

건설폐기물을 성토재로 사용한 산업단지에서의 중금속 오염 원인 규명

주권호¹ · 김기범¹ · 남경필¹ · 정재웅² · 문세흠³ · 최용주^{1*}

¹서울대학교 건설환경공학부

²안전성평가연구소 경남환경독성본부

³안양대학교 교양학부

Source Identification of Heavy Metal Contamination at an Industrial Complex Established Using Construction Wastes

Gwonho JOO¹ · Kibeum KIM¹ · Kyoungphile NAM¹ · Jae-Woong JUNG²
Seheum Moon³ · Yongju CHOI^{1*}

¹Department of Civil and Environmental Engineering, Seoul National University

²Department of Environmental Toxicology and Chemistry, Korea Institute of Toxicology

³College of Liberal Arts, Anyang University

ABSTRACT

This paper is aimed at source tracking of soil heavy metal contamination at a site established by reusing construction wastes. The soil heavy metal concentration at the study site peaked at a depth range of 5-10 m. Column studies were conducted to investigate the possibility of the contamination scenario of infiltration of stormwater carrying heavy metals of ground origin followed by selective heavy metal accumulation at the 5-10 m depth range. Almost all amount of lead, zinc, cadmium, and nickel introduced to the columns each packed with 0-5 m or 5-10 m field soil were accumulated in the column. The very poor heavy metal mobility in spite of the weak association of the heavy metals with the soil (characterized by a sequential extraction procedure) can be attributed to the high pH (10-11) of the construction wastes. From the results, the heavy metal contamination of the subsurface soil by an external heavy metal source was determined to be very unlikely at the study site. The column study applied in the current study is expected to be a useful methodology to present direct evidence of the contaminant source tracking at soil contamination sites.

Key words: Construction waste, Heavy metal, Leaching, Source identification, Column study

1. 서 론

1960년대 이후 현재에 이르기까지 산업의 발전과 인구 증가 및 도시 인구 유입으로 인하여 건설, 건축, 도시개발 등의 공사가 활발히 진행되어 오고 있고 이 과정에서 다양한 종류의 폐기물이 발생하고 있다. 국내에서는 2015년에 198,260 톤의 건설폐기물이 발생하였고 이는 전년도 대비 약 6.9% 증가한 양이다(ME, Ministry of Environment, 2016a). 건설폐기물 발생량은 지속해서 증가하는 추이를 나타내고 있으며 2015년 기준 전체 폐기물 발생량 중 약 49%가 건설폐기물에 해당하여 가장 높은 비중을

차지하고 있다(ME, 2016a).

건설폐기물 발생량이 증가함에 따라 이를 자원화하여 친환경적으로 재활용함으로써 새로운 가치를 창출하려는 시도가 활발히 이루어지고 있다. 이러한 노력의 일환으로 우리나라에서는 『건설폐기물의 재활용촉진에 관한 법률』을 제정하여 시행하고 있고 다수의 공사 현장에서 건설폐기물을 순환골재로 재활용하고 있다. 환경부에 따르면 건설폐기물의 재활용률은 2014년 기준 97.9%에 달하며, 재활용량 중 72%가 성토용·복토용, 노채용, 되메우기 및 뒷채움용, 노상용 등으로 사용되었고, 그 외 28%는 도로기층용, 도로보조기층용으로 사용되었다(ME, 2016b). 건

*Corresponding author : ychoi81@snu.ac.kr

Received : 2017. 12. 18 Reviewed : 2018. 1. 11 Accepted : 2018. 1. 29

Discussion until : 2018. 4. 30

설폐기물의 재활용은 자원의 재순환 측면에서 긍정적 의의를 가지며 경제적인 이점을 갖는다. 하지만 건설폐기물은 일반적으로 알칼리성을 띠고 중금속 등 유해물질의 존재 및 환경 변화에 따른 용출 가능성을 배제할 수 없으며, 성토·복토용, 되메우기 및 뒷채움 등으로 활용될 경우 대량으로 환경에 유입되어 대부분 궁극적으로 환경의 일부가 되기 때문에, 이를 재활용할 때에는 환경적 건전성을 고려한 각별한 관리가 필요하다. 이에 따라 환경부의 『건설폐기물의 처리 및 재활용 관련 업무처리지침』에서는 물의 침투로 인한 지하 용출이 가능한 경우 등에 대하여 유출수의 알칼리성을 고려하여 pH를 저감시킨 전처리 순환골재를 사용하거나 환경관련 기준 준수를 위한 시설(배수로, 집수정 등)을 설치하여 유출수로 인한 환경오염을 방지해야 함을 공시하고 있다(ME, 2015). 또한 국토교통부의 『순환골재 품질기준』에서는 순환골재를 성토·복토용으로 사용시 토양오염우려기준의 만족 여부를 평가하도록 하고 있다(MOLIT, Ministry of Land, Infrastructure and Transport, 2013). 이에 더하여, 2016년부터 시행된 재활용 환경성평가 제도에 따라 일정 규모 이상의 폐기물을 성토복토재, 도로기층재 등으로 이용하는 “매체접촉형재활용”에 대하여 필요 시 주상시험을 이용한 유출평가, 주변환경 영향 예측 모델링 등을 실시하도록 하는 등 관련한 법적·제도적 정비가 이루어지고 있다(ME, 2016c).

