

1996년과 1997년의 거제연안 자연산 홍합의 독화 양상과 마비성패독 (PSP)의 모니터링

전중균 · 한명수*

강릉대학교 생명과학대학 해양생명공학부, *한양대학교 자연과학대학 생물학과

Monitoring of Intoxication and Toxin Composition on Wild Mussels (*Mytilus corsucus*) from Coastal Waters near Koje Island, Korea in 1996 and 1997

Joong-Kyun JEON and Myung-Soo HAN*

Fac. of Marine Biosci. & Technol., Kangnung Nat. Univ., Kangnung 210-702, Korea

*Dept. of Biology, Col. of Natural Science, Hanyang Univ., Seoul 133-791, Korea

The biweekly monitoring of paralytic shellfish toxin on wild mussels (*Mytilus corsucus*) was carried out at Jangmok Bay, near Koje Island from Feb. 1996 to Feb. 1997. Toxicity and toxin composition were monitored by means of the mouse bioassay and HPLC. Paralytic shellfish toxin was detected from 27 March to 27 May and 28 November. This is the first record of paralytic shellfish toxin during autumn in Korean waters. Toxin composition between the two different season was similar and was composed of 5~8 toxin fractions as GTXs, STXs and PXs. The major toxin component in affected mussels shifted from GTXs in spring to PXs in autumn.

Key words: mussel (*Mytilus corsucus*), monitoring, mouse assay, PSP, toxin composition

서 론

국내에서 이매패류가 마비성패독 (paralytic shellfish poisoning, PSP)으로 독화한다는 사실은 1986년 부산 감천만에서 홍합에 의한 중독사고의 계기로 알려지게 되었고 (KORDI, 1986; Jeon et al., 1987; Chang et al., 1987), 이후 PSP에 관하여 본격적인 조사가 이루어지면서 연안 산 패류의 독화상황 및 독성분에 관해 많은 정보를 얻을 수 있었다 (MOST, 1990; KORDI, 1992; Jeon et al., 1988; Jeon and Huh, 1989; Lee et al., 1992; Han et al., 1992, 1993, 1994; Jeon et al., 1996). 특히 KORDI (1986)는 우리 나라 연안에 분포하는 대표적인 패류 28 종을 대상으로 지역적 및 계절별 독화상황을 집중적으로 조사한 결과, 충무와 진해를 중심으로 하는 남해 중부역이 주요 독화 해역이며, 홍합 담치 등의 담치류, 비단가리비 큰가리비 등의 가리비류가 주로 독화하고, 독화 시기는 지역에 따라 약간의 차이가 있지만 남해안에서는 주로 3~6월의 봄철에 발생한다는 것을 확인한 바 있다. 한편, 최근 Kim et al. (1996b)과 Shin et al. (1996)은 굴이나 미더덕도 독화하는 것을 보고한 바 있어 독화 패류가 확대되고 있음이 밝혀지고 있다.

남해역에서 생산되는 이매패류 (주로 홍합을 중심으로)가 독화되었을 때에 검출된 패독성분은 전형적인

PSP의 독조성을 보였다. 즉, 부산 감천만에서 독화한 홍합의 독조성은 gonyautoxin (GTX)-1, -2, -3과 -4가 주성분이고 neosaxitoxin (neoSTX)과 saxitoxin (STX), protogonyautoxin (PX)-1, -2가 부성분이었으며 (Jeon et al., 1987; Arakawa et al., 1987), 거제산 담치에서는 GTX-1, -2, -3과 -4가 주성분이었고 STX과 PX-1, -2가 부성분으로 분석되었다 (Jeon and Huh, 1989). 그리고 진해산 홍합의 경우에는 상기한 독성분 외에 decarbamoylgonyautoxin (dcGTX)-2, -3도 함께 검출되었다 (Lee et al., 1992).

