

## 마이크로시스틴의 어류내 축적성 및 인체 위해성 평가: 국내 저수지 사례연구

윤효정 · 서정관<sup>†</sup> · 김탁수 · 조아름 · 김정곤\* · 이두희 · 김필제 · 최경희

국립환경과학원  
\*화학물질안전원

### Accumulation of Microcystins in Fish and Evaluation of Potential Human Health Risks: A Case Study on a Eutrophic Reservoir in Korea

Hyojung Yoon, Jungkwan Seo<sup>†</sup>, Taksoo Kim, Areum Jo, Jungkon Kim\*,  
Doohee Lee, Pilje Kim and Kyunghee Choi

National Institute of Environmental Research, Incheon, Korea

\*National Institute of Chemical Safety, Daejeon, Korea

#### ABSTRACT

**Objectives:** Microcystin (MC) produced during cyanobacterial blooms is a worldwide problem presenting a serious health threats to humans and ecosystems. During July through October of 2013, the Ilwol Reservoir experienced a high biomass of phytoplankton (maximum 211.7 mg/m<sup>3</sup> of Chlorophyll-a) containing the toxigenic cyanobacterium *Oscillatoria sp.* The aim of this study is to analyze MC concentration in the reservoir water, as well as in representative fish species (*Carassius cuvieri*, *Carassius auratus*, *Channa argus*). We also evaluated the human health risk of exposure to MCs accumulated in the fish.

**Methods:** Concentrations of MCs in the water and fish samples were analyzed by liquid chromatography with a triple quadrupole tandem mass spectrometer (LC/MS/MS) and enzyme-linked immunosorbent assay (ELISA).

**Results:** The total levels of four MC variants, including MC-LR, MC-RR, MC-YR and MC-LA were below the WHO drinking water guideline limit (1 ug MC-LR per liter) both for the dissolved and particulate fraction present in the water samples. The mean MC concentrations in the livers of all species were significantly higher than in the gills ( $p < 0.01$ ) and muscles ( $p < 0.05$ ). The values of estimated daily intake of MCs in muscles, the edible part of the fish, would be only 0.005–0.015  $\mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{day}$ , much lower than WHO's provisional tolerable daily intake of 0.04  $\mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{day}$ .

**Conclusion:** This study suggests that, owing to the spatial distribution or temporal variation of MC, there is a need for careful monitoring of cyanotoxin in reservoir water and aquatic animals to protect public health.

**Keywords:** Accumulation, cyanobacterial bloom, health risks, microcystin

#### I. 서 론

하천, 호수 등 담수에서 흔히 관찰되는 *Microcystis*

*spp.*, *Planktothrix agardhii*, *Planktothrix rubescens* and *Anabaena spp.* 등은 마이크로시스틴(microcystin)으로 불리는 남조류 독소를 생성하는데, 이 물질은

<sup>†</sup>Corresponding author: Department of Risk Assessment National Institute of Environmental Research, Hwanggyeong-ro 42, seo-gu, Incheon, 22689, Republic of Korea, Tel: 82-32-560-7179, E-mail: jkseo2001@korea.kr

Received: 25 October 2015, Revised: 16 January 2016, Accepted: 1 February 2016

세포의 사멸, 용균(lysis)을 통해 수중으로 방출된다 (Chorus and Bartram, 1999). 마이크로시스틴은 간손상, 복통, 구토, 설사, 고열, 두통과 같은 증상을 동반하여 동물과 인간에게 급성독성을 야기하는 것으로 알려졌다(Yoshida et al., 1997; Pearson et al., 1990; WHO, 2003). 또한 실험동물을 이용한 만성 노출 연구결과, 발암촉진제 역할을 하는 것으로 조사되었다(Duy et al., 2000). 현재까지 발견된 마이크로시스틴의 구조적 이성질체는 약 100개가 존재하며, 이 중에서 소수성을 가진 마이크로시스틴 LR형(MC-LR)의 반수치사량(i.p. LD<sub>50</sub>, 마우스)은 50 ug/kg/bw으로, 마이크로시스틴류 중 독성이 강한 물질 중 하나이다(Rinehart et al., 1994; US EPA, 2015). 국내의 상수원은 대부분 부영양화된 지표수를 원수를 사용하고 있어 마이크로시스틴 뿐만 아니라 조류기인 냄새물질들에 의한 건강상 문제점과 많은 민원이 발생하고 있다(Shin and Ahn, 2003). 이에 따라 환경부도 2013년부터 세계보건기구(WHO)에서 설정한 MC-LR의 먹는물 기준(1.0 ug/L)과 동일한 수준으로 음용수를 관리하고 있다.