그러나 환경기준을 충족하지 못하는 건설폐기물 또는 건설폐기물과 지정폐기물의 혼합매립 등 실제 현장에서 건설폐기물의 재활용이 적법한 절차에 의해 이루어지지 않을 가능성은 상시 존재하며, 이미 성토·복토 등이 이루어진 부지의 경우 재활용 당시의 법적 기준과 현재 해당 부지에 적용되는 법적 기준이 합치되지 않을 가능성도 있다. 건설폐기물의 재활용 이후 상당 기간 산업 활동이 이루어진 부지에서는 지상 오염원의 지중 유입으로 인한

오염의 개연성 또한 존재하므로, 이러한 부지에서의 법적 분쟁 발생 시 부지 오염의 원인을 판별하는 것이 중요하다. 법적 분쟁에서의 오염 원인 판별에는 명확하고 직접적인 근거가 필요하다. 따라서, 모델링 등을 통한 오염물질 거동 예측에 필연적으로 존재하는 불확실성으로 인한 논란의 여지를 해소하고 비전문가들을 설득하기 위한 방법으로 현장 조건을 모사한 실험적 검증이 중요한 자료로 활용될 여지가 많다.

본 연구는 건설폐기물을 성토재로 사용하여 조성된 국내 산업단지를 대상으로 이루어졌다. 대상 부지의 전반적인 조사를 통하여 3 m 이하의 지하에서 토양오염우려기준을 초과한 중금속 농도가 발견되었으며, 그 두 가능한 원인으로 중금속 오염 폐기물의 매립 및 지상으로부터의 중금속 유입으로 인한 축적이 제기되었다. 본 연구에서는 대상 부지 중 특정 지점을 대상으로 현장의 조건을 모사한 주상실험을 통하여 지상으로부터의 중금속 유입으로 인한 지중오염의 가능성을 검증하고자 하였다.

2. 재료 및 방법

2.1. 현장 시료 채취 및 분석

대상 지점의 심도 별 중금속 오염 및 pH 분포를 확인하기 위해 우선적으로 토양시료채취기를 이용한 시료채취를 실시하였다. 토양시료채취기를 이용한 시료채취는 최대 심도 53 m까지 육안 식별이 가능한 정상 차이에 따라 1~3 m 간격으로 실시하였다. 주상실험을 위하여서는 보다 대량의 시료채취가 필요하였으므로, 토양시료채취기를 이용한 시료채취 지점에서 약 2 m의 이격거리를 두고 굴착을 통하여 5 m의 심도 간격으로 시료채취를 실시하였다. 굴착을 통한 채취시료는 각각 E-1(0-5 m 심도), E-2(5-10 m 심도)으로 명명하였다. E-1과 E-2 시료의 성상은 육안으로도 충분히 식별이 가능한 차이를 보였다(Fig. 1).



Fig. 1. Samples collected by excavation (left: E-1; right: E-2).

토양시료채취기를 이용하여 채취한 시료 및 굴착을 통하여 채취한 E-1, E-2 시료의 pH 및 중금속 전함량 농도를 토양오염공정시험기준에 고시된 방법을 이용, 분석하였다. 중금속 전함량 농도 분석은 우리나라 토양환경보전법에서 규제하는 중금속 8종(Pb, Zn, Cd, Ni, Cu, As, Hg, Cr(VI))에 대하여 실시하였다. 토양으로부터 추출된 중금속의 농도는 중금속 종류에 따라 납, 아연, 카드뮴, 니켈, 구리, 비소는 유도결합플라즈마-원자방출분광기(Inductively Coupled Plasma-Optical Emission Spectrometer; ICP-OES, iCAP 7400 Duo, Thermo Scientific, USA), 수은은 수은분석기(Mercury Analyzer, M-7600, Teledyne, USA), 6가크롬은 자외선/가시광선 분광광도계(UV-Vis Spectrophotometer, Cary 50, Varian, USA)를 사용하여 분석하였다.

2.2. 주상실험

아래 3.1절에 기술한 바와 같이 5-10 m 심도에서 채취한 E-2 시료에서 일부 대상 중금속에 대한 오염이 확인되었으므로, 이 심도 오염이 지상으로부터 중금속 함유 빗물의 유입으로 인하여 발생하였을 가능성을 평가하기 위한 실험실 규모의 주상실험을 설계하였다. 즉, 본 주상실험의 목적은 지표로부터 토양으로 유입되는 중금속 함유 유입수가 0-5 m 심도 영역에 상당한 중금속 축적을 일으키지 않는 상태로 통과한 후 5-10 m 심도 영역에 선택적으로 축적되어 상당한 중금속 오염을 일으킬 수 있는 개연성을 검증하는 것이다. 따라서, 주상실험은 E-1 및 E-2 시료 각각을 대상으로 실시하였다. 또한 유입수 내 중금속 농도에 따른 토양 중금속 이동 양상을 비교하기 위하여 저농도와 고농도 중금속 함유 오염수를 유입수로 사용한 주상실험을 각각 실시하였다. 대조군으로는 증류수를 유입수로 사용한 주상실험을 실시하였다.

