

PCBs의 식물에 대한 침착 특성

김태욱¹⁾ · 여현구* · 최민규 · 천만영¹⁾

¹⁾한경대학교 환경공학과, 건국대학교 환경공학과

(2001년 3월 14일 접수, 2001년 5월 30일 수리)

The Characteristics of PCBs Deposition on Plants

Tae Wook Kim¹⁾ · Hyun Gu Yeo* · Min Kyu Choi · Man Young Chun¹⁾ (Department of Environmental Engineering, Hankyong National University, Dept. of Environmental Engineering, Konkuk University, Department of Environmental Engineering, 1 Hwayang-dong, Kwangin-gu, Seoul, 143-701, Korea e-mail : hgyeo@kkucc.konkuk.ac.kr)

Abstract : PCBs(Polychlorinated biphenyls) in air and plants were measured every two weeks at Hankyong University located in Ansung, Kyoung ki province from July to November in 1999. The percentage of tri-CBs(PCB 28) and tetra-CBs(PCB 52) is 49% of the total PCBs in air, which shows these two components are the major congeners. A correlation coefficient(*r*) of PCB congeners detected in two plants is 0.83 ($p < 0.01$), indicating that the plants can be used as a passive sampler to indirectly estimate the pollution levels of residual PCBs in the environmental even if they have different physicochemical properties. The average ratio of PCB 110/PCB 52 is higher in plants as 0.5, 2.9 and 2.5 respectively in the air and mulberry leaves as well as scallions, which comes from the higher lipophilicity of PCB 110 rather than the ratio of PCB 110/PCB 52 in the air.

Key words : PCBs, plants, deposition, Koa

서 론

PCBs(Polychlorinated biphenyls)는 1929년에 $1.2 \times 10^7 \sim 1.5 \times 10^7$ kg이 산업용으로 사용된 이래 1960년대 후반까지 다량 사용되었으며 1970년대 후반에 전세계적으로 사용이 금지되었다^{1,2)}. Tanabe³⁾는 환경중에 배출된 PCBs는 374,000 ton으로 추정하고 있으며 현재까지 지구 도처에서 순환을 한다고 보고하였다. 환경중에서 PCBs의 특징은 독성유발물질, 난분해성물질로 동물과 인체에 축적되는 생물농축성인 동시에 식물의 지질에 침착되는 친지질성(lipophilic) 화합물로 알려져 있다.

환경중 존재하는 여러 matrix중 식물은 반휘발성 화합물(semi-volatile organic compounds, SOCs)의 이동에 있어서 중요한 역할을 하는 동시에 대기와 토양의 오염물질 분배 및 동물의 섭취로 인한 축적을 야기시킨다^{4,5)}. SOCs(예. PAHs, PCDD/F, PCBs 등)의 식물로의 이동경로는 매우 다양하며 그 중 토양에서의 휘발된 가스상 성분이 식물잎의 지질에 노출될 수 있고 또한 대기중에 존재하는 SOCs의 습성/건성침착에 의해 식물로 침착될 수 있다⁶⁾. Trapp과 Matthies⁶⁾는 토양 중 PCDD/F의 휘발실험을 통해 식물이 지표면에 접해 있거나, 오염이 심한 토양을 제외하고는 토양에 의한 영향은 매우 작다고 언급하였다. 또한 Romney

등⁷⁾의 보고에 의하면 SOCs 화합물의 식물로의 건성침착에 있어서 중요인자는 입자의 직경이며 100 μm 이하의 직경을 가진 화합물들이 식물의 잎에 침착될 수 있다고 하였다. 그러나 대기중에 존재하는 가스/입자상 SOCs의 식물로의 유입은 입자상 성분의 건성/습성침착(dry/wet deposition)보다는 가스상 성분의 침착이 중요한 경로라고 보고하였다^{8,9)}. 즉 SOCs의 이동경로는 식물의 뿌리를 통해 흡입되는 양은 미약하며 대기중에서 식물잎의 지질층에 침착되므로 식물잎에 침착된 오염물질은 대기의 농도에 의존한다고 할 수 있다. 그러므로 식물은 대기중 SOCs의 농도를 예측할 수 있는 바이오 모니터링(bio-monitoring)이 가능하다. 특히 식물은 오염도가 심한 지역의 대기중 SOCs의 간접 모니터링에 적합할 뿐만 아니라, 측정하기 어려운 지역의 대기오염도를 예측하는데도 중요한 역할을 하여 현재 여러 나라에서 식물을 바이오 모니터링에 이용한 오염도 조사가 실행되고 있다¹⁰⁻¹²⁾. 또한 PCBs는 다른 화합물에 비해 상당히 높은 증기압(1~2 Pa, mono-chlorinated ; 약 7×10^6 Pa, decachlorobiphenyl, 25°C)을 가지기 때문에 극지방에서도 대기로 휘발될 수 있고, 대기를 통한 재분배가 가능하다. PCBs는 동물과 인간에서 다이옥신과 같은 거동을 보이는데, 예를들어 PCB 77, 126 및 169(non-ortho PCB congeners)는 다이옥신의 독성정도를 나타내는 TEFS(toxic equivalency factors)를 환산이 가능하고⁴⁾ 실제로 환경시료중에서

PCBs의 TEF는 PCDD/Fs의 독성에 비해 큰 값을 보인다. 이처럼 PCBs는 환경중의 여러 matrix에 다량 축적되어 있으며 위 화합물에 장기간 노출시에는 독성을 나타낼 수 있다고 할 수 있다.

그러므로 본 연구에서는 PCBs에 노출될 수 있는 여러 matrix 중 물리/화학적 특성 및 서식 형태가 다른 두 식물을 선정하여 식물에서의 PCB congeners별 침착특성 및 대기와 식물에서의 PCBs와 관련성을 파악하고자 한다.

실험 방법

본 연구는 경기도 안성시에 소재한 환경대학교에서 1999년 7월 ~ 1999년 11월까지 대기와 식물 중 PCBs를 채취하였다.

대기와 식물 채취

대기시료는 PUF(polyurethane foam) 시료채취기를 이용하여 입자상(Whatman ϕ 47 mm glass fiber filter, GFF)과 가스상(PUF)을 동시에 채취하였으며 전체 유량은 약 600 m³로 2주간 측정하였다. 측정전 PUF와 GFF는 디클로로메탄(dichloromethane, DCM) 250 mL를 이용하여 Soxhlet에서 세척하여 진공건조기에서 용매를 완전히 건조시킨후 측정에 사용하였다. 채취된 GFFs와 PUFs는 유리 초자에 넣어 -26℃의 냉동고에 보관하였으며, 취급 시 오염을 최대한 줄였다.

