

TECHNICAL NOTE

연안환경 갯이갈매기(*Larus crassirostris*) 알의 DDTs 및 수은 농도분포 조사

최정희* · 정다위 · 이종천

국립환경과학원 자연환경연구과

Distribution of DDTs and Hg in Eggs of Black-Tailed Gulls (*Larus crassirostris*) in the Coastal Environment

Jeong-Heui Choi*, David Chung, Jongchun Lee

Natural Environment Research Division, National Institute of Environmental Research, Incheon 22689, Korea

Abstract

Sea gulls are high trophic level consumers in the coastal environment, and thus, which have been widely used to monitor contamination biomagnified through a food web. However, such monitoring studies using sea gulls have been rare in the Korean literature. The National Environmental Specimen Bank chose eggs of a black-tailed gulls (*Larus crassirostris*) to serve as an environmental specimen for the long-term monitoring of the coastal ecosystem affected by terrestrial pollutants. Black-tailed gull eggs were collected from Baengnyeongdo, Hongdo and Ulleungdo, and their DDTs and total mercury content were determined. The highest concentration of Σ DDTs was $231.6 \pm 106.1 \mu\text{g/kg}$ wet in Baengnyeongdo, followed by $230.0 \pm 123.8 \mu\text{g/kg}$ wet in Ulleungdo, and $117.7 \pm 18.3 \mu\text{g/kg}$ wet in Hongdo. In addition, total mercury was detected at $414.5 \pm 97.6 \mu\text{g/kg}$ wet in Ulleungdo, $363.9 \pm 123.6 \mu\text{g/kg}$ wet in Hongdo, and $237.5 \pm 42.3 \mu\text{g/kg}$ wet in Baengnyeongdo. Relatively high concentrations of the target pollutants were recorded in specimens from Ulleungdo. Additional comprehensive and prolonged studies are required to elucidate spatial and temporal patterns of contamination in black-tailed gull eggs with regard to monitoring contaminant trends in eggs and prey.

Key words : Black-tailed gull eggs, DDTs, Total mercury, Distribution

1. 서론

해양오염은 전세계적인 문제로써 인간의 생산과 소비 활동에 의하여 중금속, 잔류성유기오염물질(POPs, Persistent Organic Pollutants)을 포함한 다양한 오염원이 해양으로 유입되고 있다. 이렇게 유입되는 오염물 중 수은은 산화 환원반응, 메틸화, 흡·탈착, 침전·용해, 수중

생물의 흡수 등 다양한 생지화학적 변환을 거친다. 미생물의 메틸화과정으로 생성된 메틸수은은 높은 독성과 생물농축으로 수중 생물과 먹이사슬을 통한 인간 체내 축적율이 높다(Batrakova et al., 2014; Choi et al., 2017). POPs 또한 높은 잔류성과 독성, 생물농축성으로 해양 생태계에 심각한 문제를 야기하고 있다(Bazzi, 2014). POPs의 대표적 오염물질인 DDTs (dichlorodiphenyltrichloroethanes)는

Received 10 October, 2018; Revised 4 December, 2018;

Accepted 7 December, 2018

*Corresponding author: Jeong-Heui Choi, Natural Environment Research Division, National Institute of Environmental Research, Incheon 22689, Korea
Phone : +82-32-560-7597
E-mail : ninano765@korea.kr

The Korean Environmental Sciences Society. All rights reserved.
© This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

유기 염소계 농약 중 하나로 화학적으로 안정하고 소수성이며, 독성이 강하고 내분비계 교란물질로 알려져 있다(Rios et al., 2007). 이러한 POPs는 육상 및 수생 환경에 널리 퍼져있고 특히, 지방조직에 쉽게 축적되는 성질이 있어 저서생물을 통해 상위 먹이단계까지 이동하며 해양 생태계를 오염시키는 특징을 갖는다(Choi & Kim, 2014).

다양한 환경 시료에서 DDTs를 추출 및 분석하기 위한 수많은 시험법이 국내외 연구논문과 보고서, 공정시험기준 등으로 보고되었다. 국내외 공정시험기준은 「잔류성유기오염물질공정시험기준」으로서 동시 시험방법과 단성분 시험방법으로 구분되어 있고, 혈액과 모유, 어류, 조개류 등의 생체시료와 대기, 물, 토양, 퇴적물 등의 환경매체 시료를 대상으로 시험기준이 고시되어 있다(National Institute of Environmental Research, 2017). 이들 공정시험기준은 속슬렛 추출장치와 초음파 추출장치, 액체-액체 추출법 등을 이용하여 시료로부터 POPs를 추출하고 고체상추출법(SPE, Solid-Phase Extraction)에 의해 추출된 시료를 정제 및 농축하며, 고분해능가스크로마토그래프(HRGC, High Resolution Gas Chromatograph)와 고분해능질량분석기(HRMS, High Resolution Mass Spectrometry) 또는 질량분석기(LRMS, Low Resolution Mass Spectrometry)를 이용하여 화합물을 정성 및 정량하는 방법으로 구성되어 있다. 이와 유사한 국외 공정시험기준으로서 미국의 EPA Method 0023A, 1613, 1653, 1668B 8082A, 8280B, 8290A 등이 있고, 유럽연합의 Commission Regulation (EU) 2017/644, CEN 1948, 일본의 일본공업규격 JIS 0311, 0312 등이 있다. 이들 공정시험기준은 추출 및 정제 방법이 복잡하고, 많은 시간과 다량의 용매가 요구되는 단점이 있어 이를 보완하고자 몇몇 연구자에 의해 QuEChERS (quick, easy, cheap, effective, rugged, and safe) 방법이 적용되었다(Shi et al., 2012; Chamkasem et al., 2016; Cloutier et al., 2017). 이후 QuEChERS 방법은 미국과 유럽의 공공시험기준(각각 AOAC Official Method 2007.01, CEN EN 15662)이 되었고(Association of Analytical Communities International, 2007; European Committee for Standardization, 2008), 농축수산물뿐만 아니라 환경시료에서 농약과 동물용의약품 등을 분석하기 위하여 널리 사용되고 있다

(Stubbings and Bigwood, 2009; Bruzzone et al., 2014; Grimalt and Dehouck, 2016).

국가환경시료은행(National Environmental Specimen Bank, NESB)은 인간 활동에 의한 환경오염이 생태계에 미치는 영향을 모니터링하기 위해 육상, 하천, 해양 등 다양한 생태계로부터 특징적인 생물종을 선정하여 표준운영절차에 의해 채취·저장하고 있다. 육상기원 오염물질에 의한 연안 생태계 영향을 모니터링하기 위한 시료종으로서 바닷새를 흔히 이용하고 있는데 이는 상위 영양단계에 위치해 있어 잔류성 오염물질이 먹이 사슬을 통해 생물농축되므로 환경 모니터링에 적절하기 때문이다(Furness and Camphuysen, 1997). 이러한 바닷새 중 갈매기류는 해양 생태계 상위 포식자이므로 생물축적 모니터링 연구의 주요 대상으로 활용되고 있다. 그 예로써 1971년부터 Canadian Wildlife Service (CWS)에서는 Great Lakes Basin의 독성 화학물질과 오염물질이 조류에게 미치는 영향인 생물학적 효과를 모니터링하는 감시종으로 재갈매기(*Larus argentatus*)를 이용하고 있고(Koster et al., 1996), 알래스카의 Adak, Amchitka, Kiska Islands 지역에서는 수은 및 기타 금속(비스, 카드뮴, 납 등) 농도 비교를 위해 그 지역에서 서식하고 있는 수리갈매기(*Larus glaucescens*)의 어린개체와 성체의 깃털 및 알을 활용하였다(Burger et al., 2009). 또한, 독일환경시료은행(German Environmental Specimen Bank)은 1988년부터 North Sea Island 지역에서 재갈매기 알을 수집하여 POPs를 분석하였고 1993년에는 Baltic Sea Island 지역의 재갈매기 알을 추가하여 두 지역의 오염물질 농도를 비교하는 데 사용하였다(Rüdel et al., 2010).

