

Original Article

시화호 중금속 오염원 연구: 도시지역 도로먼지 중금속 오염 특성과 해양환경 영향 고찰

정혜령^{1,4} · 최진영² · 나공태^{3,5,†}

¹한국해양과학기술원 해양환경연구센터 UST학생연구원

²한국해양과학기술원 해양환경연구센터 선임연구원

³한국해양과학기술원 해양환경연구센터 책임연구원

⁴과학기술연합대학원대학교 한국해양과학기술원 스쿨 해양과학(해양학) 대학원생

⁵과학기술연합대학원대학교 한국해양과학기술원 스쿨 해양과학(해양학) 교수

Study on Heavy Metal Pollution Sources to Shihwa Lake: Characteristics of Heavy Metal in Size-fractionated Road Dust from Urban Area and the Impacts to Marine Environments

Hyeryeong Jeong^{1,4}, Jin Young Choi², and Kongtae Ra^{3,5,†}

¹UST Student, Marine Environmental Research Center,

Korea Institute of Ocean Science & Technology (KIOST), Busan 49111, Korea

²Senior Research Scientist, Marine Environmental Research Center,

Korea Institute of Ocean Science & Technology (KIOST), Busan 49111, Korea

³Principal Research Scientist, Marine Environmental Research Center,

Korea Institute of Ocean Science & Technology (KIOST), Busan 49111, Korea

⁴Graduate Student, Department of Ocean Science (Oceanography), KIOST School,

University of Science & Technology (UST), Daejeon 34113, Korea

⁵Professor, Department of Ocean Science (Oceanography), KIOST School,

University of Science & Technology (UST), Daejeon 34113, Korea

요 약

본 연구에서는 시화호 금속오염원으로서 육상 도시지역의 주거 및 상업지역 내 존재하는 입자크기별 도로먼지 내 중금속 오염특성 파악과 오염도를 평가하였다. 아울러 도로노면 단위면적당 축적된 중금속의 양을 정량화하여 도시지역 도로먼지 내 중금속이 주변 해양환경에 미칠 영향에 대한 고찰을 실시하였다. 대부분의 도로먼지 내 중금속 농도는 입자크기가 작아질수록 농도가 증가하는 경향을 보였다. 그러나 일부 금속 원소는 큰 입자에서 상대적으로 높은 농도를 보여, 교통활동에 발생한 크기가 큰 금속 입자가 도로노면에 축적되어 있는 것을 알 수 있었다. 또한 상업지역 도로먼지 내 중금속 농도가 거주지역에 비해 높아 차량기인의 오염물질이 더 유출된 것을 알 수 있었다. Li, Be, V, Mn, Co, Ni, As, Cr, As에 대한 I_{geo} 값은 오염되지 않은 것으로 나타났으며, Cu, Zn, Mo, Sn, Cd, Pb는 moderately에서 strongly에 해당되는 오염등급으로 나타났다. 특히 Sb는 대부분의 정점과 모든 입자크기에서 extremely 오염상태를 보여 브레이크패드 마모와 관련된 교통활동에 심하게 오염되어 있음을 알 수 있었다. 강우유출수에 의해 수환경으로 이동가능한 125 μm 이하의 입자크기에서 금속의 축적량은 전체의 64%로 나타났다. 도시지역의 불투수면적과 도로먼지의 높은 중금속 농도를 고려하면 도시지역에는 막대한 양의 중금속이 축적되어 있는 것을 알 수 있었다. 강우시 도로먼지에 포함된 중금속은 비점오염원으로서 처리과정 없이 시화호로 유출되므로, 다양한 금속 오염원과 도시지역 강우유출수에 대한 금속 유출 부하량 등 다양한 조사가 필요하다.

Abstract – In this study, the characteristics and the degrees of heavy metals in the size-fractionated road dust as a source of metal pollution in Shihwa Lake were evaluated from residential and commercial areas of urban city. By quantifying the amount of heavy metals accumulated per unit area of the road surface, we investigated the possible

†Corresponding author: ktra@kiost.ac.kr

impact of metals on the marine environment from urban road dust. Heavy metals in road dust tended to increase with decreasing particle size. However, some metals showed relatively high concentration in relatively large particles, and it was found that large-sized metal particle generated by traffic activities accumulated on the road surface. In addition, it was found that the heavy metals of road dust in the commercial area was higher than that in the residential area, indicating that the metals derived from vehicles were more polluted due to increased traffic and traffic congestion. The I_{geo} values for Li, Be, V, Mn, Co, Ni, As, Cr, As indicated unpolluted environments whereas those for Cu, Zn, Mo, Sn, Cd, Pb indicated moderately to strongly polluted. Especially, Sb of all particle sizes in road dust exhibited strongly to extremely polluted due to vehicle traffic related the abrasion of brake system. The accumulation amount of heavy metals was found to be 64% of the particle size less than $125 \mu m$ that could be transported to the surrounding environments by rainfall runoff. Considering the impervious area of urban area and the high metal concentrations in road dust, there is a huge accumulation of heavy metals in the urban area. During raining, heavy metals associated with road dust are transported directly to Shihwa Lake as a non-point sources, which requires various study on the metal pollution sources around Shihwa Lake.

Keywords: Heavy Metals(중금속), Road Dust(도로먼지), Pollution Source(오염원), Marine Environment(해양환경)

1. 서 론

우리나라는 5개 연안에 특별관리해역을 설정/관리하고 있으나, 대부분의 해역 주변에 대도시와 국가산업단지가 존재하므로 중금속 오염이 지속적으로 문제가 되고 있다. 특별관리해역 내 중금속 오염에 대한 많은 연구가 수행되었으나, 일부 연구팀을 중심으로 해양퇴적물 내 시·공간 농도분포 및 오염현황 연구(Kwon[2004]; Hong *et al.*[2005]; Hwang *et al.*[2006]; [2014]; [2015]; Ra *et al.*[2011]; [2013a]; [2013b]; [2014a]; Sun *et al.*[2014]; [2015]; Han *et al.*[2016]; Lee *et al.*[2019])와 하천 내 중금속 오염특성 연구(Lee *et al.*[2010]; Jeong *et al.*[2016]; [2017]; [2019a]; [2019b])에 국한되어 왔다.

특별관리해역은 해역면적과 육역면적으로 구분되어 있으며, 평균적으로 육상유역의 면적이 해양에 비해 1.8배(범위 1.0~2.6배) 넓어 육상오염원의 체계적인 조사와 이에 따른 저감/관리대책 수립 없이는 연안해역에서 발생하는 중금속 오염문제 해결이 불가능할 것이다. 특히 산업지역과 도시지역에는 도로, 주차장, 지붕 등 인공적으로 조성된 불투수층(impervious layer) 면적의 비율이 높으며, 빌딩, 산업, 주거시설 등은 지붕, 건물, 외벽 등 3차원의 구조로 실제면적에 비해 단위면적당 불투수성 면적이 매우 크고, 이들 불투수성 표면에는 많은 양의 도로먼지가 축적되어 있다.