저농도 중금속 오염수는 증류수에 US EPA에서 규정한 TCLP(toxicity characteristic leaching procedure) 용출시험 시 용출액의 비폐수(non-wastewater) 대상 Universal Treatment Standards(US EPA, 2002)에 해당하는 농도로 납, 아연, 카드뮴, 니켈을 첨가하여 제조하였다(Table 1). 고농도 중금속 오염수의 조성은 본 주상실험에서 적용한 고액비인 5 L/kg를 통하여 주입된 중금속이 E-2 시료에 전량 축적되었다고 가정하였을 때, E-2 시료에서 확인된 전함량 농도에 도달할 수 있는 오염수의 중금속 농도를 역산하여 결정하였다. 그러나 중금속 용해도의 제약으로 여러 종의 중금속이 포함된 오염수를 고농도로 조성하는 것이 불가능하였다. 따라서, 대상 지점뿐만 아니라 대상

Table 1. Heavy metal concentration of the column feed solution with low-level contamination

	Pb	Zn	Cd	Ni
Concentration (mg/L)	0.75	4.3	0.11	11

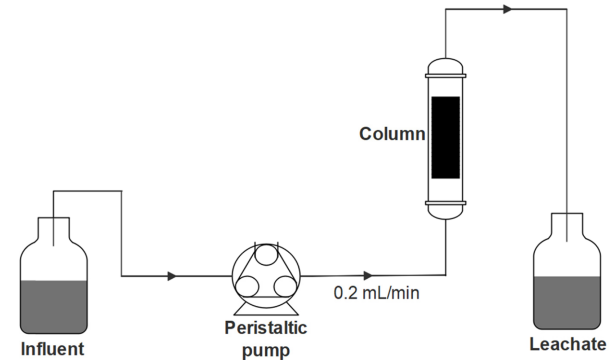


Fig. 2. Schematic diagram of column leaching test.

부지 전반에 걸쳐 가장 주요한 오염 중금속으로 확인된 납 1종만을 대상으로 오염수를 제조하였다. 계산을 통하여 결정된 고농도 중금속 오염수의 납 농도는 420 mg/L이다. 이러한 오염수의 납 농도는 상당히 높은 수준이지만, 사업장 종류에 따라 고농도의 중금속을 포함한 폐수 및 고형폐기물 용출액이 토양으로 유입될 가능성이 있다. 축전지사업장에서 배출되는 폐수에서 40.8-319.4 mg/L 농도의 납이 검출될 수 있으며(Patterson, 1985), PVC 안정기 사업장 폐수에서는 7,500 mg/L의 매우 고농도의 납이 검출된 바 있음(Huang et al., 2001)을 고려할 때 420 mg/L의 납 농도는 발생 개연성이 있는 농도 범위로 판단된다.

주상실험은 ISO/TS 21268-3에서 제시한 up-flow percolation test 방법에 따라 실시하였다(ISO/TS 21268-3, 2007). 내측 직경 5 cm, 길이 30 cm의 컬럼에 각 시료를 충전한 후 유입수를 주입하기에 앞서 증류수를 주입하여 컬럼 내 매질의 공극을 포화시킨 후 120시간의 평형시간을 두었다. 이후 증류수 또는 중금속 오염수를 peristaltic pump를 이용하여 상향류 방식으로 0.2 mL/min의 속도로 고액비(충전 매질 중량 대비 누적 유입수량의 비)가 5 L/kg에 도달할 때까지 유입하였다(Fig. 2).

본 주상실험에 적용한 최종 고액비인 5 L/kg은 실제 현장의 토양이 빗물 침투에 노출된 기간을 충분히 반영할 수 있도록 결정된 값이다. 폐자원으로 성토 또는 복토가 이루어진 지점에서 용출기간과 고액비는 다음의 관계가 성립한다(Aalbers et al., 1996; Verschoor et al., 2007).

Table 2. Values of factors used to estimate the infiltration period corresponding to the liquid to solid (L/S) ratio

Factor	Definition	Unit	Value	
			E-1	E-2
d	Bulk density of the medium	kg/m ³	1459.6	1506.8
Inf ^d	Stormwater infiltration rate	mm/year	702.57	
h	Depth of the medium	m	5	

^dEstimated by **(Precipitation rate) × [1 - (runoff coefficient)]** assuming that the precipitation other than runoff infiltrates into the soil. A runoff coefficient of 0.45 is used based on the range of 0.3-0.6 for bare packed soil with a smooth surface suggested in Goldman and Jackson (1986). An annual precipitation rate of 1277.4 mm/year (MOLIT, 2012) is used as the precipitation rate.

Table 3. The chemical forms of heavy metals that can be fractionated by the Tessier's sequential extraction procedure and the chemical extractants used for the extraction of each fraction

Step	Fractions	Extraction condition (Chemical extractants, Temperature, Extraction time)
1	Exchangeable	1 M MgCl ₂ (pH 7.0) or 1 M NaOAc (pH 8.2), at room temperature, for 1 h
2	Bound to carbonates	1 M NaOAc adjusted to pH 5.0 with HOAc, at room temperature
3	Bound to Fe-Mn oxides	0.3 M Na ₂ S ₂ O ₄ + 0.175 M Na-citrate + 0.025 M H-citrate or 0.04 M NH ₂ OH·HCl in 25% (v/v) HOAc (at 96 ± 3°C)
4	Bound to organic matter	0.02 M HNO ₃ and 30% H ₂ O ₂ adjusted to pH 2 with HNO ₃ (at 85 ± 2°C, for 2 h) → 30% H ₂ O ₂ adjusted to pH 2 with HNO ₃ (at 85 ± 2°C, for 3 h) → 3.2 M NH ₄ OAc in 20% (v/v) HNO ₃ (for 30 min)
5	Residual	Digestion with HF/HClO ₄ /HNO ₃ (at 90°C for 9 h, at 140°C for 3 h, 190°C for 10 h)

$$L/S = \frac{t \cdot inf}{d \cdot h} \tag{1}$$

여기서 L/S는 고액비(L/kg), t는 용출기간(year), Inf는 매질 내로 유입되는 우수의 침투율(mm/year), d는 매질의 겉보기 밀도(kg/m³), h는 성토된 매질의 깊이(m)이다. 본 주상실험에서 각 시료의 겉보기 밀도는 컬럼에 각 시료를 충전한 후, 충전된 시료의 무게에 컬럼의 부피를 나누어 계산한 값을 사용하였다(Table 2). Table 2에 제시한 각 인자값을 이용하여 계산한 결과, 고액비 5 L/kg까지 주상 실험을 수행하였을 때 실제 현장에서의 용출기간은 E-1과 E-2에서 각각 약 52년, 54년임을 확인할 수 있다. 이는 현장에서 빗물 유입으로 인한 중금속 오염 기간을 충분히 반영할 수 있는 조건으로 판단되었다.

