

〈Original article〉

해산규조류(*Skeletonema costatum*)의 개체군 성장률을 이용한 브롬화난연제(BDE-47, BDE-209) 독성평가

허 승 · 이주욱 · 박운호 · 박나영 · 이인석¹ · 황운기 · 최 훈*

국립수산과학원 서해수산연구소, ¹국립수산과학원 어장환경과

Toxic Assessment of BDE-47 and BDE-209 using the Population Growth Rates of *Skeletonema costatum*

Seung Heo, Ju-Wook Lee, Yun-Ho Park, Na-Young Park, In-Seok Lee¹, Un-Ki Hwang and Hoon Choi*

West Sea Fisheries Research Institute, NIFS, Incheon 22383, Republic of Korea

¹Marine Environment Research Division, NIFS, Busan 46083, Republic of Korea

Abstract - Toxic assessment of PBDEs (BDE-47, BDE-209) has carried out using the rates of population growth in marine phytoplankton, *Skeletonema costatum*. The population growth rate (r) in *S. costatum* was determined after 96 hours of exposure to BDE-47 (2,2',4,4'-Tetrabromodiphenyl ether) and BDE-209 (2,2', 4,4'-Decabromodiphenyl ether). It was observed that r -value in the controls (absence PBDEs) was greater than 0.04 and further a decrease was observed in a dose-dependent manner. BDE-47 reduced population growth rate in a dose-dependent manner and a significant reduction occurred at a concentration greater than 0.31 mg L^{-1} , but BDE-209 had no effect on population growth rate even at concentrations greater than 125 mg L^{-1} . The population growth rate in the presence of BDE-47 and BDE-209, EC_{50} values were 0.55 mg L^{-1} and $> 125 \text{ mg L}^{-1}$, and NOEC values were 0.16 mg L^{-1} and $> 125 \text{ mg L}^{-1}$, respectively. Therefore, BDE-47 is considered to be about over 80 times more harmful than BDE-209. In this study, the ecotoxic assessment based on population growth rate in *S. costatum* can be used as a baseline data for establishment of environment standard quality of BDE-47 and BDE-209 in the marine environment.

Keywords : PBDEs, BDE-47, BDE-209, *Skeletonema costatum*

서 론

잔류성 유기오염물질(Persistent Organic Pollutants; POPs)인 PBDEs (Polybrominated Diphenyl Ethers)는 높은 끓는점, 낮은 용해도, 다양한 물질에 대해 저항성을 가지며 화학

적으로 매우 안정된 물질이다. 또한, 벤젠고리 내 브롬 원자수와 위치에 따라 구별되는 209종의 동족체를 가지며, 일반적으로 브롬 원자수가 적을수록 유해성이 강하고 브롬 원자수가 많을수록 유해성이 낮아지는 것으로 알려져 있다(de Wit 2002). PBDEs는 기존에 사용되던 난연제들과는 달리 폴리머와 반응하지 않고 혼합이 가능하며 저렴한 가격 때문에 건축자재, 석유, 자동차, 전자회로, 직물, 플라스틱 등의 재료에서 브롬화난연제로 널리 사용되고 있다(Rahman *et al.*

* Corresponding author: Hoon Choi, Tel. 032-745-0681,
Fax. 032-745-0686, E-mail. doublegm@gmail.com

2001; McDonald 2002).

대표적인 브롬계 난연제로는 PBBs (Polybrominated biphenyls), PBDEs 및 TBBPA (Tetrabromo-bisphenol A) 등 세 종류가 대표적인데, 이중 PBBs는 1970년대부터 발암성과 간독성이 확인되어 사용이 금지되었다 (Zegers *et al.* 2003). 또한 PBDEs는 높은 지용성 때문에 환경 중 생체 내에 잘 축적되며, 자연환경 내에서 잘 분해되지 않아 환경오염을 야기할 수 있어 (Danish 1999; Hassanin *et al.* 2004), 먹이연쇄에 의한 인류의 보건에도 악영향을 미칠 수 있다 (Darnerud *et al.* 2001).

