한국지하수토양환경학회 추계학술발표회
2002년 9월13일~14일 부 산 대 학 교

휴·폐광산지역 폐재의 중금속 존재형태에 따른 오염순위 설정에 관한 연구.

김휘중, 양재의[1], 김동진[2], 박병길[3], 전상호
강원대학교 자연과학대학 환경학과,
1) 강원대학교 자원생물환경학부,
2) 환경부 원주지청
3) 웅진 환경연구부
(hjkim60@cc.kangwon.ac.kr)

Abstract

Enormous volumes of mining wastes from the abandoned and closed mines are disposed without a proper treatment at Southeastern part of Kangwon Province. Erosion of these wastes contaminates soil, surface water, and sediments with heavy metals. Objectives of this research were to fractionate heavy metals in the mine waste and to assess the potential S. P. A. G.(Soil Pollution Assesment Guidance) of each metal fraction. Mine wastes analyzed for physical and chemical properties. pH of wastes ranged from 3.3 to 8.0. Contents of total N and loss on ignition matter were in the ranges of 0.2~5.6%, and 0.8~15.3%, respectively. Heavy metals in the wastes were higher in the coal mines than those in the other mine wastes. Total concentrations of metals in the wastes were in the orders of Pb > Zn > Cu > Cd, exceeded the corrective action level of the Soil Environment Conservation Law and higher than the natural abundance levels reported from uncontaminated soils. Relative distribution of heavy metal fractions was residual > organic > reducible > carbonate > adsorbed, reversing the degree of metal bioavailability. Mobile fractions of metals were relatively small compared to the total concentrations. Soil Pollution Assesment Guidance(SPAG) values were ranged from 0.08 to 9.14 based on labile fraction of metal concentrations. SPAG values of labile concentration were lower than those of total concentration.

Keyword : mine waste, tailing, fractionation, Soil Pollution Assesment Guidance

1. 서 론

우리나라 근대화 산업의 일익을 담당하던 광업은 자원의 고갈과 산업형태의 변화에 의해 급속히 쇠퇴하기 시작하여 현재는 강원도 동남부지역에 많은 폐 탄광과 휴·폐광된 금속광산을 산출하였다. 이러한 휴·폐광산은 주변 환경에 미치는 영향력이 크기 때문에 현재 정부에서도 광산 폐기물에 의한 토양 및 하천 오염의 영향 평가를 실시하고 있다. 그러나 일반적으로 처리되지 않은 광미나 광재, 퇴적물, 침출수, 유출수 등의 광산활동에 의한 폐기물에 함유된 유해 중금속의 농도는 우리나라의 토양환경보존법의 기준보다 높은 것으로 보고되고 있으며[1], 광산폐기물에 의한 토양 오염 가능성은 광산폐기물에 함유된 중금속들의 분포와 주변 환경에 따른 중금속의 용출 및 거동에 관한 지식이 없으면 적절한 접근이 불가능하다[2,3]. 중금속의 존재형태와 용출 특성의 구명에 관한 연구는 광산활동에 의한 광산폐기물의 거동에 적용이 가능하고 특히 광미를 매립 또는 광재댐에 의해 격리하였을 경우 하천으로의 이동, 지하수로의 유출, 지역 토양의 오염 가능성을

예측하는데 중요한 정보를 제공할 것으로 판단된다[4]. 우리나라의 동남 단에서 북서 내륙 방향으로 분포하고 있는 금속광산이나 석탄광산지역의 생산광물 중 함유되어 있는 각종 유해 중금속이 주변지역의 토양 등을 오염시킬 수 있는 잠재적인 오염원이 될 수 있다. 따라서 폐 탄광과 휴·폐 금속광산 및 광재댐에 대한 토양오염 가능성에 대한 우선 순위 산정이 필요하며 이에 따라 오염지역에 대한 환경 복원우선순위를 결정할 수 있다[4]. 이러한 복원우선 순위를 결정하기 위해서는 휴·폐금속광산 및 탄광, 폐재처리장 인근지역에 중금속이 유출되어 환경에 존재하는 중금속이 인체 및 환경에 어느 정도의 유해한 영향을 미치는가를 판단할 수 있어야 한다. 이러한 오염평가를 하기 위한 기준이 중금속에 의한 오염판단이 기준이라 할 수 있다. 휴·폐광된 광산지역의 오염원을 제거할 수 있는 기술적인 접근방법이 이루어지기 위하여 휴·폐광된 광산지역을 대상으로 중금속에 의한 오염판단기준이 설정되어야 하고, 휴·폐광된 광산지역의 복원우선순위를 결정하여야 한다. 따라서 본 연구에서는 강원도 지역을 대상으로 폐탄광 및 휴·폐광된 금속광산에서 발생된 광폐재와 산성광산배수에 의한 주변지역 농경지 토양에 함유된 중금속(Pb, Cd, Zn, Cu)의 존재형태의 특성을 구명하여 이동 가능성과 중금속 존재형태에 따른 오염판단기준 설정하여 사후관리대책이나 복원대책을 위한 기초적 자료를 제공하려고 한다.

