

## 토양 내 미세플라스틱의 축적경로 및 분석기법 연구 동향

최형준\* · 안진성\*\*\* · 최석순\*\*\*,†

\*세명대학교 환경안전시스템공학과, \*\*세명대학교 바이오환경공학과  
(2020년 7월 16일 접수, 2020년 7월 23일 수정, 2020년 7월 23일 채택)

### Research Trend on the Accumulation Routes of Microplastics in Soil and Their Analytical Methodologies

Hyung-Jun Choi\*, Jinsung An\*\*\*, and Suk Soon Choi\*\*\*,†

\*Department of Environment Safety System Engineering, Semyung University, Jecheon 27136, Korea

\*\*Department of Biological and Environmental Engineering, Semyung University, Jecheon 27136, Korea

(Received July 16, 2020; Revised July 23, 2020; Accepted July 23, 2020)

#### 초 록

본 연구에서는 미세플라스틱의 토양 내 축적경로와 분포현황에 대해 살펴보고, 토양시료 내 미세플라스틱 분석기법을 요약 제시하였다. 토양으로부터 미세플라스틱을 분리해내는 밀도차 선별 및 방해물질 제거과정과 정성/정량분석 기법으로써 pyrolysis gas chromatography mass spectrometry,  $\mu$ -Raman spectrometry, fourier transform infrared spectrometry와 microscope 방법의 기본원리 및 분석의 한계점에 대해 살펴보았다. 미세플라스틱 매개 유해물질(첨가제 및 흡착물질)의 분석을 위한 화학적 추출방법을 인체 경구 섭취경로에 대한 *in vitro* 생물학적접근성 평가법을 중심으로 조사하였다. 본 연구에서 제시한 토양 중 미세플라스틱 분석기법의 원리를 바탕으로 매질상태, 오염수준 및 시료수량 등을 고려한 합리적인 분석기법의 선정이 가능하리라 기대된다.

#### Abstract

In this study, the accumulation and distribution routes of microplastics in soil environment were examined, and their analytical methodologies were summarized. Density separation and removal process of inhibition materials were introduced for the separation of microplastics in soil and the basic principles and limitations of quantitative and qualitative analyses including pyrolysis gas chromatography mass spectrometry,  $\mu$ -Raman spectrometry, fourier transform infrared spectrometry, and microscopes were investigated. Chemical extraction methods for the analysis of mediated hazardous substance (additives and sorbed matters) in microplastics were also discussed with focusing on *in vitro* bioaccessibility assay for the human oral exposure route. Based on the described methodologies for the analysis of microplastics in soil, it is expected that these methods enable to select appropriate analysis techniques in consideration of medium state, contamination level and sample quantity.

**Keywords:** Microplastics, Soil, Source, Pretreatment, Quantitative and qualitative analysis

## 1. 서 론

플라스틱(plastics)은 오일 또는 가스로부터 추출된 단량체(monomer)의 중합(polymerization)으로부터 유도된 합성 유기 중합체이다. 가공이 쉽고 생산비용이 저렴하며 다양한 환경조건에 노출되어도 변형이나 손상이 적어 실생활에 광범위하게 사용되어왔다. 이에 따라, 플라스틱 생산량은 급격히 증가하였으며 전 세계 연간 생산량은 2017년

기준 4억 톤을 상회하고 2050년 기준 누적 생산량은 330억 톤에 이를 것이라 예측되고 있다[1]. 플라스틱의 생산량이 급증함에 따라 플라스틱 폐기물의 양도 기하급수적으로 증가하였으며, 1950년부터 2015년까지 약 50억 톤의 플라스틱이 매립 및 유실로 인해 환경매질(environmental media)로 유입되어 축적된 것으로 보고되고 있으며, 2050년 기준 플라스틱 폐기물의 누적량은 약 120억 톤에 이를 것으로 추산되고 있다. 이에 플라스틱의 사용 및 처리에 대한 다양한 규제가 세계적으로 진행되고 있다[2]. 한편, 1950년 이후 생산된 플라스틱 중 비섬유 플라스틱(non-fiber type plastics)은 약 73억 톤에 달하는데(i.e., 플라스틱 전체 생산량의 92%), 그 화학적 조성에 따라 polyethylene (PE) 36%, polypropylene (PP) 21%, polyvinyl chloride (PVC) 12%, polystyrene (PS) < 10%, polyethylene terephthalate (PET) < 10% 및 polyurethanes (PURs) < 10%의 구성비를 나타낸다[3].

† Corresponding Author: Semyung University,  
Department of Biological and Environmental Engineering, Jecheon 27136,  
Republic of Korea  
Tel: +82-43-649-1337 e-mail: sschoi@semyung.ac.kr

**Table 1. Shape and Source of Microplastics Emitted to the Soil Environment**

Origin of occurrence	Shape	Source
Primary microplastics	Microbeads	Cosmetics, personal care products
	Microfibres	Synthetic fabrics
Secondary microplastics	Fragments	Breakdown of large plastic debris
	Microfilms	Breakdown of bags, sheets, mulchs

미세플라스틱(microplastics)은 직경 5 mm 이하의 작은 플라스틱 입자를 가리키며[4], 다양한 산업공정으로부터 직접 생산된 1차 미세플라스틱(primary microplastics)과 생분해(bio-degradation), 광분해(photo-degradation), 열분해(thermal-degradation), 가수분해(hydrolysis) 등 물리·화학적 및 생물학적 분해를 통해 생성된 2차 미세플라스틱(secondary microplastics)으로 구분할 수 있다. 1차 미세플라스틱은 개인위생용품(personal care products)에 함유되어있는 구형(sphere)의 미세비드(microbead) 및 세탁과정 중 발생할 수 있는 미세섬유(microfiber)를 포함한다(Table 1). 또한 2차 미세플라스틱의 경우, 물리·화학적 분해과정을 통해 생성되므로, 파편(fragments) 및 판상(microfilm) 형태가 많이 발견된다[5].

미세플라스틱은 크게 얽힘(entanglement) 및 섭취(ingestion) 현상을 통해 대형동물에 물리적 영향을 끼치는 것으로 알려져 있다. 얽힘은 그물 조각이나 폐 구조물 등에 생물이 묶이거나 끼이는 현상으로 피부상처, 먹이활동저하 및 포식자로부터의 생존능력저하를 야기할 수 있다. 섭취는 플라스틱을 먹이로 착각하여 섭식하는 현상으로, 내장상처유발 및 막힘을 야기할 수 있다. 나노 사이즈의 미세플라스틱을 나노플라스틱(nanoplastics)이라 별도로 명명하기도 하는데, 이러한 나노플라스틱 입자는 큰 비표면적(specific surface area)으로 인해 잔류농약 등 외부 유해물질에 대한 흡착능이 뛰어나며[6] 생물체의 세포막(plasma cell membrane)을 투과하여, 분자 수송체 역할을 수행함으로써 생물체에 독성을 나타내는 것으로 보고된 바 있다[7,8].

