

폐기물 배출해역 퇴적물의 생물학적 독성평가 연구

석형주* · 김영윤**† · 김태원** · 황철희** · 손민호*** · 최기영**** · 김창준****

*, ** 해양생태기술연구소 책임연구원, *** 해양생태기술연구소 대표이사, **** 한국해양과학기술원 선임연구원

Biological Toxicity Assessment of Sediment
at an Ocean Dumping Site in KoreaHyeong Ju Seok* · Young Ryun Kim**† · Tae Won Kim** · Choul-Hee Hwang** · Min Ho Son*** ·
Ki-young Choi**** · Chang-joon Kim****

*, ** Principal research scientist, Marine Eco-Technology Institute, Busan 48520, Korea

*** CEO, Marine Eco-Technology Institute, Busan 48520, Korea

**** Senior Research Scientist, Korea Institute of Ocean Science and Technology, Busan 49111, Korea

요 약 : 본 연구에서는 폐기물 배출해역의 퇴적물이 해양생물에 미치는 영향을 평가하기 위해 2016-2019년 3개 배출해역; 동해병, 서해병, 동해정 해역의 9개 정점에서 채취한 퇴적물 시료들을 대상으로 국내 해양폐기물공정시험기준에 의거하여 저서성단각류(*Monocorophium acherusicum*)와 발광박테리아(*Vibrio fischeri*)를 이용한 독성시험을 수행하였다. 시험결과, 상대평균생존율(저서성단각류)과 상대발광저해율(발광박테리아)이 각각 30% 이하로서 '독성없음'으로 판정되었으나, t검정을 이용한 독성 평가 결과에서는 총 12개(2016년 6개, 2017년 1개, 2018년 1개, 2019년 4개)의 저서성단각류 시료에서 대조구와 유의한 차이를 나타내었다($p < 0.05$). 저서성단각류의 독성원인 탐색을 위해 퇴적물 내 8종 중금속 함량(Cr, As, Ni, Cd, Cu, Pb, Zn, Hg)과 저서성단각류 상대평균생존율의 단순선형회귀분석을 수행한 결과, Cr의 저서성단각류 독성 기여도가 가장 높았다($p = 0.000$, $R^2 = 0.355$). 또한, 매년 독성영향이 가장 높은 정점(DB-85)의 시료에서 Cr이 여전히 가장 높은 농도로 검출되었으며, 해양환경기준을 매년 초과하였다. 해양폐기물공정시험기준의 생태독성판정 기준 적용 시 '독성없음'으로 평가되는 퇴적물 오염도가 대조구와의 통계적 유의성 검정, 독성원인확인 평가를 적용할 경우 독성영향을 수용 가능한 수준으로 판단하기 어려우므로 향후 중민감도분포곡선을 활용한 정량적 위해성 평가를 통한 준거치를 도출하여 생태독성 영향 판단 기준의 재설정 필요성이 있다.

핵심용어 : 폐기물 배출해역, 퇴적물 생태독성 평가, 저서성단각류, 발광박테리아, 독성원인확인 평가

Abstract : The effect of sediments in a waste dumping area on marine organisms was evaluated using sediment toxicity tests with a benthic amphipod (*Monocorophium acherusicum*) and bioluminescent bacterium (*Vibrio fischeri*) in accordance with the Korean Standard Method for Marine Wastes (KSMMW). Nine sites in the East Sea-Byeong, East Sea-Jeong, and Yellow Sea-Byeong areas were sampled from 2016 to 2019. The test results showed that the relative average survival rate (benthic amphipods) and relative luminescence inhibition rate (luminescent bacteria) were below 30%, which were judged to be "non-toxic." However, in the t-test, a total of 12 benthic amphipod samples (6, 1, 1, and 4 in 2016, 2017, 2018, and 2019, respectively) were significantly different ($p < 0.05$) from the control samples. To identify the source of toxicity on benthic amphipods, a simple linear regression analysis was performed between the levels of eight heavy metals (Cr, As, Ni, Cd, Cu, Pb, Zn, and Hg) in sediments and the relative average survival rate. The results indicated that Cr had the highest contribution to the toxicity of benthic amphipods ($p = 0.000$, $R^2 = 0.355$). In addition, Cr was detected at the highest concentration at the DB-85 station and exceeded the Marine Environment Standards every year. Although the sediments were determined as "not toxic" according to the ecotoxicity criteria of the KSMMW, the results of the statistical significance tests and toxicity identification evaluation indicated that the toxic effect was not acceptable. Therefore, revising the criteria for determining the toxic effect by deriving a reference value through quantitative risk assessment using species sensitivity distribution curves is necessary in the future.