연안역의 퇴적물과 저서생물의 PBDEs 수준은 일반적으로 시간이 지남에 따라 다소 증가할 것으로 생각되며 (Martin *et al.* 2004), 우리나라에서는 2004~2005년 마산만의 표층퇴적물 내에서 22개의 PBDEs 이성질체가 검출된 바 있으며, Σ PBDEs의 농도수준이 전세계 농도수준인 $nd \sim 95.6 \text{ ng g}^{-1}$ 보다 다소 높은 편이거나 유사한 것으로 조사되었다 (We *et al.* 2010). 2011년 국내 연안 양식 생물 내 PBDEs 잔류 농도 중 BDE-47과 BDE-209의 분포율은 약 40%와 10%였으며, 국내 연안 퇴적물에서의 분포율은 약 70%와 2%정도로 나타났다 (Baek *et al.* 2012). BDE-47과 BDE-209는 국내 연안 퇴적물과 양식생물 체내에 가장 많이 잔류하여, 해양생물에 대한 독성이 우려되는 대표적인 브롬화난연제라고 할 수 있다.

BDE-47은 휘발성 및 수용성으로 인하여 해양환경에 고도로 집중되어 있으며, 어류 및 동물 조직의 지질에 빠르게 축적되며 (Lema *et al.* 2007; Viganò *et al.* 2011), 다른 브롬화난연제에 비하여 생물체 내의 축적량이 상대적으로 높게 나타날 수 있다 (Darnerud 2003; Chen and Hale 2010; Usenko *et al.* 2011). 또한 BDE-209는 포유류에서 급성, 만성독성을 포함하여 매우 낮은 독성을 나타내지만, 잠재적으로 간독성, 생식독성, 내분비독성 및 발암효과를 가질 수 있다고 밝혀진 바 있으며 (Hardy 2002; Hardy *et al.* 2002, 2009; Du *et al.* 2008), 동물성 플랑크톤인 해산로티퍼 (*Brachionus plicatilis*)의 개체군 성장률을 억제하는 것으로도 알려져 있다 (Choi *et al.* 2018). 하지만, 해양 미세조류에 대한 BDE-47과 BDE-209의 독성을 조사한 연구는 제한적으로 발표되어 있으며, PBDEs 연구의 대부분은 농도-생물영향에 관한 연구가 아닌, 수질 및 퇴적물과 같은 연안환경과 생물체내의 농

축수준을 나타내고 있는 상황이다.

본 연구에서는 해양생태계 내에서 생산자를 대표하며 국제표준화기구 (ISO 1995)의 표준시험생물인 *Skeletonema costatum*를 이용하여 브롬화난연제의 독성 영향과 더불어 무영향농도 (No Observed Effective Concentration; NOEC), 최소영향농도 (Lowest Observed Effective Concentration; LOEC) 및 반수영향농도 (50% Effective Concentration)를 산출하였다. 향후, 이러한 연구의 결과는 PBDEs (BDE-47, BDE-209 등)와 같은 오염물질의 해양환경 기준농도 설정 및 타 오염물질과 상대적 독성치를 비교할 수 있는 유용한 자료로 활용될 것으로 판단된다.

재료 및 방법

1. 시험생물

본 시험에 사용된 시험생물인 해산 규조류 (*Skeletonema costatum*)는 한국해양미세조류은행 (Korean Marine Microalgae Culture Center; KMMCC)에서 분양받아 서해수산연구소 해양생태위해평가센터 항온실에서 6개월 이상 계대 배양하여 실험에 사용하였다.

2. 시험용액 조성

본 시험에 사용된 브롬화난연제는 BDE-47 (2,2',4,4'-Tetrabromodiphenyl ether)과 BDE-209 (2,2',4,4'-Decabromodiphenyl ether)이며, 농도범위는 예비실험을 통하여 BDE-47 (0, 0.16, 0.31, 0.63, 1.25, 2.50 mg L^{-1}), BDE-209 (0, 15.63, 31.25, 62.50, 125 mg L^{-1})로 설정하였으며, 시험물질의 기본정보는 Table 1과 같다. 시험에 사용된 물질은 DMSO (Dimethylsulfoxide, Sigma-aldrich, USA)를 carrier solution으로 사용하여 100,000 mg L^{-1} 의 stock solution을 제작한 뒤 멸균된 자연해수로 희석하여 사용하였다. 이때 DMSO의 최대농도는 시험생물인 *S. costatum*의 NOEC (11,000 mg L^{-1}) 이하의 농도로만 노출될 수 있도록 사용하였다 (Okamura *et al.* 2001).