연안환경의 오염물질 모니터링을 위한 바닷새 중 팽이갈매기(*Larus crassirostris*)는 우리나라 충청남도 태안군, 경상남도 통영시, 경상북도 울릉군, 경기도 옹진군, 전라남도 영광군 등 서해에서 동해에 이르기까지 광범위하게 분포하고 있고, 암초와 초지, 관목 생육지 등에서 집단으로 번식한다(Jeong, 2017). 또한, 비교적 우리나라에서 서식하고 있는 다른 해양 조류에 비해 알을 구하기 쉬운 장점이 있다. 따라서 NESB는 육상기원 오염물질에 의한 연안 생태계 영향을 모니터링하기 위한 시료종으로서 팽이갈매기 알을 선정하였다. 본 연구에서는 팽이갈매기 알을 채취하였고 QuEChERS 추출법과

Table 1. Geographic location of sampling points for black-tailed gull eggs

Point	Ulleungdo (U-do, East Sea)	Baengnyeongdo (B-do, West Sea)	Hongdo (H-do, South Sea)
Geographical coordinate	Ulleung-gun, Gyeongsangbuk-do (37°30 ' 77 " N, 130°48 ' 17 " E)	Baengnyeong-myeon, Ongjin-gun, Incheon (37°59 ' 24 " N, 124°41 ' 74 " E)	Maejuk-ri, Hansan-myeon, Tongyeong-si, Gyeongsangnam-do (34°32 ' 18 " N, 128°43 ' 67 " E)

기체크로마토그래프-질량분석기를 이용한 DDTs 분석, 자동수은분석기를 이용한 총수은 분석을 실시하여 지역 간 농도를 비교하였다.

2. 재료 및 방법

2.1. 시료채취 지점 및 방법, 저장

갯이갈매기 알을 채취하기 위한 지점으로서, 갯이갈매기의 대표 집단 산란지인 백령도(서해)와 홍도(남해), 울릉도(동해)를 선정하였다(Table 1). 시료 채취는 표준 운영절차에 준하여(Lee et al., 2013; 2016) 배발생 초기의 알을 산란 순서에 관계없이 무작위로 2016년 4~5월에 걸쳐 채취하였다. 채취한 시료는 냉장보관하여 실험실로 옮기고 생체특성치(장경, length; 단경, width; 중량, weight)를 측정하였다. Lee et al. (2012; 2017b)의 선행 연구와 같이 전란액(全卵液)을 분리하고 액체질소(기화점 : -196°C) 탱크에 보관하여 초저온 냉각(<-150°C)시켰으며, 액체질소에 의해 냉각된 텅스텐 카바이드 사발과 막자를 이용하여 파쇄하였다. 파쇄된 갯이갈매기 알은 액체질소에 의해 냉각된 지르코늄 사발에 옮기고 볼밀(Fritsch Planetary Mill)을 이용하여 균질화하였으며, 수시로 사발과 볼을 냉각하여 온도가 상승하는 것을 막았다. 냉각 상태에서 균질화된 갯이갈매기 알은 액체질소에 의해 -150°C 이하로 유지되는 탱크에 초저온 보관하였다.

2.2. 표준물질 및 시약

수은의 표준원액(1,005 mg/L)은 Kanto Chemicals (Tokyo, Japan), 인증 표준물질(NIST 2976, mussel tissue)은 National Institute of Standards and Technology (Maryland, USA)에서 구입하였다. DDTs 6종(*p,p'*-DDT, *o,p'*-DDT, *p,p'*-DDD, *o,p'*-DDD, *p,p'*-

DDE, *o,p'*-DDE, 각각 100 mg/L)은 AccuStandard Inc. (Connecticut, USA)에서 구매하였다. DisQuE Dispersive Sample Preparation 50 mL 튜브(4 g MgSO₄, 1 g NaCl, 1 g trisodium citrate dihydrate, 0.5 g disodium hydrogen citrate sesquihydrate)와 15 mL 튜브(0.9 g MgSO₄, 0.15 g PSA, 0.15 g C₁₈)는 Waters (Massachusetts, USA)의 것을 이용하였다. HPLC-grade의 acetonitrile과 acetone은 각각 JT Baker (Pennsylvania, USA)와 Merk KGaA. (Darmstadt, Germany)에서 구입하였고, L-cysteine은 Junsei (≥ 98%, Tokyo, Japan)에서 구매하였다.

0.01% L-cysteine 용액은 L-cysteine 적당량을 0.05 N 질산수용액으로 용해하여 제조하였고, 총수은 표준원액(1,005 mg/L)을 0.01% L-cysteine 용액으로 희석하여 총수은 표준용액(10, 50, 100 µg/L)을 만들었다. 이들 표준용액을 수은분석용 boat에 적당량 취하여 검량곡선 농도 1, 2, 5, 10, 50, 100 ng이 되도록 하였고 알 시료 분석과 동일한 방법으로 분석하였으며 검출된 총수은의 흡광 면적을 이용하여 검정곡선을 구하였다. DDTs 표준원액은 모두 acetone으로 희석하였고 GC-MS로 분석하여 농도 40, 80, 120, 200, 300, 500 µg/kg에서 검정곡선을 구하였다.

2.3. 시료 전처리 및 분석

2.3.1. DDTs

DDTs를 분석하기 위해, DisQuE dispersive sample preparation 50 mL 튜브에 갯이갈매기 알 시료 1 g과 acetonitrile 20 mL를 넣고 vortex mixing (1 min), 원심분리(5000 rpm, 5 min)하였다. 상등액 약 13 mL을 취하여 DisQuE Dispersive Sample Preparation 15 mL 튜브에 넣고 다시 vortex mixing, 원심분리하였으며 상등액 10 mL을 취하여 질소농축하였다. Acetone으로

재용해하여 최종 1 mL가 되도록 하였고 GC/MS 분석 시료로 사용하였으며, 각 지역마다 10개의 알을 추출하였다.

팽이갈매기 알의 DDTs를 분석하기 위하여 Gas Chromatograph Claus 680과 Mass Spectrometer Clarus SQ 8 T (PerkinElmer, Massachusetts, USA)를 이용하였다. 화합물의 분리를 위하여 DB-5MS (30 m×0.25 mm id, 0.25 µm film thickness, Agilent Technologies, California, USA) capillary column을 이용하였고, inlet의 온도와 주입부피, 운반기체의 유속은 각각 270°C, 1 µL, 1 mL/min이었으며 splitless 모드를 사용하였다. 오븐의 온도는 100°C에서 1 min 간 유지하였고 20°C/min으로 승온하였으며 280°C에서 2 min 동안 유지하였다. 모든 화합물은 70 eV의 Electron Impact (EI) mode에서 이온화하였고 Selected Ion Monitoring (SIM) mode에서 분석하였다. DDTs의 정량용 이온과 확인용 이온은 Table 2와 같다.

