

## 지중환경에서 미세플라스틱의 이동성에 대한 고찰

김연태<sup>1,2\*</sup> · 한원식<sup>3</sup> · 윤혜은<sup>2</sup>

<sup>1</sup>연세대학교 자연과학연구원

<sup>2</sup>한국기초과학지원연구원

<sup>3</sup>연세대학교 지구시스템과학과

## Mobility of Microplastics in Subsurface Environments: Current Knowledge and Perspectives

Youn-Tae Kim<sup>1,2\*</sup> · Weon Shik Han<sup>3</sup> · Hye-On Yoon<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Institute of Natural Sciences, Yonsei University

<sup>2</sup>Korea Basic Science Institute (KBSI)

<sup>3</sup>Department of Earth System Sciences, Yonsei University

### ABSTRACT

Plastics have become essential materials in human life for several decades. Meanwhile, the inadvertent spread of plastic debris from the use of many plastic products has raised global environmental concerns. The risk of microplastics in subsurface environment has received little attention because soil is considered to confine microplastics within the matrix. However, the concentration of microplastics in soil unavoidably increased as a result of an increase in plastic production and use. Based on lab experiments, several researches claimed that microplastics possibly penetrate soil layers. Recently, a few researches reported the occurrence of microplastics in groundwater. This study reviewed the recent reports of microplastic occurrences in soil and groundwater, and the modeling studies for simulating transport of microplastics. Additionally, the difficulties and limits in microplastics researches in soil and groundwater are discussed. Finally, several perspectives on microplastic studies in subsurface environment are suggested.

**Key words :** Plastic, Microplastics, Soil, Groundwater, Transport

### 1. 서 론

플라스틱 생산량이 지속적으로 증가하면서, 플라스틱 쓰레기로 인한 오염문제가 심각해지고 있다(Jambeck et al., 2015; Thompson et al., 2004). 플라스틱 쓰레기로 인한 해양, 호수, 강, 토양의 심각한 오염 현황과 이로 인해 위협에 처한 생물들의 현실이 알려지면서 전세계적으로 플라스틱 사용에 대한 우려가 높아지고 있다(G20, 2017). 특히, 미세플라스틱이 생물농축을 통해 상위 포식자에서 높은 농도로 집적될 수 있으며(Waring et al., 2018), 초 미세플라스틱은 세포벽을 통과해 생체조직 내 분포할 수 있음이 밝혀지면서, 유해성에 대해 많은 관심이 집중되고

있다(Lehner et al., 2019).

플라스틱은 특정 분자구조가 반복되는 중합 구조를 갖는 석유계 고분자화합물이다. 중합체의 화학조성에 따라 polyethylene(PE), polypropylene(PP), polystyrene(PS), polyvinyl chloride(PVC), acrylic, polyethylene terephthalate (PET), polyurethane(PUR) 등으로 구분된다(Table 1). 종류에 따라 밀도, 녹는점 등 물리화학적 성질이 상이하며 (PlasticsEurope, 2018; Scalenghe, 2018; Sun et al., 2019), 사용목적에 따라 프탈레이트와 같은 가소제, HBCDs(hexabromocyclododecanes)와 같은 난연제 등 첨가제를 이용해 개질하고 여러가지 색상으로 제조되기 때문에 화학적 조성이 매우 다양하다(Hahladakis et al., 2018).

\*Corresponding author : yountae@yonsei.ac.kr

Received : 2019. 5. 16 Reviewed : 2019. 5. 19 Accepted : 2019. 6. 12

Discussion until : 2019. 8. 31

**Table 1.** Physicochemical properties of plastics for each composition

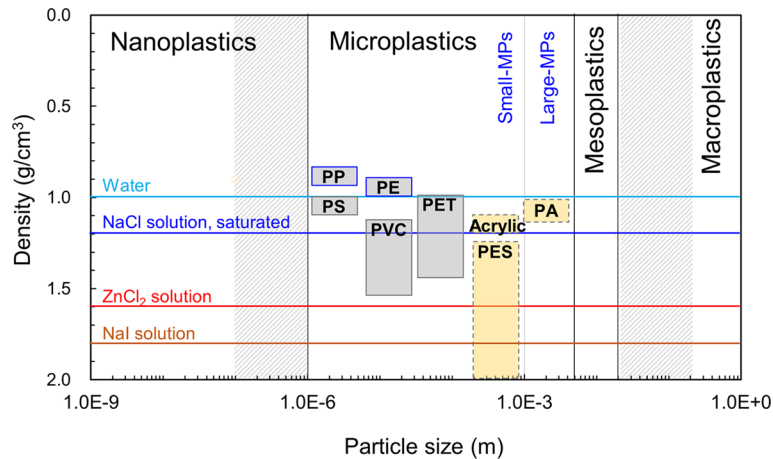
Full name	Abbreviation	Chemical structure	Density <sup>a</sup> (g/cm <sup>3</sup> )	Melting point <sup>b</sup> (°C)	Remark
Polyethylene	PE	$\left[ \begin{array}{c} \text{H} \quad \text{H} \\   \quad   \\ \text{---C---C---} \\   \quad   \\ \text{H} \quad \text{H} \end{array} \right]_n$	0.89-0.98	135~140	including low-and high density PE (LDPE and HDPE)
Polypropylene	PP	$\left[ \begin{array}{c} \text{H} \quad \text{H} \\   \quad   \\ \text{---C---C---} \\   \quad   \\ \text{CH}_3 \quad \text{H} \end{array} \right]_n$	0.83-0.92	170	
Polystyrene	PS	$\left[ \begin{array}{c} \text{H} \quad \text{H} \\   \quad   \\ \text{---C---C---} \\   \quad   \\ \text{H} \quad \text{C}_6\text{H}_5 \end{array} \right]_n$	1.04-1.1	240	expanded PS (EPS)
Polyvinyl chloride	PVC	$\left[ \begin{array}{c} \text{H} \quad \text{H} \\   \quad   \\ \text{---C---C---} \\   \quad   \\ \text{H} \quad \text{Cl} \end{array} \right]_n$	1.16-1.58	215	
Polyethylene terephthalate	PET	$\left[ \begin{array}{c} \text{O} \quad \text{O} \quad \text{H} \quad \text{H} \\    \quad    \quad   \quad   \\ \text{---C---C}_6\text{H}_4\text{---C---O---C---C---O---} \\   \quad   \\ \text{H} \quad \text{H} \end{array} \right]_n$	0.96-1.45	200	
Polyurethane	PUR	$\left[ \begin{array}{c} \text{O} \quad \text{H} \quad \text{O} \quad \text{H} \quad \text{H} \quad \text{H} \\    \quad   \quad    \quad   \quad   \quad   \\ \text{---C---N---C}_6\text{H}_4\text{---C}_6\text{H}_4\text{---N---C---O---C---C---O---} \\   \quad   \quad   \quad   \quad   \quad   \\ \text{H} \quad \text{H} \quad \text{H} \quad \text{H} \quad \text{H} \quad \text{H} \end{array} \right]_n$	1.2	Thermosets	
Acrylic	-	$\left[ \begin{array}{c} \text{H} \quad \text{COOH} \\   \quad   \\ \text{---C---C---} \\   \quad   \\ \text{H} \quad \text{H} \end{array} \right]_n$	1.09-1.20	Thermosets	
Polyamide	PA	$\left[ \begin{array}{c} \text{H} \quad \text{H} \quad \text{H} \quad \text{H} \quad \text{H} \quad \text{O} \\   \quad   \quad   \quad   \quad   \quad    \\ \text{---N---C---C---C---C---C---C---} \\   \quad   \quad   \quad   \quad   \quad   \\ \text{H} \quad \text{H} \quad \text{H} \quad \text{H} \quad \text{H} \quad \text{H} \end{array} \right]_n$ for Nylon 6	1.02-1.16	220	
Polyester	PES	$\left[ \begin{array}{c} \text{O} \quad \text{O} \quad \text{H} \quad \text{H} \\    \quad    \quad   \quad   \\ \text{---O---C---C}_6\text{H}_4\text{---C---O---C---C---} \\   \quad   \\ \text{H} \quad \text{H} \end{array} \right]_n$	1.24-2.3	Thermosets	

<sup>a</sup> according to Sun et al. (2019)<sup>b</sup> according to Scalenghe (2018) and PlasticsEurope (2018)

