

Research Paper

국내 도로 노면 퇴적입자 내 PAHs의 인체 위해성 평가

이가인 · 김홍경 · 지승민 · 장용철

충남대학교 환경공학과

Human Health Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) from Road Dust Sediments in Korea

Gain Lee · Hongkyoung Kim · Seungmin Ji · Yong-Chul Jang

Department of Environmental Engineering, Chungnam National University

요약: 본 연구에서는 국내 4개 도시(6개 지점)로부터 도로 노면 퇴적입자 내 PAHs의 농도 및 분포특성을 비교, 분석하고 오염 수준에 대한 초과 발암 위해도를 산정하여 인체 위해성 평가를 수행하였다. 지역별 오염 농도를 바탕으로 흡입, 섭취, 피부 노출에 대한 노출경로를 설정하여 결정론적 위해성평가를 수행한 결과, 울산 지역의 경우 위해도 발암 기준 1×10^{-6} 을 상회하는 결과가 나타났다. 또한 발암위해도가 있다고 판단되는 해당 지역에 대한 확률론적 위해성평가 결과, 확률적 평균값이 단일값을 활용한 결정론적 위해도 산정에서 도출되었던 발암위해도와 중앙값에 근접한 수준을 나타내었다. 민감도 분석 결과, 노출시간에 따른 기여도가 가장 크게 나타났다. 향후 기준치를 초과하는 발암 위해도를 나타내는 지역에 대한 위해도 관리 는 물론 상세한 모니터링을 통한 추가 위해성 평가가 이루어져야 할 것으로 판단되며, 지역적 특성을 반영한 노출계수의 산정을 통해 인체 위해도 평가 결과 신뢰도를 높여야 할 것으로 사료된다.

주요어: 다환방향족탄화수소, 도로 퇴적물, 확률론적 위해성 평가, 위해성 평가

Abstract: This research studied human health risk assessment of PAHs (Polycyclic Aromatic Hydrocarbons) in road dust sediments collected from 6 sites in four different cities in Korea. PAHs are well known to be human carcinogens and toxic compounds that are commonly generated from incomplete combustion of fuels and energy products. Such compounds which is absorbed by atmospheric suspended dust can be emitted into air in gaseous form and often deposited on road dust sediments. The PAHs which is deposited on sediment particles can also be re-dispersed by vehicles or winds on the road surface. It can be harmful for humans when exposed via breathing, ingestion and dermal contact. This study examined human health risk assessment of PAHs in deposited road dust sediments. Results showed that the excess cancer risk estimates were above

First Author: Gain Lee, Tel: +82-42-821-7779, E-mail: gainee2000@gmail.com, ORCID: 0000-0001-9272-1099

Corresponding Author: Yong-Chul Jang, Tel: +82-42-821-6674, E-mail: gogator@cnu.ac.kr, ORCID: 0000-0001-5435-2915

Co-Authors: Hongkyoung Kim, Tel: +82-42-821-7779, Email: khongk1001@gmail.com, ORCID: 0000-0002-0310-6164

Seungmin Ji, Tel: +82-42-821-7779, E-mail: minsng0613@naver.com, ORCID: 0000-0003-3554-7148

Received: 29 April, 2020. Revised: 24 July, 2020. Accepted: 30 July, 2020.

1.0×10⁻⁶ at main traffic roads and resident area in Ulsan city. According to the result of deterministic risk assessment, dermal-contact was the major pathway, while the contribution of the risk from inhalation was less than 1%. The probabilistic risk assessment showed similar levels of cancer risk derived from the deterministic risk assessment. The result of sensitivity analysis reveal that exposure time is the most contributing factor (69%). Since the values of carcinogenic risk assessment were higher than 1.0 × 10⁻⁶, further detailed monitoring and refined risk assessment for PAHs may be required to identify more reliable and potential cancer risks for those who live in the study locations in Ulsan city.

Keywords : Polycyclic aromatic hydrocarbons, road dust sediments, probabilistic risk assessment, risk assessment

I. 서론

국내 경제 성장에 따라 산업화와 도시화가 계속되며 소득수준의 향상과 더불어 차량 및 교통량도 점차 증가하고 있다. 도시지역 도로의 경우 차량 배기가스, 산업단지, 가정 난방, 발전소 등 여러 가지 배출원으로부터 발생한 오염물질들이 직접도로에 축적되거나 대기의 침강에 의해 주로 도로면, 주변 토양, 건물 등에 침적된다(Rogge et al, 1993; Wei et al, 2015). 이렇게 생성된 도로 퇴적 고형물(Road Dust Sediments; RDS)에는 중금속, 다환 방향족 탄화수소화합물(Polycyclic Aromatic Hydrocarbon, PAHs) 등 여러 유해물질이 함유되어 있다(Kim et al, 2006; Yoo et al, 2010; Kim et al, 2015). 이들은 강우 시 도로로부터 직접적으로 수계에 유입되거나 빗물에 씻겨 우수 관거 또는 하수관거를 통해 수계로 유입되어 비점오염원의 원인이 될 수 있다(Li et al, 2017; Zhang et al, 2019).

그중에서도 PAHs는 두 개 이상의 벤젠 고리로 이루어진 유기화합물로 벤조[a]피렌(benzo(a)pyrene)을 포함한 많은 부류의 화합물로 이루어져 있으며, 주로 연료의 불완전연소로부터 발생된다(Demir et al, 2019; Kim et al, 2006; Rogge et al, 1993). 또한 PAHs는 환경 중으로 배출된 후 강수 등에 의해 토양으로 흡식 침적되거나 대기 부유분진에 흡착되어 가스상의 형태로 지표면으로 유입될 수 있다.(Hussain et al, 2015; Rogge et al, 1993). 이렇게 도로 노면의 고형입자에 침적된 PAHs는 차량통행이나 바람으로

인해 재 비산되어 호흡, 섭취, 피부 접촉 등의 노출경로를 통해 사람에게 위해를 끼칠 수 있다(Zhang et al, 2020; Wang 2007; Franco et al 2017; Anh et al, 2019). 특히 벤조[a]피렌은 독성 및 잔류성이 강하고 세계적으로 주목하고 있는 내분비계 장애물질이자 발암성물질로 Codex, FAO/WHO의 위해성 평가 지침의 우선순위 목록에 기재되어 있다. 또한 국제암연구소(IARC; International Agency for Research on Cancer)는 벤조[a]피렌을 사람에게 발암을 일으키는 것이 확인된(carcinogenic to humans) 등급인 Group 1로 분류하고 있다(IARC 2010).