본 논문에서는 해양환경에 비해 미세플라스틱의 기원과 거동(fate)에 대한 연구가 극히 제한적인[9,10] 토양 환경에 대해 미세플라스틱의 기원, 분포현황 및 분석기법과 관련된 연구 현황을 분석하고 요약·정리하였다. 각 분석 기법의 기본 원리에 대한 이해를 바탕으로 다양한 현장조건(e.g., 미세플라스틱 종류, 형태 및 방해물질 유무)이 반영될 경우, 합리적인 분석기법 선정이 가능할 것으로 기대된다.

## 2. 본 론

### 2.1. 토양환경 중 미세플라스틱의 기원 및 분포현황

토양환경에 축적되는 미세플라스틱의 잠재적 공급원 중 하나는 퇴비(compost)이다. 유기성폐기물로부터 생산되는 퇴비는 그 제조 과정 중 미세플라스틱이 함유될 수 있다. Weithmann *et al.*[11]은 가정에서 발생하는 유기성폐기물 기반의 건조 퇴비에서 146개/kg의 미세플라스틱(1~5 mm)을 확인한 바 있다. Bläsing and Amelung[12]은 연간 30~35 ton/ha의 권장 퇴비 적용률[13]에 따라 연간 0.08~6.3 kg/ha의 미세플라스틱이 토양에 축적될 것으로 추정된 바 있다. 한편, 유럽과 북미에서는 총 하수슬러지 생성량의 50~72%가 농업분야에 이용되고 있다[13]. 유럽과 미국의 EU 86/278/EEC와 Code 503 규정에서는 하수슬러지 내 유해물질의 포함 개연성으로 인해 토지 이용(soil application)을 제한하고 있으나, 플라스틱의 경우 제한(규제) 유해물질에 포

함되어 있지 않다[12]. 하수처리시설에서 미세플라스틱은 높은 효율(최대 99.9%)로 상등수로부터 제거되어 슬러지에 축적되며, 이에 따라 하수슬러지 내에는 많은 양의 미세플라스틱이 존재할 수 있다. 실제로 아일랜드[14]와 독일[15]의 하수슬러지 내에서 최대 15,800와 24,000개/kg의 미세플라스틱 입자가 발견된 바 있다. 또한 Mintenig *et al.*[14]은 하수슬러지 기반 퇴비 내에서 최대 24,000개/kg의 미세플라스틱을 검출한 바 있다. Nizzetto *et al.*[16]은 슬러지 퇴비화 적용률과 슬러지 내 미세플라스틱 부하량을 고려하여 유럽과 북미의 토양에 연간 63,000~430,000 및 44,000~300,000 ton의 미세플라스틱이 축적될 것으로 추정된 바 있다. 향후 퇴비 기원 미세플라스틱의 토양 내 축적에 대한 면밀한 추적이 필요하다.

한편, 농작물 생산량 증대를 위한 토양 관개(irrigation)에 활용되는 플라스틱 멀칭(mulching) 또한 주된 미세플라스틱 축적의 원인이다[17,18]. 중국에서는 1991년부터 2004년까지 매년 30% 이상 멀칭 사용률이 증가하였다. 또한 한국, 중국 및 일본 3개국은 매년 700,000 ton 이상의 low density polyethylene (LDPE) 멀칭을 사용하여 전 세계 멀칭 사용량의 80%를 차지하였다[19]. Ramos *et al.*[20]에 의하면 농경지 토양에서 0.5 cm<sup>2</sup> 이상의 멀칭 필름(PE) 잔여물을 분석한 결과, 평균크기 28 cm<sup>2</sup>의 멀칭 필름이 3 g/m<sup>2</sup>의 농도(채취한 멀칭 필름의 면적 대비 포토 면적: 0.11 m<sup>2</sup>/m<sup>2</sup>)로 검출되었다.

### 2.2. 토양 내 미세플라스틱의 분리 및 화학적 처리

토양 및 퇴적으로부터 미세플라스틱 입자를 분리하기 위해 밀도차 선별법(density separation)이 활용될 수 있다. 밀도차 선별법은 미세플라스틱보다 밀도가 큰 용액을 활용하여 미세플라스틱 입자를 부유시킨 후 여과지를 활용해 분리하는 방법이다.

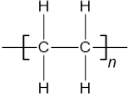
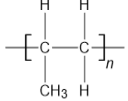
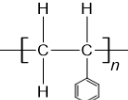
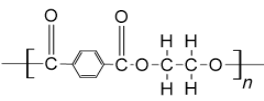
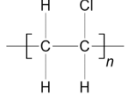
플라스틱은 유형별로 PP는 0.85~0.92 kg/L, LDPE는 0.89~0.93 kg/L, high density polyethylene (HDPE)는 0.94~0.97 kg/L, polystyrene (PS)는 1.04~1.08 kg/L, nylon 6 (PA6)은 1.15 kg/L, PVC는 1.16~1.41 kg/L 및 PET는 1.38~1.41 kg/L의 밀도를 나타내므로, 적절한 용액을 사용하여 미세플라스틱 입자를 부유시킬 수 있다(Table 2).

암석의 밀도는 2.65 kg/L 수준이고, 토양의 용적밀도(soil bulk density)는 1.2 kg/L 이상인 경우가 일반적이기 때문에, 약 1.2 kg/L의 밀도를 갖는 NaCl 포화용액을 활용하여 미세플라스틱 입자를 부유시킨 사례가 다수 보고된바 있다. 다만, PVC 및 PET 기원의 미세플라스틱 입자는 NaCl 포화용액으로는 부유되지 않을 수 있기 때문에, 플라스틱의 오염기원에 따라 적절한 용액(e.g., lithium meta-tungstate solution = 1.6 kg/L, zinc chloride = 1.5~1.7 kg/L, sodium iodide = 1.6 kg/L)을 선택하거나 혼합하여 사용할 필요성이 있다. 한편, Hanvey *et al.*[21]에 따르면, 미세플라스틱의 환경매질 중 분석과 관련된 연구의 84%가 밀도차 선별법을 선택하고 있으며(나머지 16%는 체거름, 원심분리 및 육안구분법을 채택함), 그 중 50%가 NaCl 포화용액을 사용하고 있다고 보고하였다.