남해중부역에서 주로 발생하는 패류의 독화원인을 규명하기 위하여 Han et al. (1992, 1993)은 진해만을 중심으로 유독플랑크톤의 분포 및 생태에 관해서 집중적으로 조사하여 해수에서 직접 분리한 *Alexandrium tamarense*의 조체 및 배양조체에서 패독성분인 PSP를 검출하므로써 (Lee et al., 1992; Han et al., 1993; Jeon et al., 1996) 원인종이 *Alexandrium tamarense* (= *Protogonyaulax tamarensis*)라는 것을 밝힌 바 있다.

한편, 국내에서 실시한 PSP에 관한 연구의 대부분은 패류의 중독사고가 발생하는 봄철에 집중적으로 이루어져 왔다. 그러나, 해양에서의 패류 독화는 전세계적으로 확산되고 있고 연안역의 다양한 지역과 시기에 발생하고 있다. 우리나라 연안에서도 봄철이외의 다른 시기에서도

패류가 독화할 가능성은 매우 높을 것으로 판단됨에 따라, 이매패류의 독화 모니터링을 상세하게 조사하는 것은 매우 중요할 것이라 여겨진다. 본 연구에서는 해산식량 자원의 안전성 확보를 위한 연구의 일환으로써 진해만 칠천수도의 장목 연안에서 1996년 2월부터 1년간 매월 2회씩 주기적으로 홍합의 PSP 독화상황을 모니터링 하여 봄철뿐 아니라 가을철에도 독화한다는 결과를 처음으로 확인하였으므로, 이하 그 결과를 보고한다.

재료 및 방법

시료 : 실험에는 경남 거제군 칠천수도의 장목만에서 1996년 2월부터 1997년 2월까지 월 2회씩 주기적으로 채집한 자연산 홍합 (*Mytilus corsucus*)을 사용하였으며, 홍합은 채집후 독성 분석시까지 -25°C 의 냉동고에서 보관하였다.

독조성의 분석 : 홍합으로부터 조독의 추출과 독조성 분석을 위한 전처리를 다음과 같이 하였다. 즉, 냉동 상태로 보관 중이던 홍합을 반해동시켜 증장선만을 떼어낸 다음 3배량의 1% 초산-30% 에탄올 용액과 함께 Tissue homogenizer (Tekmar T25-S1, Ika Lab., Germany)로 1분간 균질화한 다음, 원심분리후 상등액을 모으고나서 잔사는 같은 방법으로 2회 반복하여 상등액을 모았다. 이것을 감압농축기로 농축시켜 일정량으로 한 뒤 이 중에서 1 ml를 ICR계통의 마우스에 복강내투여하여 독성을 확인하였다. 독성이 확인된 시료는 동결건조하여 일정량의 증류수로 녹인 다음에 Sep-Pak ODS C18 (Waters, U.S.A.), Ultrafree (GC3C, Millipore, U.S.A.)를 사용한 원심한외여과 과정을 거쳐 분석시료로 하였다.

HPLC 분석 : Oshima et al. (1989)의 방법에 따라 분석하였으며, 분석에 사용한 독성분의 각 표품은 Jeon et al. (1987)에서와 같다.

결과 및 고찰

Table 1은 독화 시기를 파악하기 위하여 1996년 2월부터 1년간 채집한 시료를 대상으로 증장선의 독성을 mouse bioassay로 조사한 결과이다. 여기에서 1 MU는 시료 1 ml를 mouse에 복강내 투여시 15분에 치사시키는 독량을 말한다. 이 독성은 초산을 사용하는 AOAC (1984)나 日本食品衛生検査指針 (Kawabata, 1978) 등의 공정법과는 달리 산성에탄올 용액으로 추출하여 독성을 측정하는 것이어서 초산 추출액의 독성과는 다소 차이를 보일 것이다. 본 조사에서 1996년 거제 장목만에서는 3월 27일에 이미 패류가 독화하기 시작하였고 약 2개월 후까지 계속되어 5월 27일까지 독성을 확인할 수 있었다. 이후 수온이 상승하는 여름철로 접어들면서 독성은 검출되지 않다가 이후 11월 28일에 독성을 다시 검출되었다. 본 연구 결과는 남해안에서는 봄철뿐 아니라 가을철에도 PSP에 의해서 홍합이 독화하는 것을 처음으로 확인한 것이다.