국내에서도 PAHs의 잠재적 유해성으로 인해 대기 유해물질 중 하나로 지정하여 유해대기물질 측정망을 통해 7종의 PAH 성분들을 모니터링하고 있다(NIER 2012). 하지만 국내 도로노면 퇴적물로부터의 PAHs의 농도 수준이나 분포특성 연구는 수행되었으나(Kim et al, 2015; Eom et al, 2010; Dong & Lee 2009), 그로 인한 인체 위해성에 대한 정량적 평가를 하는 연구는 보고되어 있지 않은 실정이다. 국외의 경우, PAHs의 발암위해성을 고려하여 이러한 도로 퇴적물 내 PAHs에 대한 농도분포 특성은 물론 인체 위해성 평가(human health risk assessment)에 대한 연구도 이루어지고 있다(Anh et al, 2019; Gope et al, 2018; Franco et al, 2017; Lorenzi et al, 2001). 인체 위해성 평가는 어떤 유해화학물질에 노출되어 나타날 수 있는 인간의 건강 피해 정도를 가능성 또는 확률로 추정하는 과학적인 과정이며 나아가 유해물질의 위해성 관리(integrated risk

management)를 위해서 반드시 선행되어야 하는 과정이라고 할 수 있다(Jang et al. 2011).

본 연구에서는 국내 지역 중 부산광역시, 인천광역시, 광주광역시, 울산광역시를 대상으로 도로 노면 퇴적물 내 PAHs의 농도 수준과 분포특성을 제시하였다. 이를 바탕으로 노출 시나리오에 따른 결정론적 및 확률론적 위해성 평가(deterministic and probabilistic risk assessment)를 수행하였으며, 잠재적 인체 위해도를 분석하였다. 이러한 인체위해성 평가 결과는 도로변 침적 퇴적물의 관리와 그로 인한 잠재적 인체 위해를 저감하는 데 기초자료로 활용할 수 있다.

II. 연구방법

1. 도로 노면 퇴적물 내 PAHs 연구 분석

본 연구에서는 국내 도로 노면 퇴적물 내의 PAHs의 농도 분포 및 지역별 특성을 분석하고자 하였다. 국내 선행 연구를 바탕으로 부산, 인천, 광주, 울산 등 4개 지역을 대상으로 도로 노면 퇴적물 내 PAHs의 농도 수준, 각 16종의 분포 특성과 측정 대상지점의 토지이용별 농도 분포 등을 비교 분석하였다 (Table 1).

1) 지역별 도로 노면 퇴적물 내 PAHs

본 연구의 대상이 되는 지역 위의 4곳의 경우 각기 다른 지점에서 시료를 채취하였으므로 위해도 평가 결과를 비교하기 위해서는 공통적인 특성을 나타내는 지점을 선정해야 한다. 본 연구에서는 대상 지역 중 교통량이 집중된 주요도로 지점들을 중심으로 농도를 비교하였다. 또한 인체 위해성 평가의 목적을 고려하여 도로 근처 도보 인구 유동이 많을 것으로 판단되는 지점에서의 농도만을 비교하여 인체 위해성 평가를 수행하였다. 대상 지점은 각 4지역의 교통량이 많은 주요도로, 인천의 지하철역 주변 지역, 울산의 주거 지역 등 총 6가지 지점을 최종 후보지로 선정하였다. 각 지역의 총 시료 수는 서로 다르므로 비교 대상 지점의 평균 농도를 통해 위해성 평가를 수행하였다.

2) 분석 대상 PAHs의 독성등가계수

PAHs는 약 200여종의 이성질체가 존재하며 US EPA에서는 이 중 16종의 PAHs에 대해 관리하고 있다. 본 연구에서 참고한 선행 연구의 경우 모두 PAHs의 화학종 중 Naphtalene (Nap), Acenaphthylene (AcPy), Acenaphthene (AcP), Fluorene (Flu), Phenanthrene (PhA), Anthracene (Ant), Fluoranthene (FluA), Pyrene (Pyr), Benz(a)anthracene (BaA), Benzo(b)fluoranthene (BbF), Benzo(k)fluoranthene (BkF),

Table 1. Summary of road dust deposited samples for PAHs in previous studies

Region	year	Sampling locations	n*	PAHs concentration range	Reference
Busan	2010	main traffic roads	6	0.402 ~ 4.240 mg/kg	Yoo et al. 2010
		less traffic roads	3		
		parks without traffic	3		
Incheon	2010	main traffic roads	8	0.598 ~ 4.517 mg/kg	Eom et al. 2010
		roads nearby subways	16		
Gwangju	2015	main traffic roads	7	0.139 ~ 1.740 mg/kg	Kim et al. 2015
		less traffic roads	3		
		parks without traffic	3		
Ulsan	2009	roads nearby industrial complex	8	11.840 ~ 245.12 mg/kg	Dong & Lee 2009
		main traffic roads	3		
		roads nearby downtown areas	2		
		roads nearby residential area	2		

*: number of samples

Benzo(a)pyrene (BaP), Dibenz(a,h)anthracene (DbA), Chrysene (Chr), Benzo(ghi)perylene (Bghip), Indeno (1,2,3-C,D)pyrene (InP) 등 총 16개 화합물에 대한 분석을 수행하였다. PAHs와 같이 개별 화합물들의 독성기전이 동일할 경우, 이들의 노출평가는 화합물을 대표할 수 있는 물질의 독성을 기준으로 상대독성계수(toxic equivalency factors, TEF)를 통해 동시노출에 대한 평가를 실시할 수 있다(Park et al. 2016). 본 연구에서는 초과 발암 위험도를 결정하기 위해 독성이 가장 큰 Benzo(a)pyrene을 독성값 1로 하여 다른 PAHs 종들의 독성 계수(Toxicity Equivalent Factors; TEFs)와 각 PAHs의 산출평균값을 곱하여 모두 더해준 TEQ-tPAHs(mg/kg)값을 이용하여 위험도 평가를 수행하였다. TEF값은 국외 문헌을 참고하였다(Liao & Chiang 2006).