플라스틱 쓰레기는 크기에 따라 분류하는데, 5 mm에서 1 μm 사이의 크기를 미세플라스틱(micropastics, MPs)이라고 정의하며, 일부 연구자는 1~5 mm의 밀리미터 크기의 미세플라스틱을 Large-MPs(L-MPs), 1 mm 이하를 Small-MPs(S-MPs)로 세분하기도 한다(Fig. 1). 의도적으로 5 mm 이하의 크기로 제조된 1차(primary) 미세플라스틱과 5 mm 이상의 중대형 플라스틱(meso- or macropastics)이 파쇄, 분해되면서 작아진 2차(secondary) 미세플라스틱으로 구분된다. 현미경으로 관찰이 가능한 크기로 구형(sphere), 파편(fragment), 섬유상(fiber), 필름(film), 판상 조각(flake) 등 환경 중 다양한 형태로 존재하며, 합성섬유의 조각, 페인트 등 코팅표면에서 떨어져

나온 조각, 자동차 타이어조각, 합성고무 또는 접착제 등의 탄성물질(elastomer) 또한 플라스틱으로 분류된다(Sun et al., 2019). 따라서, 미세플라스틱에 대한 연구는 화학적 조성 뿐만 아니라, 크기 및 형태에 대해서도 다양한 물질을 대상으로 한다.

전세계적으로 해양 플라스틱 쓰레기의 80%가 육상기원으로 평가되는데(Jambeck et al., 2015), 홍수 또는 건기 후 첫번째 강한 강우 시 하구로 배출되는 플라스틱의 양이 급증하는 것으로 보고되고 있다(Horton et al., 2017). 강우 시 지표 유출과 함께, 하수처리장 방류수가 육상의 담수환경에서 플라스틱의 주된 유입 경로로 이해되고 있다(Alimi et al., 2018; Horton et al., 2017). 토양 및



**Fig. 1.** Classification of plastic debris and density comparison of various plastics with solutions used for floating separation. Densities of plastics and solutions used for density separation were referenced from Prata et al. (2019), Sun et al. (2019), and Stock et al. (2019). Plastics in dotted boxes are widely used as fiber. Shaded area infers the boundary which is various according to researchers.

퇴적토 내에서 플라스틱은 저장(storage) 또는 지체(retention) 된다고 보는 견해가 대부분이다. 그러나, 매질보다 훨씬 더 작은 입자 크기(나노~수십마이크로)로 확장하여 생각해본다면, 플라스틱의 이동성은 전혀 다른 문제가 될 수 있다(Alimi et al., 2018). 나노 크기에서는 응집(aggregation)이 입자의 이동성에 큰 영향을 미친다. 따라서, 마이크론 크기의 미세플라스틱이나 초미세플라스틱(nanoplastics)은 다른 입자의 표면에 부착되는 hetero-aggregation에 의해 다공성 매질 내에 머물거나, homo-aggregation에 의해 용액 내 입자 크기(hydrodynamic diameter)가 증가하여 이동이 저해될 수 있다(Li et al., 2018; Lu et al., 2018). 그러나 최근, 지하수에서 미량의 미세플라스틱이 검출됨에 따라(Mintenig et al., 2019; Panno et al., 2019), 지중환경에서 미세플라스틱의 이동 가능성에 대한 의문이 제기되고 있다.

환경 중 미세플라스틱의 유해성은 입자 자체로 위협일 뿐 만 아니라, PAHs(polycyclic aromatic hydrocarbons), PCBs(polychlorinated biphenyls), 의약품( pharmaceuticals), 중금속류 등 다른 오염물질을 흡착하여 이동하는 수용체(carrier)로서 기능하는 문제점이 있다(Hodson et al., 2017; Razanajatovo et al., 2018; Smedes et al., 2017; Wang et al., 2018). 뿐만 아니라, 플라스틱의 개질을 위해 주입한 HBCD(Hahladakis et al., 2018; Jang et al., 2016), Zn, Pb(Wagner et al., 2018) 등 첨가제가 플라스틱의 변질 및 분해(degradation) 과정에서 녹아 나와 유해물질 배출원이 되기도 한다. 따라서, 지중환경에서 미세플라스틱의 유해성에 대한 면밀한 검토가 요구된다.

본 논문은 문헌 연구를 통해 1) 지중환경 내 미세플라

스틱 오염 현황과 현황 파악에 어려움을 주는 요인에 대한 검토, 2) 미세플라스틱 거동 모델링의 현황 및 추후 연구가 필요한 부분에 대한 제언을 목표로 한다. 결과적으로, 최근 많은 관심이 집중되고 있는 전 지구적 미세플라스틱 오염 문제에 대해, 지중환경의 관점에서 어떤 접근이 가능한지 제시하고자 한다.

## 2. 지중환경 내 미세플라스틱 오염 현황

현재까지 미세플라스틱에 대한 연구는 주로 해양과 생물을 대상으로 이루어져 왔다(Jambeck et al., 2015). 최근 육상환경에 대한 관심이 높아지고 있지만, 대부분 담수에 초점을 맞추고 있으며 토양, 지하수 등 지중환경에 대한 연구결과는 아직 소수에 불과하다(He et al., 2018; Horton et al., 2017). 이마저도 대부분 연구 필요성이나 미세플라스틱의 분석적 한계를 다루는 총설이나 실내실험 및 수치모델연구가 대다수이고, 오염현황을 실제로 조사한 논문이나 이에 대한 총설은 부족한 실정이다. 본 연구에서는 실제 현장에서 채취한 토양 및 지하수에 대한 조사 결과 미세플라스틱을 검출하여 보고한 연구논문을 요약하였다.

### 2.1. 오염원

Bläsing and Amelung(2018)는 토양 환경의 주요 플라스틱 오염원으로, 1) 토양 개질제(amendments), 2) 농업용 덮개비닐(mulching plastics), 3) 오염된 관개수의 사용과 범람, 4) 쓰레기 투기와 지표 유출(runoff), 5) 대기 기원(atmospheric fallout) 등을 제시하였다. 하수와 함께

유입된 미세플라스틱은 하수처리과정에서 88% 이상 제거 되는데(Sun et al., 2019), 이때, 제거된 미세플라스틱을 함유한 하수 슬러지(sewage sludge)가 농업용으로 재활용 되면서 농업토양환경에서 중요한 미세플라스틱 오염원으로 거론되고 있다(Corradini et al., 2019; Nizzetto et al., 2016a). 이 외에도, 미세플라스틱으로 오염된 거름(biowaste composts)(Ng et al., 2018), 비닐덮개, 하우스 비닐 등 농업용으로 사용된 플라스틱의 파편(He et al., 2018; Steinmetz et al., 2016), 타이어 분진(tire wear particles, TWP)과 페인트 조각 등 교통인프라 기원(Unice et al., 2019; Wagner et al., 2018), 섬유 등 대기 기원(atmospheric fallout)(Prata, 2018; Rezaei et al., 2019; Scheurer and Bigalke, 2018)이 토양의 미세플라스틱 오염원으로 거론되고 있다.

## 2.2. 농업토양

슬러지나 거름 같이 미세플라스틱이 함유된 시비를 하지 않으며 농업용 비닐을 사용하지 않는 독일 남부 농경지 토양에 대한 연구(Piehl et al., 2018)에서는  $0.34 \pm 0.36$ 개/kg의 플라스틱이 검출되었다. 재질은 PE>>PS>PP 순으로 필름과 파편이 주요 형태였다. Corradini et al. (2019)은 농업용으로 활용되는 슬러지에 대한 기록이 잘 남아있는 칠레 Metropolitana 지역의 Mellipilla에서 슬러지 시비 횟수가 다양한 31개 지점을 선정하여, 슬러지 시비가 토양의 미세플라스틱 오염에 미치는 영향을 연구하였다. 시비를 하지 않은 토양은 가장 낮은 미세플라스틱 농도(1 또는 3개/5 g), 슬러지는 가장 높은 170개/5 g(중앙값)를 나타냈으며, 토양은 두 값 사이에서 시비 횟수에 따라 증가하는 경향을 나타냈다. 관찰된 미세플라스틱의 형태는 슬러지에서 섬유상의 비율이 90%, 토양에서 97%로 매우 우세하였으며, 나머지의 58%는 필름이었다.