식물시료는 대기와 동일한 주기로 환경대학교 내의 밭에서 나무로 제작한 1 m²상자에서 키운 부추(*Allium tuberosum*)와 측정지점에서 50 m 떨어진 곳에서 자생하는 뽕(*Morus alba*)잎을 채취하였으며, 채취된 시료는 PE 봉지에 보관하여 대기시료와 마찬가지로 분석전까지 -26℃의 냉동고에 보관하였다. 그리고 본 연구에서 사용된 기상자료는 환경대학교에서 측정한 안성시 AWS(auto-weather system)을 이용하였다.

전처리 및 분석방법

식물 약 10 g과 hexane(hexane):아세톤(acetone) (4:1) 혼합용매 100 mL를 250 mL 갈색병에 넣고 초음파 추출기에서 2시간 연속 추출 후 추출액을 플라스크로 옮긴 다음, 다시 hexane:아세톤 (4:1) 혼합용매 100 mL를 가하여 1시간 더 추출하여 추출액을 합한 후 회전증발농축(rotarevaporator: BUCHI, R-124)에서 2~3 mL 까지 농축하였다. 농축된 시료는 분석시 방해물질로 작용하는 지질 및 염류소를 제거하기 위하여 실리카 칼럼을 통과시켰고, 칼럼 하단부터 산성 실리카(acidified silica) 3 g, 활성 실리카(activated silica : Merck, TA157134) 1.5 g 및 Na₂SO₄ (Dulksan, GR grade)를 일정량 넣은 다음 hexane 30 mL로 충전 물질을 세척한 후 시료를 넣고 hexane 15 mL, (DCM : hexane (1:1)을 10 mL 및 DCM 35 mL를 컬럼에 차례로 통과시켰다. 실리카 칼럼을 통과한 시료는 회전 증발농축기에서 약 1 mL 까지 농축하였다. 그러나 실리카 컬럼 통과 후에도 제거 되지 않은 시료중의 오염물질

Table 1. GC/MSD operating parameters for PCBs analysis

Detector	Mass Selective Detector
Column	HP-5MS capillary column (30 m×0.25 mm, Film thickness 0.25 μ m)
Inlet	Splitless
Aux temp.	300℃
Injection volume	1 μ L
Temp. program	150℃ for 2 min. 30℃/min. to 170℃ 4℃/min. to 200℃ for 13min 4℃/min. to 268℃ 70℃/min. to 320℃ for 4.09min
Carrier gas	He

및 지질은 GPC(gel permeation chromatography)로 다시 정제하였다.

Bio-Bead(Bio-RAD社, 152-2750)가 충전된 GPC 컬럼은 hexan:DCM (1:1) 혼합용매를 사용하여 시료를 용출시키는데 용출시 처음 34 mL는 지질 및 불순물이 용출되는 부분이므로 버리고 나머지 106 mL를 취하여 회전증발농축기로 2 mL 정도까지 농축하여 keeper로 dodecane(Sigma, D-4259)가하여 최종 부피를 50 μ L로 한후 GC/MSD(Hewlett Packard, HP-5973)로 분석하였다.

대기시료 중 PCBs는 Soxhlet에서 hexan:DCM (9:1) 혼합용매 250 mL로 24시간 동안 GFF와 PUF를 함께 추출하였다. 추출된 시료는 회전증발농축기를 이용하여 2~3 mL 까지 농축하고 실리카 컬럼과 GPC 컬럼을 이용하여 정제한 후 keeper로서 dodecane을 가하여 최종 부피를 50 μ L로 하였고 GC/MSD로 분석하였다(표 1).

정도 관리(Quality Control/Assurance)

PCBs의 정도관리는 식물과 대기에서 중복실험 및 표준시료의 선형성 평가를 실시하였다. 식물시료의 중복실험은 식물을 10 g 씩 2회 채취하여(n=7) 전처리 과정을 거친 후 검출된 PCB congeners의 MPD(mean percent of difference)를 산정하여 검토하였다. PCB 28, 52, 110, 153, 149 및 138의 MDP(R²)는 각각 10.7%(0.87), 9.8%(0.91), 7.4%(0.98), 12.2%(0.92), 13.9%(0.89) 및 8.6%(0.99)로 검출된 모든 PCBs의 MPD가 20% 미만을 나타내어 양호한 결과를 보였으나 R²는 PCB 28과 PCB 149에서 다소 낮았다.

PCBs의 표준시료에 대한 선형성 평가 결과, 총 33개의 분석대상 PCBs의 결정계수(R²)는 0.9917~1.000의 양호한 결과를 나타내었으며, 참고적으로 영국의 Lancaster University에서 펴낸

PCBs QA/QC Protocol에서는 각 PCB congeners별 결정계수를 0.985이상이어야 한다고 언급하고 있다¹³⁾. PCBs의 검출한계인 LOD(limit of detection)는 예상되는 검출한계의 1.5배 정도가 되게 조정하여 6회 반복 분석한 표준물질의 농도의 평균에 표준편차의 3배를 곱해서 산정하였다(LOD = 평균 + 3×표준편차)¹³⁾. 그 결과 식물중 PCB congeners별 LOD는 0.94(PCB 60)~2.49 pg/g DW(PCB 52)이었고, 대기중 LOD는 0.011(PCB 18)~0.124 pg/m³ (PCB 52)을 나타내었다.

결과 및 고찰

대기중의 PCBs 농도

측정기간 중 평균 온도, 풍속 및 강우량은 각각 19.7℃(8.00~28.5℃), 0.48 m/s(0.23~0.86 m/s) 및 166 mm(18.5~593 mm) 이었으며, 8월 17일 ~ 8월 31일에 가장 높은 온도인 28.5℃를 나타내었으며, 7월 20 ~ 8월 4일에 가장 많은 강우량인 593 mm를 보였다. 표 2는 측정기간중 대기중 PCB congeners의 농도를 나타낸 것이다.