2. 노출시나리오 설정

1) 노출평가

일반적으로 PAHs에 오염된 도로 퇴적물은 차량 이동으로부터 재 비산되어 바람을 타고 이동할 수 있다. 도로 옆 도보를 통해 이동하는 주변 거주민들은 실외 활동 시 비산된 도로 퇴적물의 대기 중으로 인한 흡입, 비의도적 섭취, 피부접촉 등 주로 3가지 경로에 의해

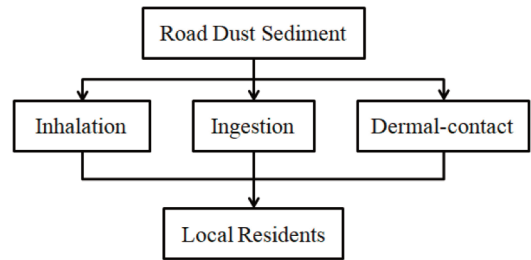


Figure 1. Human exposure scenario of road dust deposited sediments in this study.

Table 2. Exposure equations by scenarios in this study

Inhalation	$ADD = \frac{C_s \times IR_a \times EF \times ET \times ED}{BW \times AT \times PEF \times 365}$
Ingestion	$ADD = \frac{C_s \times IR_s \times EF \times ET \times ED \times CF \times 10^{-6}}{BW \times AT \times 365}$
Dermal-contact	$ADD = \frac{C_s \times SA \times AF \times ABS \times EF \times ET \times ED \times CF \times 10^{-6}}{BW \times AT \times 365}$

ADD: average daily dose (mg/kg/day), C_s : TEQ-tPAHs concentration in soil (mg/kg), IR_a : inhalation rate (m^3/hr), IR_s : ingestion rate (mg/day), AT: average time (year), EF: exposure frequency (day/year), ABS: Soil to skin absorption factor (unitless), ED: exposure duration (year), PEF: soil to air particle emission factor (m^3/kg), AF: Soil to skin adhesion factor (mg/cm^2), SA: surface area (cm^2/day), BW: body weight (kg), CF: conversion factor (day/hr), ET: exposure time (hr/day)

Table 3. Exposure factors and distributions in this study

Exposure Factors	Unit	Value	Distribution	Reference
ED	year	30	Normal mean=25 s=8.25	Tong et al. 2018
EF	day/year	365	point estimate	This study
ET	hr/day	2.18	Lognormal m=2.18, s=2.01	NIER 2019
AT	year	82.7	point estimate	NIER 2019
BW	kg	64.5	Lognormal m=64.5 s=12.65	NIER 2019
IR_a	m^3/hr	0.61	Lognormal m=0.61, s=0.13	NIER 2019
IR_s	mg/day	100	Triangular (20, 100, 1000)	Tong et al. 2018
PEF	m^3/kg	1.36E+09	point estimate	Man et al. 2013
SA	cm^2/day	3193	Lognormal m=3193, s=107.55	NIER 2019
ABS	unitless	0.13	point estimate	Gbeddy et al. 2020
AF	mg/cm^2	0.2	point estimate	US EPA 1997

Table 4. Slope Factors of benzo(a)pyrene

Slope Factor	Value	Unit	Reference
Ingestion SF	7.3	(mg/kg/day) ⁻¹	Knafla et al. 2006
Dermal-adjusted SF	25	(mg/kg/day) ⁻¹	US EPA 1994
Inhalation SF	3.85	(mg/kg/day) ⁻¹	Wang 2007

PAHs의 유해성에 노출될 수 있다. 따라서 도로변으로부터의 오염원-수용체(sources-receptors) 사이의 가능한 노출경로를 Figure 1과 같이 설정하였다.

총 인체 노출량은 Figure 1의 모든 노출 경로를 통해 계산된 노출량을 합산하여 산정하였다. 본 연구에서 PAHs 노출량은 토양으로부터의 흡입, 섭취, 피부 접촉의 노출 산정식으로 계산하였다. 노출 경로에 따른 노출량 산정 수식은 Table 2에 제시하였다(Gbeddy et al. 2020; NIER 2007). 노출 계수는 국내외 문헌을 통해 조사된 값으로 설정하였으며 이를 Table 3에 나타냈다(US EPA 1997; Man et al. 2013; Gbeddy et al. 2020; Tong et al. 2018; NIER 2019). 본 연구의 위해도 평가의 주요 노출 대상은 한국인이므로 한국인의 특성을 반영한 노출계수를 활용하고자 하였다. 노출 시간(ET)의 경우 한국인의 평균 실외환경 노출시간을 고려하여 하루에 2.18시간으로 하였으며 피부접촉면적(SA)의 경우 보편적으로 노출되는 부분을 고려하여 한국인의 목, 머리 그리고 팔꿈치부터 손목까지의 체표면적을 더한 값을 적용하였다. 노출 기간(ED)의 경우 발암위해도 산정 시 일반적으로 사용되는 30년을 적용하였다.

2) 기율기 인자(Slope Factor)

노출평가를 통해 산정된 총 인체 노출량을 이용하여 PAHs의 인체 발암 위해도를 결정하기 위해서는 용량-반응 평가를 통해 산출된 PAHs의 기율기 인자(Slope Factor; SF)값이 필요하다. 벤조[a]피렌의 기율기 인자 값은 국외 문헌을 참고하였다(Table 4).

