	2.06	0.09	0.09	0.63
	7	0.14	0.09	0.09	0.09
	9	1.72	0.51	0.16	0.26
	11	4.04	0.09	0.68	0.78
2009	5	8.42	N.D.	N.D.	N.D.
	8	3.51	N.D.	0.16	N.D.
	9	1.29	N.D.	N.D.	N.D.
	11	17.89	N.D.	N.D.	N.D.

処理水に含まれるAs濃度の経時変動をFig.2に示す。2008年に比べて2009年に採取した試料の方がやや高濃度になっていることが確認できる。

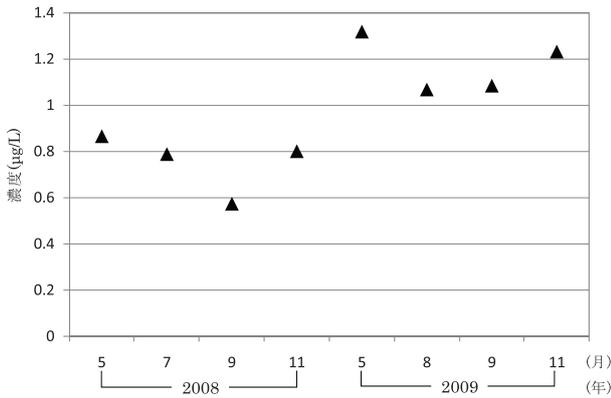


Fig.2 処理水におけるAs濃度の経時変動

水系試料におけるSe濃度の経時変動をFig.3に示す。導入水と処理水において、2008年に比べ2009年が高い濃度を示し、また導入水の濃度が高いときは処理水の濃度もやや高い値を示した。旧水源は低濃度(0.6μg/L未滿)ではあるがBG試料である杉倉川橋付近より高い濃度を維持していることが観察できる。

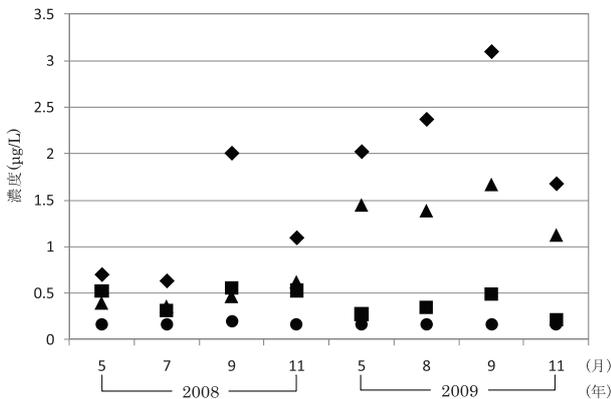


Fig.3 水系試料におけるSe濃度の経時変動
◆：②導入水、▲：②処理水、■：③旧水源、●：⑤杉倉川橋付近
この図において、定量下限値未滿となったデータは0.17μg/L (Se 定量下限値)としてプロットした。

4.3 土壌試料の測定結果

Table3-1 ~ Table3-4に土壌試料の測定結果を示す。N.D.は定量下限値未滿を示す。いずれの試料も環境基準値を超える濃度は検出されなかった。

Asは3地点とも比較的大きく変動しているが、特徴的な経時変動や相関は見られなかった。

Table3-1 土壌試料のAs濃度測定結果

採取年月	① 投棄現場	③ 旧水源	④ 平成橋 付近	
2008	5	3.36	6.85	1.82
	7	1.43	3.10	7.84
	9	3.40	2.13	1.29
	11	2.67	3.36	2.29
2009	5	2.06	3.31	2.79
	8	0.77	3.06	3.57
	9	1.07	2.47	0.92
	11	1.52	1.51	2.28

Table3-2 土壌試料のSe濃度測定結果

採取年月	① 投棄現場	③ 旧水源	④ 平成橋 付近	
2008	5	0.65	0.73	0.24
	7	0.37	0.41	0.36
	9	0.28	0.23	0.18
	11	0.13	0.54	0.19
2009	5	0.51	0.56	0.74
	8	0.27	0.59	0.48
	9	0.30	0.53	0.30
	11	0.24	0.34	0.39