Nuelle *et al.*[22]은 밀도차 선별의 효율을 증가시키고자 공기로 0.1 L/s 가량의 기류를 형성시켜 가벼운 미세플라스틱 입자의 부유확률을 높인 air-induced overflow (AIO) 공법을 적용한 바 있다[22]. 이 경우, 침전물(i.e., 토양 및 퇴적토 입자와 분리되지 않은 무거운 미세플라스틱 입자 잔류물)을 대상으로 하는 후속 부유단계에서 사용하는 NaI 포화용액의 부피를 감소시킬 수 있어 분석비용의 절감 및 환경성 제고가 가능하다.

한편, 토양 및 퇴적토의 불균질성(heterogeneity)을 고려하기 위해서는 표본의 양이 많은 것이 유리하나[22,23], 그에 상응하는 밀도차 선

Table 2. Chemical Properties of Plastics Often Found in Soil Environment

Polymer (Abbreviations)	Chemical formula	Chemical structure	CAS Number	Density (g/cm <sup>3</sup> ) <sup>b</sup>	Melting point (°C) <sup>c</sup>
Polyethylene (PE) <sup>a</sup>	(C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> ) <sub>n</sub>		9002-88-4	0.89~0.98	135~140
Polypropylene (PP)	(C <sub>3</sub> H <sub>6</sub> ) <sub>n</sub>		9003-07-0	0.83~0.92	170
Polystyrene (PS)	(C <sub>8</sub> H <sub>8</sub> ) <sub>n</sub>		9003-53-6	1.04~1.1	240
Polyethylene terephthalate (PET)	(C <sub>10</sub> H <sub>8</sub> O <sub>4</sub> ) <sub>n</sub>		25038-59-9	0.96~1.45	200
Polyvinyl chloride (PVC)	(C <sub>2</sub> H <sub>3</sub> Cl) <sub>n</sub>		9002-86-2	1.16~1.58	215

<sup>a</sup> Including LDPE and HDPE, <sup>b</sup> Cited from Sun *et al.*[58], <sup>c</sup> Cited from Scalenghe[59].

별용 포화용액을 과량 사용해야 하는데, 이는 경제적, 환경적 및 실험 안전상의 문제가 되므로 주의가 필요하다.

그리고 채취된 시료에 포함되어 있는 비플라스틱 잔류물은 미세플라스틱의 정성 및 정량분석에 방해물질로 작용할 개연성이 높기 때문에 제거되어야 한다. McDermid[24]는 1 mm 이상의 미세플라스틱을 회수하기 위해 사용한 여과지에서 비플라스틱 잔류물을 제거하기 위해 freshwater로 세척하는 방법을 사용한 바 있다. 또한 Cooper[25]는 초음파 세척(sonication)을 통해 잔류물 제거를 시도한 바 있다. 그러나 이 경우 물리적 영향으로 인한 2차 미세플라스틱 생성에 주의가 기울여야 한다.

또한, 유기물질을 제거하기 위해서는 산화제(oxidizing agents)를 활용할 수 있다. 30% 과산화수소(H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>)를 사용한 사례가 다수 보고된 바 있으며[26], 무기산(HCl 및 H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>)을 이용하거나 혼합산을 사용한 연구도 보고된 바 있다[27,28]. 일부 플라스틱 유형(e.g., polyamide, polyoxymethylene, polycarbonate)의 경우 산성용액 또는 알칼리 용액에서 반응을 일으킬 수 있으므로 주의가 필요하다. 이 경우, 단백질 분해효소(e.g., lipase, amylase, proteinase, chitinase, cellulase) 등을 활용한 분해(mild extraction)를 고려해야 한다[29]. 유기물 분해 시에 미세플라스틱 입자의 변화를 최소화할 수 있도록 산화제의 유형에 따른 미세플라스틱 입자에 미치는 영향에 관한 연구가 필요할 것으로 판단된다.

### 2.3. 미세플라스틱의 정량 및 정성 분석

미세입자의 화학적 조성을 평가하기 위해 열분해(pyrolysis) 산물 생성을 포함한 gas chromatography mass spectrometry (GC-MS) 분석법을 사용할 수 있다[30]. Pyrolysis GC-MS의 전단부에서는 시료를 500도 이상으로 가열하여 열분해를 유도하고(i.e., 안정화된 작은 파편 또는 구성요소로 분해), 후단부에서는 컬럼을 활용한 분리 및 질량분석을 수행하게 된다. 토양 및 퇴적토 시료로부터 분리하고 불순물을 제거한 미세플라스틱 입자에 대해 열분해 과정을 거친 후 질량분석을

수행함으로써, 미세플라스틱의 종류와 양(정량)을 평가할 수 있다[22]. 이때, 질량분석을 통해 플라스틱 첨가제(additives) 또한 동시분석이 가능하다. Fries *et al.*[30]은 자연보호구역 내 해변의 퇴적물을 5.9 kg 채취하여 10개의 플라스틱 파편을 발견하였고, pyrolysis GC-MS 분석을 통해 각 미세플라스틱 입자를 PE, PP, PS 및 PA6으로 특징지었다. 뿐만 아니라, 미세플라스틱 첨가제의 일종인 organic plastic additives (OPAs), phthalates (DEHP, DBP, DEP, DIPB, DMP) 및 antioxidants (2,4-di-tert-butylphenol)를 분석한 바 있다. 한편, 이 방법에 사용되는 열분해 튜브의 직경은 일반적으로 1.5 mm 미만이므로 1.5~5 mm의 상대적으로 큰 미세플라스틱 입자의 분석에는 제한점이 존재하며, 따라서 모니터링용 대량 시료의 분석에는 적합하지 않은 방법이다[31].