총 PCB(9 congeners의 합)는 8.82~39.9 pg/m³로 1999년 7월 4일~7월 20일에 가장 낮은 농도를 보인 반면 8월 31일~9월 14일에 최대 농도를 보였으며 최대/최소 농도 비는 4.5로 나타났다. Tri- 와 tetra-CBs인 PCB 28과 52가 총 PCB 중 차지하는 비율은

49%로 대기 중 PCBs의 농도를 좌우하는 주된 종이었다. 이것은 영국, 미국 및 유럽에서 수년동안 조사된 결과와 유사한 것이다. PCB 28과 52의 평균농도(n=10)±표준편차(범위)는 각각 6.79±7.34 pg/m³(2.84~26.2), 1.19±0.54 pg/m³(0.59~2.60 pg/m³)이었으며, Crispin 등¹⁴⁾이 영국의 런던에서 1991~1992년에 조사한 PCB 28과 PCB 52의 평균농도인 557±291 pg/m³(190~1490 pg/m³), 531±352 pg/m³(116~1770 pg/m³)에 비해 본 연구가 PCB 28은 82배, PCB 52는 446배 낮았으며, Wittlinger 등¹⁵⁾이 South Indian Ocean에서 조사한 농도인 3.20 pg/m³(PCB 28), 4.90 pg/m³(PCB 52)에 비해 본 연구가 PCB 28은 2.1배 높은 농도를, PCB 52는 4배 정도 낮은 농도를 보였다. 즉 본 연구에서 조사된 PCB 28과 52의 대기 중 오염도는 외국의 도시지역에 비해 상당히 낮은 수준을 보였으며, 외국의 해양지역과는 유사한 수준을 보였다.

Penta-CBs(PCB 101, 87, 110, 118중 고농도를 보인 화합물은 PCB 101과 118로 각각 3.45±3.08 pg/m³(0.57~8.87 pg/m³), 2.35±1.67(0.03~6.14 pg/m³)를 나타냈다. 특히 PCB 118은 TEF(Toxic Equivalence Factor)가 0.0001로서 위 화합물이 대기중에서 높은 농도를 보인 것은 상당히 주목해야 할 것으로 사료된다. John 등¹⁶⁾이 Norway의 도시지역에서 1992~1995년까지 High volume PUF sampler로 조사한 PCB 101과 118의 평균농도는 각각 34.3 (n=200), 7.50 pg/m³(n=200)로 본 연구에 비해 PCB 101은 99배,

Table 2. Concentration of PCB congeners and total PCBs in air

Sampling period	PCBs									
	PCBs concentration (pg/m ³)									
	28	52	61/74	66	60	101	87	110	118	Total PCB
7.4-7.20	3.39	0.77	<0.07 ¹⁾	<0.07	0.03	1.11	0.45	0.40	2.52	8.82
7.20-8.4	5.39	0.97	<0.07	1.90	0.02	1.35	0.68	0.72	2.34	13.5
8.4-8.17	2.84	1.12	<0.07	0.60	0.25	0.63	0.34	0.38	1.27	7.48
8.17-8.31	12.0	2.60	0.32	4.97	0.66	3.30	1.14	1.02	3.41	29.4
8.31-9.14	26.2	1.28	0.14	0.99	0.53	2.58	1.13	0.88	6.14	39.9
9.14-9.28	4.15	0.59	<0.07	0.46	0.17	0.57	0.49	0.30	2.56	9.33
9.28-10.12	4.23	1.22	0.13	0.77	0.35	2.65	1.29	0.51	2.83	14.0
10.12-10.26	3.01	1.10	0.09	0.42	0.34	4.80	N.A ²⁾	N.A	1.44	11.2
10.26-11.9	3.65	1.23	0.32	0.75	0.38	8.87	N.A	0.42	0.03	16.0
11.9-11.23	3.09	0.99	0.22	0.55	0.87	8.62	N.A	0.19	0.91	15.4
Mean	6.79	1.19	0.15	1.15	0.39	3.45	0.55	0.48	2.35	16.5
S.D.	7.34	0.54	0.10	1.43	0.29	3.08	0.39	0.28	1.67	10.3
Min.	2.84	0.59	0.04	0.07	0.02	0.57	0.34	0.19	0.03	7.48
Max.	26.2	2.60	0.32	4.97	0.87	8.87	1.29	1.02	6.14	39.3

¹⁾ LOD : Limit of detection, LODs of 61/74, 66 : 0.075, 0.070 pg/m³

²⁾ N.A : Not Analysed.

Table 3. Summary of PCBs concentration in air from other studies.

Sites & Periods		PCBs concentration (pg/m ³)								
		28	52	61/74	66	60	101	87	110	118
This study	Jul - Nov '99	6.79	1.19	0.15	1.15	0.39	3.45	0.55	0.48	2.35
Urban										
Ontario, Canada ^{a)}	Jul'88-Sep'89	83.0	180				119			
Cardiff, U.K. ^{b)}	'91-'92	222	129	27.0 ²⁾	99.1		91.5		98.3 ¹⁾	38.6
Manchester, U.K. ^{c)}	'91-'92	133	101	22.8 ²⁾	98.0		84.5		80.7	84.5
Chicago, US ^{d)}	Feb '88	158	123	33 ³⁾	80 ⁴⁾	22 ⁵⁾	100	25	78 ¹⁾	46 ⁶⁾
Rural										
Lancaster, U.K. ^{e)}	Aug '95						15			2.7
Swedish West Coast ^{f)}	Feb+May '90						9.8			3.0
Costal Woodland U.K. ^{g)}	Jan '91-Dec'92	22.4	4.18		5.33		3.59			1.09
Water Lake District Park, U.K. ^{h)}	Jan '91-Dec'92	5.79	2.26		2.10		1.10			0.66

¹⁾ Sum of 77, 110, ²⁾ Only 61, ³⁾ Only 74, ⁴⁾Sum of 66, 95, ⁵⁾ Sum of 56, 60, ⁶⁾ Sum of 118, 149

^{a)} Hoff *et al.*²⁴⁾ (1992), ^{b, c)} Crispin *et al.*¹⁴⁾ (1995), ^{d)} William *et al.*²⁵⁾ (1995), ^{e)} Lee *et al.*²⁶⁾ (1998)

^{f)} Brorstrom-Lundon²⁷⁾ (1996), ^{g,h)} Halsall *et al.* (1999).