Lv et al.(2019)는 농경지 내 물-토양-수생동물에 존재하는 미세플라스틱의 분포에 대해 연구를 수행하였다. 그 중, 토양에서  $10.3 \pm 2.2$ 개/kg의 미세플라스틱이 검출되었으며, 크기는 대부분 1 mm 이하로 섬유상 PE 또는 PP였다. 중국 상해 주변 농경지 토양에서 두 심도(0~3 cm, 3~6 cm)에 대한 플라스틱의 분포 조사 결과(Liu et al., 2018), 상부토양에서는  $78.00 \pm 12.91$ 개/kg, 하부토양에서는  $62.50 \pm 12.97$ 개/kg의 미세플라스틱이 검출되었다. 모양은 섬유상, 파편, 필름 형태로 색상은 대부분 검정 또는 투명, 재질은 PP가 50.51%, PE가 43.43%였다. 검출된 플라스틱의 약 50%가 1 mm 이하의 크기였는데, 하부토양에서 더 큰 비율을 나타내는 것으로 보고되었다. 중국

남서부 농경지 4곳과 Dian 호수와 숲 사이의 전이대에서 0~5 cm, 5~10 cm 심도의 토양을 채취, 분석한 결과(Zhang and Liu, 2018), 7,100~42,960개/kg의 플라스틱이 검출되었다. 이 중 95%가 0.05~1 mm 크기로 모양은 섬유상이 가장 우세하였으며, 토양이 작게 뭉쳐진 덩어리에서 섬유상 미세플라스틱의 비율이 일반 토양에 비해 크게 나타났다.

Rezaei et al.(2019)은 이란의 건조기후 지역인 Fars Province에서 바람에 쉽게 날아갈 수 있는 저밀도 플라스틱에 대한 연구를 수행하였다. 깊이 0~10 cm의 토양 11개 지점에서 샘플을 채취하여 분석한 결과, 6개 지역(주로, 농경지)에서 67~400개/kg의 저밀도 플라스틱이 관찰되었다. 바람에 의한 이동성을 평가하기 위해 토양에 10 분간 12 m/s의 바람을 불어준 후, 날아가서 다른 위치에 퇴적된 시료를 분석한 결과에서는 67~1,133개/kg의 플라스틱이 검출되었다. 이때, 검출된 저밀도 플라스틱의 크기는 40~740  $\mu$ m 사이로, 대기 중 부유가 잘 되는 100  $\mu$ m 이하 크기가 대부분이었다.

## 2.3. 도시 및 산업지역 토양

호주 시드니 산업지역에서 총 염소 함량이 매우 높지만 수용성 염소 함량은 낮게 나타나는 토양에 대한 FT-IR (Fourier-Transform Infrared Spectroscopy) 분석결과, 대부분의 토양 샘플에서 PVC와 일치하는 피크가 검출되었다(Fuller and Gautam, 2016). 15개 토양 샘플에 대한 총량분석 결과, 0.03~6.7%의 미세플라스틱이 함유된 것으로 보고되었다. Kim et al.(2017)은 한국 M시 포장도로 변에 대한 연구를 수행하였는데, 5개 지점에서 채취한 분진 시료를 106  $\mu$ m 및 300  $\mu$ m 체를 이용해 두 그룹으로 구분하여 분석하였다. 분리된 미세플라스틱의 92% 이상이 검정색 조각으로 FT-IR 분석 결과 타이어분진으로 확인되었다. 농도는 300  $\mu$ m 이상 크기에서  $4.8 \times 10^2 \sim 1.2 \times 10^4$  개/m<sup>2</sup>, 106~300  $\mu$ m 크기에서는  $5.7 \times 10^4 \sim 3.3 \times 10^5$  개/m<sup>2</sup>로 확인되었다.

## 2.4. 수변토양

스위스의 29개 범람원 토양에 대한 연구(Scheurer and Bigalke, 2018)에서는 90% 가량에서 미세플라스틱 오염이 관찰되었다. 농도는 최대 55.5 mg/kg 및 593개/kg까지 검출되었으며 재질은 PE가 우세하였다(특히, 1 mm 이하 크기에서). 미세플라스틱 농도는 유역 인구와 상관관계를 나타냈는데, 대기 중 확산을 통한 이동(diffuse aeolian transport)을 주요 오염경로로 추정하였다.

해변 토양은 해양의 일부로서, 지중환경에 비해 많은 분

석결과를 찾아볼 수 있다. 본 논문에서는 최근의 연구결과 중 두 건을 소개하고자 한다. Eo et al.(2018)은 한국의 동, 서, 남해안 20개 모래 해변을 대상으로 미세플라스틱 분석 연구를 실시하였는데, 1~5 mm 크기의 L-MPs는 0~2,088개/m<sup>2</sup>, 0.02~1 mm 크기의 S-MPs는 1,400~62,800개/m<sup>2</sup> 검출을 보고하였다. 크기 분포를 분석한 결과, 전체 검출된 미세플라스틱의 81%가 300 µm 이하였고, 100~150 µm가 가장 높은 빈도를 나타냈다. 재질 분석 결과, S-MPs는 49%가 PE, 38%가 PP였으나, L-MPs는 95%가 EPS로 연안 양식업이 활성화된 국내 특성이 반영된 결과를 나타냈다. 중국 Shandong 지역 53개 해변 조건대에서 채취한 토양 분석결과(Zhou et al., 2018)에서는 1.3~14,712.5개/kg의 미세플라스틱이 검출되었으며, S-MPs가 60% 가량을 차지하였다. 한국 모래해변과 유사하게, 100~250 µm 크기가 가장 큰 비율을 나타냈다.

### 2.5. 지하수

최근 음용수 내 미세플라스틱 검출이 중요한 이슈로 대두되면서 음용수 처리과정 중 미세플라스틱의 유입과정을 추적하는 연구가 다수 이루어졌다(Koelmans et al., 2019; Mintenig et al., 2019; Novotna et al., 2019). 그 중 한 연구는 지하수를 공급원으로 하는 음용수처리장(drinking water treatment plants; DWTPs)을 대상으로 하였다. Mintenig et al.(2019)은 독일 북서부지역에 공급되는 천부지하수 기원의 음용수 처리공장 5곳에서 유입수와 각 단계별 처리수를 채취하여 분석한 결과, 24개 시료 중 10개에서 50~150 µm 크기의 미세플라스틱이 최대 7 개/m<sup>3</sup> 검출되었다고 보고하였다. 대부분의 시료에서 검출된 미세플라스틱은 파편 형태로 저장탱크, 파이프 등에 사용된 재질과 동일한 PES, PVC, PA, 에폭시 레진으로 밝혀졌다. 그러나, 지하수 양수정 3개 지점 중 한 곳에서는 해당 지점의 물접촉 부품에 사용되지 않은 PE가 검출되었다.

지하수 내 미세플라스틱의 검출과 연관된 또 다른 사례는 미국 일리노이주의 대표적 카르스트지역인 Salem Plateau와 Driftless Area에 대한 연구이다(Panno et al., 2019). 14개 샘(spring)과 3개 천부지하수 관측공에서 채취한 지하수 분석 결과, 최대 15.2개/L, 중앙값 6.4개/L의 섬유상 미세플라스틱이 검출되었으며, 일부에 대한 정성 분석결과 재질은 PE로 확인되었다. 다른 오염물질과의 상관관계 분석을 통해 정화조 유출수(septic effluent) 기원으로 추정하면서, 썩고홀이 있는 카르스트 지역에서 미세플라스틱의 오염경로에 대한 추가적 연구가 필요함을 제시하였다.