Table3-3 土壌試料のCd濃度測定結果

採取年月	① 投棄現場	③ 旧水源	④ 平成橋 付近	
2008	5	0.06	0.11	0.06
	7	N.D.	0.03	0.04
	9	N.D.	N.D.	0.22
	11	N.D.	0.10	N.D.
2009	5	0.12	0.09	0.06
	8	0.04	0.08	0.03
	9	0.06	0.10	0.06
	11	0.03	0.07	0.08

Table3-4 土壌試料のPb濃度測定結果

採取年月	① 投棄現場	③ 旧水源	④ 平成橋 付近	
2008	5	5.98	6.92	2.38
	7	3.33	3.33	2.66
	9	1.55	2.23	0.43
	11	0.93	1.77	1.16
2009	5	6.47	4.15	0.92
	8	4.73	3.83	0.43
	9	2.65	3.50	1.12
	11	0.77	1.70	1.30

Seは全ての試料において $1\mu\text{g/L}$ を超える濃度は検出されず、経時変動にもあまり特徴が見られない。また、Cdも全ての試料において低濃度($0.3\mu\text{g/L}$ 未満)を維持していることから、この2元素は土壌にほとんど残留していないと思われる。

投棄現場と旧水源で採取した土壌試料におけるPb濃度の経時変化をFig4に示す。これら2つの試料の経時変化には相関があり、各年共に5月から11月にかけて減少する傾向が確認できる。

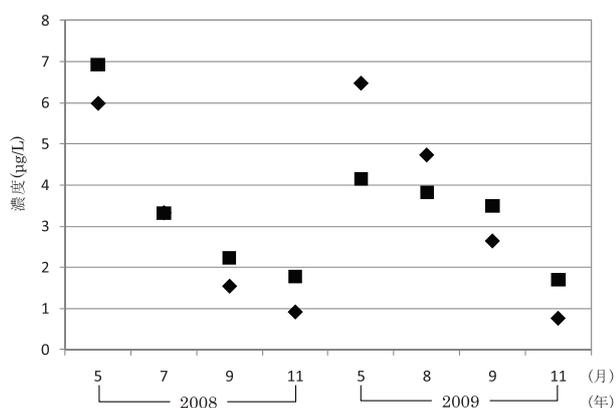


Fig.4 土壌試料におけるPb濃度の経時変動
◆：①投棄現場，■：③旧水源

5. まとめ

今回分析を行ったほぼ全ての水系、土壌試料において環境基準を超えるAs、Se、Cd、Pbは検出されなかった。2009年11月に採取した導入水のPb濃度は環境基準値を上回ったが、滲出水処理施設で処理されているため、周辺環境に影響はないと判断できる。

導入水のSe濃度、処理水のAsとSe濃度が2008年から2009年にかけて上昇する傾向を示した。また、旧水源湧水のSe濃度がBG試料である杉倉川橋付近河水より高い値を維持した。

投棄現場と旧水源の土壌試料において、Pb濃度の経時変化に相関があることが観察された。

文献

- 1) 村中 健、大寫倫和、鈴木達也、小比類卷孝幸、鮎川恵理：青森・岩手県境地域における産廃不法投棄現場周辺で採取した水系及び土壌試料のICP-MS分析，八戸工業大学異分野融合科学研究所紀要 第6巻，pp.1-7 (2008)
- 2) 「電子国土」，<http://portal.cyberjapan.jp/>
- 3) 村中 健、大寫倫和、小比類卷孝幸、鮎川恵理：誘導結合プラズマ質量分析法による青森・岩手県境地域の産廃不法投棄現場周辺水系の無機元素分析，BUNSEKI KAGAKU Vol.56, pp.1177-1181 (2007)
- 4) 村中 健、大寫倫和、小比類卷孝幸、鮎川恵理：2006年に青森・岩手県境地域の不法投棄現場周辺で採取した水および土壌試料中の微量有害金属元素濃度に関する調査報告，八戸工業大学異分野融合科学研究所紀要 第5巻，pp.11-15 (2007)