컬럼의 유출수는 고액비 0-0.1, 0.1-0.2, 0.2-0.5, 0.5-1.0, 1.0-2.0, 2.0-5.0 L/kg의 간격으로 채취하였다. 채취한 시료는 0.45 μm syringe filter로 여과한 후 유도결합플라즈마-원자방출분광기(Inductively Coupled Plasma-Optical Emission Spectrometer; ICP-OES, iCAP 7400 Duo, Thermo Scientific, USA)를 통해 중금속 함량을 분석하였다. 고농도 납 오염수를 주입한 주상실험에서는 컬럼 심도 별 토양 시료의 중금속 전환량 농도를 분석하였다. 전체 30 cm 길이의 컬럼을 5 cm 단위의 6개 구간으로 나누어 구간 별로 시료를 채취하였고 채취 시료 내 중금속은 US EPA 3051A 방법(Element, 2007)으로 추출 후

ICP-OES를 통하여 분석하였다.

2.3. 주상실험 전후 토양 내 중금속 존재형태 변화 분석

본 연구에서는 현장 시료 내의 중금속과 고농도 납 오염수를 통한 주상실험 후 매질 시료 내의 중금속의 존재 형태를 비교분석하여 현장 토양이 외부로부터의 중금속 유입을 통해 오염되었을 개연성에 대한 추가적인 정보를 획득하고자 하였다. 존재형태를 분석하기 위해 연속추출법을 사용하여 실험을 진행하였다(Tessier et al., 1979; Jung, 1994). 연속추출법은 매질 속에 존재하는 중금속을 결합 세기에 따라 5가지 형태로 분류한다(Table 3).

3. 결과 및 고찰

3.1. 대상 지점의 심도 별 토양오염 특성

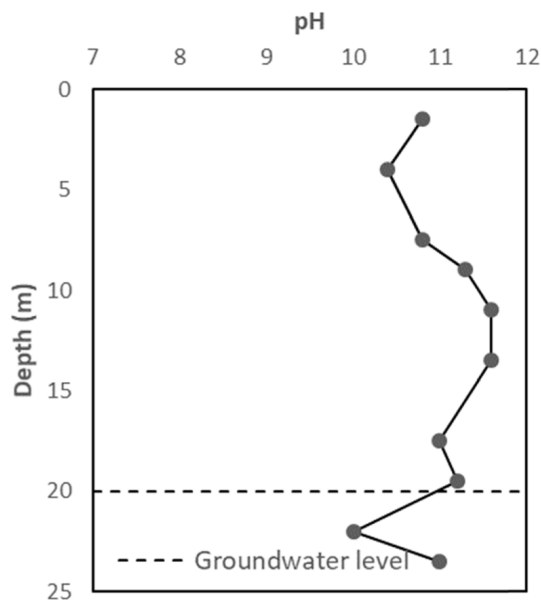
토양시료채취기를 이용하여 채취한 시료 및 E-1, E-2 시료의 pH와 중금속 8종(Pb, Zn, Cd, Ni, Cu, As, Hg, Cr(VI))에 대한 전환량 농도를 분석한 결과를 Fig. 3, Fig. 4, Table 4에 나타내었다.

토양시료채취기 이용 채취 시료 분석 결과(Fig. 4), 8-10 m 심도에서 납이 3지역 토양오염우려기준을 초과해 최대 3,771 mg/kg까지 검출되었으며, 심토층에서 큰 오염도를 나타내어 표층과 심토층의 납 오염 농도가 큰 차이를 보였다. 수은과 크롬을 제외한 모든 대상 중금속에 대해

Table 4. pH, soil texture, and heavy metal concentration of the samples obtained by excavation

Sample	pH	Soil texture	Heavy metal concentration (mg/kg)							
			Pb	Zn	Cd	Ni	Cu	As	Hg	Cr(VI)
E-1	10.1	Sandy loam	43.3	154.3	31.1	40.7	0.41	9.61	N.D.	N.D.
E-2	10.6	Loamy sand	243.3	743.2	3.38	155.6	283.3	7.08	0.48	N.D.
Worrisome level for soil contamination (Zone 2)	-	-	400	600	10	200	500	50	10	15
Worrisome level for soil contamination (Zone 3)	-	-	700	2,000	60	500	2,000	200	20	40

N.D.: Not detected.

**Fig. 3.** pH depth profile of the soil collected by the soil sampler.

여 납과 동일한 심도에서 가장 높은 오염도를 나타내었고, 아연은 3지역 토양오염우려기준에 근접한 농도를, 구리와 비소는 2지역 토양오염우려기준을 초과하는 농도를 보였다. 이와 같은 오염 특성이 지상 오염원으로부터 나타나기 위하여서는 산업시설에서 무단 방류된 폐수 혹은 지상에 야적된 오염 폐기물의 용출수에 포함된 중금속이 표층을 통과하여 심토층에 선택적으로 축적되어야 한다. 굴착을 통하여 채취한 E-1, E-2 시료의 경우, 토양시료채취기 이용 채취시료에서 확인한 수준의 고농도 중금속 오염은 확인되지 않았다(Table 4). 그러나 납, 아연, 니켈, 구리에 대하여 심도 5-10 m에서 채취한 E-2 시료의 전함량 농도가 심도 0-5 m에서 채취한 E-1 시료 농도의 3.8-691배로 5-10 m 지점의 오염농도가 그 상부에 비하여 확연히 높음을 확인할 수 있었다.