도로먼지는 빠른 도시화와 산업화로 인하여 전세계적으로 문제가 되는 오염물질의 하나이며, 도시지역과 산업지역에 존재하는 도로먼지는 다양한 오염물질이 높은 농도로 축적되어 있다(Shi *et al.*[2008]; Ahmed and Ishiga[2006]). 도로 먼지 내 중금속은 산업, 교통배출, 대기퇴적 등 인위적인 기원과 자연적인 풍화과정에 의한 영향을 받는다(Hopke *et al.*[2002]; Oliva and Espinosa[2007]). 독성영향이 큰 중금속은 도시환경에 오랫동안 남아있으며, 대기로 재부유되어 직접흡입, 섭취 및 피부접촉으로 인체에 위해영향을 미치기도 하지만(Li *et al.*[2001]; Cook *et al.*[2005]; Aelion *et al.*[2008]; Kong *et al.*[2011]), 지표면유출수(surface runoff) 혹은 강우유출수(rainfall runoff) 등 비점오염의 형태로 하수관계를 통해 처리과정 없이 하천이나 해양으로 직접 유출되며 오염부하도 매우 큰 것으로

보고되고 있다(Becher *et al.*[2000]; Furumai *et al.*[2002]; Aryal *et al.*[2005]; Zhao *et al.*[2010]). 또한 도시와 산업지역에서 금속으로 된 지붕이 중금속의 가장 큰 배출원이며, 건축물 벽에서 높은 농도의 중금속이 발생하는 것으로 보고된 바 있다(Davis *et al.*[2001]; Charters *et al.*[2016]).

안산시의 전체 면적은 149.4 km^2 이며 주거지역 15.4%(23.0 km^2), 상업지역 1.9%(2.9 km^2), 공업지역 10.9%(16.2 km^2), 녹지지역 71.8%(107.3 km^2)으로 구성되어 있다(안산시 고시2011-103호). 주거/상업지역은 공업지역에 비해 면적이 1.6배 크나, 시화호 오염원 관련 연구(강우유출수, 도로먼지 등)는 산업지역에 집중되어 왔다(Ra *et al.*[2014b]; Jeong *et al.*[2019c]; Lee *et al.*[2020a]; [2020b]). 시화호는 최상류지역에서 중금속 오염이 조력발전소 가동에도 여전히 심각하며(Lee *et al.*[2019]), 도심하천(안산천, 화정천) 유역에 존재하는 다양한 오염물질이 강우유출수에 의해 직접 유출되고 있으나 도시지역은 산업지역에 비해 중금속 오염 영향이 과소평가되어 왔다. 따라서 본 연구에서는 시화호 해양환경 중금속 오염원으로서 도시유역인 주거 및 상업지역 내 도로먼지의 사이즈별 중금속 오염특성 파악, 오염도 평가와 함께 도로노면에 단위면적당 축적된 중금속의 양을 정량화하여 도시지역 도로먼지 내 중금속이 해양환경에 미치는 영향에 대한 고찰을 실시하였다.

2. 재료 및 방법

2.1 시료채취 및 중금속 분석

2018년 6월 시화호 육상유역 내 안산시와 시흥시의 거주지역(residential area; n=5)과 상업지역(commercial area; n=3)에서 도로먼지를 채취하였다(Fig. 1). 도로 연석에 70 cm 격자(0.5 m^2 면적)를 설치한 후 진공청소기(Dyson DC35, USA)로 도로먼지를 채취하였으며, 정점의 대표성을 확보하기 위하여 각 정점별로 4곳에서 도로먼지를 채취한 후 하나의 시료로 혼합하였다.

도로먼지 시료는 나일론체와 자동체질기(Analysette 3, Fritsch Co., Germany)와 자동분쇄기(Pulverisette 6, Fritsch Co., Germany)를



Fig. 1. Map of sampling sites for collecting the road dust from Urban city of Ansan (base map from Google Earth).

이용하여 6개 입자크기(>1000 μm , 500-1000 μm , 250-500 μm , 125-250 μm , 63-125 μm , <63 μm)로 구분한 후 무게측정, 분쇄 및 균질화 시켰다.

입자크기별 도로먼지 시료 약 0.1 g을 테프론 재질의 산분해용기에 넣고 고순도(supra급 이상)의 혼합산(불산, 과염소산, 질산)을 가해 hot plate에서 완전분해, 증발건고 후 시료에 따라 적절히 희석하여 유도결합플라즈마 질량분석기(ICP-MS; iCAP-Q, Thermo Scientific Co.)로 15개 금속원소(Li, Be, V, Cr, Mn, Co, Ni, Cu, Zn, As, Mo, Cd, Sn, Sb, Pb, Hg)를 분석하였다. 수은(Hg)는 자동수은 분석기(Hydra-C, Teledyne Leeman Labs.)를 이용하였다. 분석된 중금속 자료의 정확도 검증을 위하여, 2가지 다른 농도수준을 가지는 퇴적물 표준물질(MESS-4, PACS-3; NRCC)을 시료와 동일한 방법으로 분석하였으며, MESS-4와 PACS-3의 평균 회수율은 각각 102.0%(범위 94.1~105.7%)와 102.8%(범위 95.1~110.7%)로 나타났다.

2.1 중금속 오염도 평가 및 사이즈별 오염부하도

도로먼지 내 중금속 원소의 오염도를 평가하기 위하여 농집지수(I_{geo} ; geo-accumulation index)와 오염부하지수(PLI; pollution load index)를 아래의 식에 의하여 계산하였다(Muller[1981]; Tomlinson *et al.*[1980]).

$$I_{geo} = \text{Log}_2\left(\frac{C_n}{1.5 \times B_n}\right) \quad (1)$$

여기서, C_n 과 B_n 은 각 금속원소에 대한 도로먼지 내 농도와 배경농도(Rudnick and Gao[2003])이며, 1.5는 지각기원에 대한 영향을 보정하기 위해 사용되며, I_{geo} 값은 총 7개의 등급으로 개별원소에 대한 오염여부를 판단한다(Muller[1981]). I_{geo} 값이 0보다 작으면 unpolluted, 0-1이면 unpolluted to moderately polluted, 1-2면 moderately polluted, 2-3이면 moderately to strongly polluted, 3-4면 strongly polluted, 4-5면 strongly to extremely polluted, 5 이상이면 extremely polluted의 오염도를 의미한다.

$$PLI = \sqrt[7]{CF_{Li} \times CF_{Be} \times CF_{Cr} \times \dots \times CF_{Sb} \times CF_{Pb} \times CF_{Hg}} \quad (2)$$

CF는 각 원소에 대한 중금속과 배경농도의 비(ratio)이다. PLI는 인위적인 오염여부 판단에 주로 활용하며(Tomlinson *et al.*[1980]; Angulo[1996]; Jeong *et al.*[2016]). 본 연구에서는 Kirka and Krika [2017]가 제시한 $PLI < 1$ 은 no pollution, $1 < PLI < 2$ 는 moderate pollution, $2 < PLI < 3$ 은 heavy pollution, $PLI > 3$ 은 extremely pollution의 4개의 오염등급을 이용하여 오염도를 평가하였다.

도로먼지는 6개의 입자크기에서의 상대적인 중금속의 질량부하도를 계산하여 입자크기별 오염부하도($GSF_{loading}$)를 다음의 계산식에 의하여 계산하였다.

$$GSF_{loading} = 100 \times \left[\frac{X_i \times GS_i}{\sum_{i=1}^6 X_i \times GS_i} \right] \quad (3)$$

X_i 와 GS_i 는 각 사이즈에 대한 중금속 농도와 질량백분율이며, $GSF_{loading}$ 값의 합은 항상 100%이다.

3. 결과 및 고찰

3.1 토지이용형태와 사이즈에 따른 중금속 오염 특성

거주지역 내 입자크기별 도로먼지의 단위면적당 축적량은 3.2~15.8 g/m^2 으로 세립한 입자($<63 \mu m$)가 전체의 30%로 가장 큰 부분을 차지하고 있었다(Table 1). 대부분의 금속에서 도로먼지의 입자크기가 작을수록 중금속 농도가 증가하는 경향을 보였다. 그러나 일부 Cr, Ni, Cu, Zn, Cd, Sn, Sb, Pb 등의 금속원소는 입자크기가 큰 경우에도 높은 평균농도를 보여, 차량이동 등 금속활동에 의하여 도로노면에 큰 금속입자를 축적시킨 것으로 판단된다. $63 \mu m$ 이하에서 중금속의 평균농도는 Zn가 907 mg/kg으로 가장 높았으며, $Mn > Pb > Cr > Cu > V > Ni > Li > Sn > As > Sb > Co > Mo > Be > Cd > Hg$ 의 농도순으로 나타났다(Fig. 2). R2 정점에서의 금속 농도가 다른 정점에 비해 높은 특징을 보였다. R2 정점은 산업단지로 연결되는 해안로의 정체 등으로 인하여 많은 차량들이 출퇴근시에 우회도로로 이용하는 지역이므로 다른 정점에 비해 통행량이 높았던 영향으로 판단된다.