1.1 조사지점 및 시료채취

본 연구에 사용된 시료는 강원도 동부 및 남부지역의 휴광 및 폐광된 지역의 광미 및 폐석을 채취한 것이다. 조사지역 광미 및 폐석 시료는 동부지역의 금은 광산인 동명, 봉산 및 세우광산과 비소광산인 낙동, 남부지역의 상동중석광산, 거도 구리광산, 석탄 폐광산인 명진 및 옥동지역과 상동광업소 광재댐의 광미를 대상으로 하여 표층, 0~15cm의 지점에서 시료를 채취하였다. 채취한 시료는 대표성을 유지하기 위하여 광재댐의 표층 단면을 1~2m 간격의 9개 지역으로 분리하여 각각의 토심에서 시료를 채취한 후 혼합하여 사용하였다. <표 1>은 채취시료명과 채취지점 등을 나타낸 것이다.

Table 1. Sample ID of cultivated land and sampling locations.

Sample I.D.	soil sampling locations	site characteristics
MC-W	Myungiin abandoned coal mine	Waste soil
SD-T	Sangdong mine	Tailing
KD-T	Kudo mine	Tailing
ND-T	New tailing dam	Tailing
OD-T	Old tailing dam	Tailing
DM-W	Dongmyoung Mine	Waste soil
SW-W	Saewoo mine	Waste soil
BS-W	Bongsan mine	Waste soil
NK-W	Nakdong mine	Waste soil

1.2 시료의 분석방법

시료의 존재형태를 분석하기 위해 시료를 40℃에서 건조시켜 망눈의 크기 63㎛인 비금속 체(nylon bolting cloth sieve)로 체질 하여 분석에 사용하였다. 토양의 토성(texture)은 미국 농무부법에 따라 분류하였고, 유기물 함량은 강열감량법을 사용하여 측정하였다.

토양 내 중금속의 존재형태는 Tessier 등[5]의 방법에 따라 adsorbed form, carbonate form, reducible form, organic form, residual form로 분류하여 추출하였으며, 중금속의 농도는 ICP (Perkin Elmer XL 3100, USA)를 이용하여 측정하였다. 조사 지역의 중금속 존재형태에 따른 오염판단기준은 토양오염우려기준과 대책기준을 토대로 하여 Weakly polluted, Moderately polluted, Heavily polluted, Very heavy polluted로 분류하여 평가하였다

토양오염평가기준의 계산은 중금속의 존재형태별 분석된 자료를 각 step마다 분석치를 농경지 토양오염우려기준 및 대책기준과 공장/산업지역 토양오염우려기준 및 대책기준에서 나타낸 오염평가기준의 수치로 나눈 후 분석된 원소의 합을 원소의 수로 나눈 값을 토양오염평가기준(Soil Pollution Assesment Guidance)으로 결정하였다.

오염도지수 평가 산정 계산은 다음과 같다.

$$S.\ P.\ A.\ G. = \frac{\sum \dfrac{\sum \textit{Heavy metal fraction concentration in soil}}{\textit{Pollution Division Tolerable level}}}{\textit{Number of heavy metal}} \qquad (1)$$

S. P. A. G. : Soil Pollution Assesment Guidance, Number of heavy metal : 분석된 원소의 수

Heavy metal fraction concentration : 분석된 원소의 존재형태별 함량

Pollution Division Tolerable level: 각 원소의 오염분류에 따른 토양 내 tolerance level

식(1)에 의해 계산된 토양오염판단기준 산정은 각 중금속의 오염판단기준에 해당하는 허용한계치에 대한 비를 평균한 것이므로 조사지역의 농도가 기준치보다 크면 토양이 중금속에 의해 오염이 된 것으로 평가할 수 있다.