Table 4. Concentration of PCB congeners and total PCBs in mulberry leaves and scallions

PCBs	Periods	PCB concentration (pg/g, dry weight)													
		7.20(11.9 ²⁾)		8.4		8.17(8.31 ¹⁾)		9.14		9.28		10.12		10.26	
		Scal.	Mul.	Scal.	Mul.	Scal.	Mul.	Scal.	Mul.	Scal.	Mul.	Scal.	Mul.	Scal.	Mul.
28		<1.29 ³⁾	90.5	4.76	2.59	<1.29	39.1	10.7	1.59	12.7	55.1	20.7	204	52.7	46.0
52		0.66	36.2	1.33	35.14	7.58	10.4	20.9	51.9	5.76	36.2	19.2	65.3	23.0	5.91
60		1.15	142	1.23	139	1.30	88.3	1.46	33.2	2.49	113	11.2	253	13.0	96.8
101		0.58	49.7	6.57	129	2.97	2.88	17.8	58.5	10.0	40.4	10.2	89.7	11.0	33.0
87		0.35	27.3	1.21	83.6	2.57	6.36	13.0	19.3	0.79	32.9	5.10	28.2	6.38	12.5
110		3.30	90.7	5.62	187	6.43	32.0	30.0	71.9	13.1	71.2	22.8	89.9	51.8	28.1
118		1.33	146	1.43	218	1.51	49.3	11.9	112	18.2	149	49.0	117	114.3	86.9
141		4.96	33.2	N.A. ⁴⁾	19.8	6.99	1.79	N.A	23.8	3.33	N.A	N.A	37.5	N.A	25.1
153		7.03	36.0	0.84	141	6.36	1.68	10.5	41.4	6.23	144	0.84	134	7.76	43.4
149		1.15	23.3	<1.05	80.0	<1.05	2.29	6.69	43.5	2.22	52.3	2.53	78.4	7.10	40.2
138		3.61	83.8	4.73	70.4	3.89	7.81	11.4	49.4	6.36	83.1	12.9	96.5	33.2	56.8
180/193			4.85		28.4		1.54		2.22		16.7		63.9		8.44
170		1.06	26.8	N.A	21.4	0.82	1.24	N.A	13.9	3.64	91.2	6.47	29.3	16.6	24.0
Total PCB		26.5	790	29.2	1154	42.8	245	134	523	84.8	885	161	1287	337	507

¹⁾ Scallions: 8.17, Mulberry leaves : 8.31 ²⁾ Scallions : 7.20, Mulberry leaves : 11.9

³⁾ LOD : Limit of Detection, LODs of 28, 149: 1.29, 1.05 pg/g DW,

⁴⁾ N.A : Not Analysed, Scal. : Scallions, Mul. : Mulberry leaves.

PCB 118은 3배 높은 농도를 보였다. Halsall 등¹⁷⁾이 영국의 교외 지역에서 High volume PUF sampler로 조사한 PCB 101과 118의 평균농도(범위)는 각각 3.59 (0.84~8.82 pg/m³), 1.09 pg/m³(0.48~1.93 pg/m³)으로 본 연구와 매우 유사한 농도 수준을 보였다(표 3).

PCB congeners 중 PCB 28, 52, 61/77, 66, 60은 tri-, tetra-CBs로서 이 화합물의 증기압은 $4.6 \times 10^{-5} \sim 8.6 \times 10^{-5}$ Pa¹⁸⁾로 penta-, hexa-, octa-CBs 보다 휘발에 의한 PCBs의 유입 및 이동이 더 큰 특성을 설명할 수 있다¹⁹⁾. 그래서 증기압이 가장 큰 PCB 28과 다른 PCB congeners들의 상관 관계를 살펴본 결과 PCB 28(tri-CBs)과 PCB 52, 61/77(tetra-CBs), 66 및 60의 상관계수(r)는 각각 0.38, 0.17, 0.33 및 0.24로 유의하지 못한 상관성($0.2 < p < 0.5$)을 보인 반면 PCB 87, 110 및 118과의 상관계수(r)는 각각 0.56, 0.73 및 0.88($p < 0.05$)로 유의한 상관성을 나타냈다. 또한 tri-CB(PCB 28)는 PCB 101과 87을 제외한 penta-CBs(110, 118)와 유의한 상관성을 보였는데 이는 tri-CBs는 대부분 대기중에서 가스상 형태로 존재하고 penta-CBs는 대부분 gas와 입자로 존재한다는 조사²⁰⁾와 관련지어 생각하면 측정지점의 지역적인 오염원과 이동에 의한 영향이 동시에 생각할 수 있다. Simonich 등²¹⁾에 의하면 온도와 대기중의 SOCs화합물은 관련성이 보이는데 만일 온도와 높은 상관성을 나타내면 그지역의 국부적이 배출원의 영향을 보이는 반면 낮은 상관성을 보이면 국부배출원의 영향보다는 이동특성에 의한 결과로 보고하였다.

그래서 측정기간 중 온도와 PCB congeners별 상관관계(r)를 조사한 결과 양의 상관성을 보인 congener는 PCB 28($r=0.35$), PCB 110($r=0.50$) 및 PCB 118($r=0.56$)로 $p < 0.1$ 이하로 나타나 다소 유의한 수준을 보인 반면 음의 상관성은 PCB 61/74($r=-0.44$), PCB 60($r=-0.62$), PCB 101($r=-0.88$), PCB 87($r=-0.51$)로 $p < 0.1$ 의 값을 보였으며 그 외의 PCB congeners인 PCB 52와 PCB 66은 유의한 상관성을 보이지 않았다. 위의 결과로 살펴볼 때 PCB 28, 87, 110은 대기중의 온도가 증가함에 따라 농도가 증가하여 국부적인 오염원의 영향을 크게 나타낸 반면 그 외의 PCB congeners는 온도와 음의 상관성 및 유의한 수준의 상관성을 나타내지 않아 온도의 증가에 의한 재 휘발의 영향보다는 외부에서의 유입에 의한 영향이 크게 작용한 것으로 사료된다. 만일 PCB congeners 별 가스/입자의 분율을 확인한다면 대기 중에서의 PCBs의 거동을 좀 더 자세히 설명할 수 있을 것으로 사료된다.

식물중의 PCBs 농도

측정기간 중 2주 간격으로 채취한 부추 및 뿌잎의 PCB congeners별 농도를 표 4에 나타내었다. 부추와 뿌잎에서 검출된 PCB congeners는 각각 13종과 14종으로 뿌잎에서 PCB 180/193이 더 검출되었다. 부추와 뿌잎에서의 총 PCB 농도(13 또는 14 PCB congeners 합)는 각각 26.5~337 pg/g DW(dry weight), 245~1154 pg/g DW로 나타나 뿌잎에서 검출된 총 PCB의 농도가 부추에 비해 약 43배 높게 나타났다.

뿌잎의 경우 PCB congeners 별 평균농도가 100~150 pg/g DW인 그룹은 PCB 60과 118이었고, 50~100 pg/g DW인 그룹은 PCB 28, 101, 153 및 138 이었으며, 0~50 pg/g DW은 PCB 52, 87, 141, 149, 180/193 및 170 pg/g DW인 반면, 부추의 경우 20~30 pg/g DW인 그룹은 PCB 118이었고 10~20 pg/g DW인 그룹은 PCB 28, 52, 110, 138 및 0~10 pg/g DW인 그룹은 PCB 60, 101, 87, 141, 153, 149, 170으로 나타났다.