상업지역 내 입자크기별 도로먼지의 단위면적당 축적량은 4.2~14.3 g/m^2 으로, $500 \mu m$ 이하 입자의 도로먼지 양은 거주지역에 비해 축적량이 낮은 특징을 보였다(Fig. 2). 상업지역 역시 도로먼지의 입자크기가 세립할 수록 금속 농도가 증가하였다. 그러나 Cu는 125~500 μm , Sn 250~500 μm , Sb 250~1000 μm 의 사이즈에서 상대적으로 높은 농도를 나타냈다. 입자크기와 금속원소에 따라 약간의 차이는 있으나 상업지역 도로먼지 내 중금속 농도가 거주지역에 비해 높은 특징을 보이고 있었다. 또한 $63 \mu m$ 이하에서 중금속의 평균농도는 $Zn > Mn$ 의 순서는 동일하나 나머지 금속원소의 농도순이 거주지역과는 다른 특징을 보였다(Fig. 3).

잘 알려진 도로먼지 오염원은 교통활동에 의한 타이어, 브레이크 마모과 도로노면의 마모이다. 많은 연구에서 Zn, Cd, Co, Cr, Cu, Hg, Mo, Ni, Pb는 타이어와 관련있는 것으로 보고되었다(Fukuzaki *et al.*[1986]; Fauser *et al.*[1999]; Adachi and Tainosho [2004]; Schauer *et al.*[2006]; Hjortenkrans *et al.*[2007]). Zn는 타이어에서 가장 농도가 높은 금속이며, 가황(vulcanization) 중 ZnO와 ZnS의 형태가 첨가되기 때문이다. Ozaki *et al.*[2004]와 Smolders and Degryse[2002]는 타이어 중 각각 1.3~1.7%와 0.4~4.3%의 포함되어 있는 것으로 보고한 바 있으며, 이는 각국의 기후(계절)와 노면특성에 따른 타이어 종류의 차이 때문일 것이다. 타이어 마모를 통한 배출량은 16~90 mg/tire/km로 나타났다(Baekken[1993]; Lee *et al.*[1997]; Legret and Pagotto[1999]). 새 타이어의 평균질량은 약 8 kg이며 폐기시까지 약 1.5 kg을 마모시키며 이는 3년안에 마모로 인해 타이어의 10~20%가 도로노면으로 유출됨을 의미한다. 무엇보다 가속, 제동 및 코너링 중 가장 큰 타이어 마모가 발생하고 있다. 아스팔트와 거친 노면은 도로먼지에서 Ni의 중요한 공급원이다(Ozaki *et al.*[2004]). 상업지역의 모든 입자의 도로먼지에서 Zn와 Ni의 농도가 거주지역에 비해 각각 1.3~2.2배와 1.1~7.1배 높은 이유는 교통량이 많으며 교통정체가 주로 발생하여 타이어와 아스팔트 등의 마모가 증가하였기 때문으로 판단된다.

도로먼지의 또 다른 원인은 제동과정에서 발생하는 브레이크 시스템(디스크, 패드 등)의 마모이다. 빠른 제동동안 브레이크는 마찰로 인한 온도가 증가하므로 브레이크 디스크 내 입자가 방출된다. Adachi and Tainosho[2004]와 Hjortenkrans *et al.*[2007]은 브레이크 먼지가 주로 Fe 뿐만 아니라 상당한 Cu, Sb, Ba, Al, Si, S, Ti, Zn, Ni, Cr, Pb와 소량의 Cd를 함유하고 있다고 보고하였다. 가장 심한 브레이크 마모는 교차로, 코너, 신호등 및 교통정체로 인한 잦은 제동과정 중에 발생된다. 본 연구에서 브레이크 시스템의 마모와 연관성이 높은 금속 원소 역시 상업지역이 거주지역에 비해 높은 결과를 보였다(Fig. 2).

Ademiec *et al.*[2016]은 브레이크 라이닝 먼지 및 타이어 먼지에서 입자크기별 중금속 농도 분석결과를 제시하였다. 해당 연구지역에

Table 1. Analytical results of amounts per unit area (g/m^2 by weight) and heavy metals (mg/kg) and PLI values in the different sizes of road dusts from the residential and commercial areas in the Urban City

Types	Size (μm)	mass	Li	Be	V	Cr	Mn	Co	Ni	Cu	Zn	As	Mo	Cd	Sn	Sb	Pb	Hg	PLI
Residential	>1000	3.2	13.9	1.6	26.3	176	326	5.5	14.6	25.6	135	3.4	1.6	0.3	3.5	15.3	84.0	0.01	0.9
	500-1000	4.0	14.3	1.3	24.6	47.5	343	4.7	11.1	27.2	271	6.5	1.9	1.2	6.6	20.8	100	0.01	1.1
	250-500	10.1	13.3	1.4	22.7	62.5	266	4.2	12.0	102	192	6.9	3.8	0.3	4.0	16.3	69.3	0.01	1.1
	125-250	10.0	16.7	1.7	35.9	97.6	402	7.4	39.0	243	399	10.6	10.6	0.6	9.3	13.9	91.7	0.01	1.8
	63-125	10.8	18.9	2.0	49.0	144	525	11.3	33.3	126	579	14.3	13.5	0.9	12.5	10.9	115	0.03	2.4
	<63	15.8	24.3	2.3	64.0	167	731	14.1	50.3	160	907	15.7	12.5	1.4	24.0	15.4	207	0.04	3.3
Commercial	>1000	4.2	16.8	1.9	33.9	58.0	424	6.3	14.9	20.1	295	3.6	1.1	0.3	2.7	10.5	49.5	0.01	0.9
	500-1000	4.5	18.2	1.5	21.4	50.8	290	4.9	15.7	39.5	363	9.1	4.3	0.7	7.6	55.4	115	0.01	1.5
	250-500	8.5	15.2	1.4	20.6	76.4	274	4.4	17.0	316	362	16.5	3.9	0.5	21.9	36.1	126	0.01	1.7
	125-250	8.7	16.2	1.8	32.6	391	426	13.9	146	368	553	9.4	9.4	0.7	13.3	20.4	131	0.02	2.6
	63-125	9.8	17.5	2.0	44.8	576	554	34.1	237	237	725	10.2	15.7	1.1	19.0	15.2	145	0.03	3.4
	<63	14.3	22.7	2.1	58.8	354	684	23.8	146	258	1184	15.0	14.7	1.9	44.0	23.4	254	0.07	4.4