### 3. 지중환경 내 미세플라스틱 분석

환경 중 미세플라스틱의 농도는 단위부피(토양의 경우, 질량 또는 면적) 당 총량(질량) 또는 입자의 개수로 나타낸다. Pyrolysis GC-MS(gas chromatography mass spectrometry)를 이용해 총량분석을 실시하는 경우에는 개별 입자의 크기, 재질 등의 정보를 획득할 수 없기 때문에, 현미경 관찰을 통해 입자의 크기, 형태 및 색, 개수에 대한 정보를 획득한 후, 개별 입자에 대한 정성분석을 실시하는 방법이 주로 사용되고 있다(Prata et al., 2019; Shim et al., 2017). 정성분석에는 µ-FT-IR 또는 Raman spectroscopy가 사용되는데, 개별입자의 크기가 어느 정도 이상으로 커야(주로, 20~50 µm 이상) 분석이 가능하다(Novatna et al., 2019; Shim et al., 2017; Wang and Wang, 2018). 광학적 분석법이기에 때문에, 플라스틱 자체 색상이 간섭을 일으키거나 빛을 흡수하여 분석이 불가능한 경우가 발생하며(Shim et al., 2017), 변질된 경우 표준물질(reference material)과 matching rate가 낮아지는 문제점이 있다(Wang et al., 2017). 검정색인 타이어분진의 경우에는 총량분석을 하고, Zn, benzothiazole 등 특정 성분의 marker 농도를 이용해 교차 검증하는 것이 일반적이다(Wagner et al., 2018).

미세플라스틱의 분석은 실험자가 모든 과정을 진행하기 때문에, 시험자 간 편차가 발생하고 많은 시간과 노동력이 요구된다. 이런 요인이 실제 현장에 대한 미세플라스틱의 조사를 어렵게 하는데, 더욱 큰 문제는 현존하는 약간의 연구결과 마저도 연구그룹마다 다양한 시료채취 및 분석방법을 사용하고 있어 상호간의 비교나 종합적 해석에 어려움을 야기한다는 점이다(He et al., 2018). 표준화된 규격의 필요성에 대한 공감대가 이루어지고 있는 물 분석 분야와 마찬가지로, 토양 시료 역시 시료채취 및 전처리 방법의 다양성 문제가 있다(Fig. 2).

연구자 간 가장 큰 차이점 중 하나가 토양 내 채취 심도이다. 해안이나 도로변에 대한 연구에서는 단위면적 당 미세플라스틱의 양으로 결과를 표현하였는데(Eo et al., 2018; Kim et al., 2017; Zhou et al., 2018), 이 중 Eo et al.(2018)의 방법을 구체적으로 살펴보면 다음과 같다. 해안선과 평행한 100 m 길이의 선 3개에서 25 m 간격으로 0.5 × 0.5 m 소형 방형구를 놓아둔 후, 심도 25 mm 이내의 모래를 채취하여 체질(sieving)을 통해 시료를 채취하였다. 반면에, Liu et al.(2018)은 3 cm 간격으로 두 심도, Zhang and Liu(2018)는 5 cm 간격으로 두 심도, Rezaei et al.(2019)은 10 cm 심도의 토양을 채취하였고,

STEP	Sample collection	Pretreatment		Analysis	
		Organic removal	Separation	Quantification	Qualification
Variations	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Location</li> <li>• Depth</li> <li>• Sample volume</li> <li>• Tool (mesh size)</li> </ul>	Solutions <ul style="list-style-type: none"> <li>• H<sub>2</sub>O<sub>2</sub></li> <li>• Acid or alkaline</li> <li>• Fenton or enzyme</li> </ul>	Flootation <ul style="list-style-type: none"> <li>• Saturated NaCl</li> <li>• NaI</li> <li>• ZnCl<sub>2</sub></li> </ul>	Counting number <ul style="list-style-type: none"> <li>• Microscope</li> <li>• SEM</li> </ul> Weight by GC-MS	<ul style="list-style-type: none"> <li>• FT-IR</li> <li>• Raman spectroscopy</li> </ul>
	NEED: Standardization & Development			Improvement	

Fig. 2. Schematic diagram for the analytical procedures of plastics and the variations occurring in each step.

Corradini et al.(2019)은 오거를 이용해 25 cm 심도의 시료를 채취하였다.

시료를 채취한 후에는 미세플라스틱 이외의 방해물질을 제거하기 위해서 전처리를 실시한다. 우선, biofilm 등 유기물을 과산화수소, 산, 또는 염기용액 등을 이용해 제거하는데, 이 과정에서 방해물질이 충분히 제거되지 않을 수 있다(Prata et al., 2019; Sun et al., 2019). 처리를 위해 강력한 화학처리를 실시하는 경우에는 미세플라스틱이 녹거나 변질되는 문제가 발생할 수 있다. 토양이나 퇴적토 내 미세플라스틱은 밀도차를 이용한 분리가 주로 사용된다(Prata et al., 2019; Stock et al., 2019). Table 1에 나타낸 바와 같이, PE 및 PP는 물보다 밀도가 작으므로, 물 또는 NaCl 용액에 넣으면 플라스틱은 용액 위에 뜨고, 모래나 점토 등의 매질은 가라앉아 분리가 가능하다. 밀도가 작은 PE, PP, PS 분리는 회수율이 좋지만, 밀도가 큰 PVC나 타이어분진, 아크릴 섬유 등을 분리해 내는 데에는 어려움이 있다(Corradini et al., 2019; Prata et al., 2019; Wagner et al., 2018).

미세플라스틱의 분석은 시료채취, 전처리, 분석까지 전 과정에 대한 표준화가 필요하며, 기술적으로 개발 또는 검증이 필요한 다양한 영역이 존재한다(Prata et al., 2019; Shim et al., 2017; Stock et al., 2019). 또 한가지 극복되어야 하는 부분은 전체 실험과정에서 발생할 수 있는 2차 오염의 문제이다. 플라스틱이 널리 사용되는 만큼, 대기 중 낙진, 실험과정에서 사용한 플라스틱 재질의 초자류 및 실험자의 옷에서 발생하는 합성섬유 조각, 실험 중 사용한 물과 시약 등에 포함된 미세플라스틱 모두가 정확한 분석을 어렵게 하는 오염물질이 된다. 따라서, 전 실험과정에서 바탕시료(control sample)를 이용한 보정이 요구된다(Prata et al., 2019).

#### 4. 미세플라스틱 거동 모델링

Fig. 3에 나타낸 바와 같이, 지중 환경에서 미세플라스

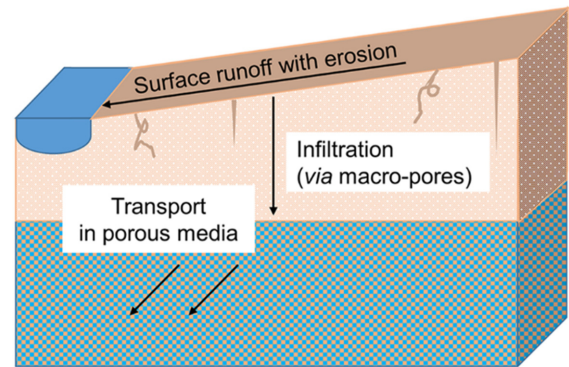


Fig. 3. Transport pathway of microplastics in soil and subsurface environment.

틱의 거동은 지표면 이동, 불포화대로의 침투(infiltration), 포화매질 내 이동으로 구분할 수 있다. 토양 내 집적된 미세플라스틱이 강우 시 지표 유출(surface runoff)을 통해 하천으로 유입되는 지표면 이동은 토양 침식과 퇴적토 이동에 관련된 이론들에 기반하여 모사할 수 있다(Nizzetto et al., 2016b). 반면, 불포화 및 포화 매질 내 미세 또는 초미세플라스틱의 거동 특성은 최근 십 수년 간 많은 성과를 이루어 낸 콜로이드(colloid) 또는 나노 입자(nanoparticles) 거동에 대한 연구 결과에 기반하여 연구가 시도되어지고 있다(Alimi et al., 2018; Hüffer et al., 2017). 콜로이드는 10 μm 이하 크기를 갖는 입자로, 미생물(microorganisms), 점토(clays)와 같이 자연환경 내 존재하는 콜로이드 입자(natural colloids)(DeNovio et al., 2004)와 산업적 목적으로 제조 및 사용되는 TiO<sub>2</sub>, 은나노 입자 등(Engineered nano particles, ENPs)이 포함된다(Hüffer et al., 2017). 콜로이드의 이동은 응집(aggregation)의 영향을 크게 받는데, 재료과학분야에서는 ENPs를 안정적으로 분산시키기 위한 분산제, 코팅제 또는 캡핑제(capping agent) 개발의 측면에서 많은 연구가 이루어졌다(He et al., 2019; Hüffer et al., 2017). 불포화대 토양에서 미세플라스틱의 수직적 이동은 몇가지 변수에 대한 실

협적 접근으로 연구가 이루어지고 있다(O'Connor et al., 2019; Rilling et al., 2017; Yu et al., 2019).