μ-Raman 분광법은 환경시료에서 미세입자의 표면을 분석하는 신뢰성 높은 방법 중 하나이다[32-34]. 레이저(light amplification by the stimulated emission of radiation, laser)를 시료에 조사하여 분석을 진행하며, 사용하는 시스템에 따라 500~800 nm의 파장에서 시료 내 분자와 조사한 레이저의 상호작용을 라만 스펙트럼으로 표현해 분석하는 방법이다. Library와의 비교를 통해 빠른 시간 내에 중합체의 식별이 가능하다. 그리고 이 μ-Raman 분광법은 현미경과 결합하여 1 μm 미만의 매우 작은 입자를 분석할 수 있는 장점을 가지고 있기 때문에, 나노플라스틱의 연구에 유의미하게 활용될 수 있다. 나노플라스틱은 비표면적이 매우 크기 때문에 토양 내 잔류 유해물질, 미생물 및 토양 유기물 등을 표면에 부착시켜 ecocorona를 형성할 개연성이 높다[35]. 이는 유해물질의 거동특성을 완전히 변화시킬 수 있으므로, 이에 대한 정밀한 분석이 요구된다. Sobhani[36]는 scanning electron microscope (SEM)과 결합한 μ-Raman을 활용하여 100 nm PS 입자의 라만 스펙트럼과 SEM 이미지를 도출한 바 있다. μ-Raman 분광법은 유기물질의 존재 시, 라만 스펙트럼 생성에 방해받을 수 있다. 장파장(> 1000 nm)의 레이저를 사용해 형광을 최소화할 수 있지만(i.e., 방해를 최소화할 수 있지만), 중합체 시료의 신호(signal)는 낮아지게 된다[31]. 따라서 시료 내 공존물질로 인한 교란을 최소화함과 동시에 미

Table 3. Adsorption of Copper onto Microplastics with and without Employing UV Aging[48]

Polymer (Abbreviations)	Aging method	Contaminants	Adsorbent concentration (g/L)	Contaminants concentration (mg/L)	Langmuir isotherm parameters				Freundlich isotherm parameters			
					Virgin		Aging		Virgin		Aging	
					Q <sub>m</sub> (μg/g)	K <sub>L</sub> (L/mg)	Q <sub>m</sub> (μg/g)	K <sub>L</sub> (L/mg)	K <sub>F</sub> (L/g)	b	K <sub>F</sub> (L/g)	b
Polyamide-6 (PA)	UVA (340 nm)	Cu <sup>2+</sup>	20	0.05~10	324	369	265	561	82	0.58	83.6	0.527
Polyethylene (PE)					8.46	64	-	-	0.56	0.805	-	-
Polystyrene (PS)					8.28	204	-	-	1.34	0.73	-	-
Polyethylene terephthalate (PET)					8.71	110	-	-	0.892	0.775	-	-
Polyvinyl chloride (PVC)					6.29	221	-	-	1.08	0.703	-	-
Polymethyl methacrylate (PMMA)					41	785	79.4	211	16.4	0.459	13.8	0.695

세플라스틱 시료의 기기 신호가 유의미한 수준으로 유지될 수 있는, 레이저의 최적 파장을 찾기 위한 연구와 미세플라스틱의 표면특성 변화를 최소화시키면서 유기물질을 제거할 수 있는 전처리 방법에 대한 연구가 필요하다.

Fourier transform infrared spectrometry (FT-IR) 분석법은 흡수 또는 투과 스펙트럼에 의하여 플라스틱 입자를 구성하는 중합체를 식별할 수 있다. 한편, 비대칭 흡수 밴드(e.g., C-H, C-O, C=O, C-N)에서 민감도가 높은 이 FT-IR 분석법은 Raman 분광법의 불활성 영역(Raman-inactive)에 대한 평가가 가능하므로, Raman 분광법에서 확인할 수 없는 추가적인 정보를 제공할 수 있는 장점이 있다[37]. 특히, FT-IR 분석 시 반사모드(attenuated total reflection, ATR)를 사용할 경우 미세플라스틱 입자 시료를 특별한 전처리(i.e., KBr pellet 제조) 없이 분석할 수 있는 장점을 지니고 있으나, 불규칙한 플라스틱 입자의 형태로 인해 굴절오차가 발생할 수 있으며 이는 해석 불가능한 스펙트럼을 초래하는 원인으로 작용할 수 있다. 투과모드에서는 투명필터(e.g., 산화알루미늄)를 필요로 하며 측정 두께가 제한되는 한계점을 가지고 있다[38].

광학 현미경(optical microscope)은 다양한 크기의 미세플라스틱을 분석하기 위해 널리 사용되는 방법이다[39-41]. 이 방법을 이용하여 측정된 미세플라스틱의 확대 이미지는 물체의 표면 질감과 형태 정보를 상세하게 제공하나, 100 μm 미만의 미세플라스틱은 신뢰성을 확보하기 어렵다[42]. 또한, 화학적으로 완벽하게 제거되지 않은 유기물이나 침전물이 있는 경우 현미경 관찰을 방해하는 요인으로 작용하며, Song *et al.*[42]의 연구에서는 분광학적 분석과 비교하였을 시 20% 이상 잘못된 식별결과를 나타내기도 하였다. 전자 현미경(SEM)을 사용하면 입자 표면의 고해상도 이미지를 포함하여 유기입자와 미세플라스틱 입자를 용이하게 구별할 수 있다. 또한, 에너지 분산형 X-선 분광법(Energy-dispersive X-ray spectroscopy, EDS)을 추가로 한 SEM의 경우 시료의 구성 원소 정보를 제공하기 때문에, 이를 바탕으로 유기입자와 미세플라스틱을 식별할 수 있다. Wang *et al.*[43]은 Beijing 강 연안 퇴적물 시료 내에서 미세플라스틱 입자를 구분한 후 SEM을 활용하여 분석하였으며, 식별한 입자 표면의 기계적 마모와 화학적 풍화를 정성적으로 확인할 수 있었다. 또한 금속원소(Cd, Pb, Cu, Zn, and Ti)의 분포를 분석한 EDS 결과를 통해 미세플라스틱의 중금속 이송체로서의 가능성을 확인하였다. 그러나 이 방법은 플라스틱의 색상을 구별할 수는 없으며, 많은 비용이 들고 취급가능한 시료의 수가 제한적이며 분석 소요시간이 오래 걸리기 때문에 표면 특성분석에 한해

권장된다[44].

#### 2.4. 미세플라스틱의 풍화 및 매개 유해물질의 화학적 추출

미세플라스틱은 원래의 플라스틱 제품과 비교하여 비표면적이 유의하게 넓기 때문에(i.e., 2차 미세플라스틱의 경우 환경매질 중에서 풍화과정을 거치며 비표면적이 유의하게 증가하기 때문에), 외부의 유해물질을 흡착한 채로 거동할 개연성이 크다. 특히, 미세플라스틱은 소수성(hydrophobicity)이 높으므로, 외부환경에 존재하는 잔류성 유기오염물질(persistent organic pollutants, POPs) 및 잔류성/생물농축성/독성이 강한 물질(persistent, bioaccumulative, toxic, PBTs)을 쉽게 흡착하여 생물체에 농축시킴으로써 악영향을 유발할 수 있다고 알려져 있다[45,46]. 또한 미세플라스틱에는 성형 및 기능향상을 위해 다양한 종류의 첨가제가 평균 4% 비율로 첨가되고 있으며, 이러한 첨가제가 생체 내에서 용출될 경우 내분비계교란(endocrine disruption)을 유발할 수 있다[45,46]. 대표적인 플라스틱 첨가제로는 polybrominated diphenyl ethers (PBDE), hexabromocyclododecane (HBCD), tetrabromobisphenol A (TBBPA) 등 brominated flame retardants (BFR) 류, phthalic acid esters (PAEs), di-(2-ethylhexyl) phthalate (DEHP), bisphenol A (BPA) 등 phthalates 류, nonylphenol ethoxylates (NPE) 등 nonylphenols 류, polyolefins, Irganox series 등 antioxidants 류가 있다.