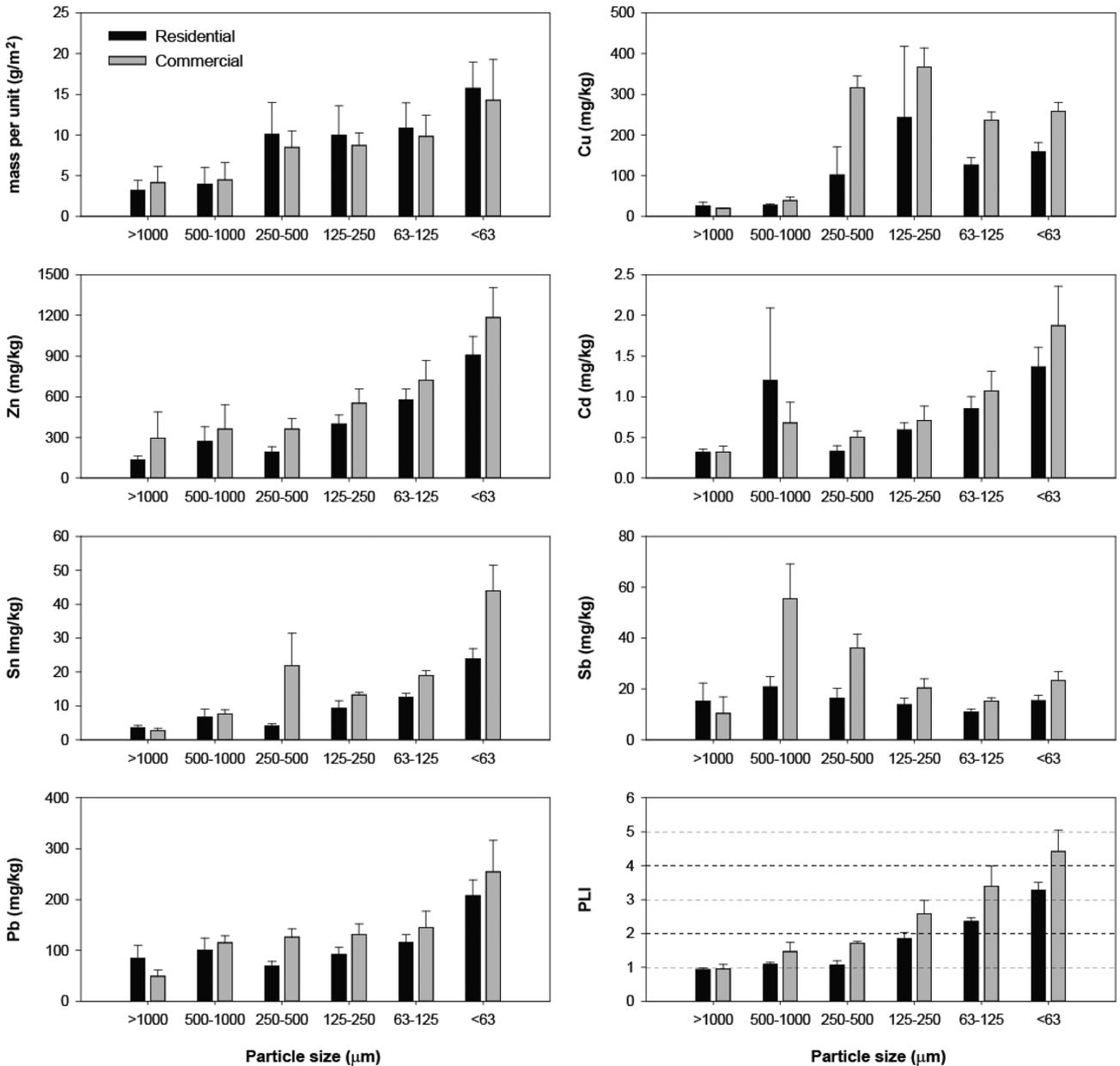


Fig. 2. The amounts and heavy metal concentrations in each particle size of the road dust from the residential and commercial areas of this study. Bar and error bar indicate mean and standard error of mean, respectively.

서 도로먼지 내 직경 250 μm 보다 큰 입자는 브레이크 마모와 같은 제동시스템과 관련이 없으며, 250 μm 보다 큰 입자에서의 Zn 오염은 타이어 마모의 결과라고 하였다. 그러나 본 연구에서는 상업지역 내 입자크기가 250 μm 이상의 경우에도 높은 Sb 농도를 보여, 잦은 교통정체 및 불법 주정차 등으로 트럭, 버스 등 크기가 큰 차량의 급제동 혹은 급차선변경 과정에서 브레이크 드럼 등에 축적되어 있던 큰 입자들이 도로노면으로 방출된 것으로 판단된다.

3.2 중금속 오염도 평가

주거지역에서 채취한 도로먼지 내 사이즈별 I_{geo}값은 Table 2에

나타냈다. 거주와 상업지역의 모든 도로먼지 입자에서 Li, Be, V, Cr, Mn, Co, Ni, Hg는 I_{geo}값이 1 이하로 오염되지 않은 결과를 보였다. As는 63 μm 이하의 입자에서만 I_{geo}값이 1을 약간 초과해 moderately polluted의 오염상태였다.

거주지역 도로먼지내 Cu, Zn, Sn, Mo는 250 μm 보다 큰 입자는 오염되지 않았으나, 250 μm 이하는 I_{geo} 값이 1을 초과한 결과를 보였다. 이들 원소는 입자크기가 감소할 수록 오염도가 점차 증가하였으며 <63 μm에서는 Zn가 strongly polluted의 오염등급이었다. Cd와 Pb는 모든 입자크기에서 오염된 것으로 나타났으며, 250 μm 이하의 도로먼지는 moderately에서 strongly polluted에 해당되는

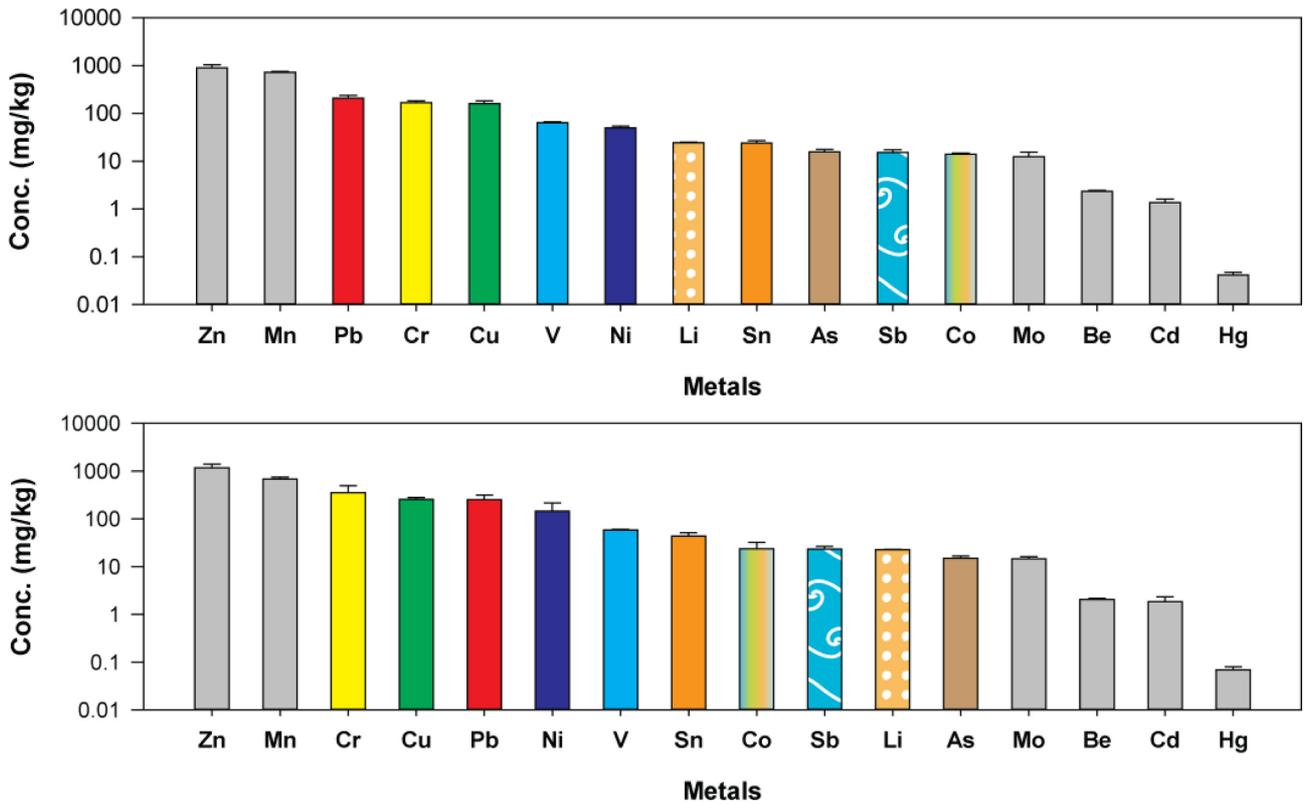


Fig. 3. Mean metal concentrations in the particle size below 63 μm of the road dust from the residential (upper) and commercial (lower) areas of this study.