2. 본론

2.1 이화학적 특성

<표 2>은 채취한 시료의 이화학적 특성을 나타낸 것이다. pH는 3.3~8.0으로 석탄폐석과 금은광산의 폐석에서 산성을 나타내었고, 구리 및 중석광산의 폐석에서는 약 알카리성에 해당되는 값으로 나타났다. 양이온치환용량은 2.3~14.2 cmol(+)/kg으로 나타났으며, 총 질소의 함량은 0.2~5.6%로 나타났고, Ignition loss의 함량은 0.8~15.3%로 대부분의 석탄 폐석에서 높은 농도를 보였다. 입도는 대부분이 Sand와 silt의 함량이 높은 sandy loam으로 모래, 미사, 점토의 함량이 각각 47.7 ~ 82.9%, 13.2 ~ 39.6%, 3.8 ~ 26.5%로 나타났다.

Table 2. Physical and chemical properties of the experimental Mine wastes and tailings.

	pH (1:5)	CEC	TKN	Loss on Ignition	I.G./N	Humic level	Sand	Silt	Clay	Soil texture
		cmol(+)/kg	----- % ----				---- % ----			
MC-W	3.3	2.3	0.2	15.3	76.3	polyhumic	53.0	22.8	24.2	Sandy loam
SD-T	5.8	6.3	0.2	7.7	38.3	polyhumic	47.7	25.8	26.5	Sandy clay loam
KD-T	8.0	6.9	0.2	6.9	34.5	polyhumic	61.2	21.2	17.6	Sandy silt
ND-T	7.7	5.8	5.5	1.3	0.2	oligohumic	58.0	36.9	5.1	Silty clay Sandy
OD-T	7.7	5.4	3.2	0.8	0.3	oligohumic	82.9	13.2	3.8	Sandy loam
OC-W	5.1	14.2	0.2	14.1	70.5	polyhumic	53.7	24.0	22.3	Sandy loam
DM-W	5.0	4.9	5.6	1.2	0.2	oligohumic	48.6	39.6	11.8	Sandy loam
SW-W	3.7	3.6	1.4	4.0	2.8	oligohumic	76.6	14.5	8.6	Sandy loam
BS-W	6.0	5.8	1.4	3.8	2.7	oligohumic	65.2	19.2	15.6	Sandy loam
NK-W	3.8	3.2	0.7	3.2	4.6	oligohumic	54.6	23.3	22.1	Sandy clay loam

CEC ; Cation exchange capacity, TKN ; Total Kjeldahl nitrogen

2.2 중금속의 존재형태(fractionation) 및 이동성(mobilization)

현재 시행되고 있는 토양의 분석 방법은 중금속의 총 함량만을 측정하게 되어 있다. 이러한 분

석방법은 토양에 분포하고 있는 중금속의 이동 형태나 용출 가능성에 대한 예측이 어려운 실정이다. 따라서 토양내의 중금속의 존재형태를 분석하여 얻어진 자료가 더욱 유용한 토양오염의 정보를 얻을 수 있다고 보고하고 있다[6].

중금속이 민감한 환경변화에서 bioavailability와 토양중 이동성에 가장 영향을 미칠 수 있는 형태는 adsorbed fraction이다. 그러나 토양환경 변화에 의해 혐기성 형태나 혹은 유기물 분해에 의한 수소이온 농도 증가에 의한 pH 감소, 침식에 의한 물리적 영향과 같은 다양한 환경변화가 나타날 수 있다, 따라서 토양의 중금속의 존재형태 중 carbonate나 reducible fraction이 수용태나 치환태로 변화될 가능성이 높다[7].

<표 3>는 폐재에 따른 각 중금속(Pb, Cd, Cu, Zn)의 총 농도와 이동가능한 량을 나타낸 것이다.

조사지역 폐재에 포함된 중금속 중 총 농도는 납이 제일 높게 나타났으며, 중금속의 존재형태별 분포는 대부분의 폐재에서 residual fraction > organic fraction > reducible fraction > carbonate fraction > adsorbed fraction의 순으로 나타났다.

환경적 변화에 제일 민감한 adsorbed+reducible fraction의 합에 의한 이동성은 Zn> Pb> Cu> Cd의 순이었다. 납의 농도가 제일 높은 세우광업소의 경우 99.7%가 residual fraction으로 그 이동성이 낮은 것으로 조사되었으나, Zn과 Cd의 경우는 총량의 17.9~19.2%가 강우의 침식 또는 유기물 분해에 의해 이동될 수 있는 것으로 조사되어 주변환경에 미치는 영향이 가장 클 것으로 사료된다.