장목만 인근 해역에서의 봄철 PSP 독화는 *A. tamarense* (Han et al., 1992; Lee et al., 1992; Jeon et al., 1996)가 원인생물이라는 것이 확인된 바 있다. 지금까지 밝혀진 마비성패독의 원인은 주로 와편모조류 (dinoflagellates)에 속하는 *A. tamarense* (= *A. excavata*), *A. catenella*, *A. cohorticula*, *A. acatenella*, *A. phoneus*, *Pyrodinium bahamense*, *Pyrodinium* var. *bahamense*, *Gymnodinium catenatum* 등의 플랑크톤으로서 전세계에 다양하게 분포하고 있다. 이들 중 우리 나라 남해안에서 봄철에 주로 나타나는 *A. tamarense*는 주로 온대역의 $15\sim 20^{\circ}\text{C}$ 의 수괴에 분포하므로 수온이 낮은 가을철에 PSP 독화의 원인플랑크톤은 *A. tamarense*와는 다를 것으로 추측된다. 인근 일본해역의 경우 수온이 낮은 가을철의 마비성패독의 원인생물은 *A. catenella*가 주요 원인

Table 1. Toxicity of wild mussels from Jangmok Bay, Koje Island in 1996 and 1997

Date of sampling	Toxicity of digestive gland (MU g^{-1})	Date of sampling	Toxicity of digestive gland (MU g^{-1})	Date of sampling	Toxicity of digestive gland (MU g^{-1})
12 Feb. 1996	-*	11 June 1996	-	14 Nov. 1996	-
27 Feb.	-	26 June	-	28 Nov.	1.5
14 Mar.	-	8 July	-	14 Dec.	-
27 Mar.	3.0	30 July	-	30 Dec.	-
10 Apr.	3.5	14 Sept.	-	15 Jan. 1997	-
25 Apr.	5.0	30 Sept.	-	30 Jan.	-
9 May	2.5	15 Oct.	-	12 Feb.	-
27 May	3.6	28 Oct.	-	27. Feb.	-

- : less than 2 MU g^{-1}

종이라고 밝혀진 바 있다 (Hashimoto, 1982). Han et al. (unpublished data)은 최근 진해만의 가을철 해수로부터 *Alexandrium* sp.의 존재를 확인하였으며, Kim et al. (1996a)은 일본과 유럽 등지에서 PSP의 원인플랑크톤으로 알려진 *Gymnodinium catenatum* (Fraga and Sanchez, 1985; Fukuyo et al., 1993; Hallegraff et al., 1989; Ikeda et al., 1989; Matsuoka and Fukuyo, 1994; Mee et al., 1986; Oshima et al., 1987, 1993)의 유영세포와 cyst를 본 조사지의 인근 해역으로부터 확인한 바 있다. 그러나, 아직 어떤 종이 가을철 장목만의 홍합 독화와 관련이 있는지는 확인되지 않았으며, 이의 해결을 위하여 해수로부터 분리된 유독플랑크톤의 독성 유무와 분포 및 생태학적 조사를 진행 중에 있다.