3. 결정론적 및 확률론적 위해성 평가

1) 위해도 결정

발암성 물질의 위해도는 유해화학물질에 의해 장기간에 걸쳐 인체에 노출되었을 때 암이 발생할 수 있

는 확률로 산정한다. 발암 위해도는 발암성 물질의 인체 노출에 따라 가장 보수적인 수준에서 노출량에 기율기 인자 값(SF)을 곱하여 초과 발암 위해도(Excess Cancer Risk; ECR)를 산정하며, 일반적으로 수용체에 해가 되지 않는 허용 위해도 수준은 $1.0 \times 10^{-6} \sim 1.0 \times 10^{-4}$ 범위로 정하고 있다.

2) 결정론적 위해성 평가

결정론적 위해성 평가(Deterministic Risk Assessment, DRA)는 노출변수(Exposure Factor)의 단일 값(point estimate)을 적용하여 결과를 도출한다. 하지만 노출변수를 단일 값으로 적용하는 경우, 변수값의 변화에 따라 그 결과가 상이하고 많은 불확실성(uncertainty)을 갖게 된다. 이러한 노출변수 자료들의 불확실성은 위해도 결과에 대해 과대평가 혹은 과소평가와 같은 정량적인 해석을 하는 오류를 발생시킬 수 있으나 직관적인 결과를 확인할 수 있어 우선적인 관리가 필요한 오염지역을 선별하는데 활용할 수 있다.

3) 확률론적 위해성 평가

본 연구에서는 결정론적 위해성 평가 결과 기준치 이상의 값을 나타내 위해성이 있다고 판단되는 지점에 대해서 확률론적 위해성 평가(Probabilistic Risk Assessment, PRA)를 수행하였다. 확률론적 위해성 평가는 여러 노출 인자에 대한 확률론적 분포값을 사용하여 위해성 결과를 분포값으로 나타내는 것이며, 본 연구에서는 여러 인자들을 동시에 계산해주기 위해 'Monte-Carlo simulation'을 적용하였다. 'Monte-Carlo simulation'은 'Crystal Ball' 소프트웨어를 사용하여 총 100,000번의 시뮬레이션을 수행하였고, Table 3에 노출평가 시 노출 인자 값들의 범위 및 분포 유형을 제시하였다.

III. 연구결과 및 토의

1. 지역별 PAHs 농도 및 분포 특성

각 지역의 PAHs 농도는 독성이 가장 큰 Benzo(a)pyrene을 독성값 1로 하여 다른 PAHs 종들의 독성계수(Toxicity Equivalent Factors; TEFs)를 곱해준 값으로 환산하였으며 이를 모두 더해준 TEQ-tPAHs(mg/kg)값으로 나타낸 결과를 Table 5에 제시하였다.

1) 각 지역의 지점별 PAHs 분포 특성

각 지역의 지점별 PAHs 16종의 농도 분포를 비교해본 결과, 울산지역에서 가장 높은 농도로 관찰되는 PAHs종은 BkF로 특히 울산 주요도로의 경우, 23.41 mg/kg으로 다른 지점의 모든 PAHs 화합물 중에서도 눈에 띄게 높은 농도 수준을 나타냈다. 인천과 부산의 주요도로에서는 FluA가 각각 0.586mg/kg,

0.413mg/kg으로 해당 지점 내 가장 높은 농도를 나타내었다. 인천의 역사주변에서는 PhA가 0.66mg/kg으로 가장 높은 농도를 나타내었으며, 두 번째로는 FluA가 0.616mg/kg으로 가장 높았다. 마지막으로 광주의 주요도로에서는 Pyr의 농도가 0.211mg/kg으로 가장 높게 나타났다. TEQ-tPAHs 값의 경우, 울산의 주요도로에서 20.63mg/kg으로 가장 높은 값을 나타냈으며, 그다음으로는 울산의 주거지역, 인천의 지하철역 부근, 인천의 주요도로, 부산의 주요도로, 그리고 마지막으로 광주의 주요도로 순으로 높게 나타났다.

2) 각 지역의 지점별 PAHs 배출원

선행연구에 따르면 Flu, Pyr는 디젤엔진 자동차, BkF, InP는 가솔린 엔진 자동차, AcPy, AcP, Flu, Ant 등은 산업시설의 연소에 의한 배출원별 주요 PAHs 성분으로 예측된다(Dong & Lee 2009). 또한

Table 5. Concentration distributions of PAHs in road dust deposited sediment by four different regions

PAHs ^{a)}	U ^{b)} (mg/kg)	I (mg/kg)	B (mg/kg)	G (mg/kg)	U-R (mg/kg)	I-S (mg/kg)
Nap	0.00	0.117	0.083	0.040	0.020	0.218
AcPy	0.53	0.039	0.058	0.000	0.090	0.044
AcP	1.97	0.034	0.037	0.026	1.340	0.150
Flu	0.69	0.054	0.033	0.036	0.370	0.146
PhA	0.98	0.337	0.339	0.161	0.740	0.660
Ant	0.35	0.073	0.112	0.025	0.240	0.155
FluA	10.70	0.586	0.413	0.179	5.100	0.616
Pyr	10.06	0.468	0.368	0.211	6.090	0.364
BaA	0.00	0.307	0.192	0.081	0.000	0.218
Chr	0.00	0.303	0.143	0.066	0.000	0.238
BbF	0.00	0.156	0.170	0.089	0.000	0.146
BkF	23.41	0.117	0.131	0.089	12.41	0.107
BaP	10.63	0.142	0.094	0.057	4.320	0.204
InP	6.05	0.098	0.136	0.030	1.460	0.078
DbA	11.84	0.044	0.023	0.011	3.650	0.044
Bghip	14.64	0.234	0.171	0.090	9.930	0.068
TEQ-tPAHs (mg/kg)	20.63	0.327	0.300	0.124	8.067	0.342