마이크로시스틴은 어류(Zhang et al., 2009; Jia et al., 2014; Ni et al., 2015; Hauser-Davis et al., 2015; Papadimitriou et al., 2012), 물벼룩(Ferrao-Filho et al., 2014), 새우(Chen and Xie, 2005), 복족류(Barda et al., 2015), 쌍각류(Preece et al., 2015), 수생식물(Romero-Oliva et al., 2014)을 포함한 다양한 수생태계 생물체에 축적되는 것으로 조사되었다. 비록 일부의 어류 연구결과에서 상위 섭식자로 갈수록 마이크로시스틴 생축적(bioaccumulation)의 경향이 보여졌지만(Xie et al., 2005), 다른 수생동물을 포함한 생물확장성(biomagnifications)과 관련된 강력한 증거는 없는 것으로 평가되었다(Ibelings et al., 2005; Papadimitriou et al., 2012; Barda et al., 2015). Chen 등(2009)은 마이크로시스틴에 오염된 음용수와 수산물에 장기간 노출된 낚시꾼의 혈액에서 마이크로시스틴을 검출(최대 1.8 ug/L)하였으며 혈청내 간기능효소의 활성에 영향을 미치는 것으로 나타났다.

경기도 수원에 위치한 일월 저수지는 농업용수 공급을 위해 1941년에 축조된 인공저수지로 주변 도시화로 인해 2005년 5월에 공원으로 조성되었다. 기존의 연구에서도 화학적산소요구량(COD), 클로로필-a, 총인의 수질항목을 이용한 한국형 부영양화 지수

(Korean Trophic state index; TSI<sub>KO</sub>) 값을 산출하여 본 저수지를 평가한 결과 과영양화 단계(TSI<sub>KO</sub>>70 이상)로 분류되었으며 *Microcystis aeruginosa* 등의 남조류가 출현하였다(Park et al., 2006; Kim et al., 2013). 이들 결과는 일월저수지의 수질과 식물플랑크톤의 군집변동을 파악할 수 있었으나, 수생태계내 마이크로시스틴의 생물축적성을 분석하기에는 불충분하다.

따라서 본 사례연구에서는 수체 및 어류내의 마이크로시스틴의 분포, 축적성을 조사하였으며, 마이크로시스틴으로 오염된 수생태계 종의 인체노출로 인한 인체위해도를 평가하고자 하였다.

## II. 재료 및 방법

### 1. 조사지점

일월저수지의 북쪽으로 울진천이 유입되며, 본 저수지에서 시작된 일월천이 남서쪽으로 흘러가 황구지천으로 유입된다. 저수지 둘레는 약 1.9 km, 유역면적이 277 ha, 저수량은 29만 톤, 만수 면적은 18 ha이다. 한국농어촌공사에서 수행한 2013년 수질조사 결과를 보면, 연평균 COD가 14.9 mg/L로 수질등급이 매우나쁨(VI)으로 분류되고 생활하수가 주오염원인 것으로 조사되었다.

### 2. 수질조사 및 어류의 채집

수질 시료는 매달 1회 또는 식물플랑크톤이 대량 번식한 경우는 주1회로 하여 채수하였으며, 조사 기간은 부영양화가 주로 발생(여름 및 초가을)하는 2013년 7월부터 10월까지로 선정하였다. 수체 중 마이크로시스틴 및 클로로필-a의 분석을 위해 2 L를 채수하였고 남조류 분석을 위해 표층수 시료 100 mL를 채수하여 루골용액(2 v/v %)으로 현장에서 고정하여 4°C에서 보관하였다. 클로로필-a는 수질오염공정시험기준(MOE, 2011)에 따라 GF/C 여과지(Whatman, UK)로 시료 적당량을 여과한 후 아세톤으로 냉암소에서 24시간 동안 클로로필을 추출하여 흡광도(Pharmacia Biotech Ultrospec 2000)를 측정하였다. 남조류는 광학현미경(Zeiss, Axioskop, Germany) 500~1,000배 하에서 종별로 동정하였으며 Sedgwick-Rafter counting chamber (1 mL)를 이용하여 결과는 mL당 세포수로 계산하였다.

어류 조사는 2개의 정점에서 정치망(삼각망)을 3 일 동안 설치한 후 채집하였다. 총 10종의 어류가 출현하였으며, 그 중에서 전체 생체량의 62.4% 차지하는 떡붕어(21.7%), 붕어(18.5%), 가물치(22.2%)를 조사대상 어류로 선정하였다(NIER, 2013). 현장에서 포획된 어류(각각 5마리)는 냉장상태로 운반하여 실험실에서 체장과 체중을 측정하고 즉시 해부한 후 분석전까지 -80°C에 보관하였다.

### 3. 마이크로시스틴의 추출 및 분석

수질 시료 중의 마이크로시스틴(MC-LR, MC-RR, MC-YR, MC-LA) 분석을 위해 삼중사중극자 질량 분석기(Quattro micro API, Micromass, USA)를 연결한 액체크로마토그래피(Aliance 2695, Waters, USA)를 사용하였으며, 전처리 방법은 먹는물 수질 감시항목 운영지침(MOE, 2012)에 따라 수행하였다. 전처리는 시료 1L를 GF/C 필터를 통과하여 용존성(dissolved microcystin; DMC) 및 조체성(particulate microcystin; PMC) 시료로 분리한 후 실시하였다. 용존성 시료의 전처리는 시료 1000 ml과 내부표준물질(Enkephalin, 200 ug/L)을 100 µl와 초산(acetic acid) 5 ml을 첨가한 후 Oasis MCX 카트리지 (6cc/200 mg, Waters, USA.)에 포집하였다. PMC 시료의 경우 초음파 추출을 실시한 다음, 원심 분리기(3000 rpm, 15 min)를 이용하여 상등액과 침전물을 분리하여 상등액을 50 ml 원심관에 보관하였다. 추출 및 분리 과정을 3회 반복하였다. 포집된 상등액은 진공원심농축기를 이용하여 완전히 건조하였다. 건조된 시료는 1 ml의 메탄올을 이용하여 추출한 후 증류수 49 ml(in 5% acetic acid)을 첨가하여 Oasis MCX 카트리지에 포집하였다. 검출한계(method detection limit, MDL) 및 정량한계(Limit of quantification, LOQ) 산출은 먹는물 수질감시항목 운영지침(MOE, 2012)에 따라 7회 반복된 표준편차에 3.14를 곱하여 산정하였으며, 정량한계는 표준편차에 10을 곱하여 산출하였다. 본 연구에서의 MDL은 MC-LR, MC-RR, MC-YR, MC-LA 각각 0.387, 0.031, 0.134, 0.804 ng/L 이고, LOQ는 각각 1.172, 0.095, 0.407, 2.443 ng/L로 나타났다.