팽이갈매기 알에서 DDTs를 추출 및 분석한 시험법의 정도관리는 선행연구(Lee et al., 2017b)에서 이루어졌고, 간단히 직선성(r^2)과 검출한계, 정량한계, 회수율은 각각 ≥ 0.99 , 10-30 µg/kg, 40-120 µg/kg, 80.1-96.5%이었다.

Table 2. Selected ions of DDTs in mass spectrometry (Bolds for quantification)

Compound	Target ion (m/z)
p,p' DDT	235, 237, 165
o,p' DDT	235, 237, 165
p,p' DDD	235, 237, 165
o,p' DDD	235, 237, 165
p,p' DDE	246, 248, 318
o,p' DDE	246, 248, 318

2.3.2. 수은

팽이갈매기 알의 총수은을 분석하기 위해 가열기화 골드아말감법과 원자흡광분광 검출기로 구성된 자동 수은분석기(MA-3000 Mercury analyzer, Nippon Instruments Corporation, Tokyo, Japan)를 사용하였다. 초저온에서 균질화하고 저장한 팽이갈매기 알 시료 0.04 g을 boat에 담아 auto sampler에 넣고 furnace에서 연소시켜 총수은을 측정하였다. 1차 decomposition 조

건은 180°C에서 120 s 동안 가열, slope 시간 120 s, 유량 0.4 L/min이었고, 2차 decomposition은 850°C에서 120 s 동안 가열, slope 시간 30 s, 유량 0.4 L/min이었다. 시료 연소를 위하여 고순도 산소를 사용하였고, 각 지역마다 10개의 알을 분석하였으며, 분석시료 10개마다 인증 표준물질을 분석하여 기기의 재현성을 확인하였다.

팽이갈매기 알에서 총수은을 분석한 시험법의 정도관리는 선행연구(Lee et al., 2017a)에서 이루어졌고, 간단히 직선성(r^2)과 검출한계, 정량한계, 정확도, 정밀도는 각각 0.9977, 10 µg/kg, 30 µg/kg, 101.6%, 13.8%이었다.

3. 결과

3.1. 팽이갈매기 알의 생체특성치

팽이갈매기의 산란기인 4월-5월(2016년), 백령도, 홍도, 울릉도에서 채취한 알의 생체특성치를 측정하여 Fig. 1에 나타내었고, 측정결과와 지역별 비교는 일원배치분산분석을 실시한 후 Tukey HSD 다중비교법으로 수행하였다. 장경은 백령도가 평균 63.1 ± 0.7 mm, 홍도 61.8 ± 0.6 mm, 울릉도 61.6 ± 0.7 mm로써 백령도가 가장 컸으며, 지역 간 통계적으로 유의한 차이는 없었다(각 $n=10$, $F=1.43$, $p>0.05$). 단경은 백령도가 평균 44.3 ± 0.4 mm, 홍도 44.1 ± 0.5 mm, 울릉도 42.8 ± 0.4 mm로써, 백령도의 단경이 가장 컸으나 홍도와는 유의적인 차이가 나타나지 않았고 울릉도와는 유의적으로 차이가 있었다(각 $n=10$, $F=3.55$, $p<0.05$). 생중량(난각+전란액의 무게)은 백령도가 평균 65.1 ± 1.4 g, 홍도 64.1 ± 1.8 g, 울릉도 56.7 ± 1.6 g로써, 백령도와 홍도는 유의적 차이가 없었지만 두 지역은 울릉도와 통계적으로 유의한 차이를 보였고, 백령도의 팽이갈매기 알 생중량이 가장 큼을 알 수 있었다(각 $n=10$, $F=8.41$, $p<0.05$). 팽이갈매기 알의 크기는 전반적으로 울릉도에서 채취된 알이 가장 작았고, 백령도의 것이 홍도와 비슷하거나 약간 큰 정도였다.

3.2. 팽이갈매기 알의 DDTs 농도 및 부하량

QuEChERS 방법을 이용하여 팽이갈매기 알의 DDTs 농도를 분석하였고, 지역 간 비교는 총수은 분석 결과 비교와 동일한 방법으로 수행하였다. 세 지역에서

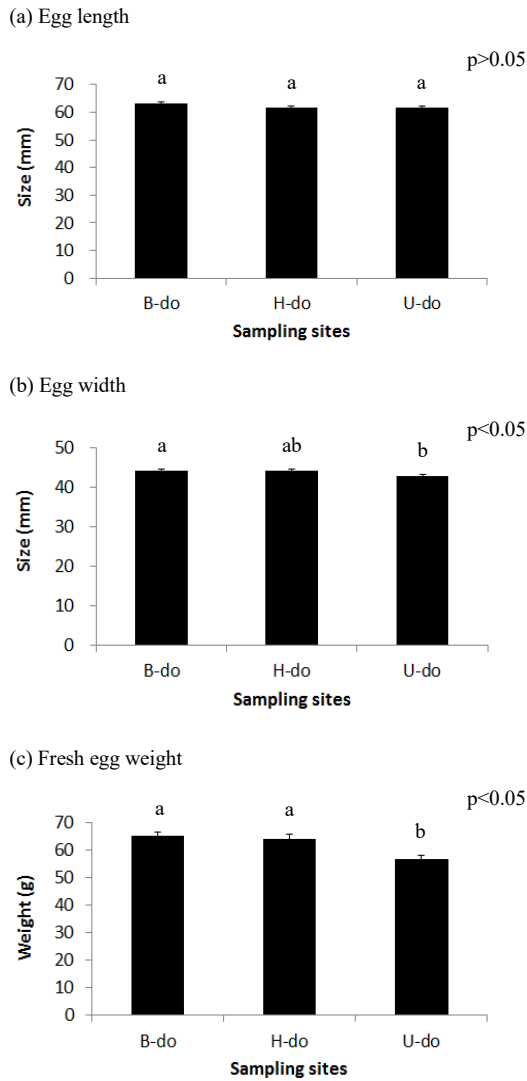


Fig. 1. Biological properties of black-tailed gull eggs (Statistical significant differences were identified by the letters a and b, nonsignificant by combination of letters e.g. ab or the same letters).

채취한 알의 DDTs를 분석한 결과 DDT의 대사체인 p,p'-DDE만 검출되었다. 따라서 본 연구 결과의 총 DDTs 농도의 합(Σ DDTs)은 p,p'-DDE의 농도를 의미한다. 채취한 갯이갈매기 알의 백령도 Σ DDTs 농도는 평균 $231.6 \pm 106.1 \mu\text{g/kg wet}$, 홍도 $117.7 \pm 18.3 \mu\text{g/kg wet}$, 울릉도 $230.0 \pm 123.8 \mu\text{g/kg wet}$ 으로 백령도와 울릉도는

통계적 차이는 없었지만, 홍도와 통계적으로 유의한 차이가 나타나 백령도와 울릉도의 Σ DDTs 농도가 홍도보다 높음을 알 수 있었다(Fig. 2(a), 각 $n=10$, $F=4.76$, $p<0.05$).