^{a)} Naphtalene (Nap), Acenaphthylene (AcPy), Acenaphthene (AcP), Fluorene (Flu), Phenanthrene (PhA), Anthracene (Ant), Fluoranthene (FluA), Pyrene (Pyr), Benz(a)anthracene (BaA), Benzo(b)fluoranthene (BbF), Benzo(k)fluoranthene (BkF), Benzo(a)pyrene (BaP), Dibenz(a,h)anthracene (DbA), Chrysene (Chr), Benzo(ghi)perylene (Bghip), Indeno(1,2,3-C,D)pyrene (InP)

^{b)} U: Main road of Ulsan, I: Main road of Incheon, B: Main road of Busan, G: Main road of Gwangju U-R: Residential area of Ulsan, I-S: Subway station of Incheon

Table 6. Source identification by using PAHs ratio and energy fuel types

Sites	BaP/ (BaP+Chr)	BaP/Bghip	FluA/ (FluA+Pyr)	Ant/ (Ant+PhA)	BaA/ (BaA+Chr)	Reference
U	1.00	0.73	0.52	0.26	-	
I	0.32	0.61	0.56	0.18	0.50	
B	0.40	0.55	0.53	0.25	0.57	
G	0.46	0.63	0.46	0.13	0.55	
U-R	1.00	0.44	0.46	0.24	-	
I-S	0.46	3.00	0.63	0.19	0.48	
Gasoline	<0.4	0.3~0.4	0.20-0.58	0.06-0.27	0.23-0.89	a, b
Diesel	>1	0.45-0.83	0.60-0.70	0.11	0.18-0.69	c
Wood/grasses combustion			0.41-0.67	0.13-0.29	0.27-0.58	d
Lignite and brown coal			0.59-0.85	0.00-0.16	0.39-0.49	e, f
Hard coal briquettes/coal tar			0.52-0.62	0.18	0.30-0.54	g, h
Cement production	0.3-0.4		0.40-0.50			i

a) Rogge et al. 1993; b) Li & Kamens 1993; c) Yunker et al. 2002; d) Jenkins et al. 1996; e) Grimmer et al. 1983; f) Oros & Simoneit 2000; g) Ratajczak et al. 1984; h) Grimmer et al. 1985; i) Tobiszewski & Namiesnik 2012.

PAHs의 배출 기원은 특정 PAHs 종의 비율로서 추측이 가능하다. Table 6에 특정 PAHs의 비율에 따른 주요 배출 기원을 비교하여 나타내었다.

BaP/Bghip, BaA/(BaA+Chr) 값을 보면 거의 모든 지역에서 디젤의 영향으로 추정되는 범위의 값이 나타났고, FluA/(FluA+Pyr), Ant/(Ant+PhA) 그리고 BaA/(BaA+Chr) 값에서는 거의 모든 지역에서 가솔린으로부터 배출되었다고 추정되는 값이 나타났다. 인천 지역의 모든 값에서 석탄, 목재 연소 등으로 추정되는 범위가 관측되지만, 시료채취 지점의 특성을 고려할 때 목재나 석탄 연소 등은 직접적인 영향을 주었다고 보기 어려우므로 모든 지역에서의 주요 PAHs 배출 기원은 디젤과 가솔린, 즉 차량에 의한 배출인 것으로 판단된다.

2. 인체 위해성 평가 결과

1) 결정론적 위해성 평가(deterministic risk assessment, DRA) 결과

지역별 초과 발암 위해도(excess cancer risk, ECR)의 계산 결과를 Table 7에 제시하였다. 총 초과 발암 위해도의 경우 울산의 주요도로, 울산의 주거지역, 인천의 역사주변, 인천의 주요도로, 부산의 주요도로 순으로 크게 나타났다. 특히 울산 지역의 주요도로 및 주거지역에서 각각 3.67×10^{-5} , 1.36×10^{-5} 로 1.0×10^{-6} 을 상회하는 결과가 나타났다. 광주, 부산, 인천지역의 경우에는 초과 발암 위해도가 1.0×10^{-6} 보다 작게 나타나 PAHs로 인한 발암 위해도가 기준치를 넘지 않았다. 노출 경로별 발암 위해도 결과를 살펴보면 흡입, 피부접촉, 섭취 중 피부접촉에 의한 발암 위해도가 가장 큰 것으로 나타나며 이

Table 7. ECR estimates of PAHs in road dust deposited sediment by DRA in different regions

ECR	U	I	B	G	U-R	I-S
ingestion	9.54E-06	9.75E-08	6.92E-08	3.71E-08	3.53E-06	1.15E-07
Dermal	2.71E-05	2.77E-07	1.97E-07	1.05E-07	1.00E-05	3.28E-07
Inhalation	5.42E-10	5.54E-12	3.93E-12	2.10E-12	2.01E-10	6.56E-12
Total ECR	3.67E-05	3.75E-07	2.66E-07	1.42E-07	1.36E-05	4.44E-07

는 다른 노출경로에 비해 피부 접촉에 의한 기율기 인자 값이 크기 때문일 것으로 예상된다. 울산의 주요도로 및 주거지역 지점에서는 섭취와 흡입으로 인한 발암 위해도가 모두 기준치인 1.0×10^{-6} 을 상회하는 값을 나타낸다. 비교적 가장 낮은 발암 위해도를 보이는 흡입으로 인한 노출의 경우 모든 지역에서 1.0×10^{-6} 보다 작게 관찰되므로 흡입으로 인한 발암 위해도는 낮다고 할 수 있다.