또한 채취한 모든 토양 시료에서 pH가 10 이상으로

높은 알칼리성을 띠는 것으로 나타났고 깊이에 따른 pH 변화는 뚜렷한 추세를 보이지 않았으며, 현장 부지의 지하수위인 20 m 하부에서도 높은 알칼리성을 유지하였다(Fig. 3, Table 4). 이는 일반적으로 높은 알칼리성을 띠는 건설폐기물(Butera et al., 2014)이 성토재로 사용되었기 때문으로 판단되며, 매립 후 최소 수년 이상이 경과했음에도 상당히 높은 수준의 알칼리성을 유지하고 있는 것을 확인하였다.

3.2. 주상실험을 통한 상부 오염수 유입에 의한 심토오염 가능성 검증

고액비 0-0.1, 0.1-0.2, 0.2-0.5, 0.5-1.0, 1.0-2.0, 2.0-5.0 L/kg의 간격으로 채취한 컬럼의 유출수에 포함된 납, 아연, 카드뮴, 니켈 4종의 중금속 농도 분석을 실시하였다. 증류수를 유입수로 사용한 컬럼의 유출수 내 중금속 농도를 측정된 결과, E-1 매질의 모든 유출수 내에서 정량한계 0.01 mg/L 이하의 농도로 검출되었으며, E-2 매질의 경우, 납 0.01 mg/L 이하, 아연 0.02 mg/L 이하, 카드뮴 정량한계(0.01 mg/L) 미만, 니켈 0.04 mg/L 이하의 농도로 검출되었다. Lee et al.(2017)은 2종의 석탄바닥재를 매질로 사용하고 증류수를 유입수로 사용한 컬럼 용출 실험에서 대상 중금속인 구리, 아연, 비소, 안티몬에 대하여 고액비 5 L/kg 동안 석탄재 각 중금속 전함량의 0.14-7.9%가 용출된 것으로 보고하였다. 이에 비하여 본 연구에서 고액비 5 L/kg 동안 용출된 납, 아연, 카드뮴, 니켈의 전함량 대비 용출량은 E-1 시료에서는 검출되지 않았고, E-2 시료에서 0.008% 이하로 Lee et al.(2017)의 값보다 훨씬 낮은 전함량 대비 용출량을 나타내었다. 이를 통하여 대상 현장 토양 내 중금속이 일반적인 조건에서 매우 낮은 용출가능성을 보임을 확인할 수 있다.

저농도의 복합 중금속 오염수를 유입수로 사용한 컬럼의 유출수 내 중금속 농도를 측정된 결과, E-1과 E-2 모든 유출수 시료 내에서 중금속 각각에 대해 납 0.03 mg/