Table 3. Total and labile fraction concentration of the experimental Mine wastes and tailings. (㎎/㎏)

Site	Cu		Pb		Zn		Cd	
	Labile	Total	Labile	Total	Labile	Total	Labile	Total
MC-W	228.4	2121.1	42.6	572.0	7531.2	15177.7	4.2	26.4
SD-T	65.0	1184.1	59.9	560.4	254.5	2234.7	4.1	22.9
KD-T	100.4	1967.2	12.2	410.5	154.4	1199.5	2.8	19.2
ND-T	116.3	1834.1	55.1	599.3	186.3	1000.7	4.3	23.5
OD-T	149.1	1789.2	15.6	550.3	187.4	2233.4	2.1	28.6
OC-W	164.4	1804.0	5.9	451.7	87.3	1420.0	5.6	22.8
DM-W	0.8	17.6	3614.8	17459.2	18.7	86.2	0.5	1.4
SW-W	11.4	986.3	68.3	67743.9	45.4	132.4	5.6	86.0
BS-W	7.3	86.6	1696.3	4860.7	85.7	317.8	2.5	8.6
NK-W	60.9	532.9	3.3	3204.5	9.0	477.5	4.8	54.6

Labile ; Sum of adsorbed + reducible

2.3 중금속 존재형태에 따른 오염판단기준 설정.

폐탄광과 휴·폐금속광산 및 광재댐에 의한 토양오염 가능성에 대한 우선 순위 산정이 필요하며 이에 따라 자연생태계 복구우선순위를 결정할 수 있다. 그러나 복구우선 순위를 결정하기 위해서는 휴·폐금속광산 및 탄광, 폐재처리장 인근지역에 중금속이 유출되어 환경에 존재하는 중금속이 인체 및 환경에 어느 정도의 유해한 영향을 미치는가를 판단할 수 있어야 한다. 이러한 오염평가를 하기 위한 기준이 중금속에 의한 오염판단이 기준이라 할 수 있다. 휴·폐광된 광산지역의 오염원을 제거할 수 있는 기술적인 접근방법이 이루어지기 위하여 광산지역을 대상으로 중금속에 의한 오염판단기준이 설정되어야 하고, 복구우선순위를 결정하여야 한다[7].

따라서 본 연구에서는 농경지 및 산업시설에 대한 토양오염기준을 토대로 하여 Weakly polluted, Moderately polluted, Heavily polluted, Very heavily polluted 로 분류하여 평가하였다.

<표 4>는 폐재에 따른 각 중금속(Pb, Cd, Cu, Zn)의 labile한 상태 토양오염판단기준과총량에

대한 중금속 토양오염판단기준을 나타낸 것이다.

총량에 대한 중금속 토양오염판단기준은 전지역에서 very heavily polluted 범위를 전부 초과하였으며, 토양의 풍화과정에서 발생되는 물리적 영향과 화학적 영향을 많이 받을 것으로 예측되는 adsorbed fraction과 reducible fraction의 합인 labile한 상태 토양오염판단기준은 전지역에서 weakly polluted 범위를 초과했으나 moderately polluted와 heavily polluted는 동명광산의 폐재에서 높게 나타났으며, 봉산광산의 폐재에서는 heavily polluted를 약간 상회하는 값을 보였다.

Very heavily polluted 범위는 명진 폐탄광의 폐재를 제외한 전 지역에서 토양오염판단기준을 상회하거나 기준 점에 해당하는 수치는 나타나지 않았다.

위와 같은 결과는 총량에 대한 중금속의 토양오염판단기준이 토양 환경의 변화에 의해 예상되는 존재형태의 중 다른 계로의 이동으로 인한 생태계에 오염물질의 축적 혹은 치명적 유해를 주게 될 것으로 예상되는 농도보다 높게 평가되고 있다. 이러한 평가 이상의 수치는 오염된 지역의 복원시 사용되는 점토광물재료의 이용 혹은 토양개량재료의 이용과 토양내 포함된 중금속의 용탈 방법인 토양세정에 의한 제거 (washing)와 중금속을 선택적으로 흡수하는 식물의 이용 (Phytoremediation)과 반전심경 (깊이 밭갈이를 해서 땅을 뒤집는 것), 객토 (오염된 논 흙위에 새로운 흙으로 덮는 것), 배토 (오염된 논흙을 파서 버리는 것), 배토객토 등과 같은 방법에 적절히 복원 방안을 제시하기 어렵거나 지나친 높은 토양오염판단기준 제시로 인하여 발생되는 경제적 문제나 환경 문제가 필요이상으로 나타나게 될 것으로 사료된다.