2) 확률론적 위해성 평가(probabilistic risk assessment, PRA) 결과

본 연구에서 결정론적 위해성 평가 결과, 울산의 주요도로와 주거지역 두 지점에서의 발암 위해도가 1×10^{-6} 을 초과하는 것으로 나타났으며, 이들 두 지역에 대해 확률론적 위해성 평가를 수행하였다. 두 지점의 확률론적 위해성 평가 결과는 Table 8에 나타났다. 확률론적 발암 위해도 평균값은 울산의 주요

도로 3.52×10^{-5} , 울산의 주거지역 1.30×10^{-5} 으로 계산되었다. 이는 확률론적 위해성 평가 결과 분포의

Table 8. ECR estimates of PAHs in road dust deposited sediment by PRA

Percentile	U	U-R
DRA	3.67E-05	1.36E-05
Min	<1.00E-07	<1.00E-07
5%	6.94E-06	2.56E-06
10%	1.01E-05	3.73E-06
20%	1.56E-05	5.77E-06
30%	2.12E-05	7.86E-06
40%	2.76E-05	1.02E-05
Median	3.51E-05	1.30E-05
60%	4.47E-05	1.65E-05
70%	5.78E-05	2.14E-05
80%	7.79E-05	2.88E-05
90%	1.17E-04	4.34E-05
95%	1.64E-04	6.08E-05
Max	3.47E-03	1.49E-03

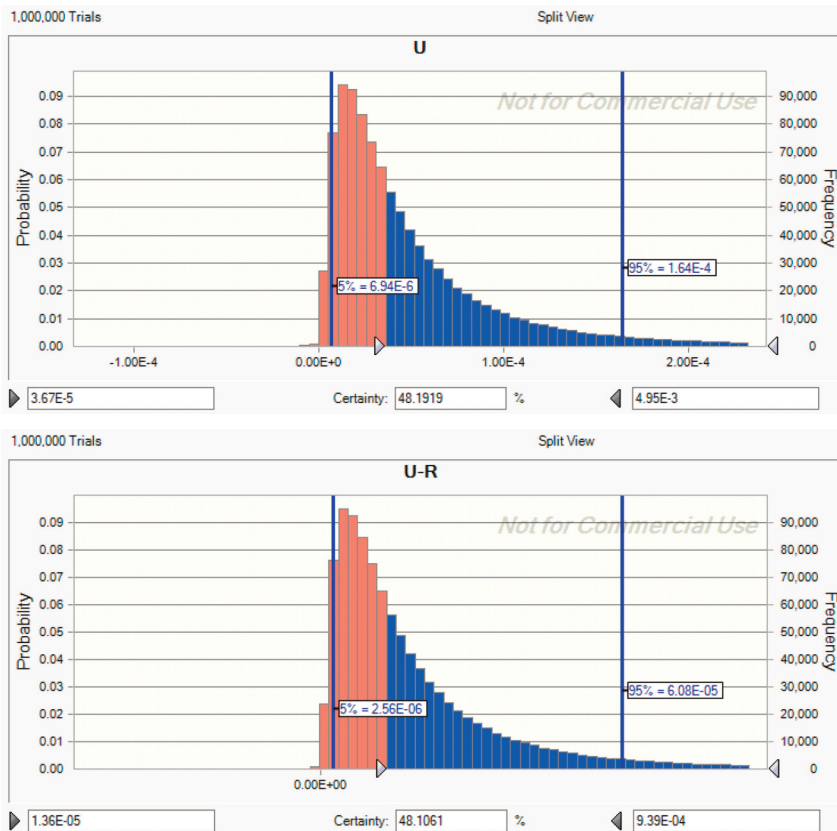


Figure 2. The result of probabilistic risk assessment in this study.

48% 확신도를 나타내는 값으로, 단일값을 활용한 결정론적 위해도 산정에서 도출되었던 발암 위해도와 비슷한 수준을 나타내었다. 확률론적 위해성 평가 결과 보수적 기준인 1.0×10^{-6} 발암 위해도 수준을 초과하는 Percentile은 울산 주요도로 99.8%, 울산 주거지역 99.3%로 나타났다. 기준을 10^{-4} 로 설정할 경우 발암 위해도 수준을 초과하는 Percentile은 울산 주요도로 13.4% 울산 주거지역 1.4%로 낮은 확률을 보였다. 대체로 미국과 유럽의 경우 초과 발암 위해도 수준을 $1.0 \times 10^{-4} \sim 1.0 \times 10^{-6}$ 범위에서 설정하여 위해도 관리를 수행하기 때문에 향후 보다 상세한 모니터링을 통한 인체 위해성 평가가 이루어져야 할 것으로 판단된다.

확률론적 위해성 평가 결과에 대한 민감도 분석(sensitivity analysis) 결과, 노출시간(ET), 노출기간(ED), 토양 섭취율(IRs), 체중(BW)이 확률론적 위해성 평가의 결과값에 미치는 영향이 각각 69.0%, 14.1%, 12.9%, 4%로 나타났다. 따라서 향후 울산 지역 거주민들의 실외대기 노출 시간, 노출기간, 토양 섭취율, 체중 등에 대한 보다 상세한 노출계수 조사를 수행한다면 확률론적 위해성 평가의 신뢰도를 보다 향상시킬 수 있을 것으로 보인다.

IV. 결론

본 연구에서 국내 도로노면 퇴적 입자 내 PAHs에 대한 농도 및 분포특성 분석과 인체 위해성 평가를 수행한 결과 아래와 같은 결론을 얻었다.

1) 국내 도로 노면 퇴적물 내 PAHs의 지역, 지점별 농도분포 특성을 비교 분석해 본 결과, 분석 지점들 중에서 울산 주요도로의 TEQ-tPAHs(mg/kg)농도가 20.63mg/kg으로 가장 높았으며 특히 BkF가 23.41mg/kg으로 다른 지점의 모든 PAHs 화합물 중에서도 눈에 띄게 높은 농도 수준을 나타냈다.

2) 국내 도로 노면 퇴적물 내 PAHs의 배출 기원을 분석한 결과, 모든 지역에서의 PAHs 값 분포 중 BaP/Bghip, BaA/(BaA+Chr), FluA/(FluA+Pyr), Ant/(Ant+PhA) 그리고 BaA/(BaA+Chr) 값이 나타

내는 범위를 통해 모든 지역에서의 주요 PAHs 배출 기원은 디젤과 가솔린, 즉 차량에 의한 배출인 것으로 판단된다.