갯이갈매기 알의 전란액 중량(백령도 평균 61.0 ± 4.0 g, 홍도 60.0 ± 5.4 g, 울릉도 52.9 ± 4.8 g)을 이용하여 알의 Σ DDTs 부하량(하나의 알에 포함된 총 DDTs의 양)을 계산하여 비교한 결과(Fig. 2(b)), 백령도는 평균 $13.9 \pm 1.9 \mu\text{g/egg}$, 홍도는 $7.1 \pm 0.4 \mu\text{g/egg}$, 울릉도는 $12.3 \pm 2.2 \mu\text{g/egg}$ 이었다. Σ DDTs 농도와 마찬가지로 백령도와 울릉도의 Σ DDTs 부하량은 통계적 차이는 없었지만 홍도와 유의적인 차이가 나타나, 알의 Σ DDTs 부하량은 백령도와 울릉도가 높고, 홍도가 가장 낮았다(각 $n=10$, $F=4.69$, $p<0.05$).

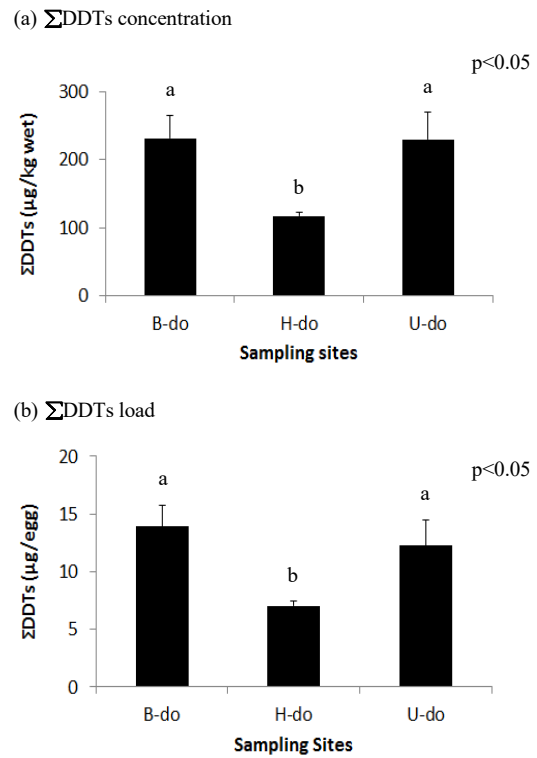


Fig. 2. Concentrations and loads of Σ DDTs in regional black-tailed gull eggs (Statistical significant differences were identified by the letters a and b, nonsignificant by the same letters).

3.3. 갯가새 알의 총수은 농도 및 부하량

자동수은분석기를 이용하여 갯가새 알의 총수은 농도를 분석하였고, 지역 간 비교는 정규성 조건을 만족하지 못하여 비모수분산분석(Kruskal-Wallis)을 실시하였으며 다중비교는 원자료를 순위변환한 후 Tukey HSD 로 실시하였다. 세 지역에서 채취한 알의 총수은 농도 (Fig. 3(a))는 백령도에서 평균 $237.5 \pm 42.3 \mu\text{g/kg wet}$, 흥도 $363.9 \pm 123.6 \mu\text{g/kg wet}$, 울릉도 $414.5 \pm 97.6 \mu\text{g/kg wet}$ 으로써, 울릉도의 알에서 가장 높은 농도의 총수은이 검출되었고 흥도의 농도와는 통계적으로 유의적인 차이가 없었으나 백령도와는 유의한 차이가 나타났다 (각 $n=10$, $F=8.44$, $p<0.05$).

총수은 부하량 (Fig. 3(b))은 백령도가 평균 $14.4 \pm 0.7 \mu\text{g/egg wet}$, 흥도는 $22.0 \pm 2.8 \mu\text{g/egg wet}$, 울릉도는

$21.8 \pm 1.5 \mu\text{g/egg wet}$ 으로써, 총수은 농도와 마찬가지로 흥도의 알에서 가장 많은 부하량이 검출되었으나 울릉도의 것과 유의적인 차이는 없었고 백령도의 부하량과는 유의적인 차이를 보였다 (각 $n=10$, $F=5.54$, $p<0.05$). 갯가새 알의 총수은 농도와 부하량은 전반적으로 백령도에서 채취된 알이 가장 낮았고, 울릉도와 흥도의 알은 서로 비슷하였다.

4. 고찰

DDTs를 포함한 POPs는 친유성으로 인해 고차 영양단계일수록 고농도로 축적되는 경향을 가지고 있다 (Peck et al., 2016). 갯가새의 주요 먹이는 멸치, 고등어, 까나리, 붕장어, 정어리, 오징어 등의 어류와 연체류 등으로 (Korea National Park Service, 2012), 연안환경 먹이사슬에서 최상위 포식자이기 때문에 이들 먹이 섭취에 의한 체내 오염물질 축적이 높다. 2006년 한반도 외해에서 채취한 오징어 (*Todarodes pacificus*)의 ΣDDTs 농도는 $164\text{--}4,430 \mu\text{g/kg lipid}$ 로써 서해는 $118\text{--}4,430 \mu\text{g/kg lipid}$ (평균 $1,298 \mu\text{g/kg}$)인 반면, 동해는 $52\text{--}753 \mu\text{g/kg lipid}$ (평균 $292 \mu\text{g/kg}$)이었다. 동해에 비하여 서해 오징어의 ΣDDTs 농도가 확연히 높았고, 이러한 원인은 DDTs가 서해로 꾸준히 유입되기 때문이라고 하였다 (Won et al., 2009). Takahashi et al. (2010) 또한 동중국해의 유기염소계 화합물 농도가 북서태평양 off-Tohoku (일본)보다 높고, 동중국해의 심해어류 중 DDT 농도의 증가는 중국으로부터의 꾸준한 유출이라고 언급하였다. 중국은 1983년 공식적으로 DDT의 사용을 금지하였지만 여전히 디코플 타입의 DDTs를 생산, 사용하고 있다고 하였고 (Qiu et al., 2005), 반면 우리나라는 1971년 국내 농약관리법에서 DDT의 등록을 취소하고 사용을 금지하였으며, 일본에서도 1970년대 초 사용을 금지하였다 (Choi et al., 2001; Choi and Chang 2008). 하지만 DDT와 같은 POPs는 높은 이동성과 잔류성 등으로 대기 순환과 해류 등을 통해 대륙·해양 간 전세계적인 이동을 할 수 있고, 대기이동에 의한 동남아시아 혹은 중국으로부터의 DDTs 유입 (Choi et al., 2001)을 고려한다면 백령도(서해) 갯가새 알의 상대적 높은 ΣDDTs 농도 ($231.6 \pm 106.1 \mu\text{g/kg wet}$)는 중국으로부터의 DDT 유출과 그로 인해 먹이사슬 간 고차 소비에 의한 체내

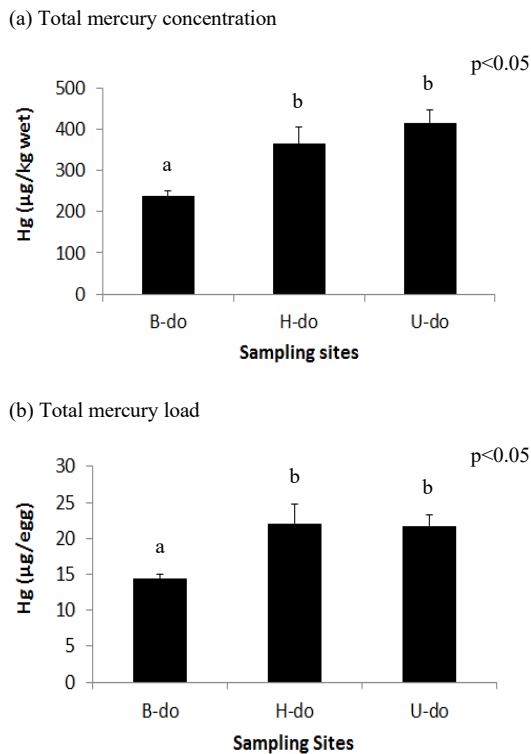


Fig. 3. Concentrations and loads of total mercury in black-tailed gull eggs (Statistical significant differences were identified by the letters a and b, nonsignificant by the same letters).