미세플라스틱의 풍화(aging)는 환경매질에 축적된 미세플라스틱이 물리화학적 및 생물학적 변화과정을 거치면서 표면특성이 변화되는 것을 의미한다. 이러한 미세플라스틱의 표면특성 변화는 함유한 첨가제의 용출량 및 흡착한 유해물질의 탈착량 변화로 이어질 수 있기 때문에, 미세플라스틱의 풍화 진행 여부 및 풍화 상태에 대한 평가가 필요하다.

대표적인 풍화지표(aging indicator)로 카보닐 지수(carbonyl index)가 활용되고 있다[47]. Liu *et al.*[47]은 FT-IR 분석결과 중 1712 cm<sup>-1</sup> 카보닐 결합의 흡광도와 1375 cm<sup>-1</sup> CH<sub>3</sub> 결합의 흡광도의 비를 통해 카보닐 지수를 계산한 바 있으며, UV 노출(i.e., 광산화, 광분해 유발) 정도에 따라 카보닐 결합의 양이 증가할 수 있기 때문에, 풍화정도를 정량화하는 지표의 일환으로 활용될 수 있다.

Yang *et al.*[48]은 polyamide-6, polyethylene, polystyrene, polyethylene terephthalate, polyvinyl chloride 및 polymethyl methacrylate 입자에 Cu가 흡착될 수 있음을 관찰하였다(Table 3). 뿐만 아니라 일부 재질의 플라스틱 입자의 경우 UV 풍화에 따라 Cu 흡착량이 증가하는 현

Table 4. Methods for Assessing Migration Amounts of Hazardous Contaminants in Microplastics through Human Oral Ingestion[49-53]

Method <sup>a</sup>	Chemicals used in extractants	Solid liquid ratio (g-soil/mL)	pH	Extraction duration (h)
UBM	Gastric phase KCl, NaH <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> , NaCl, CaCl <sub>2</sub> , NH <sub>4</sub> Cl, HCl (37%), urea, glucose, glucuronic acid, glucosamine hydrochloride, mucin, bovine serum albumin, pepsin	1 : 37.5	1.2	1
	Intestinal phase KCl, NaCl, NaHCO <sub>3</sub> , KH <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> , MgCl <sub>2</sub> , HCl (37%), urea, CaCl <sub>2</sub> , bovine serum albumin, pancreatin, lipase, bile	1 : 97.5	6.3	4
SBRC	Gastric phase Glycine	1 : 100	1.5	1
	Intestinal phase Bile, pancreatin	1 : 100	7.0	4
IVG	Gastric phase Pepsin, NaCl	1 : 150	1.8	1
	Intestinal phase Bile, pancreatin	1 : 150	5.5	1
PBET	Gastric phase Pepsin, sodium malate, sodium citrate, lactic acid, acetic acid	1 : 100	2.5	1
	Intestinal phase Bile, pancreatin	1 : 100	7.0	4

<sup>a</sup> UBM = unified BARGE method (BARGE = the bioaccessibility research group of Europe), SBRC = solubility bioaccessibility research consortium method, IVG = *in vitro* gastrointestinal method, PBET = physiologically based extraction test

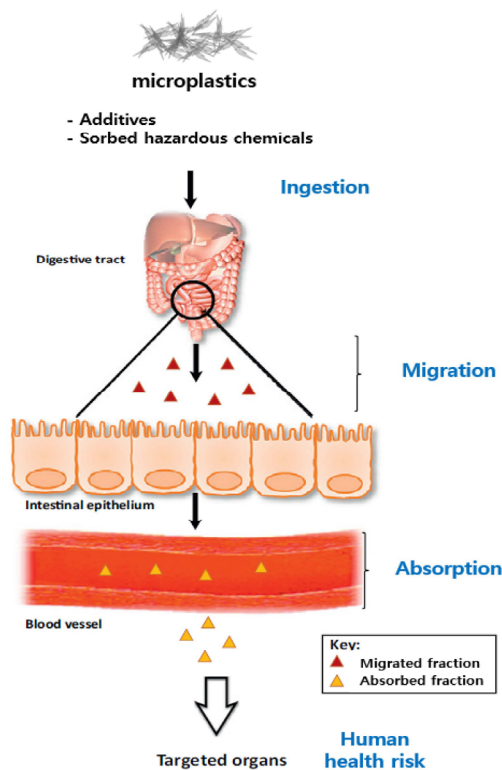


Figure 1. Exposure route through gastrointestinal processes of human for additives and sorbed hazardous chemicals in microplastics[57].

상 또한 관찰하였다. 이는 풍화에 따른 미세플라스틱의 비표면적 증가 및 작용기 변화가 소수성 유기오염물질 뿐만 아니라 중금속의 흡착도 가능하게 함을 의미하며, 나아가 중금속의 이송체(vector)로서의 기능을 수행할 수 있음을 시사한다.

미세플라스틱 매개 유해물질(첨가제 또는 흡착된 유해물질)이 인체와 생태계에 미치는 독성영향에 대해 이해하기 위해서는 유해물질의 용출 및 탈착에 대한 연구가 수행되어야 한다. 특히 인체 경구 노출경로(oral exposure route)에서는, 환경매질에서 노출될 수 있는 다양한 조건보다 다소 강하다고 볼 수 있는 소화환경(침, 위액 및 장액 등)에

미세플라스틱 입자가 노출되므로, 이때의 유해물질 용출 및 탈착량에 대한 연구가 선행되어야만 미세플라스틱 노출에 따른 인체위해성을 정량화할 수 있다(Figure 1).