어류 조직(간, 내장, 아가미, 근육)내 마이크로시스틴 전처리는 Mereno 등(2005)의 방법을 참고 및 일부 수정하였다. 시료는 동결건조하여 분말상태로 균

질화시킨 후 일정량(0.1 or 0.5 g dry weight (DW))을 취해 메탄올 15 ml(in 5% acetic acid)을 첨가한 후 1시간 동안 초음파추출하였다. 이 후의 용출과정은 HPLC법에 적용된 과정과 동일하게 실시하였으며 최종 여과된 시료는 효소면역측정법(ELISA kit, Enzo Life Sciences Inc., Switzerland)을 사용하여 450 nm 파장에서 분석(Vltrospec 2000, Pharmacia Biotech Ltd.)하였다.

### 4. 인체위해성평가

민물어류를 통해 각 조직에 농축된 마이크로시스틴의 인체섭취량은 다음 사항을 가정하여 EDI (estimated daily intake) 값을 계산하였다. (1)경골어류의 수분함량이 약 72%에 해당되는 문헌(Holmes and Donaldson, 1969)을 바탕으로 어류의 동결건조한 조직 무게(dry weight basis)를 수분함량을 보정한 값(wet weight basis)으로 변환하였다. (2) WHO에서 MC-LR에 대한 tolerable daily intake (TDI)가 0.04 ug/kg bw/day로 설정되어 있으나, 그 외 다른 이성질체 대한 TDI는 제시되어 있지 않은 상황이다. 인체에 마이크로시스틴이 평생 노출되어도 유해 영향을 나타내지 않는다고 판단되는 MC-LR은 이성질체 중 가장 독성이 강한 물질 중 하나로, MC-RR과 MC-YR에 대한 마우스의 복강내 투여를 통한 반수치사량(LD<sub>50</sub>)은 MC-LR에 비해 각각 5배, 2.5배 높았다(Gupta et al., 2003). 따라서 최악의 시나리오를 가정하여 어류 조직내 총 마이크로시스틴이 MC-LR의 형태로 모두 존재하는 것으로 가정하였다. (3) 한국형 노출계수 핸드북(MOE, 2007)을 바탕으로 민물 어패류 섭취자(전체 어패류 섭취자 중 2.1%에 해당)의 95백분위수(95<sup>th</sup> percentile)에 해당하는 일일 체중당 평균 섭취량 3.99 g/kgday를 사용하였다.

### 5. 통계분석

모든 실험은 3회 반복으로 수행하였으며 마이크로시스틴의 농도 분포는 정규성 및 동질성 가정을 모두 만족하였다. 통계처리는 one-way analysis of variance (ANOVA) 분석을 수행하였으며, 유의성이 인정된 경우 Turkey test를 사용하여 다중비교를 실시하였다. 또한 Pearson's 상관계수를 이용하여 체장, 체중, 어류 조직(간, 내장, 아가미, 근육)별 마이크로시스틴의 농도간의 상관성을 분석하였으며 통계

**Table 1.** Values of water quality of Reservoir Ilwol during July to October in 2013

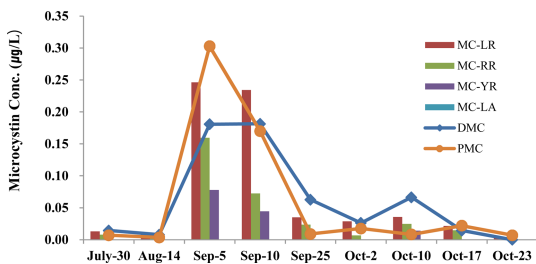
Date	pH	DO (mg/L)	Temp. (°C)	Chl-a (mg/m <sup>3</sup> )	<i>Oscillatoria sp.</i> (cell/mL)
July-30	9.3	11.7	26.2	140.7	2,349
Aug-14	9.7	13.8	33.7	85.3	2,424
Sep-5	9.7	11.6	26.1	165.6	9,807
Sep-10	10.2	14.8	26.1	187.0	8,852
Sep-25	8.7	14.8	25.4	95.5	9,470
Oct-2	9.3	14.0	23.4	152.9	5,871
Oct-10	8.6	9.5	24.3	143.7	4,766
Oct-17	9.6	13.1	18.6	211.7	3,987
Oct-23	9.8	17.0	19.2	174.1	3,988
mean±SD	9.4±0.5	13.4±2.2	24.8±4.4	150.7±40.8	5,724

적 유의성은  $p < 0.01$  및  $p < 0.05$ 로 설정하였다. 회귀 분석은 어류조직내 마이크로시스틴의 농도와 체중과의 관계를 분석하기 위해 수행하였다. 모든 데이터는 SPSS 18.0 software를 사용하였다.