3. 개체군 성장률

시험용액은 50 mL test tube에 농도별로 30 mL씩 4반복으

Table 1. Information on PBDEs used in this study

| Toxicants | Target concentration (mg L^{-1}) | Formula | CAS no. | Manufacturer |
|---|---|--|-----------|---------------------------------|
| BDE-47 (2,2',4,4'-Tetrabromodiphenyl ether) | 0 - 2.50 | $\text{C}_{12}\text{H}_6\text{Br}_4\text{O}$ | 5436-43-1 | Chiron AS |
| BDE-209 (2,2',4,4'-Decabromodiphenyl ether) | 0 - 125 | $\text{C}_{12}\text{Br}_{10}\text{O}$ | 1163-19-5 | Tokyo Chemical Industry Co. Ltd |

로 분주하였다. 이후 시험용액에 *S. costatum*를 초기 세포밀도 $5,000 \text{ cells mL}^{-1}$ 로 분주한 뒤, 배양온도는 $20.0 \pm 1.0^\circ\text{C}$ 를 유지하였으며, 조도는 형광등을 이용하여 $100 \pm 10 \mu\text{mol photons m}^2 \text{ s}^{-1}$, 광주기 10 Light:14 Dark으로 96 h 동안 배양

Table 2. Experimental culture conditions using the population growth rate in the diatom, *S. costatum* (ISO 1995)

| Class | Condition |
|-------------------------|---|
| Parameter | Population growth rate |
| Experiment period | 96 h |
| Culture type | Static non-renewal |
| Photoperiod | Ambient light condition and 10L:14D period |
| Light intensity | $100 \pm 10 \mu\text{mol photons m}^2 \text{ s}^{-1}$ |
| Temperature | $20^\circ\text{C} \pm 1.0^\circ\text{C}$ |
| Salinity | 30 ± 1 |
| pH | 8.0 ± 0.2 |
| Chamber volume | 50 mL test tube |
| Test solution volume | 30 mL |
| Culture medium | F/2 |
| Test volume | 1 mL |
| Initial cell density | $5,000 \text{ cells mL}^{-1}$ |
| Acceptability criterion | >0.04 population growth rate by the hour |

하였으며, 상세한 시험조건은 Table 2와 같다. 개체군 성장률은 Fluorometer (Tuner Designs Model 10-AU, USA)를 이용하여 형광량 측정을 통한 Chlorophyll *a*의 양을 측정하였다. Chlorophyll *a* 농도는 회귀방정식을 구하기 위하여 단순 직선회귀 (Simple linear regression)을 이용하였으며, 세포밀도는 Log_{10} 으로, 형광량에 의한 Chlorophyll *a* 농도는 double square root 변형으로 자료를 정규 분포화 하였다. 세포밀도로 환산한 된 Chlorophyll *a* 농도는 $r = (\ln N_t - \ln N_0) / t$ (r = 개체군 성장률, N_t = 실험종료 후의 세포밀도, N_0 = 초기세포밀도, t = 배양시간)의 식으로 개체군 성장률을 계산하였으며, 대조구의 개체군 성장률이 0.04 이상일 경우 정상 growth curve를 가진 것으로 판단하여 적합한 실험결과로 사용하였다 (Hwang *et al.* 2014).

4. 통계분석

대조군과 실험군의 유의성 검정은 SigmaPlot software (SigmaPlot 2001, SPSS Inc., USA)의 ANOVA test로 비교 하였으며 p 가 0.05 이하인 것을 유의한 것으로 판단하였다. 개체군 성장률 (r)에 대한 EC_{50} 와 95% 신뢰구간 (95%