축적 증가가 크게 기여했을 것으로 판단되었다.

동해 울릉도 꿩이갈매기 알의 Σ DDTs 농도(230.0±123.8 µg/kg wet)도 백령도와 유사한 높은 농도를 보이고 있으나, Won et al.(2009) 연구 결과에서는 동해 오징어의 Σ DDTs 농도가 서해에 비해 유의적으로 낮은 52-753 µg/kg lipid를 보였다. 반면, Ueno et al.(2003)은 1997-2001년, Won et al.(2009)이 연구한 동일한 종류의 오징어(*T. pacificus*)를 채취하여 분석한 결과, 동해안의 Σ DDTs 농도는 320~1,300 µg/kg lipid로써 Sagami Bay를 제외한 일본 Pacific Ocean Coast의 농도범위(54-120 µg/kg lipid)보다 크게 높은 수준이었다. 동해안이 일본 Pacific Ocean Coast보다 높게 검출되는 이유 또한 러시아와 중국이 80년대 초 DDT 사용을 금지 하였으나 여전히 농업과 공중보건에서 사용하고 있기 때문인 것으로 추정하였다. 또한, 1940년대~1990년대 Soviet Union은 영국과 일본, 이탈리아보다 매우 많은 technical polychlorinated biphenyl (PCB)를 생산하였고, PCB 분포조사에서도 DDTs와 유사하게 동해의 오징어에서 높게 검출되는 것은 러시아와 일본으로부터 PCB의 끊임없는 유입을 반영할지도 모른다고 하였다. 비록 Won et al.(2009)와 Ueno et al. (2003)의 시료 채취는 5~9년의 시간적, 채취 지점의 공간적 차이(Won et al., 2006; Ueno et al., 1997~2001 수행)가 있으나 중국과 러시아의 DDT 사용 금지 이후에도 꾸준한 사용과 유출, DDT의 오랜 잔류 특성 등은 동해안의 어류를 주식으로 하는 울릉도 꿩이갈매기 알의 높은 Σ DDTs 농도 원인에 크게 작용할 것으로 추측되었다.

한편, 우리나라 서해안에서 동해안에 이르는 138개 지점 해양 퇴적물(1997~2002)의 DDTs와 PCBs를 모니터링한 결과 남동해안에서 상대적으로 높게 검출되었고, 이는 부산만과 마산만에 공업시설이 밀집되어 있기 때문인 것으로 판단하였다 (Hong et al., 2006). 3개 연안에서 채취(1997~1999)한 이매패류를 분석한 연구에서도 인천북항, 고양 장항, 마산만, 부산항, 울산 장생포항, 포항 등 운송 및 산업활동이 많은 곳에서 DDTs는 상대적으로 높게 검출되었고, 이들 지역을 제외한 3개 연안의 다른 지역은 유사한 수준이었다(Kim et al., 2002). 또한, Kim et al.(2002)과 Hong et al.(2006)은 1970년대 초 DDTs가 사용 금지 되고 약 30년이 지났음에도 불구하고 이들 지역에서 높게 검출되는 또 다른 이유는

DDTs의 높은 잔류성 때문이라고 하였다. 이와 같이 국내 육상에서 해양으로 유출되어 오래도록 잔류하는 DDTs는 연안환경의 대표 생물시료인 이매패류뿐만 아니라 꿩이갈매기 체내 축적에도 영향을 미쳐 알 중 DDTs 검출의 원인이 될 수 있을 것이다. 따라서 꿩이갈매기 알의 Σ DDTs 농도 지역 간 차이를 설명하기 위해서는 국내 기원 또는 월경(越境)성 DDTs의 영향에 대한 추가적인 연구가 필요하였다.

우리나라 꿩이갈매기 알의 Σ DDTs 농도 범위는 80-476 µg/kg wet이었고, 알의 평균 수분함량(74%)을 고려하여 건중량을 기초한 Σ DDTs 농도는 308-1831 µg/kg dry이었다. Canadian Arctic에 서식하는 7종의 바닷새(ivory gull, black-legged kittiwake, thick-billed murre, Arctic tern, northern fulmar, black guillemot, glaucous gull)를 이용한 장기 모니터링(1975~2010) 연구 결과, 알의 Σ DDTs 농도는 비록 중간 섭식 및 대사 활동, 영양단계의 차이에 따라 변화가 있기는 하지만 43.5-2,367 µg/kg wet 분포를 보였다(Mallory and Braune 2012). 캐나다의 태평양 연안에서 1970~1985년 동안 채취한 바닷새의 알 중 DDE의 농도는 186-19,200 µg/kg wet이고, 1985년에 채취한 알의 농도는 145-1,540 µg/kg wet으로써, 유기염소계 오염물질의 농도가 1970년대 초반에 비해 1980년대 중반부터 일반적으로 낮게 검출되었다(Elliott et al., 1989). Jimenez-Castro et al.(1995)은 미국 캘리포니아(Southern California and Northwestern Baja California, 1991)에서 Western gull의 알을 채취하여 6종의 DDTs를 분석하였고, 주된 분석 성분은 p,p' DDE으로써 3,500-12,600 µg/kg wet이었다. 이탈리아의 카프라이아 섬에서 Herring gull의 알을 모니터링(1981~1986)한 결과 p,p' DDE의 농도는 해마다 감소하여 1986년 건중 4,500 µg/kg dry이었고 이는 1981년 9,260 µg/kg dry의 절반에 지나지 않는 것으로 그 농도가 크게 감소하였다(Focardi et al., 1988). 우리나라 해안, 꿩이갈매기 알의 Σ DDTs 농도는 이들 국외 지역의 농도와 비교하여 낮거나 유사한 수준이었으나 국외의 많은 연구와 같이 보다 장기적인 모니터링을 수행하여 Σ DDTs 농도의 증감을 조사하고 이와 더불어 해양환경 오염물질의 시간적 변화 연구 등으로 확대할 필요성이 있었다.