한편, Fig. 1~3은 1996년 3월 27일, 4월 25일 및 5월 27일에 채집한 유독 홍합의 증장선으로부터 부분 정제한 조독소를 HPLC로 분석한 결과이다. 우선 GTX군 (Fig. 1)은 3가지 시료에서 모두 검출되었는데 neoSTX 계열의 GTX-1, -4 보다는 STX 계열의 GTX-2, -3이 확실하게 검출되었으며, 4월과 5월 시료에서는 GTX-1은 거의 나타나지 않았다. 그리고 STX군 (Fig. 2)의 경우, 3월 시료

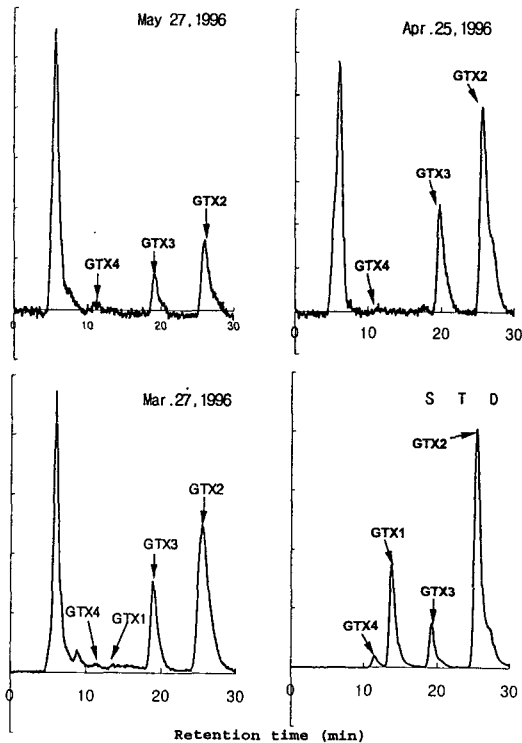


Fig. 1. HPLC analysis for GTXs fractions of mussel collected at Jangmok Bay, Koje Island in spring, 1996.

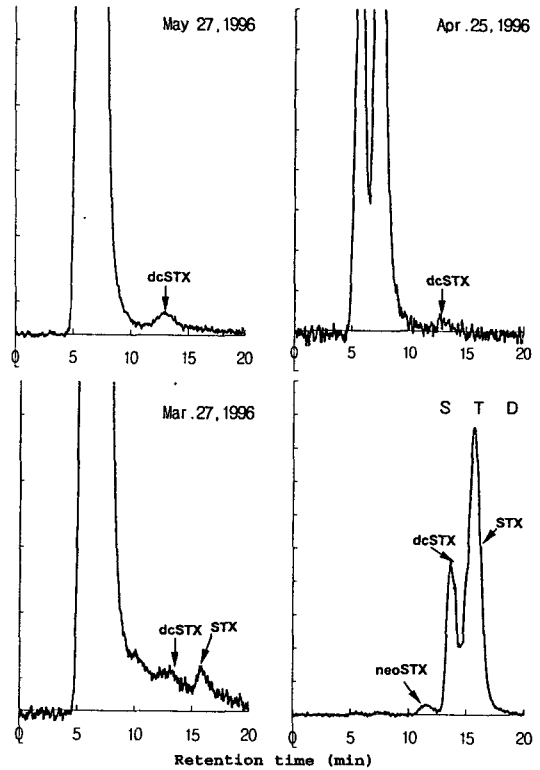


Fig. 2. HPLC analysis for STXs fractions of mussel collected at Jangmok Bay, Koje Island in spring, 1996.

에서는 decarbamoylsaxitoxin (dcSTX)과 STX가 검출되었으나 4월과 5월 시료에서는 dcSTX만이 적은량 검출되었다. 한편, 저독성성분인 PX군 (Fig. 3)은 3가지 시료에서 모두 미량이지만 PX-1과 -2가 검출되었다. 그리고 가을철 (11월)에 독성이 확인된 홍합의 독조성은 Fig. 4~6과 같다.

GTX군 (Fig. 4)으로는 적은 양이지만 GTX-4와 GTX-3을 확인하였고, STX군 (Fig. 5)에서는 dcSTX를, 그리고 PX군 (Fig. 6)에서는 PX-1,2를 확인할 수 있었다. 이와 같은 독조성은 봄철에 독화한 홍합의 독조성과 비교하여 고독성성분인 GTX군과 STX군이 적고 저독성성분인 PX군의 조성이 크다는 차이가 있고, 이것은 mouse bioassay 결과에서도 봄철 시료에 비해 가을철 시료의 독성이 낮은 것과 일치한다.