#### 4.1. 침식 후 지표면 이동

Nizzetto et al.(2016b)은 유역 내 퇴적토 이동 모델인 INCA-Sed(the Integrated Catchments model for Sediments) (Lazar et al., 2010)와 INCA-Contaminants에 기반하여 미세플라스틱의 물리적 이동을 모사하였다. 토양 내 거동에 초점을 맞추어 요약하자면, 매질 내 이동성 미세플라스틱의 양을  $MP_{store}$  [ $M/L^2$ ](여기서, M은 질량, L은 길이), 퇴적토와 함께 지표에서 이동할 수 있는 미세플라스틱 입자의 양을  $S_{TC}$ (overland flow transport capacity) [ $M/L^2 \cdot T$ ](여기서, T는 시간), 강우 시 빗방울이 부딪히면서 토양에서 떨어져 나오는 입자의 양을  $S_{SP}$ (splash detachment or erosion) [ $M/L^2 \cdot T$ ], 지표수에 의해 침식되는 양을  $S_{FL}$ (flow erosion) [ $M/L^2 \cdot T$ ]로 정의한 후, 각 시나리오에 대하여 미세플라스틱의 유입량과 유출량에 대한 mass balance 수식을 도출하였다. 이동 가능량( $S_{TC}$ )과 침식량( $S_{PL}$  및  $S_{FL}$ )의 관계에 따라 수식을 단순화하여 모사하였는데,  $S_{FL} > S_{TC}$  조건 시 미세플라스틱의 이동이  $S_{TC}$  값의 제한을 받으므로  $MP_{store}$ 는  $S_{SP}$ 의 영향을 크게 받으며,  $S_{TC}$ 가  $S_{PL}$ 과  $S_{FL}$ 의 합보다 큰 경우에는  $S_{PL}$ 과  $S_{FL}$ 의 합이 바로 유출량이 되고 이 값은  $MP_{store}$ 를 초과할 수 없다고 설정하였다. 미세플라스틱을 입자크기 및 밀도에 따라 몇 개의 그룹으로 나누어 각 그룹별로 mass balance를 맞추고, 그 결과를 영국의 Thames 강 유역 모델에 반영하여 토양 및 퇴적토에 지체(retention)되는 경향성을 파악하였다. 미세플라스틱을 1% 함유하는 하수 슬러지를 두 달에 한번씩, 1667 kg/km<sup>2</sup> 만큼 농경지에 시비하는 경우, 물보다 밀도가 큰 미세플라스틱의 16~38%가 유역 토양 및 퇴적토에 지체되는 결과를 도출하였다.

#### 4.2. 다공성 매질 내 Colloidal transport

콜로이드의 응집력은 콜로이드의 크기, 밀도, 표면 전하와 같은 입자적 특성과 이온 세기, pH와 같은 용액의 화학적 특성(water chemistry), 그리고 유속과 같은 수리동력학적 조건에 영향을 받는다(Alimi et al., 2018; Hüffer et al., 2017; Lu et al., 2018). 이때, 플라스틱의 한 종류인 구형 PS가 연구에 종종 사용되고 있다(Alimi et al., 2018; Lu et al., 2018). 대부분의 실험 조건은 고농도의 콜로이드 입자가 존재하는 경우로, homo-aggregation이 발생하여 hydrodynamic diameter가 증가하는 것이 관찰되었다. 그러나, 육상의 담수 및 지중 환경에서는 이

온 세기가 낮아 hetero-aggregation이 주요 반응이고, 콜로이드 농도 또한 낮으므로 homo-aggregation은 무시할 만하다고 판단된다(Alimi et al., 2018; Hüffer et al., 2017; Quik et al., 2014).

다공성 매질에서 입자가 공극보다 큰 경우에는 표면에 침전막(filter cake)을 형성하며 더 이상 이동하지 못하고 막힘(clogging)이 발생하지만, 이보다 작은 경우에는 매질 내 이동이 가능한데, 다공성 매질 평균입경의 5% 이하 크기의 입자는 이동이 가능하다고 알려져 있다(DeNovio et al., 2004; O'Connor et al., 2019). 다공성 매질 내 콜로이드 입자의 거동은 이송-분산 방정식(advection-dispersion or solute transport equations)으로 모사가 가능하며, 거동 특성은 filtration theory에 기반한 attachment rate coefficient와 straining에 따른 retention function을 추정하여 모사할 수 있다(Bradford et al., 2003; 2006; Dong et al., 2018; He et al., 2019).

콜로이드의 부착 특성은 반데르발스힘(van der Waals force)에 의한 당김(attraction)과 정전기적 반발(repulsion) 등을 조합한 Derjaguin-Landau-Verwey-Overbeek(DLVO) 이론으로 설명할 수 있는데, 콜로이드가 diffusion, interception, gravitational sedimentation에 의해 다공성 매질 표면(solid-water interface)으로 이동해 침전(deposition)되는 과정(mass transfer)을 다음과 같이 수학적으로 기술할 수 있다(Bradford et al., 2003; Šimůnek et al., 2008). First-order attachment rate coefficient( $k_a$ ) [ $T^{-1}$ ]은 다음과 같다.

$$k_a = \frac{3(1-\theta)}{2d_{50}} \eta \alpha \nu$$

여기서,  $\eta$ (dimensionless)는 매질의 특성을 나타내는 collector efficiency로서 수식에 따라 계산 가능하며,  $\alpha$ (dimensionless)는 sticking efficiency로서 주로 fitting 계수를 실험적 방법으로 도출한다.  $\theta$ (dimensionless)는 함수비(포화 매질의 경우 공극율),  $d_{50}$  [L]은 매질 입자의 반경 중앙값,  $\nu$  [L/T]은 공극 내 유속의 평균값이다.

시간  $t$  [T]와 이동거리  $x$  [L]에 따른 콜로이드의 농도 분포는 아래와 같은 이송-분산 방정식과  $k_a$ , first-order detachment rate coefficient( $k_d$ ) [ $T^{-1}$ ]를 이용해 모사할 수 있다.

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\rho \partial S}{\theta \partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - v \frac{\partial C}{\partial x}$$

$$\rho \frac{\partial S}{\partial t} = \theta k_a \psi C - k_d \rho S$$

여기서,  $C$  [ $N/L^3$ ](여기서,  $N$ 은 개수, number)와  $S$  [ $N/M$ ]는 용액 및 입자표면에서 콜로이드의 농도이고,  $\rho$  [ $M/L^3$ ]는 토양의 들밀도(bulk density)이다.  $\psi$ (dimensionless)는 retention 특성을 나타내는 blocking function으로, 이동거리( $x$ )와 시간( $t$ )의 함수로 표현된다.

$$\psi = \left(1 - \frac{S}{S_{max}}\right) \left(\frac{d_{50} + x}{d_{50}}\right)^{-\beta}$$

깨끗한 매질의 초기조건에서  $\psi=1$ 이지만, 시간이 지남에 따라 매질 표면에 콜로이드의 부착정도가 달라지면서  $\psi$ 가 변동한다. 예를 들어, 매질 내 특정 site에 콜로이드의 부착량이 증가하면(blocking) 부착 속도가 감소되고, 반대로 콜로이드 상호 간 끌어당기는 힘이 우세할 때에는 ripening이 발생하여 부착 속도가 증가하는 등 시간에 따른 변동을 반영한다.

Bradford et al.(2003, 2006)은 straining 과정을 고려한 수치모델(Hydrus-1D)이 실내실험결과를 더욱 잘 설명할 수 있다고 제시하였다. 육상의 지중 환경은 부착을 선호하지 않는 환경조건, 즉, 이온 세기가 작고 매질과 콜로이드 모두 음의 표면 전하를 나타내 입자 사이에 에너지 장벽(energy barrier)이 존재하는 경우가 많음에도 불구하고 콜로이드의 이동성이 증가하지 않는데, 그 이유는 straining의 영향이 크기 때문이라고 강조하였다(Bradford et al., 2006). 실험을 통해, 콜로이드 입자 크기( $d_p$ )와 매질의 입경 중앙값( $d_{50}$ ) 비율이 약 0.005 이상일 때 straining의 영향이 매우 커지는 것이 밝혀졌다(Bradford et al., 2003).