오염상태를 보였다. 입자크기별 Sb의 I_{geo} 의 평균값은 4.1~5.0으로 strongly에서 extremely polluted로 나타났으며, 다른 금속과 다르게 입자크기 감소에 따른 오염도 증가는 없었다. 상업지역 도로먼지 내 중금속의 I_{geo} 값은 대부분 거주지역에 비해 높은 결과를 보였다. 오염도가 상대적으로 큰 세립한 입자(<63 μm)의 경우, 주거지역은 Zn, Cd, Sb만이 strongly polluted의 오염도를 보였으나, 상업지역은 Zn, Mo, Cd, Sn, Pb, Sb가 strongly polluted에 해당된 결과를 보였다. 상업지역에서 Sb의 평균 I_{geo} 는 5.1로 거주지역의 4.5에 비해 높았으며, 63-125 μm를 제외한 모든 도로먼지 입자가 extremely polluted의 매우 높은 오염상태로 나타났다.

거주지역에서 PLI값은 0.9~3.3로 입자크기가 세립해질수록 오염도가 증가하여 63-125 μm와 <63 μm는 각각 heavy와 extremely 오염등급으로 나타났다(Table 1). 상업지역에서의 PLI값은 0.9~4.4로 주거지역에 비해 1.4배 오염도가 높았으며, <125 μm의 입자크기가 extremely pollution의 오염상태로 거주지역보다 교통활동에 의한 오염이 더 크게 발생했음을 알 수 있었다.

3.3 단위면적당 중금속 축적량 및 강우유출수를 통한 해양 환경 영향

시화호 육상의 주거지역 도로노면에 존재하는 16개 금속의 단위면적당 축적량은 >1000 μm은 2242 μg/m², 500-1000 μm은 2835 μg/m², 250-500 μm은 7305 μg/m², 125-250 μm은 15932 μg/m²,

63-125 μm은 16775 μg/m², <63 μm은 35914 μg/m²였다. 가장 세립한 입자(<63 μm)가 가장 큰 입자(>1000 μm)에 비해 16배 축적량이 높았으며, <63 μm와 <125 μm 입자가 전체 금속 오염의 43%와 64%를 차지하는 것으로 나타났다(Fig. 4). 거주지역 전체 도로먼지 내 단위면적당 총 금속축적량은 81,003 μg/m²로 금속 중 Zn와 Mn이 각각 32%와 31%로 가장 많은 부분을 차지하고 있었다(Fig. 5). 교통활동과 관련이 높은 Cu, Cr, Pb 역시 7~12%를 차지하여 다른 금속에 비해 높은 결과를 보였다.

상업지역 도로먼지 내 단위면적당 금속축적량은 거주지역과 마찬가지로 입자크기가 감소할수록 증가하였으나, 거주지역에 비해 1.2~1.9배 높은 것으로 나타났다. 전체 도로먼지 입자 중 <63 μm와 <125 μm가 차지하는 평균비율은 41%와 65%로 거주지역과 유사하였으며, 전체 중금속 양은 113,546 μg/m²로 거주지역에 비해 1.4배 높은 결과를 보여, 교통활동에 의해 발생한 중금속이 상업지역에 더 많이 축적되어 있음을 알 수 있었다. 상업지역 도로먼지 내 총 축적된 중금속 중 Zn가 차지하는 비율이 33%로 가장 높았으며, Mn 23%이 다음으로 높았다(Fig. 5). 거주지역에서는 Cr의 비율이 7%였으나 상업지역은 Cr이 14%를 차지하고 있어 상업지역 도로먼지에서 Cr의 오염도(농도)가 2배 높은 영향을 나타내고 있다. 2016년 도로먼지지도 제작결과에 의하면, 안산시 4차선 이상의 도로는 109.8 km이며 도로먼지 평균농도는 36.8 μg/m²로 나타났다(www.cleanroad.or.kr). 해당 도시에 4차선 이하의 도로의 길이, 주

Table 2. Results for calculation of geo-accumulation index (I_{geo}) values for 16 metals of this study.

Types	Size (μm)	$I_{geo} < 0$	$0 < I_{geo} < 1$	$1 < I_{geo} < 2$	$2 < I_{geo} < 3$	$3 < I_{geo} < 4$	$4 < I_{geo} < 5$	$I_{geo} > 5$
		unpolluted	unpolluted to moderately polluted	moderately polluted	moderately to strongly polluted	strongly polluted	strongly to extremely polluted	extremely polluted
Residential	>1000	Li, Be, V, Cr, Mn, Co, Ni, Cu, As, Mo, Hg	Zn, Sn	Cd, Pb			Sb	
	500-1000	Li, Be, V, Cr, Mn, Co, Ni, Cu, As, Hg	Mo, Sn	Zn, Pb	Cd			Sb
	250-500	Li, Be, V, Cr, Mn, Co, Ni, As, Hg	Cu, Zn, Mo, Sn	Cd, Pb			Sb	
	125-250	Li, Be, V, Cr, Mn, Co, Ni, Hg	As	Cu, Zn, Sn, Pb	Mo, Cd		Sb	
	63-125	Li, Be, V, Mn, Co, Ni, Hg	Cr, As	Cu, Sn	Zn, Mo, Cd, Pb		Sb	
	<63	Li, Be, V, Mn, Co, Ni, Hg	Cr	Cu, As	Mo, Sn, Pb	Zn, Cd	Sb	
Commercial	>1000	Li, Be, V, Cr, Mn, Co, Ni, Cu, As, Mo, Sb, Hg	Zn, Pb	Cd		Sb		
	500-1000	Li, Be, V, Cr, Mo, Co, Ni, Cu, Hg	As	Zn, Mo, Sn	Cd, Pb			Sb
	250-500	Li, Be, V, Cr, Mn, Co, Ni, Hg	As	Zn, Mo, Cd	Cu, Sn, Pb			Sb
	125-250	Li, Be, V, Mn, Co, Ni, Hg	Cr, As		Zn, Mo, Cd, Sn, Pb	Cu		Sb
	63-125	Li, Be, V, Mn, Co, Hg	As	Cr, Ni	Cu, Zn, Cd, Sn, Pb	Mo	Sb	
	<63	Li, Be, V, Mn, Co, Hg	Ni	Cr, As	Cu	Zn, Mo, Cd, Sn, Pb		Sb