그림 1은 뿌잎과 부추에서 검출된 PCB congeners 별 상관성을 나타낸 것이다. 식물 2종에서 검출된 PCB congeners 중 최대농도를 나타낸 것은 뿌와 부추에서 모두 PCB 118로 각각 126 ± 53.5 , 28.2 ± 41.6 pg/g DW 였다. PCB 118은 인체에 섭취시 TEF가 0.0001을 보이는 것으로 대기와 식물에서 매우 높은 농도를 같이 나타내었다. 측정기간 중 최소 농도를 보인 congener는 PCB 141(뿌)과 PCB 149(부추)로 각각 23.5 ± 14.5 , 3.29 ± 2.50 로 나타났다. 본 연구에서 조사된 PCBs 중 penta-CBs인 PCB 87, 101, 118, 138, 153, 170 및 180/194는 EPA 독성평가에서 최대 독성(highest toxicity)과 높은 독성(high toxicity)을 나타내는 항목으로 관리를 하고 있으므로 특히 부추와 같은 채소류를 섭취했을 경우에는 매우 인체에 유해할 것으로 사료된다. 두 식물간에서 검출된 PCB congeners의 상관계수(r)는 0.83($p < 0.01$)으로 매우 양호한 양의 상관성을 보여 주변 환경에 잔류하는 PCB congeners 중별 오염도를 간접적으로 파악하는데 좋은 지표가 될 것으로 판단된다. 그러나 뿌와 부추에서 검출된 총 PCB의 농도는 각각 4400, 786 pg/g DW로 뿌가 부추에 비해 5.6배 높은 농도를 보였다. 이는 두 식물간의 물리·화학적 특징으로 설명할 수 있는데 친지질성 유기오염물질이 식물로 침착되는 주된 메카니즘은 수분함량, 식물종별 잎의 단면적, 유기물질 함량(지질의 양)에 의해 좌우되는데²²⁾ 본 연구에서 조사된 뿌와 부추의 수분함량은 각각 76, 90%로

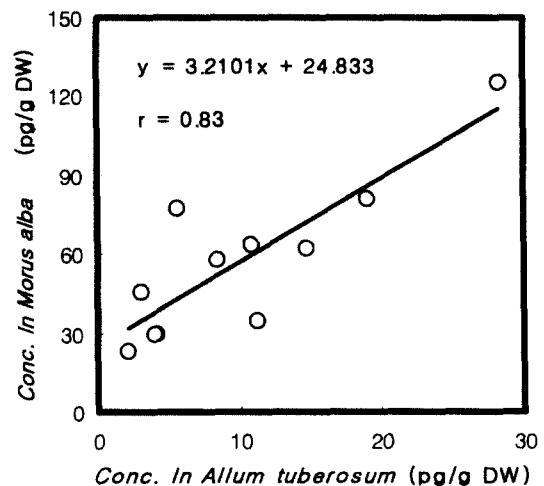


Fig. 1. Correlation of the amount for PCB congeners detected in plants ($p < 0.01$).

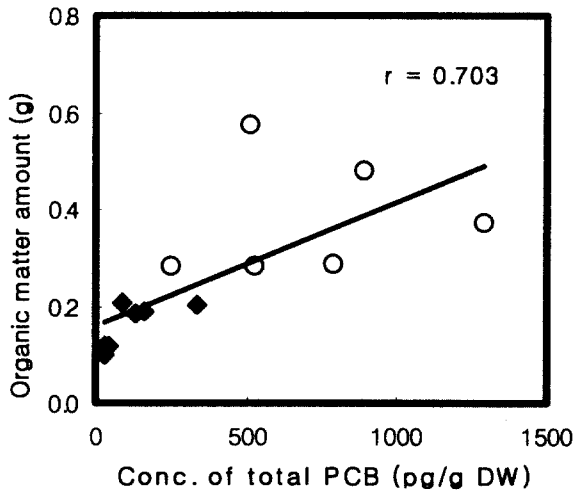


Fig. 2. Correlation of amount between total PCB and organic matter in plants.

(○: *Morus alba*(Scallions), ◆: *Allium tuberosum*(Muberry leaves))

뿌이 부추에 비해 1.2배 낮았고, 유기물 함양은 각각 3.4, 1.3%로 뿌이 부추에 비해 3배정도 높았고, 또한 뿌과 부추 잎의 표면적/무게 비도 뿌이 부추에 비해 매우 크게 나타나 대기에서의 침착(deposition) 및 토양에서의 휘발(volatilization)에 의한 영향을 뿌이 부추에 비해 크게 받은 것으로 사료된다. 또한 식물내의 유기물 함량과 두 식물에서 검출된 총 PCB의 상관계수(r)는 0.703($p < 0.05$)으로 유기물 함량이 증가할수록 흡착가능한 PCB 농도가 증가함을 보였다. 즉 식물 중 내부에 포함된 유기물질의 양은 PCB와 같은 친지질성 화합물의 흡착에 중요한 인자로 작용한다고 할 수 있다(그림 2).

뿌과 부추에서의 PCB homologue별 농도분포를 그림 3에 나타내었다. 뿌과 부추에서 tri-CBs(PCB 28)의 평균농도±표준편차는 각각 65.2 ± 67.2 pg/g DW, 14.8 ± 18.2 pg/g DW이고, tetra-CBs(PCB 52, 60의 합)는 뿌에서 153 ± 80.0 pg/g DW, 부추에서 15.8 ± 13.8 pg/g DW이고, penta-CBs(PCB 87, 101, 110, 118의 합)는 뿌에서 257 ± 96.3 pg/g DW, 부추에서 59.9 ± 62.8 pg/g DW이고, hexa-CBs(PCB 138, 141, 149, 153의 합)는 뿌에서 186 ± 105 pg/g DW, 부추에서 22.0 ± 13.1 pg/g DW 및 hepta-CBs(PCB 170, 180/193의 합)는 뿌이 44.4 ± 40.0 , 부추가 5.71 ± 6.48 로 penta-CBs이 최대농도를 보인 반면, hepta-CBs이 최소농도를 보였다. 그리고 부추와 뿌에서 penta-, hexa-CBs은 tri-, tetra-CBs에 비해 높은 농도를 나타내었는데 이는 logKoa 값으로 설명할 수 있다. Gareth 등²³⁾이 영국에서 조사한 PCB homologues별 logKoa 값은 tri-CBs(8.76), tetra-CBs(9.46), penta-CBs(10.12) 및 hexa-CBs (10.49)로 고분자 PCBs 일수록 Koa(octanol-air partition coefficient) 값이 증가하여 본 연구에서 조사된 결과를 뒷받침 하였다. 그러나 두 식물 모두에서 CI 수가 가장 많은 hepta-CBs의