Key Words : Ocean Dumping Site, Sediment Ecotoxicity, *Monocorophium acherusicum*, *Vibrio fischeri*, Toxicity Identification Evaluation

* First Author : hjseok@marine-eco.co.kr, 051-611-4275† Corresponding Author : yykim@marine-eco.co.kr, 051-611-0961

1. 서론

해양은 세계 대부분의 국가들이 공유하는 열린공간이며 해양오염 문제는 특정 국가만의 문제가 아닌 국제적인 관심과 대책을 요구하는 문제로 인식될 필요가 있다(MOF, 2015). 우리나라는 급속한 산업 발달과 인구의 도시집중화에 따라 발생된 많은 양의 폐기물을 해양으로 배출해왔으며 이로 인한 배출해역의 저서환경 오염 및 생물 피해가 확인됨에 따라 2016년 이후 일부 항목을 제외하고 해양배출을 전면 금지하고 있다(MOF, 2016; 2020).

과거에는 육상의 폐기물 처리기술 및 관련 제도의 부재로 해양이 부득이하게 최종 처분장소로 이용되었으나 투기물질에 포함된 각종 유해물질의 위해성과 지정 투기해역이 일본과 중국의 공동어로수역에 속해 있다는 지리적 특성 때문에 국제적 마찰 완화 방안도 강구되어야 했다. 이에, 우리나라는 1993년 12월 21일 “72 런던협약”에 가입하였으며, 폐기물 해양배출로 발생하는 문제 해결과 해양환경 보전을 위해 2006년 “육상폐기물 해양투기관리 종합 대책”을 수립·시행하였고, 매년 해양배출량을 단계적으로 감축해왔다. 이후 해양환경관리법 시행규칙이 2011년 12월 29일 개정·시행됨에 따라 2012년부터 하수처리오니와 가축분뇨, 2013년부터는 음식물류, 폐기물, 폐수에 대한 해양배출도 전면 금지되었다. 특히, 2014년부터는 육상처리 불가함의 증명 없이는 해양배출이 금지되는 해양배출 정책이 도입되었으며, 2016년 1월부터는 준설토, 수산가공잔재물, 원료동식물폐기물을 제외한 하수·폐수오니, 음식물폐기물 등의 모든 종류의 폐기물배출이 금지되었다(MOF, 2015; 2016).

또한, 배출해역 복원, 국제협약의 준수, 합리적이고 과학적인 폐기물 배출해역 관리를 위하여 매년 각 배출해역을 대상으로 물리·화학·생물학적 영향조사를 수행하도록 제도화하였으며, 저서생물에 미치는 퇴적물 독성영향 조사도 포함되어 있다. 해양 퇴적물의 저서생물 독성영향 평가에는 국내외로 저서성단각류(*Monocorophium acherusicum*) 및 발광박테리아(*Vibrio fischeri*)가 대표적으로 활용되고 있다. 저서성단각류는 시험생물 공급, 배양, 유지 및 시험수행 등의 편의성이 높고, 다양한 유해물질 및 오염퇴적물에 대한 민감도 또한 높은 것으로 알려져 있다(ASTM, 1999; Cho et al., 2004; ISO, 2007; Lee and Lee, 2005; Park et al., 2008; Prato et al., 2008; USEPA, 1994). 발광박테리아는 1965년 국외에서 처음으로 독성시험에 활용되었고(Serat et al., 1965), 1993년에 Kaiser와 Palabrica가 1,300여개의 화학물질에 대한 독성도를 조사한 결과를 발표한 이후로 경제성과 시험의 신속성 등의 이점이 있어 많은 연구자들에 의

해 현재도 생태독성시험 대표 시험종으로 이용되고 있다(Lee et al., 2014; Martin et al., 1995).