바다오리(Alaskan murre, *Uria* spp.)의 알을 이용한

POPs 모니터링 연구에서 Vander Pol et al.(2004)은 총 수은의 지리적 분포는 PCB, p,p'-DDE 및 chlordanes의 분포와 유사하다고 하였다. 그래서 본 연구의 백령도와 울릉도 Σ DDTs 농도가 홍도에 비해 높게 검출되었기 때문에 총수은 또한 두 지역에서 높게 검출될 가능성이 있으나 총수은은 울릉도와 홍도에서 높게 검출되었고, 오히려 백령도에서는 가장 낮은 농도를 보였다. 동중국해에 위치한 Zhoushan 섬에서 채취한 어류의 총수은 분포는 20-600 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 이었고(Cheng et al., 2009), 우리나라 북서해안에 위치한 중국의 Laizhou Bay (Bohai Sea)에서는 2.1-344 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 으로 검출되었다(Liu et al., 2013; 2014). 2017년 충남지역에서 생산, 유통되는 수산물 195건 중 어류(심해성 어류, 다랑어류, 새치류 제외)와 연체류의 수은 농도는 500 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 이하였다(Lee et al., 2018). 비록, 양식장 어류가 포함되기는 했으나 자연산과 양식 어류의 수은 농도는 큰 차이가 없다는 연구결과(Kim et al., 2012)로 미루어보아 2017년 충남지역 어류와 연체류 수은 농도는 500 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 이하라고 가정할 수 있을 것이다. 반면, 상기 논문보다 약 10년 전인 2006~2007년 채취한 서해안(한강 권역, 금강 권역, 영산강 권역의 연근해) 어류의 수은 농도(평균값) 분포는 27.9(명태)-96.6(옥돔) $\mu\text{g}/\text{kg}$ 으로 다소 낮은 수준이었고, 남해(낙동강 권역)는 최대 평균 94.8 $\mu\text{g}/\text{kg}$ (조피볼락)이었으며(NeoEnbiz, 2008), 강원지역 연안 수산물 중 고등어와 같은 중층에 서식하는 어류의 수은 농도는 1.8~168.6 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 인 것으로 확인되었다(Gangwon Institute of Health and Environment, 2010). 한반도 연안 어류 수은 농도의 지리적 차이를 설명하기에는 매우 제한된 정보이기는 하나 이상의 연구결과를 바탕으로 추측컨대 서해안 어류의 수은 농도는 남해안의 어류와 같거나 높은 수준일 것으로 판단되었다. 그럼에도 불구하고 백령도 팽이갈매기 알의 총수은 농도는 남해안보다 유의적으로 낮은 수준이었다.

Ackerman et al.(2016)은 여러 문헌들을 조사한 결과 갈매기류를 포함한 17종 해양 조류 알의 수은 농도는 첫 번째 알보다 두 번째 알에서 일반적으로 16% 감소했고, Lee et al. (2017a) 또한 백령도 팽이갈매기 두 번째 알의 수은 농도가 첫 번째 알보다 유의적으로 낮았다고 하였다. 이러한 이유 때문에 각 지역 별 수은의 차이를 평가하기 위해서는 동일한 순서의 알을 채취하여 수은 농도를

분석할 필요가 있었으나 본 연구에서는 이러한 산란 순서에 의한 수은 농도의 차이를 고려하지 않고 임의의 알을 취하여 분석하였다. 채취한 모든 지역의 알이 동일한 산란 순서의 알이 아니기 때문에 지역 간 수은 농도의 차이가 각 지역의 오염수준을 반영한다고 보기에는 다소 어려움이 있었다. 한반도 각 연안의 오염 정도를 모니터링하기 위한 생물종으로서 팽이갈매기 알을 효과적으로 이용하기 위해서는 산란순서까지 확인하고 실험에 사용하는 것이 요구되었다.

우리나라의 연안(백령도, 홍도, 울릉도)에서 채취한 팽이갈매기 알의 총수은 농도 범위는 149-640 $\mu\text{g}/\text{kg}$ wet이었고, 알의 평균 수분함량(74%)을 고려하여 건중량을 기초한 농도는 573-2,462 $\mu\text{g}/\text{kg}$ dry이었다. 독일 지역의 재갈매기(*Larus argentatus*) 알에서 1980년 말부터 2000년 초까지 분석한 총수은 농도 범위는 144-425 $\mu\text{g}/\text{kg}$ wet (Rüdel et al., 2010)이었고, 캐나다의 북극권 지역에서 해양조류의 알은 530~6,400 $\mu\text{g}/\text{kg}$ wet (Peck et al., 2016), 캐나다 호수지역에서 재갈매기(*Larus argentatus*) 알은 120-880 $\mu\text{g}/\text{kg}$ wet (Koster et al., 1996) 수준이었다. 미국 알래스카 Aleutian 섬들에 서식하는 수리갈매기(glaucous-winged gulls) 알의 평균 수은 농도는 703 \pm 70.8 $\mu\text{g}/\text{kg}$ dry이었다(Burger et al., 2009). 우리나라 해안, 팽이갈매기 알의 총수은 농도는 이들 국외 지역의 해양 조류 알의 총수은 농도와 비교하여 낮거나 유사한 것으로 판단할 수 있었다.

팽이갈매기는 비록 영양단계 상위 조류 포식자이기는 하나 North Atlantic의 Great skua의 경우 주요 먹이의 영양단계 차이에 따라 알의 오염물질이 농도 차이가 발생하듯이(Leat et al., 2011) 서해, 남해, 동해에 서식하는 팽이갈매기의 주요 먹이 영양단계의 차이는 알의 오염물질 농도 차이를 야기할 수 있다. 이뿐만 아니라 팽이갈매기 군집의 건강상태, 군집별 특이적인 이동 및 월동 지역의 차이, 오염원의 차이, 기류와 해류의 차이 등도 크게 작용할 것이다(Vander Pol et al., 2004; Kojadinovic et al., 2007; Mallory and Braune, 2012).

5. 결론

NESB는 연안환경 모니터링을 위한 초저온 환경시료의 활용 연구 일환으로, 연안환경 대표시료 종으로서

꿩이갈매기의 알을 선정하여 백령도(서해), 홍도(남해), 울릉도(동해)에서 채취하였다. 채취한 알은 생체특성치를 조사하고 전란액을 분리하여 초저온 상태에서 균질화·저장한 후 QuEChERS 추출법과 GC-MS를 이용한 DDTs 분석, 자동수은분석기를 이용한 총수은 분석에 사용하였다. 세 지역에서 채취한 꿩이갈매기 알의 오염물질을 분석한 결과, 울릉도는 다른 두 지역에 비교하여 상대적으로 DDTs와 총수은 모두 높게 검출되었다. 비록, 2016년 1회 분석 결과만으로 DDTs와 수은 농도의 공간적 차이와 그 원인을 설명하기는 어려우나 꿩이갈매기 알의 오염물질 검출을 통하여 연안환경의 오염상태를 모니터링하기 위한 시료종으로서 꿩이갈매기 알의 충분한 가치를 엿볼 수 있었다. 앞으로 연안환경 모니터링에 의한 오염물질의 시공간적 차이, 꿩이갈매기와 알의 생태학적·화학적 변화와 연안환경 변화의 상관관계 등을 조사하고 설명하기 위한 체계적이고 장기적인 연구를 위하여 NESB의 역할이 중요하다고 할 수 있다.

감사의 글

본 논문은 환경부의 재원으로 국립환경과학원의 지원을 받아 수행하였습니다(NIER-2016-01-01-055).