이상을 정리하면 다음과 같다. 즉, 거제 장목에서 봄철에 채집한 홍합에서는 이제까지 국내에서 보고된 타 지역의 패류의 독조성과 비슷하여 GTX군이 주성분이었고 그 밖의 PX군과 STX군이 부성분이었었으나, 가을철에 독화한 경우에는 이와는 달리 저독성성분인 PX군이 주성분이었고 GTX군과 STX군이 미량 혼재하고 있음을

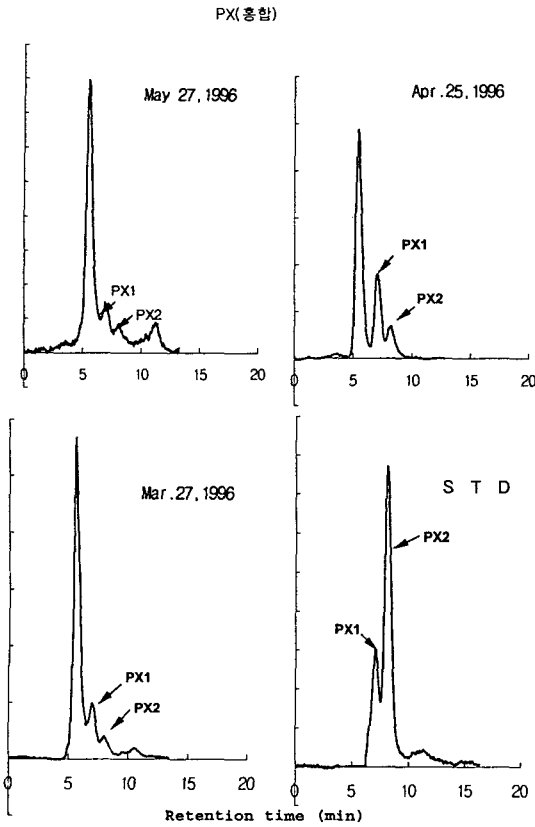


Fig. 3. HPLC analysis for PXs fractions of mussel collected at Jangmok Bay, Koje Island in spring, 1996.

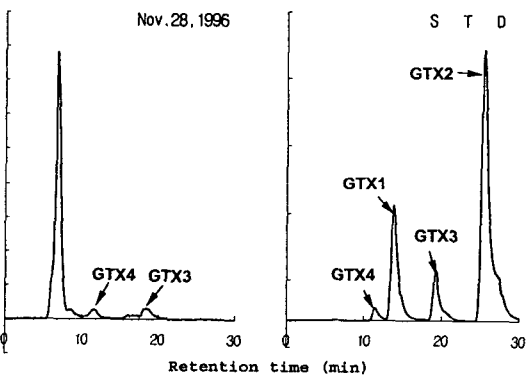


Fig. 4. HPLC analysis for GTXs fractions of mussel collected at Jangmok Bay, Koje Island in November, 1996.

알 수 있었다. 따라서 앞으로는 봄철에 일어나는 독화뿐 아니라 가을철의 독화 발생에 관해서도 원인생물의 확인 등 정확한 독화 상황을 파악하여야 할 것이며, 이는 수

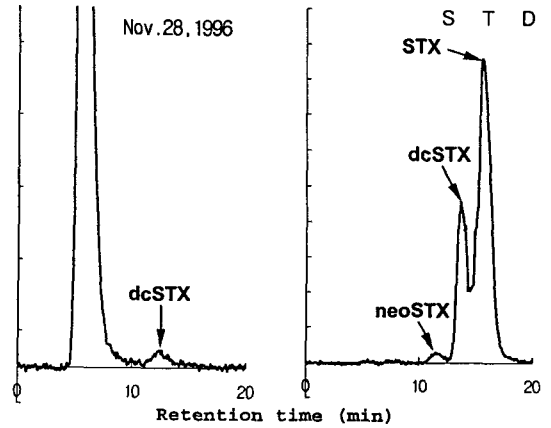


Fig. 5. HPLC analysis for STXs fractions of mussel collected at Jangmok Bay, Koje Island in November, 1996.