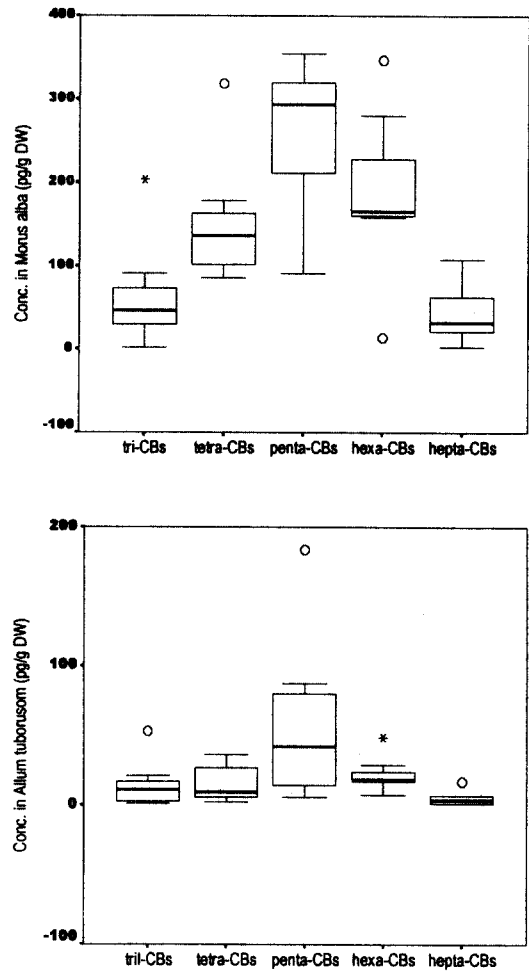


Fig. 3. Concentration ranges of PCB homologues in *Morus alba*(mulberry leaves, left) and *Allium tuberosum*(scallions, right)(n=7). (box plot, ○ : mild outlier, *: severe outlier, — : median)

농도가 가장 낮게 나타난 것은 각 homologue의 입자/가스 비율의 차이와 Koa 산정시 octanol이 이상적인 물질임을 가정한 것으로 설명할 수 있다. 식물로의 PCBs의 침착은 가스상 성분의 영향이 입자상 성분에 비해 크게 작용하고, CI이 증가할수록 대기중에서 대부분 입자상 성분으로 존재한다^{24,26)}. Hepta-CBs은 hexa-CBs 이하의 homologues에 비해 입자상 성분이 차지하는 비율이 높게 나타나²⁴⁾ 식물 지질층으로의 흡착율이 떨어져 가장 낮은 농도를 나타낸 것으로 판단된다. 또한 Koa값은 octanol이 식물의 지질 특성을 모사하는 이상적인 물질임을 가정한 후에 산정한 것이기 때문에 본 연구에서 조사된 PCB homologues와 Koa값이 양호한 선형성을 나타내지 못한 것은 octanol로 대기/식물간의 이동특성을 표현하는 데 다소 한계가 있는 것으로 판단된다²⁹⁾.

뿌이과 부추 중 PCB homologues 농도와 관련이 있는 기상인자(대기중 온도, 풍속 및 강우량)의 변화를 그림 4와 그림 5에 나타

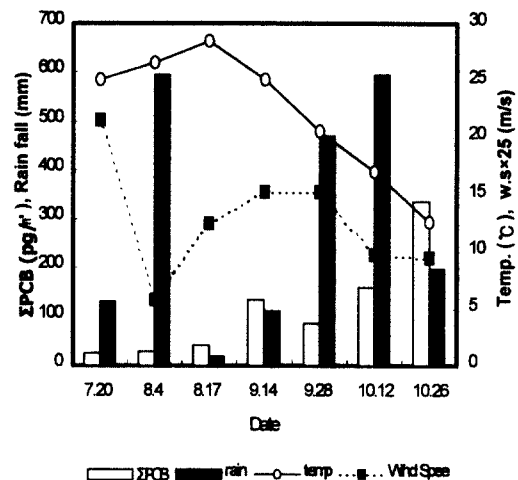
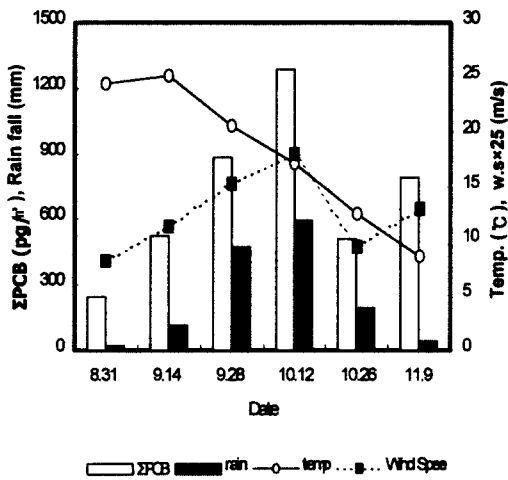
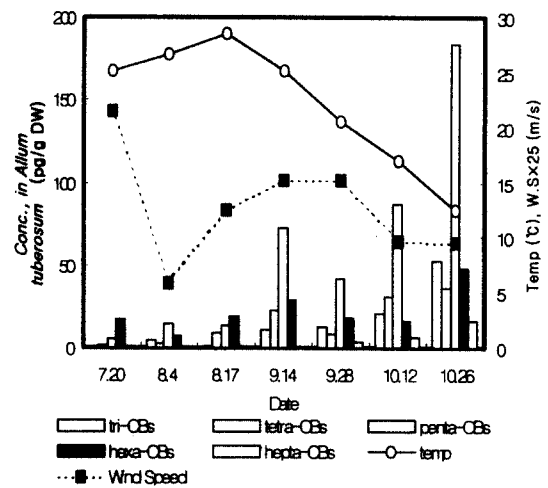
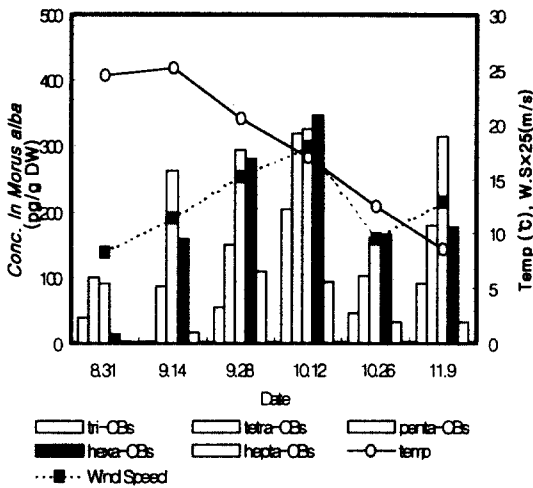


Fig. 4. Effects of meteorological conditions on the concentration of PCBs homologues(left) and total PCBs(right) in *Morus alba*(mulberry leaves).