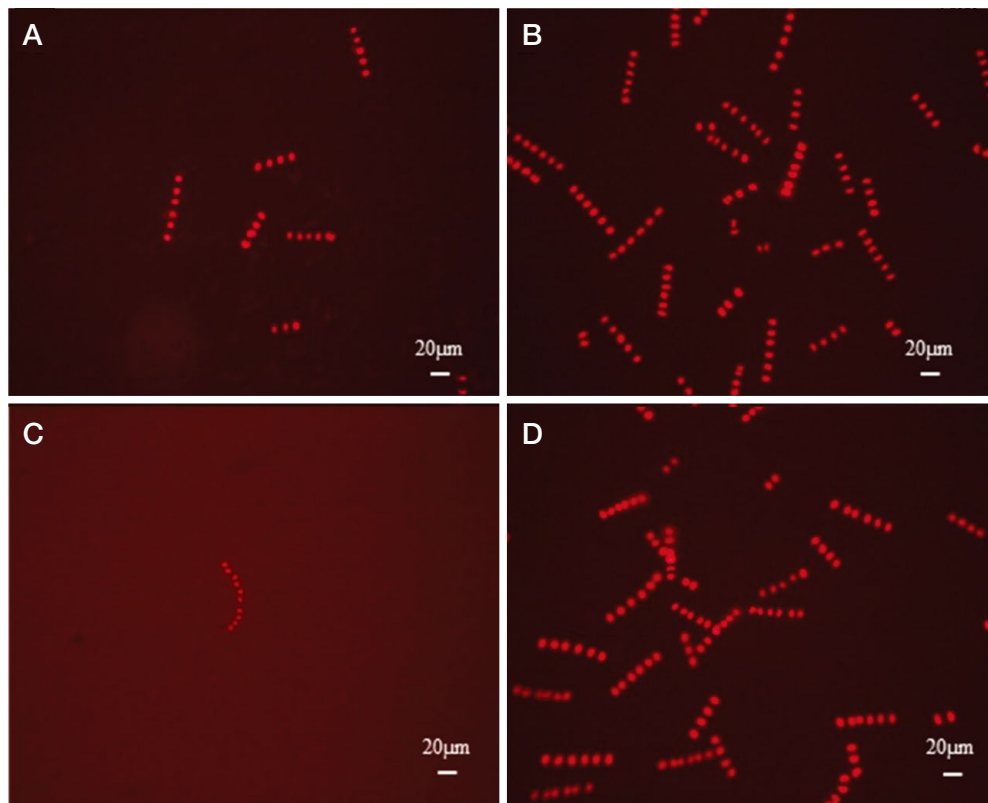


Fig. 1. Fluorescence microscope images of *S. costatum* at 96 h exposed to (A) Initial, (B) Control, (C) 1.25 mg L^{-1} of BDE-47, and (D) 125 mg L^{-1} of BDE-209.

Confidence Limit; 95% CI)은 Toxicalc 프로그램 (Toxicalc 5.0, Tidepool scientific software, USA)의 probit 통계법을 이용하여 분석하였다. NOEC 및 LOEC도 Toxicalc 프로그램의 Dunnett's test를 이용하여 분석하였다.

결 과

96 h 동안 BDE-47과 BDE-209에 노출된 *S. costatum*의 개체밀도 변화를 관찰하여 Fig. 1에 나타냈다. BDE-47과 BDE-209를 포함하지 않은 대조구의 *S. costatum*는 96 h 배양 후 개체 밀도가 배양초기 보다 급격히 증가한 것으로 나타났다. BDE-47 (1.25 mg L^{-1})에 노출된 *S. costatum*의 개

체 밀도는 급격히 감소한 것으로 나타났으나, BDE-209 (125 mg L^{-1})의 경우는 대조구와 유사한 개체 밀도를 나타냈다 (Fig. 1).

BDE-47과 BDE-209가 *S. costatum*의 개체군 성장률에 미치는 영향을 Fig. 2에 나타냈다. 대조구에서 *S. costatum*의 개체군 성장률은 0.04 이상을 나타냈으나, BDE-47에 노출된 개체군의 성장률은 BDE-47 농도가 증가할 수록 농도의 존적으로 감소하는 경향을 나타냈다. 실험농도 0.31 mg L^{-1} 이상의 농도에서 개체군 성장률이 유의하게 감소하였으며 ($p < 0.05$), 1.25 mg L^{-1} 이상의 농도에서는 개체군 성장률이 0이었다. 하지만, BDE-209의 경우는 농도가 증가해도 개체군 성장률에 변화가 없었으며, 실험 최고농도인 125 mg L^{-1} 까지 대조구와 유사하게 나타났다 (Fig. 3).

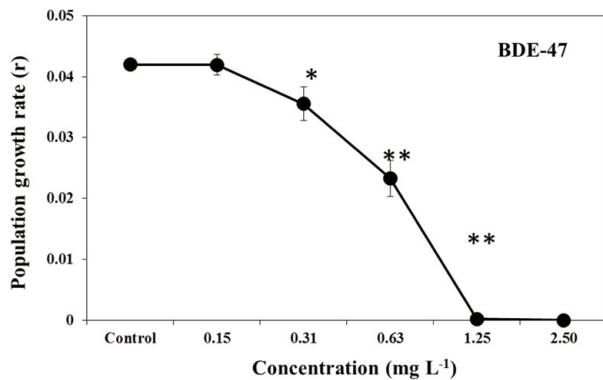


Fig. 2. The variation in population growth rate (r) in *S. costatum* exposed to BDE-47 for 96 h (* $p < 0.05$, ** $p < 0.01$).