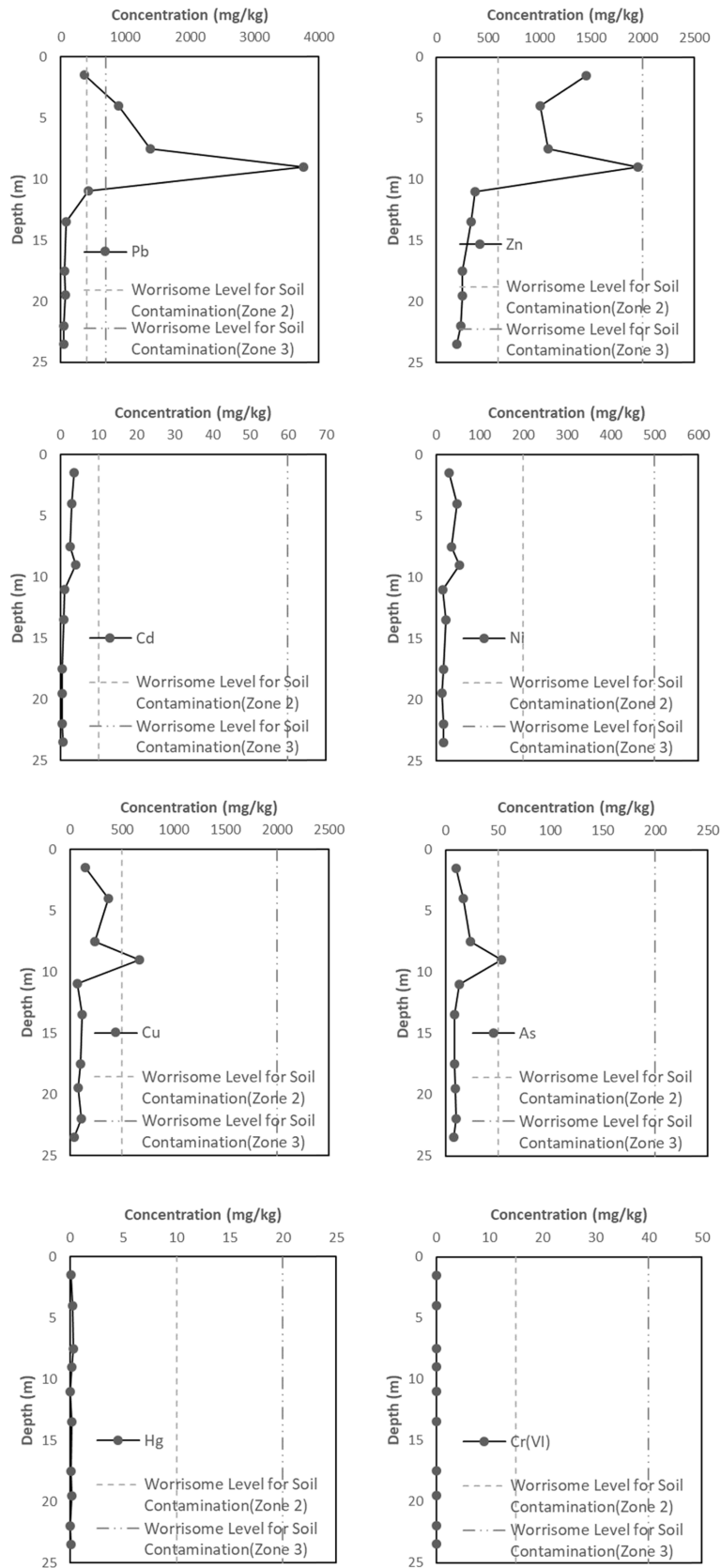


Fig. 4. Heavy metal concentration depth profile of the soil collected by the soil sampler.

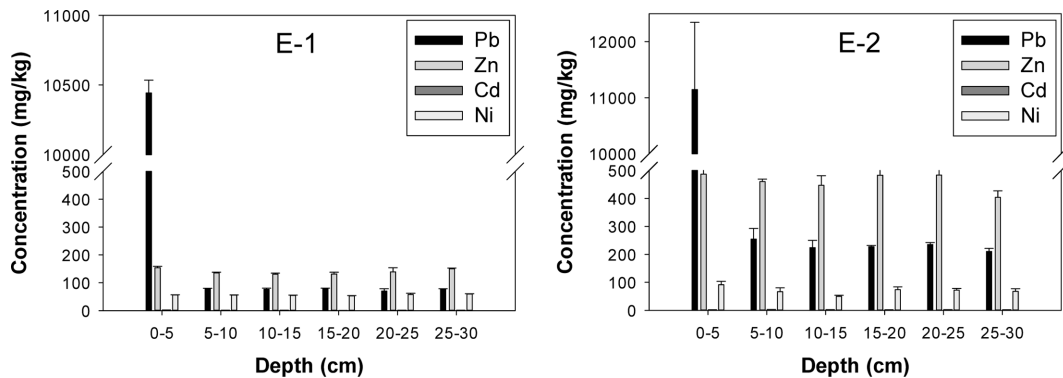


Fig. 5. Heavy metal concentration at each section of the column medium after the introduction of the feed water with 420 mg/L Pb concentration at L/S = 5 L/kg.

L 이하, 아연 0.02 mg/L 이하, 카드뮴 정량한계(0.01 mg/L) 미만, 니켈 0.04 mg/L 이하의 농도로 검출되었다. 또한 고농도의 납 오염수를 유입수로 사용한 컬럼에서는 E-1, E-2 모두 모든 유출수 시료 내 납 농도가 정량한계(0.01 mg/L) 미만의 농도로 검출되었다. 증류수를 유입수로 사용한 컬럼과 비교하여 저농도 및 고농도 유입수를 주입한 컬럼의 유출수에서 측정되는 중금속의 농도는 차이가 거의 없었으며, 이는 유입수 내 중금속 농도에 관계없이 유입수를 통해 유입된 중금속이 대부분 토양 내에 축적되었다는 것을 의미한다.

고농도 납 오염수를 통한 주상실험 후 깊이에 따른 컬럼 매질 내에 축적된 중금속의 농도를 확인하기 위하여 5 cm 단위로 나누어 각 구간에 포함된 중금속(Pb, Zn, Cd, Ni) 전함량을 분석하였다(Fig. 5). 납을 제외한 아연, 카드뮴, 니켈의 경우, E-1과 E-2 시료 모두 구간에 따른 중금속 전함량 농도가 균일하였다. 납의 경우, 유입수의 도입부인 0-5 cm 구간에서 각각 10,400 mg/kg과 11,100 mg/kg으로 매우 높은 전함량 농도를 나타내었으며, 0-5 cm 구간을 제외한 나머지 구간에서는 납 전함량 농도가 각각 75 ± 3 mg/kg, 230 ± 16 mg/kg으로 균일한 값을 나타내었다. 실험에 적용한 고액비 5 L/kg의 유출수에 포함된 420 mg/L의 납이 전량 0-5 cm 구간에 흡착되었다고 가정하였을 때 이 구간의 납 농도 증가분은 12,600 mg/kg으로 E-1과 E-2 모두에 대하여 0-5 cm 구간의 전함량 농도와 나머지 구간의 전함량 농도의 차이는 이에 거의 근사한 값이다. 따라서 컬럼 내로 유입된 납의 대부분이 컬럼의 도입부에 축적되며 다른 구간으로는 납이 유입되지 않았음을 확인할 수 있다.

요컨대, 컬럼에 유입된 납, 아연, 카드뮴, 니켈은 적용한 고액비인 5 L/kg의 조건에서 30 cm의 컬럼을 전혀 통과하지 못할 정도로 E-1, E-2 시료 모두 매우 낮은 이동성을

보였다. 납의 경우 농도를 0.75 mg/L에서 420 mg/L로 560배 증가시킨 고농도 오염수를 유입수로 사용하였을 경우에도 30 cm의 컬럼을 전혀 통과하지 못하였으며, 실험 후 컬럼 후 구간 별 농도분포를 통하여 도입부 0-5 cm 구간에 전량 축적되었음을 확인하였다. 대상 시료에서 중금속의 매우 낮은 이동성은 유입수를 통하여 컬럼에 유입된 중금속뿐만 아니라 현장 시료에 이미 존재하였던 중금속에 대하여서도 나타났다. 특히, E-1 시료로 충전한 컬럼에서 유입수 내 중금속이 전량 매질 내에 축적된 것을 통하여 현장에서 주상실험 용출길이인 30 cm의 약 17배에 달하는 5 m 두께의 토양층을 통과한 후 5-10 m 심도인 E-2 채취지점의 토양에 중금속이 선택적으로 축적되었을 개연성은 배제할 수 있음을 확인하였다.