### III. 결 과

#### 1. 수질분석 및 마이크로시스틴 농도

조사지점에서 측정된 물리-화학적 결과는 수체에 상당히 부영양 상태가 진행되고 있음을 보여준다. pH(9.4±0.5) 및 수온(24.8±4.4°C) 상태가 조사기간 동안 관측되었으며, 독성남조류 중 *Oscillatoria sp.*가 주요 우점종으로 평균 5,724 cell/mL의 개체밀도를 나타내었다(Table 1). 또한 클로로필-a의 평균치는 150.7 mg/m<sup>3</sup> (범위 85.3~211.7 mg/m<sup>3</sup>)으로 OECD의 분류기준(OECD, 1992)에 따르면 과영양



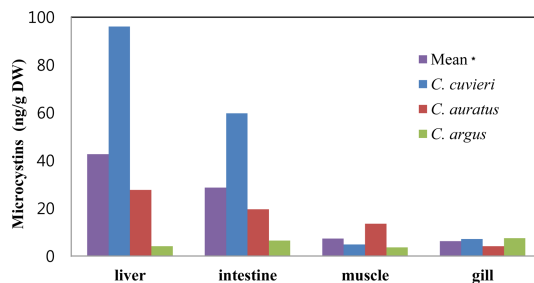
**Fig. 1.** Monthly or weekly variation in the concentration of particulate (PMC) and dissolved (DMC) microcystins at Reservoir Ilwol. The bar graph represents the concentration of total microcystins (the sum of PMC and DMC) in each variant including MC-LR, MC-RR, MC-YR and MC-LA.

상태를 나타내었다.

마이크로시스틴 농도는 DMC 및 PMC로 구분하여 4개의 이성질체(MC-LR, MC-RR, MC-YR, MC-LA)에 대해 측정하였다. 조사기간 동안의 총 마이크로시스틴(DMC와 PMC의 합)의 평균 농도의 순서는 MC-LR>MC-RR>MC-YR>MC-LA 이었으며 MC-LA는 DMC와 PMC 시료 모두 검출되지 않았다. 또한 DMC와 PMC의 최대농도는 각각 0.181과 0.303 µg/L였으며 WHO의 먹는물 수질 허용기준인 1µg/L를 초과하지 않았다(Fig. 1).

#### 2. 어류 조직내 마이크로시스틴의 농도 및 인체 위해성평가

저수지에서 채집한 어류는 떡붕어(*Carassius cuvieri*), 붕어(*Cyprinus auratus*), 가물치(*Channa argus*)로 각 종별(N=3)로 간, 근육, 내장, 아가미내 축적농도를 조사한 결과는 Fig. 2와 같다. 모든 어



**Fig. 2.** Microcystin concentration in organs of each fish species (N=3) from Reservoir Ilwol. \*The mean bar indicates the average values of three fish species on each organ.

**Table 2.** Correlations between body length and weight of fish and MCs concentrations in variety organs

		Length	Weight	MCs Concentrations			
				Liver	Muscle	Gill	Intestine
	Length	1.000					
	Weight	0.928**	1.000				
MCs Concentration	Liver	-0.750*	-0.783*	1.000			
	Muscle	-0.242	0.062	-0.158	1.000		
	Gill	0.123	-0.206	0.107	-0.936**	1.000	
	Intestine	-0.911**	-0.933**	0.837**	-0.153	0.229	1.000

\*\* p<0.01.

\* p<0.05. The correlation coefficient with p<0.01 or p<0.05 shown in boldface

**Table 3.** The estimated daily intakes of microcystin in the fish muscle collected from Reservoir Ilwol

Feeding type	Species	MC in muscle (ug/g dw <sup>a</sup> )	MC in muscle (ug/g ww <sup>b</sup> )	Daily intake <sup>c</sup> (ug/kg-day)	EDI <sup>d</sup> (ug/kg-day)
Planktivorous	<i>C. cuvieri</i>	0.005	0.002	3.99	0.006
Omnivorous	<i>C. auratus</i>	0.014	0.004	3.99	0.015
Carnivorous	<i>C. argus</i>	0.004	0.001	3.99	0.005

<sup>a</sup> micrograms per gram dry weight

<sup>b</sup> Conversion from dry weight (dw) to wet weight (ww),  $ww=dw \times ((100-\text{moisture } \%)/100)$ . The relative amount of moisture in a fish is mostly around 72% for Osteichthyes (Holmes and Donaldson, 1969).

<sup>c</sup> The 95<sup>th</sup> percentile consumer only intake rate of freshwater fish was 3.99 g/kg-day in Korean population.