위의 콜로이드 이동 모델에는  $\theta$ ,  $d_{50}$ ,  $v$  등이 단일 상수로 반영되는데, 함수율이 공간적 분포를 갖는 불포화대, 공극의 모양이 다양하거나 공극률 산포가 넓은 경우, 선택적 유동 경로에 따른 유속 다양성 등 영향 인자의 다양성을 반영하는 연구가 이루어지고 있다(Bradford et al., 2009; Bradford and Leij, 2018).

#### 4.3. 불포화대 수직적 이동

함수율을 변수로 하는 조건에서 다공성 매질 내 colloidal transport에 대한 수치모델의 개발 이외에도, 불포화대에서는 몇가지 변수에 대한 실험적 접근이 이루어지고 있다. O'Connor et al.(2019)은 다양한 크기의 구형 PE와 PP를 이용해 강우에 따른 토양 내 투과 깊이(penetration depth)를 컬럼시험으로 도출하였다. 이때, 건설용 모래를 구입하여 불순물과 유기물을 제거한 후, 컬럼 내 균질하게 채워 실험에 사용하였다. 1년간 강우량에

대한 모사 실험 후 PE와 PP의 침투정도를 분석하였는데, PE보다 밀도가 작은 PP의 경우에 침투율이 매우 적음을 보고하였다. PE는 4가지 크기(21, 181, 349, 535  $\mu m$ )의 입자를 실험에 사용하였는데, 매질의  $d_{50}$  대비 입자 크기가 5.5% 수준인 21  $\mu m$  PE가 가장 깊은 투과 심도를 나타냈다. 강우 패턴에 대해서는 wet-dry cycling이 있을 때 수직적 이동이 크게 증가하였다. 실험결과를 바탕으로 중국 내 347개 도시의 토양 및 기후조건에 따른 100년 투과 심도를 계산했을 때, PE의 95%가 2.78~7.70 m 심도까지 침투하는 것으로 추정되었다.

토양을 매개로 살아가고 있는 다양한 생물은 토양 내 물질 이동에 영향을 미칠 수 있다. 이 중, 굴(bio-pores)을 만들며 이동하는 지렁이(earthworm), 톱토기(stringtail) 등 작은 생물이 미세플라스틱의 이동에 중요한 인자가 될 수 있음이 여러 연구자에 의해 제기되었다(Chae and An, 2018; Kim and An, 2019; Rilling et al., 2017; Yu et al., 2019). 토양 표층을 서로 다른 크기의 PE로 오염시킨 후 지렁이를 키웠을 때 미세플라스틱이 토양의 하부로 이동하였으며, 입자의 크기가 작을수록 하부로의 이동이 연장되었다(Rilling et al., 2017; Yu et al., 2019). 또한, 40~50cm 토양층에 지렁이를 배양하고 배수 실험을 실시한 결과, 미세플라스틱의 유출이 확인되었다(Yu et al., 2019). 따라서, 지중환경 내 존재하는 생물은 미세플라스틱을 직접 이동시키거나 토양의 구조를 변형시켜 미세플라스틱의 하부 이동을 촉진시키는 것으로 추정된다(Chae and An, 2018).

생물 외에도 균열 및 macro-pore를 생성하는 다양한 기작, 예를 들면 카르스트지형이나 암반의 풍화 등이 미세플라스틱의 수직적 이동에 영향을 미칠 수 있다. 이와 같은 매질의 불균질성을 모사하고, 여기에서 미세플라스틱의 거동까지 함께 모사하는 것은 현재 수준에서 도전적인 영역이다. 그러나, 여러 실험적 결과가 미세플라스틱이 이동할 수 있음을 보여주는 만큼, 적절한 모델의 개발이 요구된다.

#### 4.4. 미세플라스틱의 고유한 거동 특성

입자적 특성을 갖는 퇴적토, 콜로이드, ENPs의 이동 특성을 분석한 기존 연구들은 미세플라스틱의 이동 특성을 이해하는데 기본이 되는 중요한 지식을 제공한다. 하지만, 미세플라스틱은 이들과는 다른 고유한 특성을 갖기 때문에, 기존 연구로부터 획득한 지식을 확대 적용할 때 주의를 기울여야 한다. 미세플라스틱의 거동 평가를 위해 차용한 토양침식모델 또는 콜로이드 거동모델의 원래 목적



물질인 퇴적토 또는 자연적 콜로이드의 농도는 환경 중 미세플라스틱의 농도와는 큰 차이가 있다. 또한, 콜로이드 입자의 hydrodynamic diameter에 영향을 미치는 표면전하하는 미세플라스틱의 화학적 조성 및 형태의 다양성으로 인해 매우 넓은 범위를 나타낼 수 있는데, 구형 PS의 경우에는 영전위점(zero point of charge)이 약 2.72로 중성 pH 영역에서 음의 표면전하를 것으로 보고(Li et al., 2018)된 바 있다. 뿐만 아니라, 대부분의 ENPs와 미세플라스틱은 밀도 및 형태에 큰 차이가 있다. 예를 들어, 은 나노입자의 밀도는 10.5 g/cm<sup>3</sup>인데, Table 1에 나타난 플라스틱류의 밀도와 비교하면 약 10배까지 무겁다. 즉, 은 나노입자와 동일한 질량을 갖는 미세플라스틱은 은나노입자보다 크기가 훨씬 더 크기 때문에, 부착 안정성이 떨어지고 침전 속도가 느려지는 등 거동 특성이 달라진다(Hüffer et al., 2017). ENPs와 미세플라스틱 이동 특성에 대한 유사점과 차이점은 Hüffer et al.(2017)의 논문에 자세하게 기술되어 있다.

이론적 또는 실험적 미세플라스틱 이동 특성에 대한 연구는 이제 막 시작되는 단계로, 실제 지중환경에서 미세플라스틱의 거동에 영향을 미치는 요소들의 다양성을 충분히 반영하지 못하고 있다. 재질 면에서 PS 및 PE, 형태 면에서 구형 위주로 이동 특성에 대한 연구가 진행되었기 때문에(Alimi et al., 2018), 다른 밀도와 형태를 나타내는 다양한 미세플라스틱을 설명하기에 어려움이 있다. 또한, 환경시료에서 실질적으로 분석 가능한 미세플라스틱의 크기는 약 20 µm 이상으로(Novatna et al., 2019), 나노 크기의 초미세플라스틱에 대한 검출 보고는 없다(Alimi et al., 2018). 콜로이드 거동모델 수립을 위한 실험에는 최대 3.2 µm 크기의 입자를 사용하였는데(Alimi et al., 2018), 실제 환경 중 검출 가능한 미세플라스틱의 이동을 모사하는데 이 모델을 적용할 경우 검증에 한계가 있다.

## 5. 결론 및 제언

토양환경에서 플라스틱 쓰레기의 총량은 플라스틱 생산 및 사용량의 증가에 따라 필연적으로 증가할 것으로 추정된다. 토양 내 저장 또는 지체된 플라스틱은 시간의 흐름에 따라 풍화 또는 분해되어 크기가 작아지고 형태와 표면 특성이 달라질 수 있다(Ahmed et al., 2018). 이렇게 농도가 높아지고 입자 크기가 작아지면, 다공성 매질 내 미세플라스틱의 이동가능성이 높아진다. 또한, 지질학적 영향, 기후 및 생물의 영향, 인간활동의 영향으로 지중환

경 내 균열 및 거대 공극이 생성되면 더 큰 미세플라스틱의 이동이 발생할 수 있다. 현재까지의 연구결과에서도, 지중환경 내 미세플라스틱의 이동은 충분히 의심 가능한 상황이다. 그러나, 대부분의 연구결과가 농업토양 또는 해안토양을 대상으로 하고 있으며 검출된 미세플라스틱 대부분이 밀도가 작은 PE, PP, PS에 치중되어 있어, 도시 및 산업지역의 토양과 밀도가 높은 미세플라스틱의 존재량에 대한 검증이 필요하다. 반면, 미세플라스틱의 거동모델은 실제 지중환경에서 검출되는 미세플라스틱의 형태, 크기, 농도 수준에 맞춰 추가적인 개발이 필요하며, 모델 결과를 검증할 수 있는 방안의 고안이 요구된다. 본 논문은 미세플라스틱의 이동가능성에 초점을 맞추어 기술하였으나, 실제 지중환경에서 미세플라스틱의 위해성은 입자의 이동성 뿐만 아니라, 미세플라스틱의 변질과정에서 유출되거나, 미세플라스틱에 흡착되어 하천으로 유입되거나 토양 내 고농도로 집적되는 유해물질에 의해 발생할 수 있다. 지중환경에서 미세플라스틱의 위해성에 대한 다양한 시각에서의 연구가 이루어지길 기대한다.