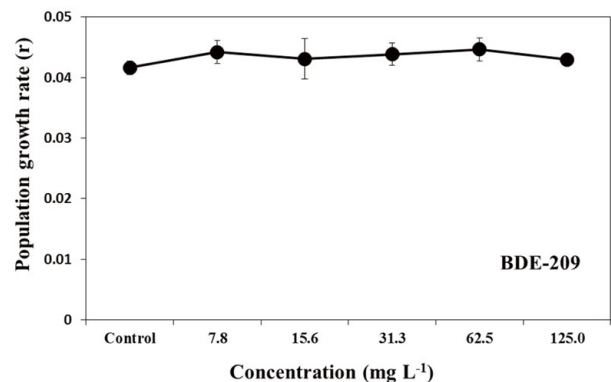


Fig. 3. The variation in population growth rate (r) in *S. costatum* exposed to BDE-209 for 96 h.

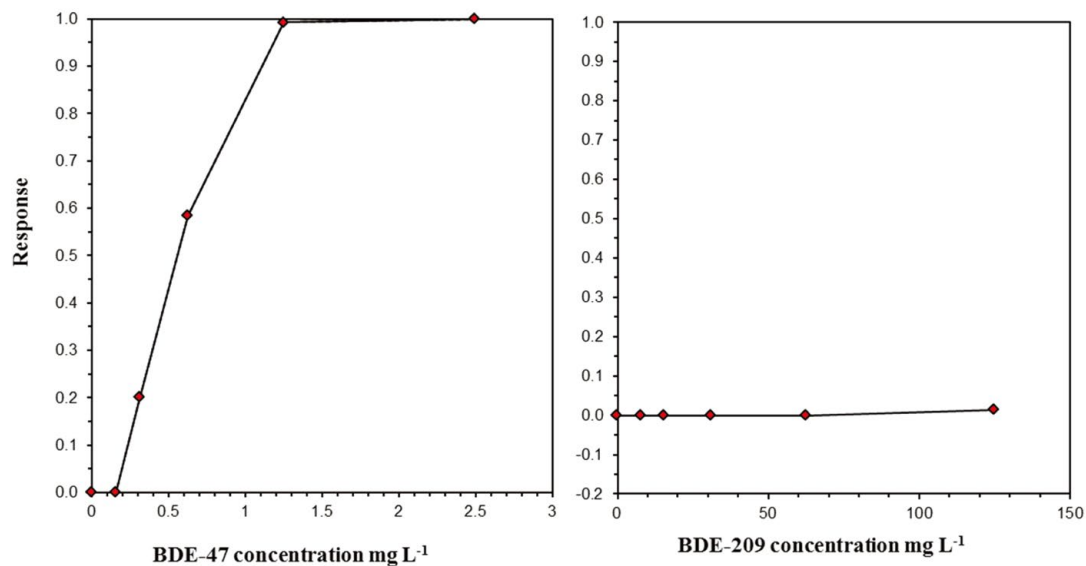


Fig. 4. Dose-response curve using population growth rate of *S. costatum* exposed to BDE-47 and BDE-209 for 96 h.

Table 3. Toxicity evaluation using population growth rate in *S. costatum* exposed to BDE-47 and BDE-209

| Toxicants | Endpoint | Test duration (h) | NOEC (mg L ⁻¹) | LOEC (mg L ⁻¹) | EC ₅₀ (mg L ⁻¹) | 95% CI |
|---|-------------------|-------------------|----------------------------|----------------------------|--|--------|
| BDE-47 (2,2',4,4'-Tetrabromodiphenyl ether) | Population growth | 96 | 0.16 | 0.31 | 0.55 | 0.03 |
| BDE-209 (2,2',4,4'-Decabromodiphenyl ether) | Population growth | 96 | > 125 | > 125 | > 125 | - |

EC₅₀: 50% Effective concentration, NOEC: No observed effective concentration, LOEC: Lowest observed effective concentration, 95% CI: 95% Confidence Interval

*S. costatum*의 개체군 성장률에 대한 BDE-47의 농도반응은 Sigmoid 형태로 표준독성반응을 나타냈으나, BDE-209의 경우는 획일화된 직선 형태로 농도에 대한 반응을 나타내지 않았다(Fig. 4).

BDE-47과 BDE-209에 노출된 *S. costatum* 개체군 성장률의 독성치는 Table 3과 같다. BDE-47의 EC₅₀, NOEC와 LOEC값이 각각 0.55 mg L⁻¹, 0.16 mg L⁻¹ 및 0.31 mg L⁻¹로 나타났지만, BDE-209의 경우는 EC₅₀, NOEC와 LOEC값이 각각 > 125 mg L⁻¹로 나타나, 125 mg L⁻¹ 이하의 농도에서는 영향을 미치지 않는 것으로 나타났다(Table 3).