<sup>d</sup> Estimate Daily Intake (EDI)

류종내 마이크로시스틴의 주요 표적기관은 간과 내장으로, 특히 간은 근육 및 아가미 조직과 비교하였을 때 유의하게 높은 농도로 검출되었다(p<0.05). 어류 조직내 평균 마이크로시스틴의 농도는 간(42.63 ng/g dw)>내장(28.62 ng/g dw)>근육(7.31 ng/g dw)>아가미(6.25 ng/g dw) 순으로 나타났다.

섭식길드(feeding guilds)에 따른 각 조직별 마이크로시스틴의 농도 또한 유의적인 차이가 있었다(Fig. 2). 조식성(Phytoplanktivorous) 어류인 떡붕어의 간 및 내장에서 각각 96.1과 59.8 ng/g dw으로 유의적으로 가장 높게 나타났으며 그 다음으로는 잡식성(Omnivorous) 어류인 붕어이며, 육식성(Carnivorous) 어류인 가물치에서 제일 낮은 농도로 검출되었다. 그러나 붕어의 경우 다른 어류에 비해 근육 조직에서 유의적으로 가장 높은 농도로 나타났으며(p<0.01), 가물치는 붕어의 아가미에 비해 유의적인 차이가 확인되었다(p<0.01).

체장 및 체중을 포함한 각 어류 조직별 마이크로시스틴의 농도별 상관관계를 조사하였다(Table 2). 어류 간의 마이크로시스틴의 농도는 내장의 농도와 양

의 유의적인 상관관계(p<0.01)가 나타났으며, 근육 조직내 마이크로시스틴의 농도가 높을수록 아가미내 농도가 낮아지는 유의적인 상관성(p<0.01)이 관찰되었다. 또한 어류가 체장과 체중이 클수록 간, 내장에 축적되는 마이크로시스틴의 농도는 적은 것으로 확인되었다(p<0.05).

### 3. 인체 위해성평가

WHO (Chorus and Bartram, 1999)에서는 마우스 간의 조직병리학적 소견 및 혈액내 효소 수치 변화를 근거로 무영향관찰용량(40 ug/kg/day)에 불확실도 1,000을 적용하여 TDI를 0.04 ug/kg/day으로 제시하였다.

민물어류의 근육을 통해 섭취가 가능한 마이크로시스틴의 수준(EDI)을 추정하기 위해 수분함량 보정하여 어류 건조량(dry weight)을 단위 g 당 마이크로시스틴의 농도(ug/g, wet weight)으로 변환하였으며, 민물고기 섭취량의 95백분위수에 해당하는 일일 체중당 평균 섭취량(3.99 g/kgday)을 사용하였다. 그 결과로, 떡붕어, 붕어, 가물치의 근육의 섭취를 통해

노출되는 마이크로시스틴의 EDI는 각각 0.006, 0.015, 0.005 ug/kgday로 TDI(0.04 ug/kgday) 이하 인 것으로 조사되었다(Table 3).

#### IV. 고 찰

본 연구에서는 2013년 7월부터 10월까지 식물플랑크톤이 대량번식(최대 클로로필-a의 농도 211.7 mg/m<sup>3</sup>) 한 저수지를 선정하여 마이크로시스틴의 어류 농축성 및 인체위해성에 대한 사례연구를 수행하였다.

일월저수지의 DMC와 PMC의 최대농도는 각각 0.181과 0.303 ug/L였으며 WHO의 허용농도(1 ug/L, Chorus and Bartram, 1999)를 초과하지 않았다. 총 마이크로시스틴에서 MC-LR은 58.0%, MC-RR은 29.4%, MC-YR은 12.6%를 차지하였으며 MC-LA는 검출되지 않았다. MC-LR, MC-RR, MC-YR은 독성이 강한 독소로 알려져 있으며 이들 물질은 중국에서도 가장 빈번하게 나타나고 있다 (Chen and Xie, 2005; Ni et al., 2012). MC-LA는 미국(Draper et al., 2013), 캐나다(Zastepa et al., 2014), 호주(Ho et al., 2011) 등에서 검출되고 있다.

본 연구결과에서 모든 어류 조직내 마이크로시스틴은 간>내장>근육>아가미 순으로 높게 나타났으며, 이 결과와 유사하게 Chen과 Xie (2005)은 간췌장과 내장에서 다른 기관에 비해 상당히 높은 농도의 마이크로시스틴이 검출되었음을 보고하였다. 또한 서식지별 동일한 어류 조직내 마이크로시스틴의 분포는 다양하였다. 중국 Taihu 호수에 서식하는 붕어 조직내 마이크로시스틴의 분포는 내장>신장>심장>간>근육 순이었으며, 내장의 경우 일월 저수지의 붕어에 비해 약 20배 높은 농도로 분포하였다 (Jia et al., 2014).