이와 같은 컬럼에서의 매우 낮은 중금속 이동성은 현장 토양이 높은 알칼리성을 띄기 때문(E-1: pH 10.1; E-2: pH 10.6)인 것으로 판단된다. 대상 중금속인 납, 아연, 카드뮴, 니켈은 모두 pH 10-11 범위에서 매우 낮은 수산화물 용해도를 나타내므로, 주상실험에서 유입된 중금속 중 상당부분이 수산화물 형태로 침전되었을 것으로 추정할 수 있다(LI et al., 2001; Dyer et al., 1998). 오염수가 컬럼에 유입되어 매질 공극과 접촉함에 따라 그 pH가 빠른 속도로 상승하고, 그에 따라 수산화물 형태로 침전이 일어나 도입부 부근에 축적되었을 것으로 보인다.

3.3. 오염수 유입으로 인한 토양 내 납 존재형태 변화

연속추출법을 통해 고농도 납 오염수를 유입수로 한 주상실험 전후 컬럼의 0-5 cm 구간 매질 내 납의 존재형태를 분석한 결과를 Fig. 6에 나타내었다.

주상실험 전의 경우, E-1, E-2 시료 모두 1단계와 2단계로 존재하는 납의 비율이 20% 미만으로 시료 내 납이 비교적 강한 결합의 형태로 존재함을 확인하였다. 반면,

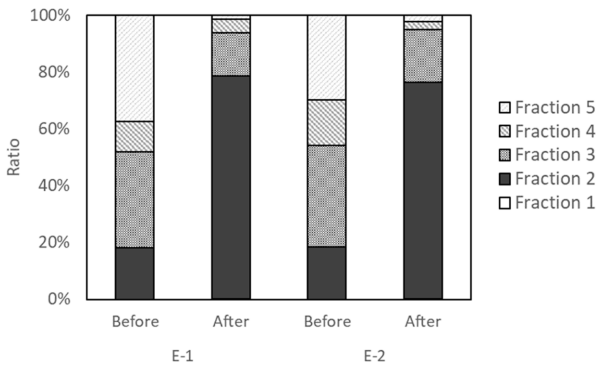


Fig. 6. Comparison of the chemical forms of Pb in 0-5 cm section of the column before and after the introduction of the feed water with 420 mg/L Pb concentration at L/S = 5 L/kg.

주상시험 시 유입된 납의 축적이 이루어진 0-5 cm 구간 매질의 연속추출 결과를 보면, E-1, E-2 모두에서 1단계와 2단계로 존재하는 납의 비율이 75% 이상으로 비교적 약한 결합의 형태로 존재함을 확인하였다. 따라서 오염수를 통하여 유입된 납의 대부분은 매질에 비교적 약한 결합의 형태로 축적되어 존재하는 것을 확인할 수 있다. 주상시험에서 이러한 약한 결합 형태의 납이 매우 낮은 이동성을 보인 것은 연속추출법을 통한 토양 내 중금속 존재형태 분석이 pH 등 토양의 환경변화 발생 시 잠재적 이동성을 평가하는 지표로 활용될 수는 있으나, 실제 현장에서의 중금속 이동성을 예측하는 데에는 현장의 환경 조건 등을 고려한 평가가 반드시 이루어져야 한다는 것을 확인시켜 준다.

주상시험 전후의 시료 내 납 존재형태가 뚜렷한 차이를 나타내는 것으로 보아 빗물 침투에 의한 외부로부터의 중금속 유입이 현장 시료에서 나타나는 강한 결합의 존재형태를 형성하지 않음을 확인하였다. 그러나 중금속의 존재형태는 토양 내부에서의 생물화학적 작용으로 장기간에 걸쳐 변화할 수 있으므로(Saeki et al., 1993) 주상시험에서 외부 유입 중금속의 존재형태가 현장 시료의 실제 중금속 존재형태와 상이하다는 것을 현장 시료가 외부 유입 중금속에 의하여 오염되지 않았다는 직접적인 증거로 활용하기는 어렵다. 다만, 중금속의 존재형태에 대한 정보는 오염토양 내 중금속 간의 존재비율, 중금속의 동위원소 존재비율 등(Zhu et al., 2017; Wijaya et al., 2013) 기존 토양 중금속 오염원 추적법에서 활용하는 정보와는 다른 형태의 정보라는 점에서, 토양 중금속 오염원 추적에 있어 향후 활용을 위한 추가적인 연구가 필요할 것으로 사료된다. 특히 가능한 후보 오염원의 중금속 함유비율 및 동위원소 존재비율 등 오염원 관련 정보가 극히 제한적인

상황에서 중금속 존재형태 정보는 큰 가치를 가질 가능성이 있다. 중금속 존재형태에 대한 정보를 중금속 오염원 추적에 활용하기 위하여서는 토양 중금속 오염의 발생 이후 장기간에 걸쳐 중금속 존재형태가 변화하는 양상에 대한 이해가 보다 향상될 필요가 있다.