고 찰

육상과 인접한 연안역의 퇴적환경 및 서식생물 체내의 PBDEs (Polybrominated diphenyl ethers)는 일정부분 자정능력에 의해 감소된다고 할지라도, 사용량의 증가와 더불어 긴 반감기에 의해 다소 증가될 것으로 판단된다(Martin *et al.* 2004). PBDEs 동족체 중 연안환경 및 서식생물에서 가장 많이 검출되는 것은 BDE-47이며, BDE-209의 경우도 대량 사용으로 인해 연안역의 퇴적환경에서 쉽게 검출되는 것으로 알려져 있다(Hardy 2002; Hardy *et al.* 2002, 2009; Du *et al.* 2008).

현재까지 PBDEs의 독성에 관한 많은 연구는 상대적으로 독성이 강한 것으로 알려진 브롬 원자가 적은 BDE-28 및 BDE-99 등에 관한 연구를 많이 해 왔으며, 브롬 원자가 많은 PBDEs는 비교적 낮은 독성을 가지는 것으로 알려져 왔다(Hardy 2002; Hardy *et al.* 2002, 2009; Du *et al.* 2008). 본 연구 결과에서도 단순히 EC₅₀을 비교하여 독성의 세기를 비교하면 BDE-47는 0.55 mg L⁻¹, BDE-209는 > 125 mg L⁻¹로 나타나, BDE-47이 훨씬 독성이 강한 것으로 나타났다. 또한, 시험생물 및 시험법에 따라 차이가 있지만 대부분의 실험결과 BDE-47은 BDE-209에 비하여 독성 영향이 큰 것으로 나타났으며, 동물성플랑크톤인 해산로티퍼 (*Brachionus plicatilis*)를 이용한 실험의 경우도 BDE-47에 대한 72 h 개체군 성장률의 경우 EC₅₀값이 3.67 mg L⁻¹로 나

타났고, BDE-209의 경우는 862.75 mg L⁻¹를 나타냈다(Choi *et al.* 2018). 어류 (*Carassius auratus*)의 항산화효소(e.g., Superoxide dismutase, catalase, glutathione, glutathione, peroxidase, malondialdehyde)를 이용한 21 d 만성독성시험을 이용한 BDE-209의 독성시험에서도 EC₅₀가 산출되지 않은 연구도 보고되고 있다(Lebeuf *et al.* 2006; Feng *et al.* 2013). 이러한 독성 영향의 차이는 BDE-47의 경우는 생물체내에 빠르게 흡착하게 되어(Lema *et al.* 2007; Viganò *et al.* 2011), BDE-209보다 흡수율이 훨씬 높기 때문에 판단된다(Stapleton *et al.* 2009).

본 연구 결과에서도 *S. costatum*의 개체군 성장률에 대한 BDE-47의 농도반응은 Sigmoid 형태로 표준독성 반응을 나타내, *S. costatum*의 개체군 성장률은 BDE-47 독성평가에 유용한 실험인 것으로 판단되었다. 반면에 BDE-209의 경우는 농도에 반응하지 않는 획일화된 직선반응을 나타냈다. BDE-209는 BDE-47보다 독성의 세기가 약하며, 연안역에서 사용되는 대부분의 브롬화난연체는 BDE-209가 많이 사용되고 있어 쉽게 검출된다. 하지만 BDE-209는 환경 내에서 탈 브롬화 되어 상대적으로 독성이 강한 다양한 이성질체의 PBDEs로 분해가 가능하다. Bezares-Cruz *et al.* (2004)에 의하면 실제 태양광에 의한 시간별 분해산물을 확인한 결과, 최종적으로 tri-또는 tetra-BDE (BDE-47)까지 분해된다고 보고된 바 있다. 따라서, 상대적으로 독성이 강하고 생물체내 쉽게 축적되는 BDE-47에 대한 생태독성 연구는 연안역에서 다양한 생태적 지위를 가진 생물들을 이용해 지속적으로 이루어져야 할 것으로 판단된다.