식물플랑크톤을 먹이원으로 하는 떡붕어의 경우 독성의 남조류를 직접적으로 소비하며 주요 표적기관인 간과 내장에 92% 이상의 마이크로시스틴이 축적되어 있음을 확인하였다. 잡식어류인 붕어의 경우는 72%, 육식어류인 가물치는 49%로 간과 내장에 분포하는 마이크로시스틴의 농도가 점차 낮아지는 것을 볼 수 있었다. 특히, 떡붕어의 간에서 가장 높은 마이크로시스틴의 축적양상을 관찰하였으며 Lee 등(2009)에 의해 수행된 이전의 연구결과와 일치하

는 결과를 얻었다. 또한 Zhang 등(2009)에서는 중국 Taihu 호수에서의 어류 간과 내장의 마이크로시스틴 농도가 플랑크톤식성(*Hypophthalmichthys molitrix*)>잡식성(*C. auratus*, *Cyprinus carpio*)>육식성 어류(*Culter ilishaeformis*, *Neosalanz taihuensis*, *Coilia ectenes*)의 순으로, 근육 조직에서는 잡식성 > 플랑크톤식성 > 육식성 어류 순으로 조사되었는데, 이는 우리의 결과와 동일한 양상이다. 그러나 다른 연구에서는 간보다는 내장, 쓸개, 근육에 더 많은 마이크로시스틴이 분포하는 것으로 나타났다(Ni et al., 2015). 마이크로시스틴이 어류 조직안으로 흡수되는 경로에 대한 기전연구가 추가적으로 필요하다.

어류의 간과 내장은 체장과 체중과의 유의적인 음의 상관관계가 있었으며, 이들 조직에 축적된다는 것은 어류의 성장과 직접적인 관련성이 있고 떡붕어, 붕어, 가물치 중 상대적으로 크기가 작은 어류일수록 마이크로시스틴이 더 많이 축적된다는 결론을 내릴 수 있다. 또한 이와 유사한 결과로 Jia 등(2014)에서는 신장, 심장과 체중, 체장과의 유의적인 음의 상관성을 밝혔으며, 작은 물고기일수록 생체내변화 및 배설기관이 덜 발달하였기 때문이라고 설명하였다. 그러나 Hauser-Davis 등(2015)의 연구결과에 따르면 민물돔(*Oreochromis niloticus*)의 생식소내 마이크로시스틴의 농도는 성체가 어린 개체에 비해 더 높았다.

본 연구의 또 다른 목적인 식용 가능한 어류 근육 조직에 존재하는 독성물질을 인간이 섭취하였을 때 위해성 여부를 확인하기 위함이다. 민물어류 섭취량 95백분위수를 사용한 최악의 시나리오를 가정하여 체중당 일일섭취량이 TDI를 초과하는지 여부를 계산하였다. 마이크로시스틴의 허용기준은 WHO에서는 0.04 ug/kg bw/day (Fawell et al., 1999) 및 US EPA에서는 0.05 ug/kg bw/day (Heinze, 1999)로 설정하여 관리하고 있다. 본 조사지점의 떡붕어, 붕어, 가물치의 EDI는 모두 WHO와 EPA 기준 이하로 조사되었지만, 어류 조직은 독소의 결합형태 및 결합하지 않은 유리형태로 모두 노출될 수 있다는 것을 간과해서는 안 된다. 생물체내 마이크로시스틴은 주로 생체내변화(biotransformation)을 위해 결합형태로 존재하며 연어(salmon)의 간 조직내 마이크로시스틴의 76%가 결합형태로 존재하는 것으로 나타났다(Williamns et al., 1997). 그러므로 우리의 전

처리(추출법)의 제한점으로 인해 결합된 마이크로시스틴을 모두 정량화하기는 불가능하므로 본 조사결과에서 보고한 농도보다 더 많이 축적되어 있을 수 있다. 또한 마이크로시스틴은 열에 안정적이고, 조리시 열에 의해 잘 파괴되지 않는다(Harada et al., 1996). 국내 다른 지점에서 민물어류 중 섭취에 따른 인체 건강위해성 평가를 수행한 결과, 떡붕어(*C. cuvieri*), 잉어(*C. carpio*), 메기(*Sillurus asotus*) 등 9종의 어류근육내 마이크로시스틴 농도는 WHO 설정기준 이내로 조사되었다(Lee et al., 2009). Romero-Oliva 등 (2014)의 연구에서는 DMC와 PMC의 농도가 각각 1,931과 90 ug/L로 검출된 호수의 물을 관개용수로 사용하는 지역의 농작물내 축적성을 조사하였다. 토마토(*Solanum lycopersicum*)와 고추(*Capsicum annum*)의 열매에 축적된 마이크로시스틴은 1.16과 1.03 ug/L dw으로 측정되었으며, 인체노출량은 각각 0.008과 0.006 ug/kgday로 권고기준(0.04 ug/kgday) 이하인 것으로 평가되었다.

비록 우리의 결과에서는 마이크로시스틴에 오염된 어류의 근육에 노출시에 인체위험성은 없었지만, 어류 전체나 간을 함께 섭취할때 인체건강을 위협할 수도 있으므로 이에 대한 지역주민, 전문가 등과의 위해소통이 필요하다. 현재 본 저수지는 농업용 저수지로 사용되고 있지는 않지만 농작물에 축적될 가능성이 있으므로 이에 대한 위험성도 간과할 수 없다. 남조류의 생체량과 독성은 시간적(계절적)인 차이가 발생하므로 인체의 위험성을 줄이기 위해 본 조사지점의 수질 및 어류의 지속적인 모니터링이 필요하며, 지역의 현장 관리자들이 남조류 대발생한 수체내 오염된 어류의 섭취를 최대한 제한시키는 등의 적절한 조치가 필요하다.