REFERENCES

- Ackerman, J. T., Eagles-Smith, C. A., Herzog, M. P., Yee, J. L., Hartman, C. A., 2016, Egg-laying sequence influences egg mercury concentrations and egg size in three bird species: Implications for contaminant monitoring programs, *Environ. Toxicol.*, 35(6), 1458-1469.
- Association of Analytical Communities International, 2007, AOAC Official Method 2007.01., Pesticide residues in foods by acetonitrile extraction and partitioning with magnesium sulfate gas chromatography/mass spectrometry and liquid chromatography/tandem mass spectrometry first action 2007.
- Batrakova, N., Travnikov, O., Rozovskaya, O., 2014, Chemical and physical transformations of mercury in the ocean: a review, *Ocean Sci.*, 10, 1047-1063.
- Bazzi, A. O., 2014, Heavy metals in seawater, sediments and marine organisms in the Gulf of Chabahar, Oman Sea, *J. Oceanogr. Mar. Sci.*, 5(3), 20-29.
- Bruzzoniti, M. C., Checchini, L., de Carlo, R. M., Orlandini, S., Rivoira, L., del Bubba, M., 2014, QuEChERS sample preparation for the determination of pesticides and other organic residues in environmental matrices: a critical review, *Anal. Bioanal. Chem.*, 406, 4089-4116.
- Burger, J., Gochfeld, M., Jeitner, C., Burke, S., Volz, C. D., Snigaroff, R., Snigaroff, D., Shukla, T., Shukla, S., 2009, Mercury and other metals in eggs and feathers of glaucous-winged gulls (*Larus glaucescens*) in the Aleutian, *Environ. Monit. Assess.*, 152, 179-194.
- Chamkasem, N., Lee, S., Harmon, T., 2016, Analysis of 19 PCB congeners in catfish tissue using a modified QuEChERS method with GC-MS/MS, *Food Chem.*, 192, 900-906.
- Cheng, J., Gao, L., Zhao, W., Liu, X., Sakamoto, M., Wang, W., 2009, Mercury levels in fisherman and their household members in Zhoushan, China: Impact of Public health, *Sci. Total Environ.*, 407, 2625-2630.
- Choi, J. W., Matsuda, M., Kawano, M., Wakimoto, T., Iseki, N., Masunaga, S., Hayama, S. I., Watanuki, Y., 2001, Chlorinated persistent organic pollutants in black-tailed gulls (*Larus crassirostris*) from Hokkaido, Japan, *Chemosphere*, 44, 1375-1382.
- Choi, J. Y., Kim, K. R., 2014, Feasibility of remediation of marine sediments contaminated with PCBs based on washing technology using oxidizers and surfactants, *J. Korean Soc. Mar. Environ. Energy*, 5, 2504-2509.
- Choi, M., Yun, S., Park, H. J., Lee, J. Y., Lee, I. S., Hwang, D. W., Yoon, M. C., Choi, W. S., 2017, Concentrations and risk assessment of total mercury and methyl mercury in commercial marine fisheries from Korea, *Korean J. Fish. Aquat. Sci.*, 50(6), 675-683.
- Choi, S. D., Chang, Y. S., 2008, Estimation of Long-term Trends of Polychlorinated Biphenyls (PCBs) in Multimedia Environments of South Korea, *J. Korean Soc. Environ. Anal.*, 11(2), 144-154.
- Cloutier, P. L., Fortin, F., Groleau, P. E., Brousseau, P., Fournier, M., Desrosiers, M., 2017, QuEChERS extraction for multi-residue analysis of PCBs, PAHs, PBDEs and PCDD/Fs in biological samples, *Talanta*, 165, 332-338.
- Commission Regulation (EU) 2017/644, 2017, Laying down methods of sampling and analysis for the control of levels of dioxins, dioxin-like PCBs and non-dioxin

- like PCBs in certain foodstuffs and repealing Regulation (EU) No 589/2014, Official Journal of the European Union, 6.4.20174.
- Elliott, J. E., Noble, D. G., Norstrom, R. J., 1989, Organochlorine contaminants in seabird eggs from the Pacific coast of Canada, 1971-1986, Environ. Monit. Assess., 12, 67-82.
- European Committee for Standardization, 2006, CEN 1948, Stationary source emissions-Determination of the mass concentration of PCDDs/PCDFs and dioxin-like PCBs.
- European Committee for Standardization, 2008, CEN EN 15662, Foods of plant origin-Determination of pesticide residues using GC-MS and/or LC-MS/MS following acetonitrile extraction/partitioning and clean-up by dispersive SPE-QuEChERS-method.
- Focardi, S., Fossi, C., Lambertini, M., Leonzio, C., Massi, A., 1988, Long term monitoring of pollutants in eggs of Yellow-legged Herring Gull from Capraia island (Tuscan Archipelago), Environm. Monit. Assess., 10, 43-50.
- Furness, R. W., Camphuysen, C. J., 1997, Seabirds as monitors of the marine environment, ICES J. Mar. Sci., 54, 726 - 737.
- Gangwon Institute of Health and Environment, 2010, Heavy metal monitoring on aquatic products from the East-coast in Gangwon Province, Final report, National Institute of Food and Drug Safety Evaluation.
- Grimalt, S., Dehouck, P., 2016, Review of analytical methods for the determination of pesticide residues in grapes, J. chromatogr. A, 1433, 1-23.
- Hong, S. H., Yim, U. H., Shim, W. J., Li, D. H., Oh, J. R., 2006, Nationwide monitoring of polychlorinated biphenyls and organochlorine pesticides in sediments from coastal environment of Korea, Chemosphere, 64, 1479-1488.
- Japanese Industrial Standards Committee, 2005, JIS 0311, Method for determination of tetra-through octachlorodibenzo-p-dioxins, tetra-through octachlorodibenzofurans and dioxin-like polychlorinated biphenyls in stationary source emissions.
- Japanese Industrial Standards Committee, 2005, JIS 0312, Method for determination of tetra-through octachlorodibenzo-p-dioxins, tetra-through octachlorodibenzofurans and dioxin-like polychlorinated biphenyls in industrial water and waste water.
- Jeong, N. C., 2017, Glorious story told by the sea breeze-on Taeahn. Taean County Office.
- Jimenez-castro, C., Mellink, E., Villaescusa-Celaya, J., 1995, DDT and its metabolites in Western gull eggs from Southern California and Northwestern Baja California, Bull. Environ. Contam. Toxicol., 55, 374-381.
- Kim, C. K., Lee, T. W., Lee, K. T., Lee, J. H., Lee, C. B., 2012, Nationwide monitoring of mercury in wild and farmed fish from fresh and coastal waters of Korea, Chemosphere, 89, 1360-1368.
- Kim, S. K., Oh, J. R., Shim, W. J., Lee, D. H., Yim, U. H., Hong, S. H., Shin, Y. B., Lee, D. S., 2002, Geographical distribution and accumulation features of organochlorine residues in bivalves from coastal areas of South Korea, Mar. Poll. Bull., 45, 268-279.
- Kojadinovic, J., Le Corre, M., Cosson, R. P., Bustamante, P., 2007, Trace element in three marine birds on Reunion island (Western Indian Ocean): Part1-Factors influencing their bioaccumulation, Arch. Environ. Contam. Toxicol., 52, 418-430.
- Korea National Park Service, 2012, The story about ecology of sea gulls and climate change on Hong-do in Hallyeohaesang National Marine Park.
- Koster, M. D., Ryckman, D. P., Weseloh, D. V. C., Struger, J., 1996, Mercury levels in great lakes herring gull (*Laus argentatus*) eggs, 1972-1992, Environ. Pollut., 93(3), 261-270.
- Leat, E. H. K., Bourgeon, S., Borgå, K., Strøm, H., Hanssen, S. A., Gabrielsen, G. W., Petersen, Æ., Olafsdottir, K., Magnusdottir, E., Fisk, A. T., Ellis, S., Bustnes, J. O., Furness, R. W., 2011, Effects of environmental exposure and diet on levels of persistent organic pollutants (POPs) in eggs of a top predator in the North Atlantic in 1980 and 2008, Environ. Pollut., 159, 1222-1228.
- Lee, J., Lee, J., Kim, M., Han, A., Lee, E., Bade, R., Kim, M., 2012, Sampling and cryogenic pulverization and storage of environmental samples and improvement of operating procedures in National Environmental Specimen Bank, J. Environ. Impact Assess., 21(6), 823-839.
- Lee, J., Lee, J., Lee, S. H., Kim, M., Han, A., Lee, E., 2013, Sampling procedure of black-tailed gull (*Larus*