미세플라스틱입자에 붙어있는 유해물질이 인체에 독성을 발현하기 위해서는 우선 입자로부터 떨어져 나와 흡수될 수 있는 형태로 존재해야 하고(migration), 떨어져 나온 유해물질이 장을 통해 체내로 완전히 흡수(absorption)되어야 한다(i.e., 나노플라스틱 입자의 경우 인체 장관막을 직접 통과하거나 생물체의 세포막을 투과하여 체내에 축적되어 독성영향을 유발할 가능성이 있으나 이 부분에 대한 연구는 아직 미흡한 실정이다). 미세플라스틱 기원 유해물질의 체내 전이량(migration rate)은 인공소화액을 활용한 화학적 용출시험(*in vitro* bioaccessibility assay, IVBA)으로 평가될 수 있다(Table 4). 다양한 IVBA 방법이 제안된 바 있는데, solubility bioaccessibility research consortium method (SBRC) 및 *in vitro* gastrointestinal method (IVG) 방법은 위 또는 장액의 대표 구성성분을 바탕으로 인공 위액 및 장액을 제조하는 반면, unified BARGE (the bioaccessibility research group of Europe) method (UBM)은 위 또는 장액 구성성분을 비교적 상세히 포함하는 특징이 있다[49-52]. UBM 방법은 최근 ISO의 토양 섭취 경로를 통한 중금속 노출량 평가 방법(ISO 17924:2018, Soil quality - Assessment of human exposure from ingestion of soil and soil material - Procedure for the estimation of the human bioaccessibility/bioavailability of metals in soil)에 포함되기도 하였다.

그 외, fed organic estimation human simulation test (FOREHST) 방법이, 환경매질로부터 오염물질의 용출에 미치는 음식물의 영향을 고려하기 위해 제안된 바 있다[53]. 음식물 자체의 구성성분과 그로 인한 위액 및 장액의 변화를 함께 고려할 수 있는 장점이 있으나, 음식물 주입으로 인한(예: milk powder) 용출액 분석의 어려움이 발생할 수 있다. 한편, persistent organic pollutants (POPs)와 같이, 용해도가 낮고, 소수성이 큰 물질의 경우 지질막(lipid membrane)에 분배되는 경향이 강해, 기존 IVBA 전이량이 저평가될 수 있다. 따라서 이를 해결하고자, POP가 분배될 수 있는 organic sink를 IVBA 용출과정에 포함시키는 방법이 있다[54]. 그리고 유해물질의 흡수량(absorption rate)의 정확한 평가를 위하여 실험 쥐 등을 사용한 *in vivo* 실험이 수반되어야 하며, *in vitro* 흡수시험(예, permeable artificial membrane permeability assay (PAMPA), Caco-2 cell assay)을 활용한 평가로 보완될

수 있다[55,56].

### 3. 결론 및 제언

본 연구에서는 토양 중 미세플라스틱의 축적경로 및 분포현황과 더불어 다양한 분석기법에 대해 조사하였다. 바이오매스 및 하수슬러지 기원의 퇴비 사용과 농업용 멀칭필름 사용이 주요한 토양환경 내 미세플라스틱 축적경로로 판단된다. 토양 구성성분과 혼재되어 있는 미세플라스틱 입자는 밀도차 선별방법과 적절한 산화제의 사용을 통해 효과적으로 분리해낼 수 있다. 전처리 과정을 통해 분리 및 정제한 미세플라스틱 입자는 pyrolysis GC-MS,  $\mu$ -Raman 분광법, FT-IR 분광법 및 현미경을 통해 분석할 수 있으며, 분석의 목적과 대상 입자의 크기에 따라 적절한 분석기법을 선택해야 한다. 미세플라스틱 입자에 수반되어 있는 유해물질(첨가제 또는 흡착물질)의 인체 전이량 평가를 위해 UBM, SBRC, IVG 및 PBET과 같은 다양한 화학적 추출방법을 활용할 수 있다.

미세플라스틱의 환경매질 내 분포현황 조사와 같은 대규모 모니터링 연구가 필요할 경우 실험 용매의 사용을 최소화할 수 있는 스크리닝 위주의 분석기법 적용이 요구되며, 미세플라스틱 또는 나노플라스틱의 인체 및 생태영향 파악과 같은 연구분야에서는 첨가제 및 흡착 유해물질의 위해성을 함께 평가하기 위한 정량분석 기법의 고려가 필요하다. 토양 중 미세플라스틱은 다른 유해물질들과는 달리 입자 자체로 거동하기 때문에, 분석에 있어 까다로운 점이 많다. 국내의 미세플라스틱 분석에 대한 연구는 초기단계라 평가할 수 있으므로 전처리 방법의 간편화 및 최적화와 검출한계(검출가능 입자 크기) 저감 등에 대한 활발한 연구개발이 필요하다.

## 사 사

This work was supported by the National Research Foundation of Korea (NRF) grant funded by the Korea government (MSIT) (No. 2019R1G1A1100504).