국내 해양환경공정시험기준(2020, 제7조 해양폐기물공정시험기준)에는 해양 퇴적물의 독성영향 평가방법 및 해양배출 폐기물의 배출허용기준이 고시되어 있고, 저서성단각류 상대평균생존율 및 발광박테리아 상대발광저해율이 각각 30% 이하일 경우 ‘독성 없음’으로 판정하도록 규정하고 있다. 일반적으로 오염물질의 배출허용기준은 오염물질의 유해성과 대상 매체로의 오염물질 노출수준을 고려한 위해성 평가를 통해 준거치를 설정한 후 사회, 경제적 영향을 고려하여 설정되며, 이후 해당 기준의 적합성 및 타당성을 주기적으로 평가하여 기준치의 보완, 갱신을 검토할 필요가 있다.

이에, 본 연구에서는 폐기물 배출해역 해저퇴적물을 대상으로 해양폐기물공정시험기준에 근거한 저서성단각류 생존율과 발광박테리아 발광량에 따른 독성영향을 파악하였고, 퇴적물 독성영향의 원인 탐색 및 배출허용기준과의 연관성을 고찰하여, 향후 배출허용기준 개정 검토 및 폐기물 배출해역의 정화·복원 효과평가를 위한 근거자료를 제공하고자 한다.

2. 재료 및 방법

2.1 조사지역 및 조사방법

폐기물 배출해역 퇴적물의 해양생물 독성영향을 평가하기 위하여 2016년~2019년 동해병, 서해병, 동해정 해역에서 퇴적물을 채취하였다. 시계열 변화 관찰을 위해 3개 배출해역에서 4년간 연속적으로 조사된 9개 정점 자료를 선별하였으며, 대조 구역(DJ-9)과 인위적인 정화·복원을 위해 준설토를 피복한 피복 구역(DB-17, DJ-13, DJ-14), 폐기물 집중배출로 오염이 심화되어 2006년 이후 해양배출이 금지된 휴식년 구역(DB-28, DB-92, DB-85, YB-53, YB-8)으로 구성되어 있다(MOF, 2019)(Fig. 1). 시험에 사용된 퇴적물은 상자형 채니기(Box corer, 0.08 m²)를 이용하여 채취하였다(약 3 kg). 채취된 퇴적물은 즉시 밀봉한 후 냉동하여 암조건에서 보관하였으며, 시험실로 운반 후 동결 보관하였고 시험 시 해동 후 이용하였다.

2.2 시료 전처리 및 시험생물

시료 전처리는 시험생물에 따라 다르게 적용하였다. 발광박테리아 시험의 경우, 시료를 여과해수와 1:10(W:V) 비율로 혼합하여 6시간 연속 진탕한 후, 상등액만 분취하여 GF/F filter (0.7 μm, Whatman™, Germany)로 여과 후 고속원심