3) 초과 발암 위해도의 경우 울산 주요도로 및 주거지역에서 각각 3.67×10^{-5} , 1.36×10^{-5} 로 기준치인 1.0×10^{-6} 발암 위해도 수준을 상회하는 것으로 나타났다. 이는 각각 백만 명 중 약 36명, 13명에게 오염된 도로퇴적물 내 PAHs로 인한 발암이 나타날 가능성이 있다는 의미이다. 노출경로에 따른 발암 위해도의 경우, 피부 접촉에 의한 초과 발암 위해도 기여가 가장 높고 그다음으로 섭취에 의한 기여가 높았으며 흡입으로 인한 위해도는 전체 발암 위해도 중 1% 미만의 기여도를 나타냈다. 노출 시간은 한국인의 평균 실외활동시간인 2.18 hr/day를 사용하였으나 노출 기간의 경우 30년으로 매우 보수적인 값임에 유의해야 한다.

4) 울산 지역의 도로 노면 퇴적입자 내 PAHs에 의한 발암 위해도에 대하여 확률론적 위해성 평가를 수행한 결과, 중간 값에서 결정론적 위해성 평가 결과 값과 매우 유사한 범위를 나타내었다.

5) 울산의 주요도로 및 주거지역의 확률론적 위해성 평가 결과에 대한 민감도 분석(sensitivity analysis) 결과, 노출시간(ET) 69.0%, 노출기간(ED) 14.1%, 토양 섭취율(IRs) 12.9%, 체중(BW) 4%로 노출 시간(ET)이 위해성 결과에 미치는 영향이 가장 컸다. 본 연구에서는 결정론적 위해성 평가 시 노출시간(ET)을 한국인의 평균 실외활동 시간으로 적용하였으므로 다소 보수적으로 평가했다고 판단할 수 있다. 그러나 일반 거주민 이외에 오염된 도로 퇴적물이 분포하는 도로 근처 상업단지 종사자, 도로 청소부 등 노출 시간이 일반 거주민보다 긴 직업군의 경우 더 큰 위해도를 나타낼 가능성이 있으므로 주의가 필요하다.

이상을 종합해볼 때, 울산의 주요도로 및 주거지역에서의 초과 발암 위해도가 타 분석 대상 지역에 비해 높은 값을 가진다는 것을 알았다. 보편적인 초과 발암위해도 기준($1.0 \times 10^{-4} \sim 1.0 \times 10^{-6}$)을 고려한다면 향후 위해도 관리는 물론 울산 지역에 대한 상세한 모

니터링을 통한 추가 위해성 평가가 이루어져야 할 것으로 판단된다. 특히 지역적 특성을 반영한 노출 계수의 산정을 위해 실외활동 시간, 및 거주 기간 등 기초 통계자료 등을 수집하여 노출량 산정 절차에 반영한다면 인체 위해도 평가 결과의 신뢰도를 높일 수 있을 것이다.

사사

이 논문은 2019년도 정부(교육부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 기초연구사업임(No. 2019R111A3A01056684)

References

- Anh HQ, Minh TB, Tran TM, Takahashi S. 2019. Road dust contamination by polycyclic aromatic hydrocarbons and their methylated derivatives in northern Vietnam: Concentrations, profiles, emission sources, and risk assessment. *Environmental pollution*. 254: 113073.
- Demir T, Karakaş SY, Karakaş D. 2019. PAHs, elemental and organic carbons in a highway tunnel atmosphere and road dust: Discrimination of diesel and gasoline emissions. *Building and environment*. 160: 106166.
- Dong TTT, Lee BK. 2009. Characteristics, toxicity, and source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in road dust of Ulsan, Korea. *Chemosphere*. 74: 1245-1253.
- Eom JG, Dong JI, Ro JI, Heo JG, Kang HG, Lee JH, Kim OM, Lee YJ, Han JE. 2010. Polycyclic Aromatic Hydrocarbons(PAHs) Distribution Characteristics in Roadside Sediment of Incheon Metropolitan City. *Journal of Korea society of waste management*. 27(1): 35-42. [Korean Literature]
- Franco CFJ, Resende MF, Furtado LA, Brasil TF, Eberlin MN, Netto ADP. 2017. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in street dust of Rio de Janeiro and Niteroi, Brazil: Particle size distribution, sources and cancer risk assessment. *Science of the total environment*. 599-600: 305-313.
- Gbeddy G, Egodawatta P, Goonetilleke A, Ayoko G, Chen L. 2020. Application of quantitative structure-activity relationship (QSAR) model in comprehensive human health risk assessment of PAHs, and alkyl-, nitro-, carbonyl-, and hydroxyl-PAHs laden in urban road dust. *Journal of Hazardous Materials*. 383: 121154.
- Gope M, Masto RE, George J, Balachandran S. 2018. Exposure and cancer risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in the street dust of Asansol city, India. *Sustainable cities and society*. 38: 616-626.
- Grimmer G, Jacob J, Naujack KW, Dettbarn G. 1983. Determination of polycyclic aromatic compounds emitted from brown-coal-fired residential stoves by gas chromatography/mass spectrometry. *Analytical Chemistry*. 55: 892-900.
- Grimmer G, Jacob J, Dettbarn G, Naujack KW. 1985. Determination of polycyclic aromatic compounds, azaarenes, and thiaarenes emitted from coal-fired residential furnaces by gas chromatography/mass spectrometry. *Fresenius Journal of Analytical Chemistry*. 322: 595-602.
- Hussain K, Rahman M, Parkash A, Hoque RR. 2015. Street dust bound PAHs, carbon and heavy metals in Guwahati city - Seasonality, toxicity and sources. *Sustainable cities and*