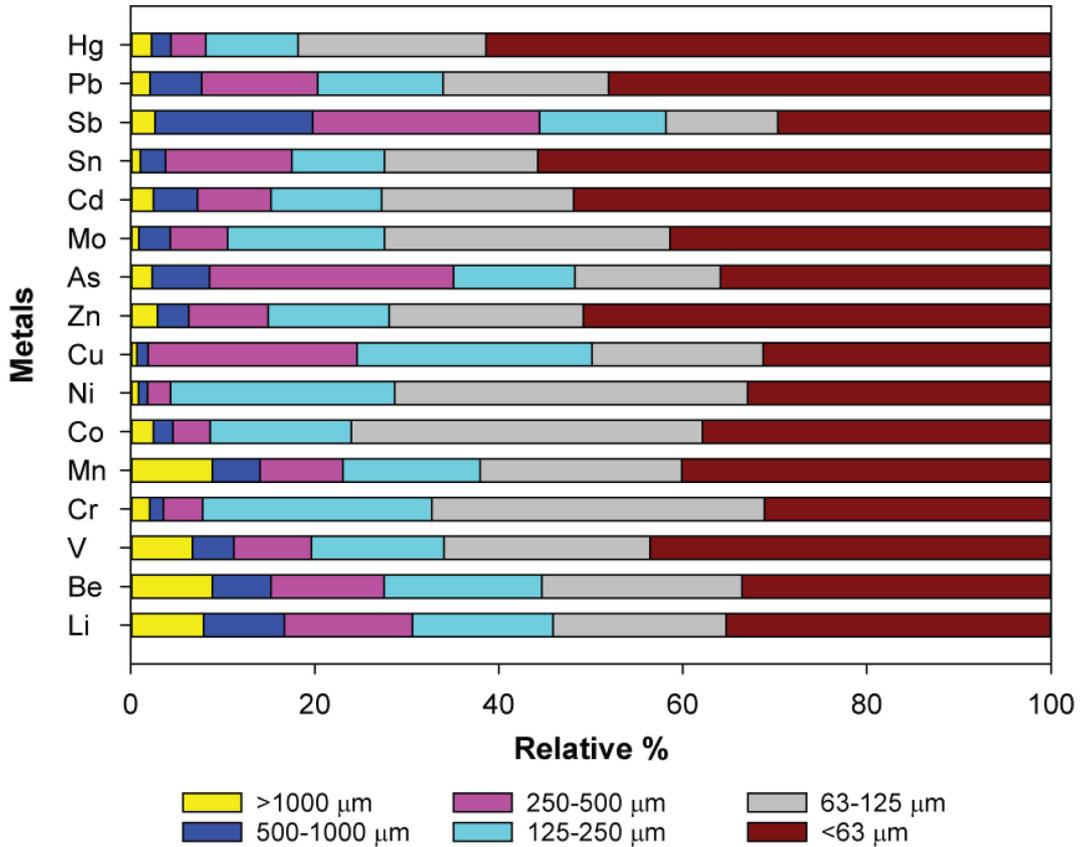


Fig. 4. Histogram of cumulative metal percentage (%) accumulated in each particle size of the total metals of the road dust from the Urban city.

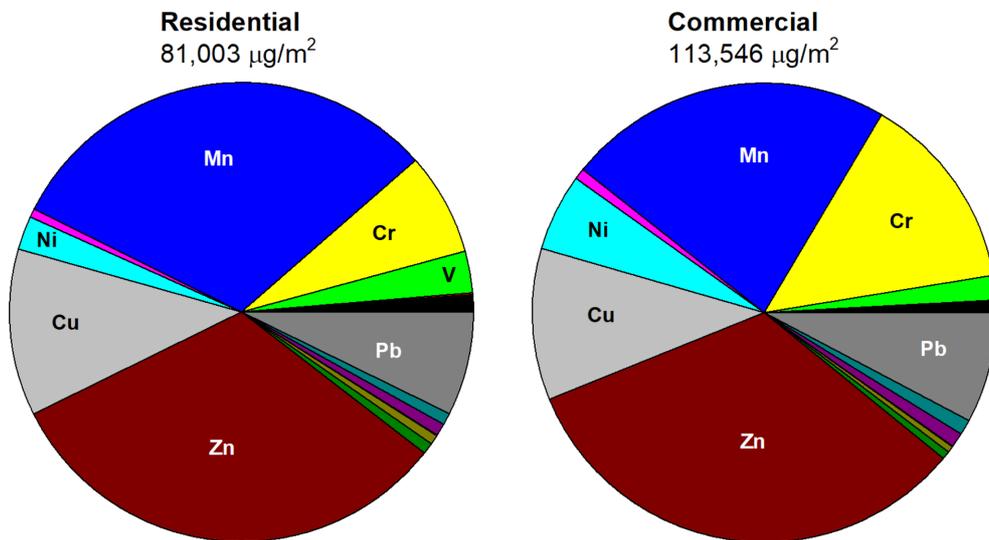


Fig. 5. Relative contribution (%) for each metal accumulated in total road dusts from the residential and commercial areas of this study.

거와 상업지역 25.9 km²에 존재하는 건물의 불투수면적 등을 고려하면 막대한 양의 도로먼지와 중금속이 도시지역에 축적되어 있는 것으로 판단된다.

도로는 도시환경에서 오염을 유발하는 두번째로 큰 비점오염원으로 알려져 있다(Fakayode and Olu-Owolabi[2003]; Mafuyai et

al.[2015]). 도로의 배수시스템은 일반적으로 유출수가 빠르게 배출되도록 설계되므로(Wang et al.[2017]), 중금속에 오염된 도로먼지가 재부유, 운반되는 경우유출수는 중금속 오염을 일으키는 중요한 비점오염원으로 많은 연구들이 수행되고 있다(Drake et al.[2014]; Zafra et al.[2017]; Liu et al.[2018]). 우리의 이전연구에 의하면 강

우량이 큰 경우 산업지역 강우유출수 내 입자물질의 평균 입도는 112 μm 이며, 전체 입자물질 중 63 μm 이하는 65%, 125 μm 이하는 80%를 차지하고 있으며, 강우량이 적은 조사시기에는 입자물질의 평균입도는 47 μm , 125 μm 이하의 입자가 차지하는 비율은 88%로 유역에 존재하는 보다 세립한 도로먼지가 강우유출수에 의해 운반되는 것으로 나타났다(Lee *et al.*[2020b]). 해당 연구지역은 도로 청소를 위한 청소주기가 1일 1회이며, 살수차(2대)와 분진흡입차(14대)를 운용중에 있다(Lee *et al.*[2020a]). 그러나 도로청소는 교통량이 큰 도로에서만 실시되며 도로의 폭이 작은 지역에서는 불가능하며 주기적인 도로청소에도 불구하고 단위면적당 약 50 g의 도로먼지가 존재하고 있는 것으로 나타났다. 강우일수와 강우량은 각각 100일과 916 mm (2018년 기준)로 나타나, 도시유역에 축적되어 있는 중금속에 대한 강우유출수를 통한 하천 혹은 해양환경 유출에 대한 부하량 조사 및 주변 환경에 미치는 영향에 대한 조사가 필요할 것이다.

4. 결 론

본 연구에서는 도시지역 도로먼지 내 입자크기와 토지이용형태에 따른 중금속 오염특성에 대한 조사를 실시하였다. 도로먼지 내 중금속 농도는 입자크기가 세립해질수록 농도가 높은 경향을 보였으며, 상업지역에서 중금속 농도와 단위면적당 금속축적량이 거주 지역에 비해 높은 특징을 보였다. 교통활동과 관련 높은 Cu, Zn, Mo, Sb, Cd, Pb 등의 금속 오염도가 심각한 수준이며, 이러한 결과는 타이어, 브레이크시스템, 배기구를 통한 배출, 차량부식에 등에 의한 교통활동에 기인한 것을 알 수 있었다. 특히 환경부의 토양오염에 대한 우선관리대상물질 중 하나이며, 폐수배출허용기준에 신규 수질유해물질인 Sb의 오염도(농집지수)가 매우 높아 이들 금속에 대한 환경 및 인체위해성에 대한 연구가 시급할 것으로 판단된다. 도시지역 도로먼지 내 금속의 단위면적당 축적량은 강우유출수에 의해 배수시스템을 통해 하천이나 강으로 직접 유출가능한 125 μm 이하가 전체의 64%를 차지하고 있었다. 연구지역의 전체 도로길이와 주거와 상업지역의 전체면적, 고층건물 등의 존재로 매우 높은 불투수면적 등을 고려할 때 산업활동과 함께 도시활동에 의한 영향도 큰 것으로 판단된다.