### V. 결 론

부영양 상태의 저수지내 마이크로시스틴에 오염된 어류섭취를 통한 인체위해성 평가를 수행하고자, 수질 및 어류중의 마이크로시스틴의 농도를 조사하였다. 일월저수지의 총 마이크로시스틴(MC-LR, MC-RR, MC-YR, MC-LY의 합)의 농도는 WHO의 먹는 물 수질 허용기준(1 ug/L)을 초과하지 않았다.

저수지내 대표적인 서식어류인 떡붕어(*C. cuvieri*), 붕어(*C. auratus*), 가물치(*C. argus*)내 마이크로시스

틴의 주요 표적기관은 간과 내장이었다. 식용 가능한 어류 근육조직에 존재하는 마이크로시스틴을 섭취하였을 때 인체 위해성 여부를 확인한 결과, 떡붕어, 붕어, 가물치의 EDI는 모두 WHO 와 EPA 기준 이하로, 마이크로시스틴에 오염된 어류의 살코기(근육)에 노출시에 인체위해성은 없는 것으로 평가되었다.

그러나 남조류의 생체량과 독성은 시간적, 공간적인 차이가 발생하므로 수질 및 어류에 대한 지속적인 모니터링이 필요하다. 또한 남조류 대발생한 수체내 서식어류의 섭취를 제한시키는 등의 적절한 조치가 필요하다.

### References

1. Barda I, Kankaanaää H, Purina I, Balode M, Sjövall O, Meriluoto J. Bioaccumulation of hepatotoxins - a considerable risk in the Latvian environment. *Environ. Pollut.* 2015; 196: 313-20.
2. Chen J, Xie P. Tissue distributions and seasonal dynamics of the hepatotoxic microcystins-LR and -RR in two freshwater shrimps, *Palaemonmodestus* and *Macrobrachiumnipponensis*, from a large shallow, eutrophic lake of the subtropical China. *Toxicol.* 2005; 45: 615-625.
3. Chen J, Xie P, Li L, Xu J. First identification of the hepatotoxic microcystins in the serum of a chronically exposed human population together with indication of hepatocellular damage. *Toxicol. Sci.* 2009; 108(1): 81-89.
4. Chorus I, Bartram J, eds. Toxic cyanobacteria in water: A guide to their public health consequences, monitoring and management. Published by E & FN Spon, London, on behalf of the World Health Organization, Geneva. 1999.
5. Draper WM, Xu DD, Behniwal P. Optimizing LC-MS-MS determination of microcystin toxins in natural water and drinking water supplies. *Anal. Methods.* 2013; 5: 6796-6806.
6. Duy TN, Lam P, Shaw G, Connell D. Toxicology and risk assessment of freshwater cyanobacterial (Blue-green algal) toxins in water. *Rev. Environ. Contam. Toxicol.* 2000; 163: 113-186.
7. Fawell JK, Mitchell RE, Everett DJ, Hill RE. The toxicity of cyanobacterial toxins in the mouse: I microcystin-LR. *Hum. Exp. Toxicol.* 1999; 18(3): 162-167.
8. Ferrão-Filho AS, Herrera NA, Echeverri LF. Micro-