Fig. 5. Effects of meteorological parameters on the concentration of PCBs homologues(left) and total PCBs(right) in *Allium tuberosum*(scallions).

내었다.

뽕잎 중 각각의 PCB homologue와 온도, 풍속 및 강우량과의 상관계수는 유의한 결과를 나타내지 못한 반면, 총 PCB와 온도, 풍속 및 강우량과의 상관계수(r)는 각각 -0.34(p=0.512), 0.98(p < 0.01) 및 0.82(p < 0.05)로 매우 양호한 상관성을 보였다. 즉 측정 기간 중 뽕잎에서 검출된 PCBs 농도분포는 온도에 의한 영향보다는 풍속 및 강우량에 의한 영향을 크게 받았을 것으로 사료된다. 그러나 뽕잎의 경우 부추처럼 실제 2주간 재배한 것이 아니고 주변에 자생하고 있는 것을 채취하였기 때문에 대기중 노출시간이 실제 사용한 2주간의 평균기상자료 보다 길고, 이로 인해 정확한 기상인자 산출의 한계점을 내포하여 기상과의 관련성 모색은 다소 무리가 있었다. 하지만 이러한 기상자료의 한계성을 배제 한다면 뽕잎 중의 PCBs는 각각의 homologue별로 상관성을 조사하기 보다는 총 PCB로 해석하는 것이 좋을 것으로 생각된다.

이에 반해 부추 중 각각의 PCB homologue와 온도, 풍속 및 강우량과의 상관성은 온도와 모든 PCB homologue(hexa-CBs, r = -0.66 제외)에서 매우 양호한 음의 상관성(r > -0.80, p < 0.05)을 보여 온도의 상승에 의한 부추 중 PCBs의 휘발능이 증가한 것으로 판단된다. 또한 총 PCB와 기상인자와의 관련성을 살펴본 결과 풍속 및 강우량과는 유의한 상관성을 보이지 않은 반면 온도와는 r = -0.88(p < 0.01)의 양호한 음의 상관성을 보여 각각의 homologue 별로 조사한 결과와 유사하게 나타났다. 즉 부추 중 PCBs의 농도 분포는 온도가 낮을 때 식물내로 PCBs의 침착과정과 온도가 높을 때 식물에서 PCBs의 휘발에 의한 소실과정에 의해 나타난 결과로 판단된다. 이와 같이 뽕잎과 부추에서 PCBs의 농도분포에 영향을 준 기상인자는 뽕잎의 경우 강우량 및 풍속으로 나타난 반면 부추의 경우 온도에 의한 영향이 크게 나타났다. 하지만 좀 더 신뢰성 있는 해석을 위해서는 데이터의 축적과 정확한 기상

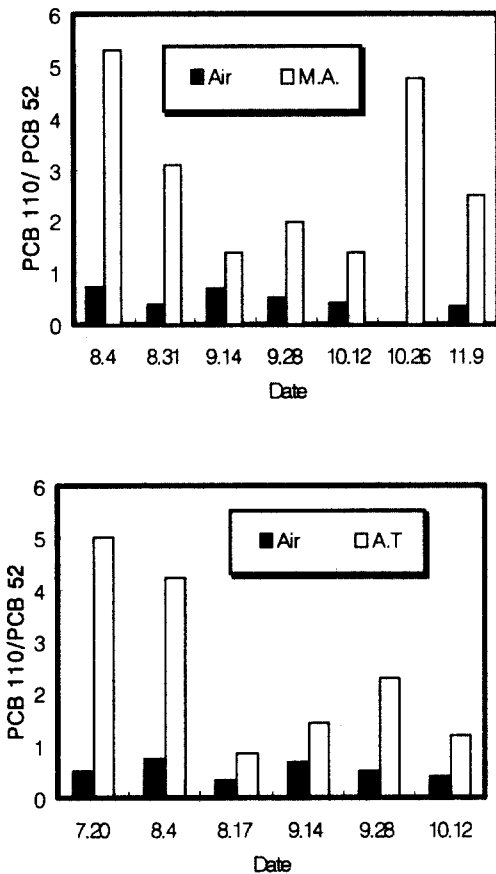


Fig. 6. Changes of the concentration ratio of PCB 110/PCB 52 in *Morus alba*(mulberry leaves, left) and *Allium tuberosum*(scallions, right) over the sampling periods.
* M.A : *Morus alba*, A.T : *Allium tuberosum*.

자료의 도출이 필요할 것으로 사료된다.

식물과 대기의 PCBs 농도

그림 6은 PCB congeners중 대기에서 유사한 조성비를 가지는 PCB 52와 PCB 110을 선정하여 식물과 비교한 것이다. 대기에서 조사된 PCB 52의 평균농도는 1.28 pg/m³이고, PCB 110은 0.64 pg/m³로 나타나 PCB 110/PCB 52의 평균비가 0.50를 보였다. 그러나 뽕과 부추에서 조사된 PCB 52와 PCB 110의 평균 농도는 뽕에서 각각 34.43, 81.5 pg/m³이었고, 부추에서 각각 9.24, 18.55 pg/m³를 나타내었다. 또한 식물에서 PCB 110/PCB 52의 평균비는 2.9(뽕), 2.5(부추)로 나타나 대기에서 조사된 것에 비해 5~6배 높게 나타났다. 이는 두 congener의 물리·화학적 특징으로 설명할 수 있는데 PCB 52의 용해도, logKow(octanol water partition coefficient), logKoa는 각각 0.046 ppm, 6.44 및 9.10인 반면 PCB 110은 각각 0.0068 ppm, 6.85 및 10.04으로 PCB 110이 PCB 52에 비해 식물의 지질 층에 잘 흡착되는 친지질성을 나타내었다²⁷⁾. 즉

식물 중에서 고분자 PCB의 축적은 대기의 PCB 110/PCB 52의 조성비와의 관련성 보다는 PCB congeners 각각의 물리·화학적 특징에 의해 지배되는 것으로 사료되고 이런 경향은 여름철보다 가을철에 더 확연히 나타났다. 이는 Gareth 등²⁸⁾이 영국에서 조사한 결과와 일치하였다.