## References

1. C. M. Rochman, M. A. Browne, B. S. Halpern, B. T. Hentschel, E. Hoh, H. K. Karapanagioti, L. M. Rios-Mendoza, H. Takada, S. Teh, and R. C. Thompson, Classify plastic waste as hazardous, *Nature*, **494**, 169-171 (2013).
2. J. M. Coe, G. B. Antonelis, and K. Moy, Taking control of persistent solid waste pollution, *Mar. Pollut. Bull.*, **139**, 105-110 (2019).
3. R. Geyer, J. R. Jambeck, and K. L. Law, Production, use, and fate of all plastics ever made - Supplementary information, *Sci. Adv.*, **3**(7), 19-24 (2017).
4. R. C. Thompson, Y. Olsen, R. P. Mitchell, A. Davis, S. J. Rowland, A. W. G. John, D. McGonigle, and A. E. Russell, Lost at sea: Where is all the plastic?, *Science*, **304**, 838 (2004).
5. M. S. Helmberger, L. K. Tiemann, and M. J. Grieshop, Towards an ecology of soil microplastics, *Funct. Ecol.*, **34**(3), 550-560 (2020).
6. P. Wang, E. Lombi, F. J. Zhao, and P. M. Kopittke, Nanotechnology: A new opportunity in plant sciences, *Trends Plant Sci.*, **21**, 699-712 (2016).
7. J. Wang, S. Lv, M. Zhang, G. Chen, T. Zhu, S. Zhang, Y. Teng, P. Christie, and Y. Luo, Effects of plastic film residues on occurrence of phthalates and microbial activity in soils, *Chemosphere*, **151**, 171-177 (2016).
8. A. B. Morales-Díaz, H. Ortega-Ortiz, A. Juárez-Maldonado, G. Cadenas-Pliego, S. González-Morales and A. Benavides-Mendoza, Application of nanoelements in plant nutrition and its impact in ecosystems, *Adv. Nat. Sci. Nanosci. Nanotechnol.*, **8**, 13 (2017).
9. M. C. Rillig, Microplastic in terrestrial ecosystems and the soil?, *Environ. Sci. Technol.*, **46**(12), 6453-6454 (2012).
10. Z. Steinmetz, C. Wollmann, M. Schaefer, C. Buchmann, J. David, J. Tröger, K. Muñoz, O. Frör, and G. E. Schaumann, Plastic mulching in agriculture. Trading short-term agronomic benefits for long-term soil degradation?, *Sci. Total Environ.*, **550**, 690-705 (2016).
11. N. Weithmann, J. N. Möller, M. G. J. Löder, S. Piehl, C. Laforsch, and R. Freitag, Organic fertilizer as a vehicle for the entry of microplastic into the environment, *Sci. Adv.*, **4**(4), 1-7 (2018).
12. M. Bläsing and W. Amelung, Plastics in soil: Analytical methods and possible sources, *Sci. Total Environ.*, **612**, 422-435 (2018).
13. WRAP, *Using Compost in Agriculture and Field Horticulture*, Waste and Resources Action Programme (2002).
14. S. M. Mintenig, I. Int-Veen, M. G. J. Löder, S. Primpke, and G. Gerdts, Identification of microplastic in effluents of waste water treatment plants using focal plane array-based micro-Fourier-transform infrared imaging, *Water Res.*, **108**, 365-372 (2017).
15. A. M. Mahon, B. O'Connell, M. G. Healy, I. O'Connor, R. Officer, R. Nash, and L. Morrison, Microplastics in sewage sludge: Effects of treatment, *Environ. Sci. Technol.*, **51**(2), 810-818 (2017).
16. L. Nizzetto, M. Futter, and S. Langaas, Are agricultural soils dumps for microplastics of urban origin?, *Environ. Sci. Technol.*, **50**(20), 10777-10779 (2016).
17. Y. Zhao, Y. Li, J. Wang, H. Pang, and Y. Li, Buried straw layer plus plastic mulching reduces soil salinity and increases sunflower yield in saline soils, *Soil Tillage Res.*, **155**, 363-370 (2016).
18. Y. Fan, R. Ding, and S. Kang, Plastic mulch decreases available energy and evapotranspiration and improves yield and water use efficiency in an irrigated maize cropland, *Agric. Water Manag.*, **179**, 122-131 (2017).
19. E. Espí, A. Salmerón, A. Fontecha, Y. García, and A. I. Real, Plastic films for agricultural applications, *J. Plast. Film Sheeting*, **22**(2), 85-102 (2006).
20. L. Ramos, G. Berenstein, E. A. Hughes, A. Zalts, and J. M. Montserrat, Polyethylene film incorporation into the horticultural soil of small periurban production units in Argentina, *Sci. Total Environ.*, **523**, 74-81 (2015).
21. J. S. Hanvey, P. J. Lewis, J. L. Lavers, N. D. Crosbie, K. Pozo, and B. O. Clarke, A review of microplastics in analytical techniques for quantifying sediments, *Anal. Methods*, **9**(9), 1369-1383 (2017).
22. M. T. Nuelle, J. H. Dekiff, D. Remy, and E. Fries, A new analytical approach for monitoring microplastics in marine sediments, *Environ. Pollut.*, **184**, 161-169 (2014).
23. X. Han, X. Lu, and R. D. Vogt, An optimized density-based approach for extracting microplastics from soil and sediment samples, *Environ. Pollut.*, **254**, 113009 (2019).
24. K. J. McDermid, and T. L. McMullen, Quantitative analysis of small-plastic debris on beaches in the Hawaiian archipelago, *Mar. Pollut. Bull.*, **48**, 790-794 (2004).
25. D. A. Cooper, and P. L. Corcoran, Effects of mechanical and chemical processes on the degradation of plastic beach debris on the is-