후 기

본 연구는 한국해양과학기술원 연구비 지원(PE99812)에 의해 수행되었습니다. 논문의 질적 향상을 위해 아낌없는 조언을 해주신 심사위원분들께 감사드립니다.

References

- [1] Adachi, K. Yoshiaki, T., 2004, Characterization of heavy metal particle embedded in tire dust. *Environ. Int.*, 30, 1009-1017.
- [2] Ademiec, E., Jarosz-Krezeminska E. and Wieszala, R., 2016, Heavy metals from non-exhaust vehicle emissions in urban and motorway road dusts. *Environ. Monit. Assess.*, 188, 369.
- [3] Aelion, C.M., Davis, H.T., Mcdermott, S. and Lawson, A.B., 2008, Metal concentrations in rural topsoil in South Carolina: potential for human health impact. *Sci. Total Environ.*, 402, 149-156.
- [4] Ahmed, F. and Ishiga, H., 2006, Trace metal concentrations in street dust of Dhaka City, Bangladesh. *Atmos. Environ.*, 40, 3835-3844.
- [5] Angulo, E., 1996, The Tomlinson Pollution Load Index applied to heavy metal, 'Mussel-Watch' data: a useful index to assess coastal pollution. *Sci. Total Environ.*, 184, 19-56.
- [6] Aryal, R.K., Furumai, H., Nakajima, F. and Boller, M., 2005, Dynamic behavior of fractional suspended solids and particle-bound polycyclic aromatic hydrocarbons in highway runoff. *Water Res.*, 39, 5126-5134.
- [7] Baekken, T., 1993, Environmental effects of asphalt and tyre wear by road traffic. *Nordic Seminar og Arbejdsrapporter 1992:628*, Copenhagen, Denmark.
- [8] Becher, K.D., Schnoebelen, D.J. and Akers, K.K., 2000, Nutrient discharged to the Mississippi river from eastern Iowa watershed. *J. Am. Water Resour. Assoc.*, 36(1), 161-173.
- [9] Charters, F. J., Cochrane, T. A. and O'Sullivan, A. D., 2016, Untreated runoff quality from roof and road surfaces in a low intensity rainfall climate. *Sci. Total Environ.*, 550, 265-272.
- [10] Cook, A.G., Weinstein, R. and Centeno, J.A., 2005, Health effects of natural dust. *Biol. Trace Elem. Res.*, 103, 1-15.
- [11] Davis, A. P., Shokouhian, M. and Ni, S., 2001, Loading estimates of lead, copper, cadmium, and zinc in urban runoff from specific sources. *Chemosphere*, 44(5), 997-1009.
- [12] Drake, J., Bradford, A., Seters, T.V., 2014, Stormwater quality of spring-summer-fall effluent from three partial-infiltration permeable pavement systems and conventional asphalt pavement. *J. Environ. Manage.*, 139, 69-79.
- [13] Fakayode, S.O. and Olu-Owolabi, B.I., 2003, Heavy metal contamination of roadside topsoil in Oshogbo, Nigeria, its relationship to traffic density and proximity to highways. *Environ. Geol.*, 44, 150-157.
- [14] Fauser, P., Tjell, J.C., Moskaek, H. and Pilegaard, K., 1999, Quantification of tire-tread particles using extractable organic zinc as tracer. *Rubber Chem. Technol.*, 72, 969-977.
- [15] Fukuzaki, N., Yanaka, T. and Urushiyama, Y., 1986, Effects of studded tires on roadside airborne dust pollution in Niigata, Japan. *Atmos. Environ.*, 20, 377-386.
- [16] Furumai, H., Balmer, H. and Boller, M., 2002, Dynamic behavior of suspended pollutants and particle size distribution in highway runoff. *Water Sci. Technol.*, 46, 413-418.
- [17] Han, G.M., Hong, S.H., Shim, W.J., Ra, K., Kim, K.T., Ha, S.Y., Jang, M. and Kim, G.B., 2016, Assessment of persistent organic and heavy metal contamination in Busan Coast: Application of