## 사 사

본 연구는 한국연구재단(과제번호 NRF-2017R1D1A1B03032321), 환경부 “지중환경오염-위해관리기술개발사업(과제번호 2018002440003)”, 2018학년도 연세대학교 미래선도연구사업(2018-22-0092)으로부터 연구비를 지원받아 수행하였습니다. 이에 감사 드립니다.

## References

- Ahmed, T., Shahid, M., Azeem, F., Rasul, I., Shah, A.A., Noman, M., Hameed, A., Manzoor, N., Manzoor, I., and Muhammad, S., 2018, Biodegradation of plastics: current scenario and future prospects for environmental safety, *Environ. Sci. Pollut. Res.*, **25**, 7287-7298.
- Alimi, O.S., Budarz, J.F., Hernandez, L.M., and Tufenkji, N.T., 2018, Microplastics and nanoplastics in aquatic environments: Aggregation, deposition, and enhanced contaminant transport, *Environ. Sci. Technol.*, **52**, 1704-1724.
- Bläsing, M. and Amelung, W., 2018, Plastics in soil: Analytical methods and possible sources, *Sci. Total Environ.*, **612**, 411-435.
- Bradford, S.A., Simunek, J., Bettahar, M., van Genuchten, M.T., and Yates, S.R., 2003, Modeling colloid attachment, straining, and exclusion in saturated porous media, *Environ. Sci. Technol.*, **37**, 2242-2250.

- Bradford, S.A., Simunek, J., Bettahar, M., van Genuchten, M.T., and Yates, S.R., 2006, Significance of straining in colloid deposition: Evidence and implications, *Water Resour. Res.*, **42**, W12S15.
- Bradford, S.A., Torkzaban, S., Leij, F., Šimunek, J., and van Genuchten, M.T., 2009, Modeling the coupled effects of pore space geometry and velocity on colloid transport and retention, *Water Resour. Res.*, **45**, W02414.
- Bradford, S.A. and Leij, F.J., 2018, Modeling the transport and retention of polydispersed colloidal suspensions in porous media, *Chem. Eng. Sci.*, **192**, 972-980.
- Chae, Y. and An, Y.J., 2018, Current research trends on plastic pollution and ecological impacts on the soil ecosystem: A review, *Environ. Pollut.*, **240**, 387-395.
- Corradini, F., Meza, P., Eguiluz, R., Casado, F., Huerta-Lwanga, E., and Geissen, V., 2019, Evidence of microplastic accumulation in agricultural soils from sewage sludge disposal, *Sci. Total Environ.*, **671**, 411-420.
- DeNovio, N.M., Saiers, H.E., and Ryan, H.N., 2004, Colloid movement in unsaturated porous media: Recent advances and future directions, *Vadose Zone J.*, **3**, 338-351.
- Dong, Z., Qiu, Y., Zhang, W., Yang, Z., and Wei, L., 2018, Size-dependent transport and retention of micron-sized plastic spheres in natural sand saturated with seawater, *Water Res.*, **143**, 518-526.
- Eo, S., Hong, S.H., Song, Y.K., Lee, J., Lee, J., and Shin, W.J., 2018, Abundance, composition, and distribution of microplastics larger than 20 $\mu$ m in sand beaches of South Korea, *Environ. Pollut.*, **238**, 894-902.
- Fuller, S. and Gautam, A., 2016, A procedure for measuring microplastics using pressurized fluid extraction, *Environ. Sci. Technol.*, **50**, 5774-5780.
- G20, 2017, G20 Action Plan on Marine Litter, Hamburg 2017 G20, Germany.
- Hahladakis, J.N., Velis, C.A., Weber, R., Iacovidou, E., and Purnell, P., 2018, An overview of chemical additives present in plastics: Migration, release, fate and environmental impact during their use, disposal and recycling, *J. Haz. Mater.*, **344**, 179-199.
- He, D., Luo, Y., Lu, S., Liu, M., Song, Y., and Lei, L., 2018, Microplastics in soils: Analytical methods, pollution characteristics and ecological risks, *Trac-Trends Anal. Chem.*, **109**, 163-172.
- He, J., Wang, D., and Zhou, D., 2019, Transport and retention of silver nanoparticles in soil: Effects of input concentration, particle size and surface coating, *Sci. Total Environ.*, **648**, 102-108.
- Hodson, M.E., Duffus-Hodson, C.A., Clark, A., Prendergast-Miller, M.T., and Thorpe, K.L., 2017, Plastic bag derived-microplastics as a vector for metal exposure in terrestrial invertebrate, *Environ. Sci. Technol.*, **51**, 4714-4721.
- Horton, A.A., Walton, A., Spurgeon, D.J., Lahive, E., and Svendsen, C., 2017, Microplastics in freshwater and terrestrial environments: Evaluating the current understanding to identify the knowledge gaps and future research priorities, *Sci. Total Environ.*, **586**, 127-141.
- Hüffer, T., Praetorius, A., Wagner, S., van der Kammer, F., and Hofmann, T., 2017, Microplastic exposure assessment in aquatic environments: Learning from similarities and differences to engineered nanoparticles, *Environ. Sci. Technol.*, **51**, 2499-2507.
- Jambeck, J.R., Geyer, R., Wilcox, C., Siegler, T.R., Perryman, M., Andrady, A., Narayan, R., and Law, K.L., 2015, Plastic waste inputs from land into the ocean, *Science*, **347**, 768
- Jang, M., Shim, W.J., Han, G.M., Rani, M., Song, Y.K., and Hong, S.H., 2016, Styrofoam debris as a source of hazardous additives for marine organisms, *Environ. Sci. Technol.*, **50**, 4951-4960.
- Kim, K.-J., Lee, H.-S., and Kim, Y.-J., 2017, Distribution of microplastics on side of pavement in M city, *J. Kor. Soc. Urban Environ.*, **17**(4), 419-423.
- Kim, S.W. and An, Y.-J., 2019, Soil microplastics inhibit the movement of springtail species, *Environ. Int.*, **126**, 699-706.
- Koelmans, A.A., Nor, N.H.M., Hermesen, E., Kooi, M., Mintenig, S.M., and De France, J., 2019, Microplastics in freshwaters and drinking water: Critical review and assessment of data quality, *Water Res.*, **155**, 410-422.
- Lazar, A.N., Butterfield, D., Futter, M.N., Rankinen, K., Thouvenot-Korppoo, M., Jarritt, N., Lawrence, D.S.L., Wade, A.J., and Whitehead, P.G., 2010, An assessment of the fine sediment dynamics in an upland river system: INCA-Sed modification and implications for fisheries, *Sci. Total Environ.*, **408**, 2555-2566.
- Lehner, R., Weder, C., Petri-Fink, A., and Rothen-Rutishauser, B., 2019, Emergence of nanoplastic in the environment and possible impact on human health, *Environ. Sci. Technol.*, **53**, 1748-1765.
- Li, S., Liu, H., Gao, R., Abdurahman, A., Dai, J., and Zeng, F., 2018, Aggregation kinetics of microplastics in aquatic environment: Complex roles of electrolytes, pH, and natural organic matter, *Environ. Pollut.*, **237**, 126-132.
- Liu, M., Lu, S., Song, Y., Lei, L., Hu, J., Lv, W., Zhou, W., Cao, C., Shi, H., Yang, X., and He, D., 2018, Microplastic and mesoplastic pollution in farmland soils in suburbs of Shanghai, China, *Environ. Pollut.*, **242**, 855-862.
- Lu, S., Zhu, K., Song, W., Song, G., Chen, D., Hayat, T., Alharbi, N.S., Chen, C., and Sun, Y., 2018, Impact of water