요 약

경기도 안성시에 소재한 환경대학교에서 1999년 7월부터 1999년 11월까지 식물과 대기중에서 PCBs의 농도 분포 및 침착특성을 조사하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 대기중 총 PCB 중 tri-CBs(PCB 28)과 tetra-CBs(PCB 52)가 차지하는 비율은 49%로 염소화가 덜 된 성분이 대기중에 존재하는 PCB congeners의 주요 성분임을 확인하였다.
2. 두 식물간의 PCB congeners별 상관계수(r)는 0.83 (p<0.01)으로 물리/화학적 특성이 다른 식물일지라도 주변 환경중에 잔류하는 PCB congeners별 오염도를 간접적으로 파악할 수 있는 passive sampler 역할을 하였다.
3. 두 식물종과 대기에서 PCB 110/PCB 52의 평균비는 각각 2.4 (뽕), 부추(2.0) 및 0.5(대기)로 식물에서 PCB 110/PCB 52의 평균비가 대기 보다 높았는데 이는 PCB 110이 PCB 52에 비해 친지질성을 비롯한 생물학적 특성이 반영된 것으로 판단 되었다.

사 사

이 연구는 환경대학교 연구비 지원으로 수행되었습니다. 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

1. Tanabe, S. (1988) PCB problems in the future - foresight from current knowledge, *Environ. Pollut.* 50, 5-28.
2. De Voogt, P. and Brinkman, U. A. Th. (1989) Production, properties and usage of polychlorinated biphenyls In: Halogenated biphenyls, terphenyls, naphthalenes, dibenzodioxine and related production, Eds : Kimbrough, R. D. and Jensen, A. A. ElsevierNorth Holland, Amsterdam : p.3-45.
3. Tanabe, S., Kannan, N., Subramanian, A., Watanabe, S., Ono, M. and Tatsukawa, R. (1987) Occurrence and distribution of toxic coplanar PCBs in Biota, *Chemosphere.* 16, 1965-1970.
4. Lorber, M., Cleverly, D., Schaum, J., Phillips, L., Schweer,

- G. and Leighton, T. (1994) Development and validation of an air-to-beef food chain model for dioxin-like compounds, *Sci. Total Environ.* 156, 39-65.
5. Simonich, S. L., Hites, R. A. (1994) Important of vegetation in removing polycyclic aromatic hydrocarbons form the atmosphere, *Nature.* 370, 49-51.
 6. Trapp, S. and Matthies, M. (1997) Modelling volatilization of PCDD/F from soil and uptake into vegetation, *Environ. Sci. Technol.* 31, 71-74.
 7. Romney, L. F., Hobbs P. V. and Eltgorth, M. W. (1963) Contamination of plant foliage with radioactive fallout, *Ecology.* 44, 343-349.
 8. Bacci, E., Cerejerira, M. J., Gaggi, C., Chemello, G., Calamari, D. and Vighi, M. (1990a) Bioconcentration of organic chemical vapors in plant leaves : the azalea model. *Chemosphere.* 21, 525-535.
 9. Bacci, E., Calamari, D., Gaggi, C., and Vichi, M. (1990b) Bioconcentration of organic chemical vapors in plant leaves : experimental measurement and correlation, *Environ. Sci. Technol.* 24, 885-889.
 10. 유시균, 김태욱, 천만영 (1999) 다환방향족 탄화수소의 나뭇잎 침착, *한국환경농학회지.* 18(2), 116-121.
 11. 천만영(1998) 대기중 PCBs의 침엽수잎 침착에 관한 연구, *대한환경공학회지.* 20(10), 1377-1383.
 12. 천만영, 김태욱(1998) 소나무잎에 침착된 PCBs의 샘플링 오차에 관한 연구, *한국환경농학회지.* 17(2), 117-121.
 13. Lancaster University (1995) *PCB QA/QC protocol - Second draft.*
 14. Halsall, C. J., Lee, R. G. M., Coleman, P. J., Burnett, V., Jones, P. H. and Jones, K. C. (1995) PCBs in U.K. Urban Air, *Environ. Sci. Technol.* 29, 2368-2376.
 15. Wittlinger, Robert, G. M. and Howsam, R. G. (1986) Polychlorinated Biphenyls in the Atmospheric of Southern Indiana, *Environ. Sci. Technol.* 31, 236-249.
 16. Haugen, J. E., Wania, F. and Lei, Y. D. (1999) Polychlorinated Biphenyls in the Atmospheric of Southern Norway, *Environ. Sci. Technol.* 33, 2340-2345.
 17. Halsall C. J., Gevaio, B., Howsam, M., Le, R. G. M., Ockenden, W. A. and Jones, K. C. (1999) Temperature dependence of PCBs in the UK atmosphere, *Atmospheric Environmental.* 33, 541-552.
 18. Erickson, M. D. (1991) *Analytical Chemistry of PCBs*, Lewis Publishers, Boca Raton Ann arbor, London, p.11-12.
 19. Michael, Oehme, Haugen, J. E. and Schlabach, M. (1999) Seasonal Changes and Relation between Levels of Organochlorines in Arctic Ambient Air : First Results of an All-Year-Round at Ny-Alesund, Svalbard, Norway, *Environ. Sci. Technol.* 30, 2294-2304.
 20. Smith, K. E. C. and Jones, K. C. (2000) Particle and vegetation : implications for the transfer of particle-bound organic contaminations to vegetation, *The Science of Total Environmental.* 246, 207-236.
 21. Simonich, S. L. and Hites, R. A. (1996) Organic pollutant accumulation in vegetation, *Environ. Sci. Technol.* 29, 2905-2914.
 22. Schreiber, L. and Schonherr, J. (1992) *Environ. Sci. Technol.* 26, 153-159.
 23. Thomas, G., Sweetman, A. J., Ockenden, W. A., Mackay, D. and Jones, K. C. (1998) Air-Pasture Transfer of PCBs, *Environ. Sci. Technol.* 32, 936-942.
 24. Paterson, S., Mackay, D. and Bacci, E. (1991) *Environ. Sci. Technol.* 25, 866-871.
 25. Tolls, J. and McLachlan, M. S. (1993) *Environ. Sci. Technol.* 28, 159-166.
 26. Simonich, S. L. and Hites, R. A. (1994) *Environ. Sci. Technol.* 28, 939-943.
 27. Lee, R. G. M., Hung, H., Mackay, D. and Jones, K. C. (1998) *Environ. Sci. Technol.* 32, 2172-2179.