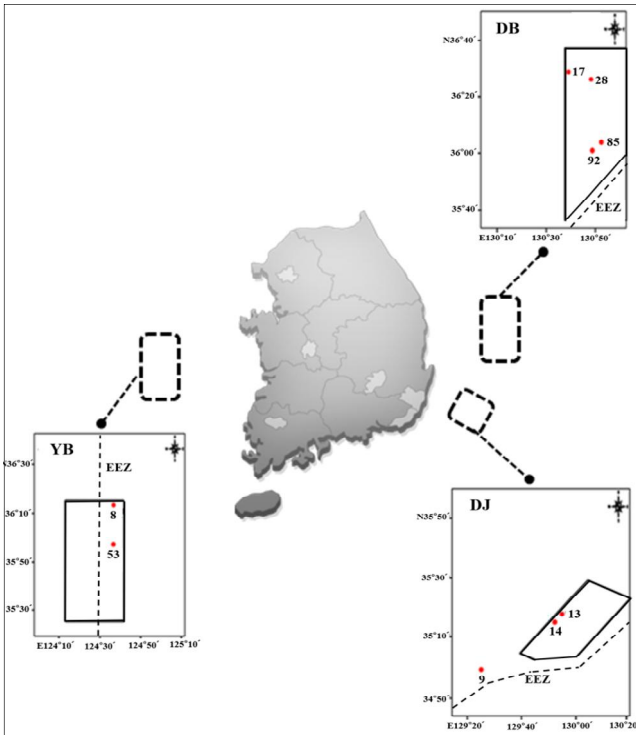


Fig. 1. Sediment sampling stations in the ocean dumping sites, Korea. The abbreviations for DB, DJ and YB indicate the East Sea-Byeong, East Sea-Jeong and Yellow Sea-Byeong site, respectively.

분리(Hanil, Smart R17, 9,000 rpm, 4 °C, 15분)하여 상등액을 시험에 이용하였다.

저서성단각류 시험의 경우, 채취한 시료를 300 µm 표준체에 통과시켜 굵은입자와 내서생물을 제거하여 통과시킨 시료 1 L에 5 L의 여과해수(1 µm membrane filter, Chisso Filter, Japan)를 혼합한 뒤 24시간 동안 폭기 후 Ammonia Photometer(Hanna Instruments, HI96715, Italy)를 사용하여 암모니아 농도가 1 mM 이하임을 확인하였다.

독성시험종은 해양환경공정시험기준(2020)에 등재된 저서성단각류와 발광박테리아를 이용하였다. 저서성단각류 시험에 이용된 *M. acherusicum*은 국내 시화호, 온산만, 태안 퇴적물의 독성평가, 준설물, 해양배출물질, 방오도로, 선박 평형수, 슬래그 등 다양한 시료에 활용된 바 있다. 발광박테리아 시험에 이용된 *V. fischeri*는 수계 최상위 분해자로 세계적으로 독성시험에 널리 이용되고 있다. 시험 수행 전 표준독성물질인 CdCl₂ (저서성단각류)와 ZnSO₄ (발광박테리아)를 사용하여 시험생물의 민감도가 적합함을 확인하였다 (Table 1).

2.3 발광박테리아 독성시험

발광박테리아를 이용한 폐기물 배출해역 퇴적물 독성시험은 “해양환경공정시험기준 제 21항(2020)”에 따라 수행하였다. 시험 시작 30분 전, 동결건조된 발광박테리아를 재활성 시약에 첨가하여 N-tox(Neoenbiz, Kora) 기기 내에서 재활성 하였다. 모든 대조구 및 시험구는 지수식으로 4개의 반복구를 두었으며, 96 well plate의 각 well에 25 µL씩 재활성된 발광박테리아를 접종한 후 접종 직후의 발광량과 30분 후의 발광량을 측정하였다.

시험용액의 pH 및 염분 농도는 pH·DO meter(Thermo Fisher Scientific, STAR A216, USA) 및 다항목수질측정기(TOA-DKK, WQC-22A, Japan)를 이용하여 측정하였다.

2.4 저서성단각류 독성시험

저서성단각류를 이용한 폐기물 배출해역 퇴적물 독성시험은 “해양환경공정시험기준 제 22항(2020)”에 따라 수행하였다. 모든 대조구 및 시험구는 지수식으로 4개의 반복구를 두었으며, 1,000 mL 유리비이커에 175 mL 퇴적물(시료)과 800 mL 여과해수를 분주하여 300~500 µm 크기의 저서성단각류 20 개체를 투입하였다. 시험온도와 조도는 각각 20±1 °C, 500~1,000 lux로 24시간 연속조명하에서 용존산소 포화도가 80% 이상으로 유지되도록 폭기하였다. 시험 시작 10일 후에 사망 개체를 확인하여 기록하였다. 생존개체가 퇴적물 안으로 재잠입하지 못하거나 10초 이상 움직임이 없는 개체는 사망한 것으로 간주하였다.