본 연구에서의 BDE-47의 최소영양농도(LOEC)인 0.31 mg L⁻¹에 비하여, 연안퇴적물과 양식생물 체내의 PBDEs 농도가(연안퇴적물: 동해 4.38 ng g⁻¹ dw; 남해 3.43 ng g⁻¹ dw; 서해 0.67 ng g⁻¹ dw, 양식생물체내: 0.17 ng g⁻¹ ww; 0.14 ng g⁻¹ ww; 0.11 ng g⁻¹ ww) 낮은 값을 나타내지만(Baek *et al.* 2012), PBDEs는 옥탄올-물 분배 계수(log Kow)가 높아 소수성인 특성을 가지며 지방세포에 축적되고, 동시에 난 분해성으로 먹이사슬을 따라 이동하면서 생물 농축이 나타날 수 있기 때문에 최상위 포식자인 인류의 보건에도 악영향을 미칠 수 있다는 점에 유의해야 할 것이다(Hong *et al.* 2006).

본 연구는 해양생태계 내 생산자 지위를 가진 *S. costatum*의 개체군 성장률을 endpoint로 하여 PBDEs (BDE-47, BDE-209)가 개체군 단계에 미치는 영향을 판단하였으며, 이러한 연구결과는 BDE-47 및 BDE-209와 같은 PBDEs의 해양환경 기준 설정 및 타 독성물질과의 상대적 독성치를 비교하기 위한 귀중한 자료로 활용될 것으로 판단된다.

적 요

해산규조류 (*Skeletonema. Costatum*)의 개체군 성장률을 이용하여 PBDEs (BDE-47, BDE-209)의 독성평가를 실시하였다. BDE-47은 0.31 mg L^{-1} 이상의 농도부터 유의미하게 감소하여 농도의존성을 나타냈으나, BDE-209의 경우 시험 최고농도 125 mg L^{-1} 에서도 변화를 나타내지 않았다. 본 시험결과 EC_{50} 값은 BDE-47과 BDE-209에서 각각 0.55 mg L^{-1} 와 $> 125 \text{ mg L}^{-1}$ 이었고, NOEC값은 0.16 mg L^{-1} 와 $> 125 \text{ mg L}^{-1}$ 이었으며, LOEC값은 0.31 mg L^{-1} 와 $> 125 \text{ mg L}^{-1}$ 으로 나타나 BDE-47이 BDE-209에 유해성이 더 큰 것으로 나타났다. 또한, 연안환경에서의 BDE-47의 농도가 LOEC 값인 0.31 mg L^{-1} 를 초과할 경우 *S. costatum*과 같은 식물성플랑크톤에 악영향을 미칠 것으로 판단된다. 본 연구 결과는 PBDEs의 해양환경 기준 설정 및 타 독성물질과의 상대적 독성치를 비교하기 위한 귀중한 자료로 활용될 것으로 판단된다.

사 사

본 연구는 2018년도 국립수산과학원 경상과제 (R2018029) 연구비 지원으로 국립수산과학원 서해수산연구소 해양생태위해평가센터에서 수행하였다.

REFERENCES

- Baek SH, IS Lee, HS Kim, MK Choi, DW Hwang, SY Kin and HG Choi. 2012. Distribution of persistent organic pollutants (POPs) in sediment and organism collected from various culturing grounds, Korea. *The Sea* 17:262-269.
- Chan WK and KM Chan. 2012. Disruption of the hypothalamic-pituitary-thyroid axis in zebrafish embryo-larvae following waterborne exposure to BDE-47, TBBPA and BPA. *Aquat. Toxicol.* 108:106-111.
- Chen D and RC Hale. 2010. A global review of polybrominated diphenyl ether flame retardant contamination in birds. *Environ. Int.* 36:800-811.
- Choi H, JW Lee, YH Park, IS Lee, S Heo and UK Hwang. 2018. Ecotoxic evaluations of BDE-47 and BDE-209 using Rotifer (*Brachionus plicatilis*). *Korean J. Environ. Biol.* 36:43-49.
- Danish EPA. 1999. Report No. 494: Brominated flame retardants: substance flow analysis and assessment of alternatives. Danish Environmental Protection Agency.
- Darnerud PO, GS Eriksen, T Jóhannesson, PB Larsen and M Viluksela. 2001. Polybrominated diphenyl ethers: occurrence, dietary exposure, and toxicology. *Environ. Health Perspect.* 109:49-68.
- Darnerud PO. 2003. Toxic effects of brominated flame retardants in man and in wildlife. *Environ. Int.* 29:841-853.
- de Wit CA. 2002. An overview of brominated flame retardants in the environment. *Chemosphere* 46:583-624.
- Du HY, L Zhu, Z Chen, Y Li and ZH Duan. 2008. The progress of study on the toxicological effects of deca-brominated diphenyl ether. *J. Toxicol.* 22:50-52.
- Feng M, RJ Qu, C Wang, L Wang and Z Wang. 2013. Comparative antioxidant status in freshwater fish *Carassius auratus* exposed to six current-use brominated flame retardants: A combined experimental and theoretical study. *Aquat. Toxicol.* 140-141:314-323.
- Hardy ML. 2002. The toxicology of the three commercial polybrominated diphenyl oxide (ether) flame retardants. *Chemosphere* 46:757-777.
- Hardy ML, R Schroeder, J Biesemeier and O Manor. 2002. Prenatal oral (gavage) developmental toxicity study of decabromodiphenyl oxide in rats. *Int. J. Toxicol.* 21:83-91.
- Hardy ML, M Banasik and T Stedeford. 2009. Toxicology and human health assessment of decabromodiphenyl ether. *Crit. Rev. Toxicol.* 39:1-44.
- Hassanin A, K Breivik, SN Meijer, E Steinnes, GO Thomas and KC Jones. 2004. PBDEs in European background soils: levels and factors controlling their distribution. *Environ. Sci. Technol.* 38:738-745.
- Hong SH, UH Yim, WJ Shim, DH Li and JR Oh. 2006. Nationwide monitoring of polychlorinated biphenyls and organochlorine pesticides in sediments from coastal environment of Korea. *Chemosphere* 64:1479-1488.
- Hwang UK, HM Ryu, JW Lee, SM Lee and HS Kang. 2014. Toxic effects of heavy metal (Cd, Cu, Zn) on population growth rate of the marine diatom (*Skeletonema costatum*). *Korean J. Environ. Biol.* 32:243-249.
- ISO. 1995. ISO 10253: Water quality-marine algal growth inhibition test with *Skeletonema costatum* and *Phaeodactylum tricornutum*. The International Organization for Standardization. p. 7.