- cystin accumulation in cladocerans: first evidence of MC uptake from aqueous extracts of a natural bloom sample. *Toxicon*. 2014; 87: 26-31.
9. Gupta N, Pant SC, Vijayaraghavan R, Rao PV. Comparative toxicity evaluation of cyanobacterial cyclic peptide toxin microcystin congeners (LR, RR, YR) in mice. *Toxicology*. 2003; 188(2): 285-296.
  10. Harada KI, Tsuji K, Watanabe MF, Kondo F. Stability of microcystins from cyanobacteria-III. Effect of pH and temperature. *Phycologia*. 1996; 35: 83-88.
  11. Hauser-Davis RA, Lavradas RT, Lavandier RC, Rojas EG, Guarino AW, Ziolli RL. Accumulation and toxic effects of microcystin in tilapia (*Oreochromis niloticus*) from an eutrophic Brazilian lagoon. *Ecotoxicol. Environ. Saf.* 2015; 112: 132-136.
  12. Heinze R. Toxicity of the cyanobacterial toxin microcystin-LR to rats after 28 days intake with the drinking water. *Environ. Toxicol.* 1999; 14(1): 57-60.
  13. Ho L, Lambling P, Bustamante H. Application of powdered activated carbon for the adsorption of cylindrospermopsin and microcystin toxins from drinking water supplies. *Water. Res.* 2011; 45: 2954-2964.
  14. Holmes WN, Donaldson EM. The body compartments and the distribution of electrolytes. Fish physiology, 1st ed. New York: Academic Press; 1969. p. 1-98.
  15. Ibelings BW, Bruning K, de Jonge J, Wolfstein K, Pires LM, Postma J, et al. Distribution of microcystins in a lake foodweb: no evidence for biomagnification. *Microb. Ecol.* 2005; 49(4): 487-500.
  16. Jia J, Luo W, Lu Y, Giesy JP. Bioaccumulation of microcystins (MCs) in four fish species from Lake Taihu, China: assessment of risks to humans. *Sci Total Environ.* 2014; 487: 224-32.
  17. Kim SK, Kim JE, Park JW, Jo KA. Variances of environmental factors during water bloom by *Microcystis aeruginosa* (Kützing) Kützing Ilwol Reservoir, Suwon. *Korean j. Environ. Ecol.* 2013; 46(2): 265-275.
  18. Lee KL, Jheong WH, Kang YH, Kim HS. Evaluation of the potential human health risk associated with the microcystin bioaccumulation in the freshwater fish from Lake Yeongcheon and Lake Daecheong. *Korean J. Limnol.* 2009; 42(3): 331-339.
  19. Ni W, Zhang J, Luo Y. Microcystin accumulation in bighead carp (*Aristichthys nobilis*) during a Microcystis-dominated bloom and risk assessment of the dietary intake in a fish pond in China. *Environ. Sci. Pollut. Res. Int.* 2015. [Epub ahead of print]
  20. NIER. Ecological risk assessment on biogenic algal toxin [microcystin-LR]. National Institute of Environmental Research, Incheon, Korea. 2013. p. 22-23.
  21. MOE. Korean Exposure Factors Handbook. Ministry of Environment, Seoul, Korea. 2007. p.102-111
  22. MOE. Water quality official test method enacted by Korea ministry of Environment, Seoul, Korea. Public notice No. 2011-13. 2011.
  23. MOE. Operational guidelines on drinking water quality items required to be monitored. Ministry of Environment, Seoul, Korea. 2012. p. 94-106.
  24. Moreno IM, Molina R, Jos A, Picó Y, Cameán AM. Determination of microcystins in fish by solvent extraction and liquid chromatography. *J. Chromatogr. A.* 2005; 1080(2): 199-203.
  25. OECD. Eutrophication of waters. Monitoring, Assessment and Control. Final Report of the OECD Cooperative Programme on Monitoring of Inland Waters (Eutrophication Control), Organization for Economic Cooperation and Development, Paris. 1982.
  26. Papadimitriou T, Kagalou I, Stalikas C, Pilidis G, Leonardos ID. Assessment of microcystin distribution and biomagnification in tissues of aquatic food web compartments from a shallow lake and evaluation of potential risks to public health. *Ecotoxicology.* 2012; 21(4): 1155-1166.
  27. Park JH, Moon BR, Lee OM. The Phytoplankton compositions and trophic states at several lakes of Suwon-si, Korea. *Algae.* 2006; 21: 217-228.
  28. Pearson MJ et al. Toxic blue-green algae. A report by the UK National Rivers Authority, Water Quality Series No. 2. 1990. p. 1-128.
  29. Preece EP, Moore BC, Hardy FJ. Transfer of microcystin from freshwater lakes to Puget Sound, WA and toxin accumulation in marine mussels (*Mytilus trossulus*). *Ecotoxicol. Environ. Saf.* 2015; 122: 98-105.
  30. Rinehart KL, Namikoshi M, Choi BW. Structure and biosynthesis of toxins from blue-green algae (cyanobacteria). *J. Appl. Phycol.* 1994; 6: 159-176.
  31. Romero-Oliva CS, Contardo-Jara V, Block T, Pflugmacher S. Accumulation of microcystin congeners in different aquatic plants and crops-a case study from lake Amatitlán, Guatemala. *Ecotoxicol. Environ. Saf.* 2014; 102: 121-128.
  32. Shin HS, Ahn HS. The Assessment for the removal



- effect of odorous compounds due to algae in water treatment. *Kor. J. Env. Hlth.* 2003; 29(5); 27-33.
33. US EPA. Health Effects Support Document for the cyanobacterial Toxin Microcystins. United States Environmental Protection Agency. 2015.
  34. WHO. Cyanobacterial toxins: Microcystin-LR in drinking-water. Background document for preparation of WHO Guidelines for drinking-water quality. Geneva, World Health Organization (WHO/SDE/WSH/03.04/57). 2003.
  35. Williams DE, Craig M, Dawe SC, Kent ML, Holmes CFB, Andersen RJ. Evidence for a covalently bound form of microcystin-LR in salmon liver and dungeness crab larvae. *Chem. Res. Toxicol.* 1997; 10: 463-469.
  36. Xie L, Xie P, Guo L, Li L, Miyabara Y, Park HD. Organ distribution and bioaccumulation of microcystins in freshwater fish at different trophic levels from the eutrophic Lake Chaohu, China. *Environ. Toxicol.* 2005; 20(3): 293-300.
  37. Yoshida T, Makita Y, Tsutsumi T, Yoshida F, Sekijima M, Tamura SI, et al. Acute oral toxicity of microcystin-LR, a cyanobacterial hepatotoxin, in mice. *Nat. Toxins.* 1997; 5: 91-95.
  38. Zastepa A, Pick FR, Blais JM. Fate and persistence of particulate and dissolved microcystin-LA from *Microcystis* blooms. *Hum. Ecol. Risk Assess.* 2014; 20: 1670-1686
  39. Zhang DW, Xie P, Liu YQ, Qiu T. Transfer, distribution and bioaccumulation of microcystins in the aquatic food web in Lake Taihu, China, with potential risks to human health. *Sci. Total Environ.* 2009; 407: 2191-2199.