Table 4. Soil Pollution Assesment Guidance of the experimental Mine wastes and tailings.

Site	labile fraction				Total			
	Pollution division level				Pollution division level			
	1	2	3	4	1	2	3	4
MC-W	8.2	7.0	6.7	6.4	29.1	18.9	16.2	14.1
SD-T	1.4	0.6	0.4	0.3	13.0	6.0	4.2	2.8
KD-T	1.1	0.5	0.3	0.2	15.1	6.4	4.1	2.3
ND-T	1.6	0.7	0.4	0.3	15.4	6.3	4.0	2.1
OD-T	1.3	0.6	0.4	0.3	17.0	7.6	5.0	3.1
OC-W	1.8	0.8	0.4	0.2	15.1	6.5	4.2	2.4
DM-W	9.1	2.3	2.3	1.0	44.0	11.1	11.0	4.5
SW-W	1.2	0.5	0.2	0.1	188.7	49.8	45.5	18.3
BS-W	4.8	1.3	1.2	0.5	14.3	4.0	3.6	1.6

labile fraction ; Sum of adsorbed + reducible

1 ; Weakly polluted, 2 ; Moderately polluted, 3 ; Heavily polluted, 4 ; Very heavily polluted

3. 결론

본 연구에서는 폐탄광과 휴·폐금속광산 및 광재댐을 대상으로 중금속에 의한 오염 정도를 알아보기 위해 폐재 내 중금속의 연속추출법을 통해 존재형태에 대한 분석을 수행하였고, 이 결과를 이용하여 오염판단기준을 (S. P. A. G. : Soil Pollution Assesment Guidance) 설정하였다. 그 결과는 다음과 같다.

1. 광산 폐재의 pH는 대부분이 산성으로 나타났으나 광미의 경우 알카리성으로 나타났다.
2. 납을 제외한 중금속 대부분이 휴·폐 금속광산지역의 광미나 폐재 보다는 산성광산배수의 유입량이 많은 폐탄광지역에서 높은 농도를 보였으며, 존재형태분류에 의한 이동 가능성도 높게 나타났다.
3. 동명과 세우광산 폐재에 포함된 납의 경우 강우에 의해 하천으로 유입시 주변 생태계에 영향을

줄 것으로 예상되는 labile한 부분이 다른 지역보다 높게 나타났다.

4. 존재형태에서 분석된 총량에 대한 중금속의 토양오염판단기준이 토양 환경의 영향을 받을 것으로 예상되는 존재형태의 각 부분의 기준수치보다 높게 평가되고 있다. 따라서 적절한 복원 방안을 제시하기 어렵고, 지나치게 산정된 토양오염판단기준으로 인하여 발생되는 경제적 문제 혹은 환경 문제가 필요이상으로 나타나게 될 것으로 사료된다. 그러므로 경작지의 토양의 특성이나 경작방법에 따라 토양오염판단기준 산정 방법에 차이를 두어야 할 것으로 판단된다.

4. 참고문헌

1. Park, Y.A., 1996, Designing and applicability of soil pollution indices for estimating quality of soil polluted with heavy metals and arsenic, J. of KOSES 1(1):47-54.
2. Forstner, U. and W. Salomon., 1991, Mobilization of metals from sediments, Metals and Their compound in environment, Ed. by E, Merian, p.379-398
3. Jung, M. C., 1995, Heavy metal contamination of soil, plants, waters and sediments in the vicinity of malliferous mine in Korea, Ph.D thesis, University of London, p.455.
4. Korea Environmental Technology Research Institute, 1994, Research report No. 14
5. Tessier, A., P.G.C. Campbell, M. Bisson, 1979, Sequential extraction procedure for the speciation of particulate trace metals. Analytical chemistry, 51(7):844-851.
6. Alloway, B. J. Thoronton, I., Smart, G. A., Sherlock, J. C., and Quinn, M. J., 1988, Metal availability. The shiphan Report. Sci. Tot. Environ. 75:14-69
7. Kim, H. J., 2002, Assessment of Water and Soil Pollution by the Mining Wastes in the Watershed of Okdong Stream, Ph.D thesis, K. N. U., p.225.