- Bezares-Cruz J, CT Jafvert and I Hua. 2004. Solar photodecomposition of decabromodiphenyl ether: Products and quantum yield. *Environ. Sci. Technol.* 38:4149–4156.
- Lebeuf M, CM Couillard, B L egar e and S Trottier. 2006. Effects of De-BDE and PCB-126 on hepatic concentrations of PBDEs and methoxy-PBDEs in Atlantic tomcod. *Environ. Sci. Technol.* 40:3211–3216.
- Lema SC, I Schultz, N Scholz, J Incardona and P Swanson. 2007. Neural defects and cardiac arrhythmia in fish larvae following embryonic exposure to 2,2',4,4'-tetrabromodiphenyl ether (PBDE-47). *Aquat. Toxicol.* 82:296–307.
- Martin M, PK Lam and BJ Richardson. 2004. An Asian quandary: where have all of the PBDEs gone? *Mar. Pollut. Bull.* 49:375–382.
- McDonald TA. 2002. A perspective on the potential health risks of PBDEs. *Chemosphere* 46:745–755.
- Okumura Y, J Koyama, H Takaku and H Satoh. 2001. Influence of organic solvents on the growth of marine microalgae. *Arch. Environ. Contam. Toxicol.* 41:123–128.
- Rahman F, KH Langford, MD Scrimshaw and JN Lester. 2001. Polybrominated diphenyl ether (PBDE) flame retardants. *Sci. Total Environ.* 275:1–17.
- Stapleton HM, RJ Letcher, J Li and JE Baker. 2009. Dietary accumulation and metabolism of polybrominated diphenyl ethers by juvenile carp (*Cyprinus carpio*). *Environ. Toxicol. Chem.* 23:1939–1946.
- Usenko CY, EM Robinson, S Usenko, BW Brooks and ED Bruce. 2011. PBDE developmental effects on embryonic zebrafish. *Environ. Toxicol. Chem.* 30:1865–1872.
- Vigan o L, C Roscioli and L Guzzella. 2011. Decabromodiphenyl ether (BDE-209) enters the food web of the River Po and is metabolically debrominated in resident cyprinid fishes. *Sci. Total Environ.* 409:4966–4972.
- We SU, CH Yoon and BY Min. 2010. Spatial distribution and residual consistency assessment of PBDEs in the surface sediment of the Masan Bay. *Environ. Eng. Res.* 32:427–436.
- Zegers BN, WE Lewis, B Kees, RH Smittenberg, W Boer, JD Boer and JP Boon. 2003. Levels of polybrominated diphenyl ether flame retardants in sediment cores from western Europe. *Environ. Sci. Technol.* 37:3803–3807.

Received: 20 July 2018

Revised: 2 August 2018

Revision accepted: 3 August 2018