- crassirostris*)'s eggs in National Environmental Specimen Bank for monitoring long-term marine environmental pollution, J. Environ. Impact Assess., 22(6), 745-751.
- Lee, J., Lee, J., Jang, H., Park, J. H., Kim, M., 2016, Understanding of environmental representative specimen: Coastal ecosystem, black-tailed gull (*Larus crassirostris*), National Environmental Specimen Bank, National Institute of Environmental Research.
- Lee, J., Lee, J., Jang, H., Park, J. H., Choi, J. H., Lee, S. Y., Shim, K., 2017a, Mercury concentrations of black-tailed gull eggs depending on the egg-laying order for marine environmental monitoring, J. Environ. Impact Assess., 26(6), 538-552.
- Lee, J., Lee, J., Jang, H., Park, J. H., Shim, K., 2017b, Preliminary study of DDTs variability depending on the egg-laying order of Black-tailed Gull (*Larus crassirostris*) breeding at Baengnyeongdo, South Korea, Kor. J. Ornithol., 24(2), 41-51.
- Lee, J. H., Jeong, S. M., Choi, S. S., Kim, N. W., Song, N. S., Seong, S. Y., 2018, Analysis of test results on heavy metals in marine products, in: Kang, H. K., Kim, J. W., Kim, H. J., Kim, H. L., Park, J. J., Song, N. S., Ahn, M. H., Yoon, S. J., Jeong, K. H., Hong, H. M., (eds.), The report of Chungnam Institute of Health and Environment, vol. 28, Chungnam Institute of Health and Environment, 104-105.
- Liu, J., Cao, L., Huang, W., Dou, S., 2013, Species- and tissue-specific mercury bioaccumulation in five fish species from Laizhou Bay in the Bohai Sea of China, Chinese J. Oceanol. Limnol., 31(3), 504-513.
- Liu, J., Xu, X., Yu, S., Cheng, H., Hong, Y., Feng, X., 2014, Mercury pollution in fish from South China Sea: Levels, species-specific accumulation, and possible sources, Environ. Res., 131, 160-164.
- Mallory, M. L., Braune, B. M., 2012, Tracking contaminants in seabirds of Arctic Canada: Temporal and spatial insights, Mar. Poll. Bull., 64, 1475-1484.
- National Institute of Environmental Research, 2017, The fair examination standard of persistent organic pollutants, No. 2017-23.
- NeoEnbiz, 2008, Bioaccumulation-based mercury monitoring of fish and shellfish, 2nd final report, Ministry of Environment.
- Peck, L. E., Gilchrist, H. G., Mallory, C. D., Braune, B. M., Mallory, M. L., 2016, Persistent organic pollutant and mercury concentrations in eggs of ground-nesting marine birds in the Canadian high Arctic, Sci. Total Environ., 556, 80-88.
- Qiu, X., Zhu, T., Yao, B., Hu, J., Hu, A., 2005, Contribution of dicofol to the current DDT pollution in China, Environ. Sci. Technol., 39, 4385-4390.
- Rios, L. M., Moore, C., Jones, P. R., 2007, Persistent organic pollutants carried by synthetic polymers in the ocean environment, Mar. Poll. Bull., 54, 1230-1237.
- Rüdel, H., Fließner, A., Kösters, J., 2010, Twenty years of elemental analysis of marine biota within the German Environmental Specimen Bank—a thorough look at the data, Environ. Sci. Pollut. Res., 17, 1025-1034.
- Shi, J. W., Zhao, Y. G., Fu, Z. J., Li, J. G., Wang, Y. F., Yang, T. C., 2012, Development of a screening method for the determination of PCBs in water using QuEChERS extraction and gas chromatography-triple quadrupole mass spectrometry, Anal. Sci., 28, 167-173.
- Stubbings, G., Bigwood, T., 2009, The development and validation of a multiclass liquid chromatography tandem mass spectrometry (LC-MS/MS) procedure for the determination of veterinary drug residues in animal tissue using a QuEChERS (Quick, Easy, Cheap, Effective, Rugged and Safe) approach, Anal. Chim. Acta., 637, 68-78.
- Takahashi, S., Oshihoi, T., Ramu, K., Isobe, T., Ohmori, K., Kubodera, T., Tanabe, S., 2010, Organohalogen compounds in deep-sea fishes from the western North Pacific off-Tohoku, Japan: Contamination status and bioaccumulation profiles, Mar. Poll. Bull., 60, 187-196.
- Ueno, D., Inoue, S., Ikeda, K., Tanaka, H., Yamada, H., Tanabe, S., 2003, Specific accumulation of polychlorinated biphenyls and organochlorine pesticides in Japanese common squid as a bioindicator, Environ. Pollut., 125, 227-235.
- United States Environmental Protection Agency, 1994, EPA Method 1613 Revision B, Tetra- through octa-chlorinated dioxins and furans by isotope dilution HRGC/HRMS.
- United States Environmental Protection Agency, 1996, EPA Method 0023A, Sampling method for polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins and polychlorinated dibenzofuran

- emissions from stationary sources.
- United States Environmental Protection Agency, 1996, EPA Method 1653, Chlorinated phenolics in wastewater by in situ acetylation and GCMS.
- United States Environmental Protection Agency, 2007, EPA Method 8082A, Polychlorinated biphenyls (PCBs) by gas chromatography.
- United States Environmental Protection Agency, 2007, EPA Method 8280B, Polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins (PCDDs) and polychlorinated dibenzofurans (PCDFs) by high-resolution gas chromatography/low-resolution mass spectrometry (HRGC/LRMS).
- United States Environmental Protection Agency, 2007, EPA Method 8290A, Polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins (PCDDs) and polychlorinated dibenzofurans (PCDFs) by high-resolution gas chromatography/high-resolution mass spectrometry (HRGC/HRMS).
- United States Environmental Protection Agency, 2008, EPA Method 1668B, Chlorinated biphenyl congeners in water, soil, sediment, biosolids, and tissue by HRGC/HRMS.
- Vander Pol, S. S., Becker, P. R., Kucklick, J. R., Pugh, R. S., Roseneau, D. G., Simac, K. S., 2004, Persistent organic pollutants in Alaskan murre (*Uria* spp.) eggs: Geographical, species, and temporal comparisons, *Environ. Sci. Technol.*, 38, 1305-1312.
- Won, J. H., Hong, S. H., Shim, W. J., Yim, U. H., Kim, G. B., 2009, Persistent organochlorine pollutants in Korean offshore water: Squid (*Todarodes pacificus*) as a biomonitor, *Mar. Poll. Bull.*, 58, 1229-1244.