- society. 19: 17-25.
- IARC (International Agency for Research on Cancer). 2010 Some non-heterocyclic polycyclic aromatic hydrocarbons and some related exposures. In: IARC WHO (ed) IARC monographs on the evaluation of carcinogenic risks to humans. vol 92, Lyon, France.
- Jang YC, Lee S, Shin YS, Kim H, Lee J. 2011. Human Health Risk Assessment of Benzene from Industrial Complexes of Chungcheong and Jeonla Province. 20(4): 497-507. [Korean Literature]
- Jenkins BM, Jones AD, Turn SQ, Williams RB. 1996. Emission factors for polycyclic aromatic hydrocarbons from biomass burning. Environmental Science & Technology 30: 2462-2469.
- Kim H, Jung KM, Kim TS. 2006. Characteristics of Seasonal Distributions of Fine Particles (PM_{2.5}) and Particle-Associated Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Urban, Metropolitan and Industrial Complex Sites. Journal of environmental toxicology. 21(1): 45-56. [Korean Literature]
- Kim S, Kim Y, Kim J, Choi Y, Bae S, Cho Y, Kim E. 2015. Distribution Characteristics of PAHs and Heavy Metals in Roadside Sediment at Gwangju City Area. Journal of Korea society of waste management. 32(3): 297-308. [Korean Literature]
- Knafla A, Phillipps KA, Brecher RW, Petrovic S, Richardson M. 2006. Development of a dermal cancer slope factor for benzo[a]pyrene. Regulatory Toxicology and Pharmacology 45: 159-168.
- Li CK, Kamens RM. 1993. The use of polycyclic aromatic hydrocarbons as source signatures in receptor modeling. Atmospheric Environment, Part A, General Topics. 27(4): 523-532.
- Li Y, Song N, Yu Y, Yang Z, Shen Z. 2017. Characteristics of PAHs in street dust of Beijing and the annual wash-off load using an improved load calculation method. Science of the total environment. 581-582: 328-336.
- Liao C, Chiang KC. 2006. Probabilistic risk assessment for personal exposure to carcinogenic polycyclic aromatic hydrocarbons in Taiwanese temples. Chemosphere. 63: 1610-1619.
- Lorenzi D, Entwistle JA, Cave M, Dean JR. 2001. Determination of polycyclic aromatic hydrocarbons in urban street dust: Implications for human health. Chemosphere. 83: 970-977.
- Man YB, Kang Y, Wang HS, Lau W, Li H, Sun XL, Giesy JP, Chow KL, Wong MH. 2013. Cancer risk assessments of Hong Kong soils contaminated by polycyclic aromatic hydrocarbons. Journal of Hazardous Materials. 261: 770-776.
- NIER (National Institute of Environmental Research). 2007. Guidelines on selection criteria, procedures, and methods for targeting substances for risk assessment (National Institute of Environmental Sciences Notification No. 2006-30).
- NIER (National Institute of Environmental Research). 2019. Korean Exposure Factors Handbook.
- Oros DR, Simoneit BRT. 2000. Identification and emission rates of molecular tracers in coal smoke particulate matter. Fuel. 79(5): 515-536.
- Park S, Lee WB, Kim SU, Kim JO. 2016. Characterization and Emission Sources of PAHs for Industrial Complex Soils in

- Jeollanamdo. *Journal of Soil and Groundwater Environment*. 21(3): 49-57. [Korean Literature]
- Ratajczak EA, Ahland E, Grimmer G, Dieltbarn G. 1984. Verminderung der emission von polycyclischen aromatischen kohlenwasserstoffen beim einsatz von pech durch bitumen in steinkohlenbriketts. *Staub. Reinhalt. Luft* 44: 505-509.
- Rogge WF, Hildemann LM, Mazurek MA, Cass GR, Simoneit BRT. 1993. Sources of fine organic aerosol. 2. Noncatalyst and catalyst-equipped automobiles and heavy-duty diesel trucks. *Environmental Science & Technology*. 27: 636-651.
- Tobiszewski M, Namiśnik J. 2012. PAH diagnostic ratios for the identification of pollution emission sources. *Environmental Pollution*. 162: 110-119.
- Tong R, Yang X, Su H, Pan Y, Zhang Q, Wang J, Long M. 2018. Levels, sources and probabilistic health risks of polycyclic aromatic hydrocarbons in the agricultural soils from sites neighboring suburban industries in Shanghai. *Science of the Total Environment*. 616-617: 1365-1373.
- US EPA. 1994. "Benzo[a]pyrene (BaP) (CASRN 50-32-8)" from <http://www.epa.gov/ncea/iris/subst/0136.htm>.
- US EPA. 1997. *Exposure Factors Handbook*. EPA/600/P-95/002F, Environmental Protection Agency, Office of Research and Development, Washington, DC.
- Wang Z. 2007. *Regional Study on Soil Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Liaoning: Patterns, Sources and Cancer Risks*. Dalian University of Technology, Dalian.
- Wei C, Bandowe BAM, Han Y, Cao J, Zhan C, Wilcke W. 2015. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) and their derivatives (alkyl-PAHs, oxygenated-PAHs, nitrated-PAHs and azaarenes) in urban road dusts from Xi'an, Central China. *Chemosphere*. 134: 512-520.
- Yoo E, Choi Y, Kim M. 2010. Pollution Characteristics of Heavy Metals and Polycyclic Aromatic Hydrocarbons(PAHs) in Deposited Road Particles of Busan. The Annual Report of Busan Metropolitan City Institute of Health & Environment. *Journal of environmental impact assessment*. 20(1): 178-193. [Korean Literature]
- Yunker MB, Macdonald RW, Vingarzan R, Mitchell RH, Goyette D, Sylvestre S. 2002. PAHs in the Fraser River basin: a critical appraisal of PAH ratios as indicators of PAH source and composition. *Organic Geochemistry*. 33(4): 489-515.
- Zhang J, Li R, Zhang X, Bai Y, Cao P, Hua P. 2019. Vehicular contribution of PAHs in size dependent road dust A source apportionment by PCA-MLR, PMF, and Unmix receptor models. *Science of the total environment*. 649: 1314-1322.
- Zhang R, Han D, Jiang L, Zhong M, Liang J, Xia TX, Zhao Y. 2020. Derivation of site-specific remediation goals by incorporating the bioaccessibility of polycyclic aromatic hydrocarbons with the probabilistic analysis method. *Journal of Hazardous Materials*. 384: 121239.