4. 결 론

본 연구에서는 건설폐기물을 성토재로 사용한 부지에서 중금속 오염 원인을 규명하기 위하여 실험실 규모의 주상시험을 수행하였다. 대상 현장의 토양을 심도 별로 분석한 결과, 5-10 m 부근의 심도에서 중금속 농도가 타 심도에 비해 확연히 높은 특성을 확인하였다. 주상시험을 통해 빗물에 의한 장기적인 중금속 유입을 모사한 결과, 컬럼 내 중금속의 이동성은 매우 낮았으며, 유입된 중금속은 대부분 유입 지점에 축적되었다. 연속추출법을 통해 오염수를 통하여 유입된 중금속은 컬럼 내 토양과 비교적 약한 결합을 형성하였음을 확인하였는데, 그럼에도 불구하고 중금속의 이동성이 매우 낮은 것은 pH 10 이상의 높은 알칼리성을 띄는 현장 시료의 특성에 기인한 것으로 판단된다. 이러한 결과를 통하여 현장에서 빗물을 통해 유입된 중금속이 5 m 깊이의 표층을 통과하여 심토층에 선택적으로 축적될 가능성은 배제할 수 있는 것을 확인하였다. 본 연구는 주상시험을 통하여 토양의 중금속 오염 원인을 판별하는 가장 직접적인 실험실 규모의 평가법을 적용한 것으로 향후 토양오염의 원인을 명확히 규명하는 방법으로 활용성이 높을 것으로 판단된다.

사 사

본 연구는 환경부 토양지하수오염방지기술개발사업(GAIA)의 연구비 지원에 의해 수행되었습니다.

References

Aalbers, T.G., De Wilde, P., Rood, G., Vermij, P., Saft, R., Van De Beek, A., Broekman, M., Masereeuw, P., Kamphuis, C., and Dekker, P., 1996, Environmental quality of primary and secondary construction materials in relation to re-use and protection of soil and surface water, *RIVM-Rep. No. 7714002007*.

Butera, S., Christensen, T.H., and Astrup, T.F., 2014, Composition and leaching of construction and demolition waste: inorganic elements and organic compounds. *J. Hazard. Mater.*, **276**, 302-311.

- Dyer, J.A., Scrivner, N.C., and Dentel, S.K., 1998, A practical guide for determining the solubility of metal hydroxides and oxides in water, *Environ. Prog. Sustain.*, **17**, 1-8.
- Element, C., 2007, Method 3051A microwave assisted acid digestion of sediments, sludges, soils, and oils.
- Goldman, S.J. and Jackson, K., 1986, *Erosion and Sediment Control Handbook*.
- Huang, Y.-H., Chen, C.-C., Huang, G.-H., and Chou, S., 2001, Comparison of a novel electro-Fenton method with Fenton's reagent in treating a highly contaminated wastewater, *Water Sci. Technol.*, **43**, 17-24.
- ISO/TS 21268-3:2007-07, Soil quality - Leaching procedures for subsequent chemical and ecotoxicological testing of soil and soil materials - Part 3: Up-flow percolation test.
- Jung, M.C., 1994, Sequential extraction of heavy metal in soils and a case study, *Econ. Environ. Geol.*, **27**, 469-477.
- Lee, H., Yu, G., Choi, Y., Jho, E.H., and Nam, K., 2017, Long-term leaching prediction of constituents in coal bottom ash used as a structural fill material, *J. Soil. Sediment.*, 1-10.
- Li, X., Poon, C.S., Sun, H., Lo, I., and Kirk, D.W., 2001, Heavy metal speciation and leaching behaviors in cement based solidified/stabilized waste materials, *J. Hazard. Mater.*, **82**, 215-230.
- ME (Ministry of Environment), 2015, Business management guideline for treatment and recycle of construction waste.
- ME (Ministry of Environment), 2016, 2015 Nationwide waste occurrence and treatment status.
- ME (Ministry of Environment), 2016, The third study for establishment of recycle basic plan of construction waste.
- ME (Ministry of Environment), 2016, Regulation concerning procedure and method for recycling environmental assessment.
- MOLIT (Ministry of Land, Infrastructure and Transport), 2012, Basic plan for groundwater management.
- MOLIT (Ministry of Land, Infrastructure and Transport), 2013, Quality standard for recycled aggregate.
- Patterson, J.W., 1985, *Industrial Wastewater Treatment Technology*, Second edition, Butterworth, Boston.
- Saeki, K., Okazaki, M., and Matsumoto, S., 1993, The chemical phase changes in heavy metals with drying and oxidation of the lake sediments, *Water Res.*, **27**, 1243-1251.
- Tessier, A., Campbell, P.G., and Bisson, M., 1979, Sequential extraction procedure for the speciation of particulate trace metals, *Anal. Chem.*, **51**, 844-851.
- Verschoor, A., Lijzen, J., Cleven, R., Comans, R., Dijkstra, J., and Vermij, P., 2007, Kritische emissiewaarden voor bouwstoffen, Milieuhygiënische onderbouwing en consequenties voor bouwmaterialen.
- Wijaya, A.R., Ouchi, A.K., Tanaka, K., Cohen, M.D., Sirirattachai, S., Shinjo, R., and Ohde, S., 2013, Evaluation of heavy metal contents and Pb isotopic compositions in the Chao Phraya River sediments: Implication for anthropogenic inputs from urbanized areas, Bangkok, *J. Geochem. Explor.*, **126**, 45-54.
- Zhu, G., Guo, Q., Xiao, H., Chen, T., and Yang, J., 2017, Multivariate statistical and lead isotopic analyses approach to identify heavy metal sources in topsoil from the industrial zone of Beijing Capital Iron and Steel Factory, *Environ. Sci. Pollut. R.*, **24**, 1487.