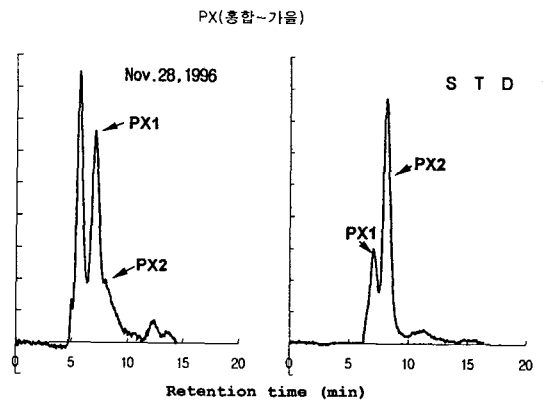


Fig. 6. HPLC analysis for PXs fractions of mussel collected at Jangmok Bay, Koje Island in November, 1996.

산물의 식량자원으로서 안정성을 확보하는데 기여할 것이며, 독화 해역의 확산을 방지하는데도 기초자료로 크게 활용될 것이다. 한편, 이러한 총합의 독성과 독조성의 차이가 원인생물의 차이에 기인한 것인지에 관해서는 현재 연구를 진행 중에 있다.

요 약

1996년 2월부터 1997년 2월까지 월 2회씩 경남 거제군 장목만에서 자연산 홍합 (*Mytilus corsucus*)을 채집하여 PSP 독화상황을 조사하였다. 홍합의 독성은 마우스를 이용한 생물검정법으로 측정하였고, 독조성은 HPLC를 사용하여 분석하였다. 그 결과, 독성은 3월 27일부터 5월

27까지의 시료에서 검출되었으며, 또한 11월 28일의 시료에서도 검출되었다. 본 연구는 국내에서 가을철에도 PSP에 의해 패류가 독화한다는 것을 처음으로 확인하고 보고한 것이다. 한편 독화한 홍합의 독조성은 봄철 시료의 경우에 GTX군이 주성분이고 STX군과 PX군이 부성분이었으나, 가을철 시료는 봄철의 것에 비해 고독성 성분인 GTX군과 STX군이 적고 저독성 성분인 PX군의 조성이 큰 특징을 보였다.

감사의 글

본 연구의 일부는 농림수산기술센터의 연구사업 (현장 애로기술개발) 및 한양대학교 교내연구사업의 지원을 받아 수행되었기에 감사드립니다. 그리고 시료 수집에 도움을 준 경상대학교 해양과학대학 김진수 교수님과 독조성 분석을 도와준 한양대학교 생물학과 플랑크톤연구실 원들과 전형진 학제에게 감사를 드립니다.