- chemistry on surface charge and aggregation of polystyrene microspheres suspensions, *Sci. Total Environ.*, **630**, 951-959.
- Lv, W., Zhou, W., Lu, S., Huang, W., Yuan, Q., Tian, M., Lv, W., and He, D., 2019, Microplastic pollution in rice-fish co-culture system: A report of three farmland stations in Shanghai, China, *Sci. Total Environ.*, **652**, 1209-1218.
- Mintenig, S.M., Löder, M.G.J., Primpke, S., and Gerdt, G., 2019, Low numbers of microplastics detected in drinking water from ground water sources, *Sci. Total Environ.*, **648**, 631-635.
- Ng, E.L., Lwanga, E.H., Eldridge, S.M., Johnston, P., Hu, H.W., Geissen, V., and Chen, D., 2018, An overview of microplastic and nanoplastic pollution in agroecosystems, *Sci. Total Environ.*, **627**, 1377-1388.
- Nizzetto, L., Futter, M., and Langaas, S., 2016a, Are agricultural soils dumps for microplastics of urban origin?, *Environ. Sci. Technol.*, **50**, 10777-10779.
- Nizzetto, L., Bussi, G., Futter, M.N., Butterfield, D., and Whitehead, P.G., 2016b, A theoretical assessment of microplastic transport in river catchments and their retention by soil and river sediments, *Environ. Sci. -Process Impacts*, **18**, 1050-1059.
- Novotna, K., Cermakova, L., Pivokonska, L., Cajthaml, T., and Pivokonsky, M., 2019, Microplastics in drinking water treatment-Current knowledge and research needs, *Sci. Total Environ.*, **667**, 730-740.
- O'Connor, D., Pan, S., Shen, Z., Song, Y., Jin, Y., Wu, W.M., and Hou, D., 2019, Microplastics undergo accelerated vertical migration in sand soil due to small size and wet-dry cycles, *Environ. Pollut.*, **249**, 527-534.
- Panno, S.V., Kelly, W.R., Scott, J., Zheng, W., McNeish, R.E., Holm, N., Hoellein, T.J., and Baranski, E.L., 2019, Microplastic contamination in Karst groundwater systems, *Groundwater*, **57**(2), 189-196.
- Piehl, S., Leibner, A., Löder, M.G.L., Dris, R., Bogner, C., and Laforsch, C., 2018, Identification and quantification of macro- and microplastics on an agricultural farmland, *Sci. Rep.*, **8**, 17950.
- PlasticsEurope, 2018, Plastics the Fact 2018. An Analysis of European Plastics Production, Demand and Waste Data, PlasticsEurope, Brussels, Belgium.
- Prata, J.C. 2018, Airborne microplastics: Consequences to human health?, *Environ. Pollut.*, **234**, 115-126.
- Prata, J.C., da Costa, J.P., Duarte, A.C., and Rocha-Santos, T., 2019, Methods for sampling and detection of microplastics in water and sediment: A critical review, *Trac-Trends Anal. Chem.*, **110**, 150-159.
- Quik, J.T.K., Velzeboer, I., Wouterse, M., Koelmans, A.A., and van de Meent, D., 2014, Heteroaggregation and sedimentation rates for nanomaterials in natural waters, *Water Res.*, **48**, 269-279.
- Razanajatovo, R.M., Ding, J., Zhang, S., Jiang, H., and Zou, H., 2018, Sorption and desorption of selected pharmaceuticals by polyethylene microplastics, *Mar. Pollut. Bull.*, **136**, 516-523.
- Rezaei, M., Riksen, M.J.P.M., Sirjani, E., Sameni, A., and Geissen, V., 2019, Wind erosion as a driver for transport of light density microplastics, *Sci. Total Environ.*, **669**, 273-281.
- Rilling, M.C., Ziersch, L., and Hempel, S., 2017, Microplastic transport in soil by earthworms, *Sci. Rep.*, **7**, 1362.
- Scalenghe, R., 2018, Resource or waste? A perspective of plastics degradation in soil with a focus on end-of-life options, *Helvion*, **4**, e00941.
- Scheurer, M. and Bigalke, M., 2018, Microplastics in Swiss floodplain soils, *Environ. Sci. Technol.*, **52**, 3591-3598.
- Shim, W.J., Hong, S.H., and Eo, S.E., 2017, Identification methods in microplastic analysis: a review, *Anal. Methods*, **9**, 1384-1391.
- Šimůnek, J., van Genuchten, M.T., and Šejna, M., 2008, Development and applications of the HYDRUS and STANMOD software packages and related codes, *Vadose Zone J.*, **7**, 587-600.
- Smedes, F., Rusina, T.P., Beeltje, H., and Mayer, P., 2017, Partitioning of hydrophobic organic contaminants between polymer and lipids for two silicones and low density polyethylene, *Chemosphere*, **186**, 948-957.
- Steinmetz, Z., Wollmann, C., Schaefer, M., Buchmann, C., David, J., Tröger, J., Mu Muñoz, K., Frör, O., and Schaumann, G.E., 2016, Plastic mulching in agriculture. Trading short-term agronomic benefits for long-term soil degradation?, *Sci. Total Environ.*, **550**, 690-705.
- Stock, F., Kochleus, C., Bänsch-Baltruschat, B., Brennholt, N., and Reifferscheid, G., 2019, Sampling techniques and preparation methods for microplastic analyses in the aquatic environment-A review, *Trac-Trends Anal. Chem.*, **113**, 84-92.
- Sun, J., Dai, X., Wang, Q., van Loosdrecht, M.C.M., and Ni, B.-J., 2019, Microplastics in wastewater treatment plants: Detection, occurrence and removal, *Water Res.*, **152**, 21-37.
- Thompson, R.C., Olsen, Y., Mitchell, R.P., Davis, A., Rowland, S.J., John, A.W.G., McGonigle, D., and Russell, A.E., 2004, Lost at sea: Where is all the plastic?, *Science*, **304**, 838.
- Unice, K.M., Weeber, M.P., Abramson, M.M., Reid, R.C.D., van Gils, J.A.G., Markus, A.A., Vethaak, A.D., and Panko, J.M., 2019, Characterizing export of land-based microplastics to the estuary-Part I: Application of integrated geospatial microplastic transport models to assess tire and road wear particles in the Seine watershed, *Sci. Total Environ.*, **646**, 1639-1649.
- Wagner, S., Hüffer, T., Praetorius, A., Klöckner, P., Wehrhahn, M., Hofmann, T., and Reemtsma, T., 2018, Tire wear particles in the aquatic environment-A review on generation, analysis, occurrence, fate and effects, *Water Res.*, **139**, 83-100.

- Wang, J., Peng, J., Tan, Z., Gao, Y., Zhan, Z., Chen, Q., and Cai, L., 2017, Microplastics in the surface sediments from the Beijing River littoral zone: Composition, abundance, surface textures and interaction with heavy metals, *Chemosphere*, **171**, 248-258.
- Wang, F., Wong, C.S., Chen, D., Lu, X., Wang, F., and Zeng, E.Y., 2018, Interaction of toxic chemicals with microplastics: A critical review, *Water Res.*, **139**, 208-219.
- Wang, W. and Wang, J., 2018, Investigation of microplastics in aquatic environments: An overview of the methods used, from field sampling to laboratory analysis, *Trac-Trends Anal. Chem.*, **108**, 195-202.
- Waring, R.H., Harris, R.M., and Mitchell, S.C., 2018, Plastic contamination of the food chain: A threat to human health?, *Maturitas*, **115**, 64-68.
- Yu, M., van der Ploeg, M., Lwanga, E.H., Yang, X., Zhang, S., Ma, X., Ritsema, C.J., and Geissen, V., 2019, Leaching of microplastics by preferential flow in earthworm (*Lumbricus terrestris*) burrows, *Environ. Chem.*, **16**, 31-40.
- Zhang, G.S. and Liu, Y.F., 2018, The distribution of microplastics in soil aggregate fractions in southwestern China, *Sci. Total Environ.*, **642**, 12-20.
- Zhou, Q., Zhang, H., Fu, C., Zhou, Y., Dai, Z., Li, Y., Tu, C., and Luo, Y., 2018, The distribution and morphology of microplastics in coastal soils adjacent to the Bohai Sea and the Yellow Sea, *Geoderma*, **322**, 201-208.