시험용액의 수온, pH, DO, 염분농도 및 암모니아는 다항목수질측정기(TOA-DKK, WQC-22A, Japan) 및 Ammonia Photometer(Hanna Instruments, HI96715, Italy)를 이용하여 측정하였다.

2.5 퇴적물 중금속 분석

퇴적물 내 중금속함량을 분석하기 위하여 동결건조된 시료를 분쇄기로 균일하게 간 후 건조기에서 105 °C로 24시간 건조시키고 시료 약 20 mg을 테프론 용기에 혼합산1(질산: 과염소산=6:1) 3.5 ml과 혼합산2(질산: 불산=3:2) 5 ml을 순차로 이용하여 완전분해한 후 ICP-MS(iCAP-Q, Thermo Scientific Co., USA)로 측정하였다. 수은은 퇴적물 시료 약 20 mg을 이용하여 아말감 가열기화 방식인 자동수은분석기(Hydra-C, Teledyne Leeman Labs., USA)를 이용하여 분석하였다.

분석결과의 정확도 검증을 위해 중금속은 미국 국립기술 표준원(NIST)의 SRM 2702(n=24)를 시료 전처리 과정에 함께 처리하여 회수율을 검증하였고, 수은은 캐나다 국립연구소(NRC-CNRC)의 표준물질인 MESS-3(n=28)를 이용하여 회수율을 측정하였다. 검증결과 회수율은 94~104% 범위를

Table 1. Validation criteria of the test and result of the reference toxicant test in this study

Test organism	End point	Reference toxicant test			Validation of criteria
		Test substance	Recommend range (mg/L)	Result L(E)C ₅₀ (mg/L)	
<i>Monocorophium acherusicum</i>	Survival	Cadmium chloride	0.6~2.2	0.9~1.6	Survival of all organisms in the control: ≥ 90 %
<i>Vibrio fischeri</i>	Bioluminescent	Zinc sulfate heptahydrate	1~10	4.2~6.7	Bioluminescent ratio in the control: 0.6~1.8

나타내었다(Cr: 96 %, Ni: 94 %, Cu: 97 %, Zn: 96 %, As: 100 %, Cd: 104 %, Pb: 95 %, Hg: 101 %).

2.6 독성판단 기준 및 통계분석

해양환경공정시험기준(해양폐기물편, 2020)에서 제시하고 있는 독성 판정기준에 따라 상대평균생존율(저서성단각류) 및 상대발광저해율(발광박테리아)이 각각 30 % 이하일 경우 “독성없음”으로 판단하였다.

(가) 상대평균생존율(%) =

$$\text{대조구의 평균생존율(%) - 시료의 평균생존율(%)}$$

(나) 상대발광저해율(%) =

$$\frac{\text{대조구의 평균발광량 - 시료의 평균발광량}}{\text{대조구의 평균발광량}} \times 100$$

해양환경공정시험기준의 독성판정 기준에 따른 결과와 시험군(대조구, 시험구) 간의 평균 검정을 통한 결과 차이를 비교하기 위해 t검정(TOXCALC 5.0, Tidepool Scientific Software, U.S.)을 적용하였고 정규성 검정(Shapiro Wilk's test), 분산의 동질성 평가(F-test) 후 유의수준 5 %에서 분석하였다. 독성영향의 요인을 분석을 위해 단순선형회귀분석(SPSS for windows, ver. 17.0)을 수행하였으며 유의수준 1, 5 %에서 분석하였다.