참 고 문 헌

- AOAC, 1984. Paralytic shellfish poisoning. 18.070. In Official Methods of Analysis of the Association of Official Analytical Chemists. W. Horwitz, ed. Washington, pp. 319~321.
- Arakawa, O., T. Noguchi, D.F. Hwang, D.S. Chang, J. K. Jeon and K. Hashimoto. 1987. Paralytic shellfish poisoning in the mussel *M. edulis* in Korea. In 'Red Tide : Biology, Environmental Science and Toxicology', Okaichi, T., D.M. Anderson and T. Nemoto eds., Elsevier, New York, pp.405~408.
- Chang, D.S., I.S. Shin, J.H. Pyeon and Y.H. Park. 1987. A study on paralytic shellfish poison of sea mussel, *Mytilus edulis*. - Specimen caused food poisoning accident in Gamchun bay, Pusan, Korea, 1986-. Bull. Korean Fish. Soc., 20 (4), 293~300.
- Fraga, S. and F.J. Sanchez. 1985. Toxic and potentially toxic dinoflagellates found in Galician Rias (NW Spain). In 'Toxic Dinoflagellates'. Anderson, D.M., A. W. White and D.G. Baden eds., Elsevier, Amsterdam, pp. 51~54.
- Fukuyo, Y., M. Kodama, T. Ogata, T. Ishimaru, K. Matsuoka, T. Okaichi, A.M. Maala and J.A. Ordonez. 1993. Occurrence of *Gymnodinium catenatum* in Manila Bay, Phillippines. In 'Toxic Phytoplankton Blooms in the Sea'. Smayda, T.J. and Y. Shimizu eds., Elsevier, New York, pp. 875~880.
- Hallegraeff, G.M., S.O. Stanley, C.J. Bloch and S.I. Blackburn. 1989. *Gymnodinium catenatum* blooms and shellfish toxicity in Southern Tasmania. In 'Red Tide : Biology, Environmental Science and Toxicology', Okaichi, T., D.M. Anderson and T. Nemoto eds., Elsevier, New York, pp. 405~408.
- Han, M.S., J.K. Jeon and Y.O. Kim. 1992. Occurrence of dinoflagellate *Alexandrium tamarese*, a causative organism of paralytic shellfish poisoning in Chinhae Bay, Korea. J. Plankton Res., 14 (11), 1581~1592.
- Han, M.S., J.K. Jeon and Y.H. Yoon. 1993. Distribution and toxin profiles of *Alexandrium tamarese* (Lebour) Balech (dinoflagellate) in the southern coastal waters, Korea. Korean J. Phycol., 8 (1), 7~13.
- Han, M.S., Y.O. Kim and J.K. Jeon. 1994. Changes in phytoplankton community structure in the two different hydrological conditions of semi-enclosed Chinhae Bay, Korea. Bull. Plankton Soc. Japan, 41 (1), 43~55.
- Hahimoto, K. 1982. General aspects. In Toxic Phytoplankton-Occurrence, Mode of Action, and Toxins, Nippon Suisan Gakkaishi ed. Koseisha Koseigaku, Tokyo, pp. 9~21.
- Ikeda, T., S. Matsuno, S. Sato, T. Ogata, M. Kodama, Y. Fukuyo and H. Takayama. 1989. First report on paralytic shellfish poisoning caused by *Gymnodinium catenatum* Graham (Dinophyceae) in Japan. In 'Red Tide : Biology, Environmental Science and Toxicology', Okaichi, T., D.M. Anderson and T. Nemoto eds. Elsevier, New York, pp. 411~414.
- Jeon, J.K., M.S. Han and H.O. Kim. 1996. Paralytic shellfish toxins in the mussels and *Alexandrium tamarese* (dinoflagellate) from Gamraepo, Korea in 1989. In 'Harmful and Toxic Algal Blooms' Yasumoto, T., Y. Oshima and Y. Fukuyo (eds), Int'l Oceanographic Commission of UNESCO. pp.65~68.
- Jeon, J.K. and H.T. Huh. 1989. Paralytic shellfish poisons in the cultured mussel *Mytilus edulis galloprovincialis*. J. Ocean. Soc. Korea, 24 (2), 79~83. (in Korean)
- Jeon, J.K., T. Noguchi, D.F. Hwang, O. Arakawa, Y. Nagashima, K. Hashimoto and H.T. Huh. 1987. Studies on the toxic substance of mussel *Mytilus* sp. J. Ocean. Soc. Korea, 22 (4), 271~278. (in Korean)
- Jeon, J.K., S.K. Yi and H.T. Huh. 1988. Paralytic shellfish poison of bivalves in the Korean waters. J. Ocean. Soc. Korea, 23 (3), 123~129. (in Korean)
- Kawabata, T. 1978. Assay method for PSP. In Japan Food Hygiene Association, ed. Food Hygiene Examination Manual 2. Environmental Health Bureau. Ministry of health and Welfare, Tokyo, pp. 240~244 (in Japanese).
- Kim, H.G., K. Matsuoka, S.G. Lee and K.H. An. 1996a. The occurrence of a dinoflagellate *Gymnodinium catenatum* from Chinhae Bay, Korea. J. Korean Fish. Soc., 29 (6), 837~842.