- sediment quality index. *Ocean Polar Res.*, 38(3), 171-184.
- [18] Hong, H.G., Park, J., Kim, D. and Lim, H.B., 2005, Determination of heavy metals in surface sediments of Lake Shihwa. *J. Kor. Soc. Environ. Anal.*, 8(1), 1-6.
- [19] Hjortenkrans, D.S.T., Bergback, B.G and Haggerud, A.V., 2007, Metal emissions from brake lining and tires: case studies of Stockholm, Sweden 1995/1998 and 2005. *Environ. Sci. Technol.*, 41, 5224-5230.
- [20] Hopke, P.K., Lamb, R.E. and Natusch, D.F.S., 2002, Multielemental characterisation of urban roadway dust. *Environ. Sci. Technol.*, 14, 32-41.
- [21] Hwang, D.W., Jin, H.G., Kim, S.S., Kim, J.D., Park, J.S. and Kim, S.G., 2006, Distribution of organic matters and metallic elements in the surface sediments of Masan Harbor, Korea. *J. Kor. Fish Soc.*, 39(2), 107-118.
- [22] Hwang, D.W., Lee, I.S., Choi, M. and Choi, H.G., 2014, Distribution and pollution assessment of organic matter and trace metals in surface sediment around Ulsan Harbor. *J. Kor. Soc. Environ. Anal.*, 17(3), 146-160.
- [23] Hwang, D.W., Lee, I.S., Choi, M., Kim, C.S. and Kim, H.C., 2015, Evaluation of pollution level of organic matter and trace metals in sediments around Taehwa River Estuary, Ulsan. *J. Kor. Fish Soc.*, 48(4), 542-554.
- [24] Jeong, H., Kim, K.T., Kim, E.S., Ra, K. and Lee, S.Y., 2016, Sediment quality assessment for heavy metals in streams around the Shihwa Lake. *J. Kor. Soc. Mar. Environ. Energy*, 19(1), 25-36.
- [25] Jeong, H., Kim, K.T., Kim, E.S., Lee, S.Y. and Ra, K., 2017, Regional variation and discharge characteristics stream water quality and heavy metals around Shihwa Lake Basin. *J. Kor. Soc. Mar. Environ. Energy*, 20(2), 1-8.
- [26] Jeong, H., Lee, J., Choi, J.Y., Kim, K.T., Kim, E.S., Sun, C., Park, J.K. and Ra, K., 2019a, Study on dissolved and particulate heavy metals in stream water and stormwater runoff from Suyeong watershed in Busan special management area, Korea. *J. Kor. Soc. Mar. Environ. Energy*, 22(4), 203-214.
- [27] Jeong, H., Lee, J., Choi, J.Y., Kim, K.T., Kim, E.S. and Ra, K., 2019b, Assessment of contamination and sources identification of heavy metals in stream water and sediments around industrial complex. *Korean J. Environ. Ecol.*, 52(3), 179-191.
- [28] Jeong, H., Lee, J., Kim, K.T., Kim, E.S. and Ra, K., 2019c, Identification on metal pollution sources in road dust of industrial complex using magnetic property around Shihwa Lake basin. *J. Kor. Soc. Mar. Environ. Energy*, 22(1), 18-33.
- [29] Kong, S.F., Lu, B., Ji, Y.Q., Zhao, X.Y., Chen, L., Li, Z.Y., Han, B. and Bai, Z.P., 2011, Levels, risk assessment and source of PM 10 fraction heavy metals in four types dust from a coal-based city. *Microchem. J.*, 98, 280-290.
- [30] Kwon, Y.T., 2004, Evaluation of heavy metal pollution in the dumping site of the dredged sediment, Masan Bay. *J. Kor. Soc. Mar. Environ. Energy*, 7(2), 75-81.
- [31] Krika, A. and Krika, F., 2017, Evaluation of the status of heavy metal pollution in surface water and sediments of the Nil River (North Eastern Algeria). *Pollution*, 3(2), 301-310.
- [32] Lee, J., Kim, S., Song, J. and Lee, T., 2010, Evaluation of organic compounds and heavy metals in sediments from the urban streams in the Busan city. *J. Kor. Geo-Environ. Soc.*, 11(1), 35-43.
- [33] Lee, J., Jeong, H., Choi, J.Y. and Ra, K., 2019, The spatial and vertical variations of metal pollution in sediments after tidal power plant operation in Shihwa Lake. *J. Kor. Soc. Oceanogr.*, 24(4), 535-547.
- [34] Lee, J., Jeong, H., Ra, K. and Choi, J.Y., 2020a, Assessment of particle size distribution and pollution impact of heavy metals in road-deposited sediments (RDS) from Shihwa industrial complex. *J. Environ. Impact Assess.*, 29(1), 8-25.
- [35] Lee, J., Jeong, H., Choi, J.Y. and Ra, K., 2020b, Characteristics and assessment of metal pollution and their potential source in stormwater runoff from Shihwa industrial complex, Korea. *Korean J. Environ. Ecol.*, 53(1), in press.
- [36] Lee, P.K., Touray, J.C., Baillif, P. and Ildefonse, J.P., 1997, Heavy metal contamination of settling particles in a retention pond along the A-71 motorway in Sologne, France. *Sci. Total Environ.*, 201, 1-15.
- [37] Legret, M. and Pagott, C., 1999, Evaluation of pollutant loadings in the runoff wastes from a major rural highway. *Sci. Total Environ.*, 235, 143-150.
- [38] Li, X., Poon, C.S. and Liu, P.S., 2001, Heavy metal contamination of urban soils and street dusts in Hong Kong. *Appl. Geochem.*, 16, 1361-1368.
- [39] Liu, A., Ma, Y., Gunawardena, J.M.A., Egodawatta, P., Ayoko, G.A., Goonetilleke, A., 2018, Heavy metals transport pathways: The importance of atmospheric pollution contributing to stormwater pollution. *Ecotox. Environ. Safe.*, 164, 696-703.
- [40] Mafuyai, G.M., Kamoh, N.M., Kangpe, N.S., Ayuba, S.M. and Eneji, I.S., 2015, Heavy metals contamination in roaddise dust along major traffic roads in Jos Metropolitan area, Nigeria. *J. Environ. Earth Sci.*, 5(5), 48-57.
- [41] Muller, G., 1981, Die Schwermetallbelastung der sedimentez des Neckars und seiner Nebenflusse: eine Bestandsaufnahme. *Chem. Zeitung*, 105, 156-164.
- [42] Oliva, S.R. and Espinosa, A.J., 2007, Monitoring of heavy metals in topsoils, atmospheric particles and plant leaves to identify possible contamination source. *Microchem. J.*, 86, 131-139.
- [43] Ozaki, H. Watanabe, I. and Kuno, K., 2004, Investigation of the heavy metal source in relation to automobiles. *Water Air Soil Pollut.*, 157, 209-223.
- [44] Ra, K., Bang, J.H., Lee, J.M., Kim, K.T. and Kim, E.S., 2011, The extent and historical trend of metal pollution recorded in core sediments from the artificial Lake Shihwa, Korea. *Mar. Pollut. Bull.*, 62, 1814-1821.
- [45] Ra, K., Kim, E.S., Kim, J.K., Kim, K.T., Lee, J.M. and Kim, E.Y., 2013a, Distribution and pollution assessment of trace metals in core sediments from the artificial Lake Shihwa, Korea.

- Ocean Polar Res., 35(2), 69-83.
- [46] Ra, K., Kim, E.S., Kim, K.T., Kim, J.K., Lee, J.M. and Choi, J.Y., 2013b, Assessment of heavy metal contamination and its ecological risk in the surface sediments along the coast of Korea. *J. Coast. Res.*, SI65, 105-110.
- [47] Ra, K., Kim, J.K., Hong, S.H., Yim, U.H., Shim, W.J., Lee, S.Y., Kim, Y.O., Lim, J.S., Kim, E.S. and Kim, K.T., 2014a, Assessment of pollution and ecological risk of heavy metals in the surface sediments of Ulsan Bay, Korea. *Ocean Sci. J.*, 49(3), 279-289.
- [48] Ra, K., Kim, J.K., Lee, J.M., Lee, S.Y., Kim, E.S. and Kim, K.T., 2014b, Characteristics and risk assessment of heavy metals in the stormwater runoffs from industrial region discharged into Shihwa Lake. *J. Kor. Soc. Mar. Environ. Energy*, 17(4), 283-296.
- [49] Rudnick, R.I. and Gao, S., 2003, Composition of the continental crust. In: Rudnick RL, editor. *The crust*, Elsevier, 1-64.
- [50] Schauer, J.J., Lough, G.C., Shafer, M.M., Cristensen, W.F., Arndt, M.F., DeMinter, J.T. and Park, J.S., 2006, Characterization of metals emitted from motor vehicles. Research Report (Health Effect Institute), 133, 1-76: discussion 77-88.
- [51] Shi, G., Chen, Z., Zhang, J., Wang, L., Bi, C.J. and Teng, J.Y., 2008, Potentially toxic metal contamination of urban soil and road side dust in Shanghai, China. *Environ. Pollut.*, 156, 251-260.
- [52] Smolders, E. and Degryse, F., 2002, Fate and effect of zinc from tire debris in soil. *Environ. Sci. Technol.*, 36, 3706-3710.
- [53] Sun, C.I., Lee, Y.J., An, J.H. and Lee, Y.W., 2014, Speciation and ecological risk assessment of trace metals in surface sediments of the Masan Bay. *J. Kor. Soc. Oceangr.*, 19(2), 155-163.
- [54] Sun, C.I., Kim, D.J., Lee, Y.W. and Kim, S.S., 2015, Pollution and ecological risk assessment of trace metals in surface sediments of the Ulsan-Onsan Coast. *J. Kor. Soc. Mar. Environ. Energy*, 18(4), 245-253.
- [55] Tomlinson, D., Wilson, J., Harris, C. and Jeffrey, D., 1980, Problems in the assessment of heavy metal levels in estuaries and the formation of a pollution index. *Helgoländer. Meeresun.*, 33(1-4), 566-575.
- [56] Wang, Q., Zhang, Q., Wu, Y., Wang, X.C., 2017, Physicochemical conditions and properties of particles in urban runoff and rivers: implications for runoff pollution. *Chemosphere*, 173, 318-325.
- [57] Zafra, C., Temprano, J., Suarez, J., 2017, A simplified method for determining potential heavy metal loads washed-off by stormwater runoff from road-deposited sediment. *Sci. Total Environ.*, 601-602, 260-270.
- [58] Zhao, H., Li, X., Wang, X. and Tian, D., 2010, Grain size distribution of road-deposited sediment and its contribution to heavy metal pollution in urban runoff in Beijing, China. *J. Hazard. Mater.*, 183, 203-210.

Received 1 April 2020

Revised 1 May 2020

Accepted 12 May 2020