- land of Kauai, Hawaii, *Mar. Pollut. Bull.*, **60**(5), 650-654 (2010).
26. G. Liebezeit, and F. Dubaish, Microplastics in beaches of the East Frisian Islands Spiekeroog and Kachelotplate, *Bull. Environ. Contam. Toxicol.*, **89**(1), 213-217 (2012).
  27. H. K. Imhof, N. P. Ivleva, J. Schmid, R. Niessner, and C. Laforsch, Contamination of beach sediments of a subalpine lake with microplastic particles, *Curr. Biol.*, **23**(19), R867-R868 (2013).
  28. M. Eriksen, S. Mason, S. Wilson, C. Box, A. Zellers, W. Edwards, H. Farley, and S. Amato, Microplastic pollution in the surface waters of the Laurentian Great Lakes, *Mar. Pollut. Bull.*, **77**, 177-182 (2013).
  29. M. Cole, H. Webb, P. K. Lindeque, E. S. Fileman, C. Halsband, and T. S. Galloway, Isolation of microplastics in biota-rich seawater samples and marine organisms, *Sci. Rep.*, **4**, 1-8 (2014).
  30. E. Fries, J. H. Dekiff, J. Willmeyer, M. T. Nuelle, M. Ebert, and D. Remy, Identification of polymer types and additives in marine microplastic particles using pyrolysis-GC/MS and scanning electron microscopy, *Environ. Sci.: Processes Impacts*, **15**, 1949-1956 (2013).
  31. M. Bergmann, L. Gutow, M. Klages (Eds.), *Methodology Used for the Detection and Identification of Microplastics - A Critical Appraisal*, 201-227, Berlin (2015).
  32. L. V. Cauwenberghe, A. Vanreusel, J. Mees, and C. R. Janssen, Microplastic pollution in deep-sea sediments, *Environ. Pollut.*, **182**, 495-499 (2013).
  33. M. Cole, P. Lindeque, E. Fileman, C. Halsband, R. Goodhead, J. Moger, and T. S. Galloway, Microplastic ingestion by zooplankton, *Environ. Sci. Technol.*, **47**, 6646-6655 (2013).
  34. F. Murray and P. R. Cowie, Plastic contamination in the decapod crustacean *Nephrops norvegicus* (Linnaeus, 1758), *Mar. Pollut. Bull.*, **62**, 1207-1217 (2011).
  35. T. S. Galloway, Matthew Cole, and C. Lewis, Interactions of microplastic debris throughout the marine ecosystem, *Nat. Ecol. Evol.*, **1**, 116 (2017).
  36. Z. Sobhani, X. Zhang, C. Gibson, R. Naidu, M. Megharaj, and C. Fang, Identification and visualisation of microplastics/nanoplastics by Raman imaging (i): Down to 100 nm, *Water Res.*, **174**, 115658 (2020).
  37. V. Hidalgo-Ruz, L. Gutow, R. C. Thompson, and M. Thiel, Microplastics in the marine environment: A review of the methods used for identification and quantification, *Environ. Sci. Technol.*, **46**, 3060-3075 (2012).
  38. J. P. Harrison, J. J. Ojeda, and M. E. Romero-González, The applicability of reflectance micro-Fourier-transform infrared spectroscopy for the detection of synthetic microplastics in marine sediments, *Sci. Total Environ.*, **416**, 455-463 (2012).
  39. J. P. W. Desforges, M. Galbraith, N. Dangerfield, and P. S. Ross, Widespread distribution of microplastics in subsurface seawater in the NE Pacific Ocean, *Mar. Pollut. Bull.*, **79**, 94-99 (2014).
  40. B. J. Laglbauer, M. R. Franco-Santos, M. Andreu-Cazenave, L. Brunelli, M. Papadatou, A. Palatinus, M. Grego, and T. Deprez, Macrodebris and microplastics from beaches in Slovenia, *Mar. Pollut. Bull.*, **89**, 356-366 (2014).
  41. A. Mathalon and P. Hill, Microplastic fibers in the intertidal ecosystem surrounding Halifax Harbor, Nova Scotia, *Mar. Pollut. Bull.*, **81**, 69-79 (2014).
  42. Y. K. Song, S. H. Hong, M. Jang, G. M. Han, M. Rani, J. Lee, and W. J. Shim, A comparison of microscopic and spectroscopic identification methods for analysis of microplastics in environmental samples, *Mar. Pollut. Bull.*, **93**, 202-209 (2015).
  43. J. Wang, J. Peng, Z. Tan, Y. Gao, Z. Zhan, Q. Chen, and L. Cai, Microplastics in the surface sediments from the Beijiang River littoral zone: Composition, abundance, surface textures and interaction with heavy metals, *Chemosphere*, **171**, 248-258 (2017).
  44. W. J. Shim, S. H. Hong, and S. E. Eo, Identification methods in microplastic analysis: A review, *Anal. Methods*, **9**(9), 1384-1391 (2017).
  45. G. Liu, Z. Zhu, Y. Yang, Y. Sun, F. Yu, and J. Ma, Sorption behavior and mechanism of hydrophilic organic chemicals to virgin and aged microplastics in freshwater and seawater, *Environ. Pollut.*, **246**, 26-33 (2019).
  46. J. Wang, X. Liu, Y. Li, T. Powell, X. Wang, G. Wang, and P. Zhang, Microplastics as contaminants in the soil environment: A mini-review, *Sci. Total Environ.*, **691**, 848-857 (2019).
  47. P. Liu, L. Qian, H. Wang, X. Zhan, K. Lu, C. Gu, and S. Gao, New insights into the aging behavior of microplastics accelerated by advanced oxidation processes, *Environ. Sci. Technol.*, **53**(7), 3579-3588 (2019).
  48. J. Yang, Q. Sun, Ge Dong, S. T. Ata-Ul-Karim, and D. Zhou, Effects of soil environmental factors and UV aging on Cu<sup>2+</sup>, *Environ. Sci. Pollut. Res.*, **26**, 23027-23036 (2019).
  49. A. L. Juhasz, J. Weber, and E. Smith, Influence of saliva, gastric and intestinal phases on the prediction of As relative bioavailability using the Unified Bioaccessibility Research Group of Europe Method (UBM), *J. Hazard. Mater.*, **197**, 161-168 (2011).
  50. N. Yin, H. Du, Z. Zhang, X. Cai, Z. Li, G. Sun, and Y. Cui, Variability of arsenic bioaccessibility and metabolism in soils by human gut microbiota using different *in vitro* methods committed with SHIME, *Sci. Total Environ.*, **566-567**, 1670-1677 (2016).
  51. M. E. Kelley, S. Brauning, R. Schoof, and M. Ruby, *Assessing Oral Bioavailability of Metals in Soil*, Battelle Press, Columbus (2002).
  52. M. V. Ruby, A. Davis, R. Schoof, S. Eberle, and C. M. Sellstone, Estimation of lead and arsenic bioavailability using a physiologically based extraction test, *Environ. Sci. Technol.*, **30**, 422-430 (1996).
  53. K. James, R. E. Peters, M. R. Cave, M. Wickstrom, and S. D. Siciliano, *In vitro* prediction of polycyclic aromatic hydrocarbon bioavailability of 14 different incidentally ingested soils in juvenile swine, *Sci. Total Environ.*, **618**, 682-689 (2018).
  54. S. Zhang, C. Li, Y. Li, R. Zhang, P. Gao, X. Cui, and L. Q. Ma, Bioaccessibility of PAHs in contaminated soils: Comparison of five *in vitro* methods with Tenax as a sorption sink, *Sci. Total Environ.*, **601-602**, 968-974 (2017).
  55. C. M. Bailey-Hytholt, T. Puranik, A. Tripathi, and A. Shukla, Investigating interactions of phthalate environmental toxicants with lipid structures, *Colloids Surf. B*, **190**, 110923 (2020).
  56. X. Chen, A. Singh, and D.D. Kitts, *In-vitro* bioaccessibility and bioavailability of heavy metals in mineral clay complex used in natural health products, *Sci. Rep.*, **10**, 8823 (2020).
  57. A. Guerra, L. Etienne-Mesmin, V. Livrelli, S. Denis, S. Blanquet-Diot, and M. Alric, Relevance and challenges in modeling human gastric and small intestinal digestion, *Trends Biotechnol.*, **30**(11), 591-600 (2012).
  58. J. Sun, X. Dai, Q. Wang, M. C. M. van-Loosdrecht, Bi. J. Ni, Microplastics in wastewater treatment plants: Detection, occurrence

- and removal, *Water Res.*, **152**, 21-37 (2019)
59. R. Scalenghe, Resource or waste? A perspective of plastics degradation in soil with a focus on end-of-life options, *Heliyon*, **4**, e00941 (2018).

#### Authors

Hyung-Jun Choi, B.S., Master's Course, Department of Environment Safety System Engineering, Semyung University, Jecheon 27136, Korea; chjp117@naver.com

Jinsung An, Ph.D., Assistant Professor, Department of Environment Safety System Engineering, Semyung University, Jecheon 27136, Korea; jsan@semyung.ac.kr

Suk Soon Choi, Ph.D., Professor, Department of Biological and Environmental Engineering, Semyung University, Jecheon 27136, Korea; sschoi@semyung.ac.kr