- Kim, Y.M., S.H. Choi, S.J. Kim, S.B. Suh, H.S. Pyun, D.S. Chang and I.S. Shin. 1996b. Studies for reestablishment of approval toxin amount in paralytic shellfish poison-infested shellfish. 1. Toxicity change in paralytic shellfish poison-infested blue mussel, *Mytilus edulis* and oyster, *Crassostrea gigas* during boiling and canning processes. J. Korean Fish. Soc., 29 (6), 893~899.
- KORDI. 1986. A study on toxic compounds of mussels *Mytilus* sp. BSPE 00110-131-3. pp. 19. (in Korean)
- KORDI. 1992. A study on the toxic phytoplankton and the toxicity of intoxicated bivalves. BSPE 00241-441-3. pp. 29. (in Korean)
- Lee, J.S., J.K. Jeon, M.S. Han, Y. Oshima and T. Yasumoto. 1992. Paralytic shellfish toxins in the mussel *Mytilus edulis* and dinoflagellate *Alexandrium tamarense* from Jinhae Bay, Korea. Bull. Korean Fish. Soc., 25 (2), 144~150.
- Matsuoka, K. and Y. Fukuyo. 1994. Geographic distribution of the cyst of toxic *Gymnodinium catenatum* Graham in Japanese coastal waters. Bull. Plankton Soc. Japan., 34, 109~114.
- Mee, L.D., M. Espinosa and G. Diaz. 1986. Paralytic shellfish poisoning with a *Gymnodinium catenatum* red tide on the Pacific coast of Mexico. Mar. Environ. Res., 19, 77~92.
- MOST. 1990. A study for development of bioactive compounds with special reference to the marine toxins (III). BSPG 00106-308-3. pp. 176. (in Korean)
- Oshima, Y., K. Hasegawa, T. Yasumoto, G.M. Hallegraef and S.I. Blackburn. 1987. Dinoflagellate *Gymnodinium catenatum* as the source of paralytic shellfish toxins in Tasmanian shellfish. Toxicon, 25, 1105~1111.
- Oshima, Y., H. Itakura, K.C. Lee, T. Yasumoto, S. Blackburn and G. Hallegraef. 1993. Toxin production by the dinoflagellate *Gymnodinium catenatum*. In 'Toxic Phytoplankton Blooms in the Sea'. Smayda, T.J. and Y. Shimizu eds., Elsevier, New York, pp. 907~912.
- Oshima, Y., K. Sugino and T. Yasumoto. 1989. Latest advances in HPLC analysis of paralytic shellfish toxins. In '7th IUPAC Symposium on Mycotoxins and Phycotoxins'. Natori, S., K. Hashimoto and Y. Ueno eds., Elsevier, Amsterdam, pp. 319~326.
- Shin, I.S., S.H. Choi, T.S. Lee, H.J. Lee, J.H. Kim, J.S. Lee and Y.M. Kim. 1996. Studies for reestablishment of approval toxin amount in paralytic shellfish poison-infested shellfish. 2. Change of toxin composition and specific toxicity in paralytic shellfish toxins of blue mussel, *Mytilus edulis* and oyster, *Crassostrea gigas* from Woepori, Koje, Korea during canning process. J. Korean Fish. Soc., 29 (6), 900~908.

1998년 6월 18일 접수

1998년 10월 27일 수리