3. 결 과

3.1 발광박테리아 독성시험

발광박테리아의 상대발광저해율(%)은 2016년 -21.9~0.3 %, 2017년 -9.6~0.5 %, 2018년 -19.0~1.5 %, 2019년 -4.60~0.6 %로서, 전체기간 -21.9~1.5 %의 범위를 나타냈다. 2018년 DB-85 정점에서 최대값(1.5 %), 2016년 DB-92 정점에서 최소값 (-21.9 %)을 보였고, 2016년 DJ-14, 2017년 DJ-13, 2018년 DB-85, 2019년 DB-17 정점을 제외한 모든 시료에서 대조구보다 높은 평균발광량을 나타내었다. 해역별로는 동해병

-21.9~1.5 %(평균 -8.4 %), 서해병 -18.9~-1.8 (평균 -8.0 %), 동해정 -19~0.5 %(평균 -7.6 %)로서, 해역별 유의한 차이는 없었다($p > 0.05$)(Fig 2). 모든 정점의 시료에서 상대발광저해율이 30 % 이하로 ‘해양폐기물공정시험기준’에 의거하여 “독성없음”으로 평가되었고, t검정에서도 대조구와 유의한 차이를 나타내는 시료는 없었다($p > 0.05$).

3.2 저서성단각류 독성시험

저서성단각류의 상대평균생존율(%)은 2016년 2.5~25 %, 2017년 -1.2~10.0 %, 2018년 1.2~10.0 %, 2019년 3.8~12.5 %로서 전체기간 -1.2~25 % 범위를 나타냈다. 최대값은 2016년 DB-85에서 25 %였고, 최소값은 2017년 DJ-9 정점에서 -1.2 %로 나타났다. 2017년 DJ-9 정점을 제외한 모든 시료에서 대조구보다 낮은 평균생존율을 보였다. 해역별로는 동해병에서 2.5~25.0 %(평균 8.0 %), 서해병 0.0~7.5 %(평균 4.0 %), 동해정 -1.2~12.5 %(평균 6.5 %)로서 동해병 해역의 시료에서 다른 두 해역 시료와 유의한 차이를 보였다($p < 0.05$)(Fig 3).

상대평균생존율 또한 모든 시료에서 30 % 이하로 ‘해양폐기물공정시험기준’에 따라 “독성없음”으로 평가되었으나, t검정 결과 2016년 6개 정점(DB-85, DB-92, YB-8, DJ-9, DJ-13, DJ-14), 2017~2018년 각각 1개 정점(DB-85), 2019년 4개 정점(DB-85, YB-53, DJ-13, DJ-14)에서 대조구와 유의한 차이가 있었으며($p < 0.05$), DB-85는 매년 가장 높은 독성영향을 나타내었다.

3.3 퇴적물 중금속 분석

2016~2019년 동해병, 서해병, 동해정 퇴적물 시료의 중금속 8종(Cr, As, Ni, Cd, Cu, Pb, Zn, Hg) 함량을 해저퇴적물의 해양환경기준(고시 제2018-10호)과 비교하였다. 관리기준(PEL)을 초과한 시료는 2016~2019년 DB-85(Cr) 정점, 2018년 DB-85와 2019년 DB-92(Zn) 정점이었다. 또한, 주의기준(TEL)을 초과한 시료는 DB-28(As, Cu, Zn, Pb, Hg), DB-17(Cu), DB-85(Cr, Cu, Zn, As, Cd, Pb, Hg), DB-92(Cr, Cu, Zn, As, Cd, Pb, Hg), YB-53(Cu, Zn), DJ-14(Cu, Zn) 정점으로, 동해병해역

폐기물 배출해역 퇴적물의 생물학적 독성평가 연구

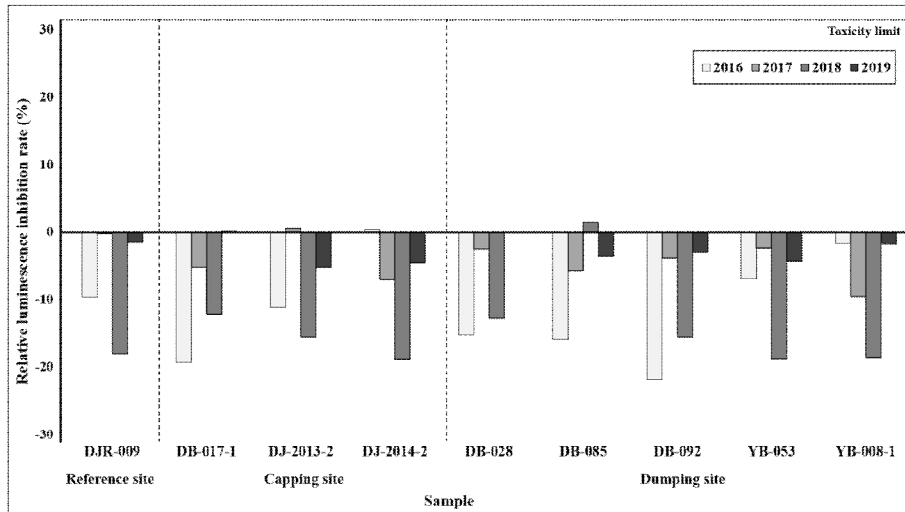


Fig. 2. Results of toxic effect determination on the bioluminescent bacteria. Dashed line indicates the toxicity limit of relative luminescence inhibition rate (%) by law and there is no significant differences between control and samples (t-test, 1-tail, $p > 0.05$).

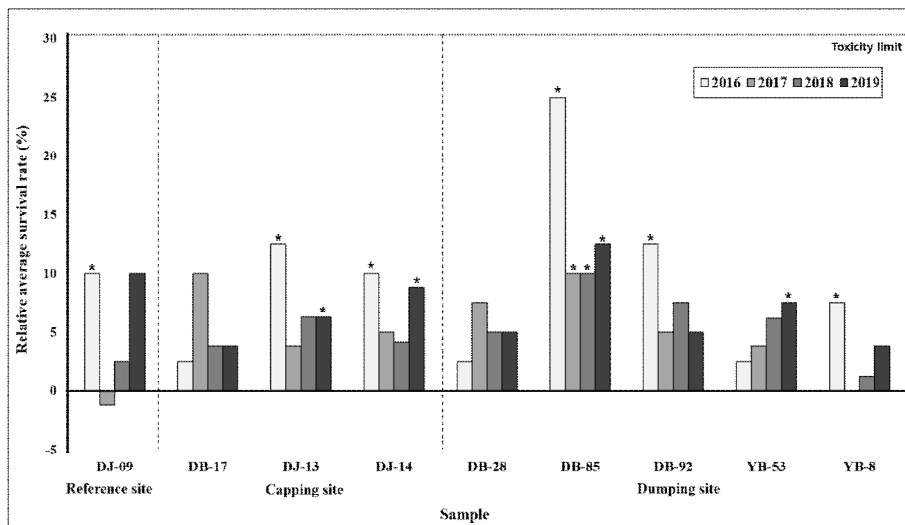


Fig. 3. Results of toxic effect determination on the benthic amphipod. Dashed line indicates the toxicity limit of relative average survival rate (%) by law and the asterisk (*) means statistically significant differences between control and samples (t-test, 1-tail, $p < 0.05$).

퇴적물의 오염도가 상대적으로 높았다(Fig. 4). 특히, 2016년 DB-85 정점의 Cr은 관리기준(PEL, 181 mg/kg)을 초과한 449.6 mg/kg이 검출되었다(Fig. 4).

3.4 단순선형회귀분석

저서성단각류 독성영향의 원인 탐색을 위해 적용한 단순 선형회귀분석의 회귀식은 $y^0 = aX + b$ 로서 y^0 는 종속변수인

상대평균생존율, X는 독립변수인 중금속 농도로 나타내었다. Cr, Cu, As의 농도에 따라 상대평균생존율을 추정하는데 유의한 결과를 나타내었고(Fig. 5) Cr과 상대평균생존율의 상관관계가 가장 높았으며 Cr의 주의기준 초과 시료를 대상으로 회귀분석을 수행하면, 상대적으로 높은 상관관계와 통계적으로 유의미한 저서성단각류 독성영향을 나타내었다($n = 5$, $R^2 = 0.5349$, $p = 0.000$).

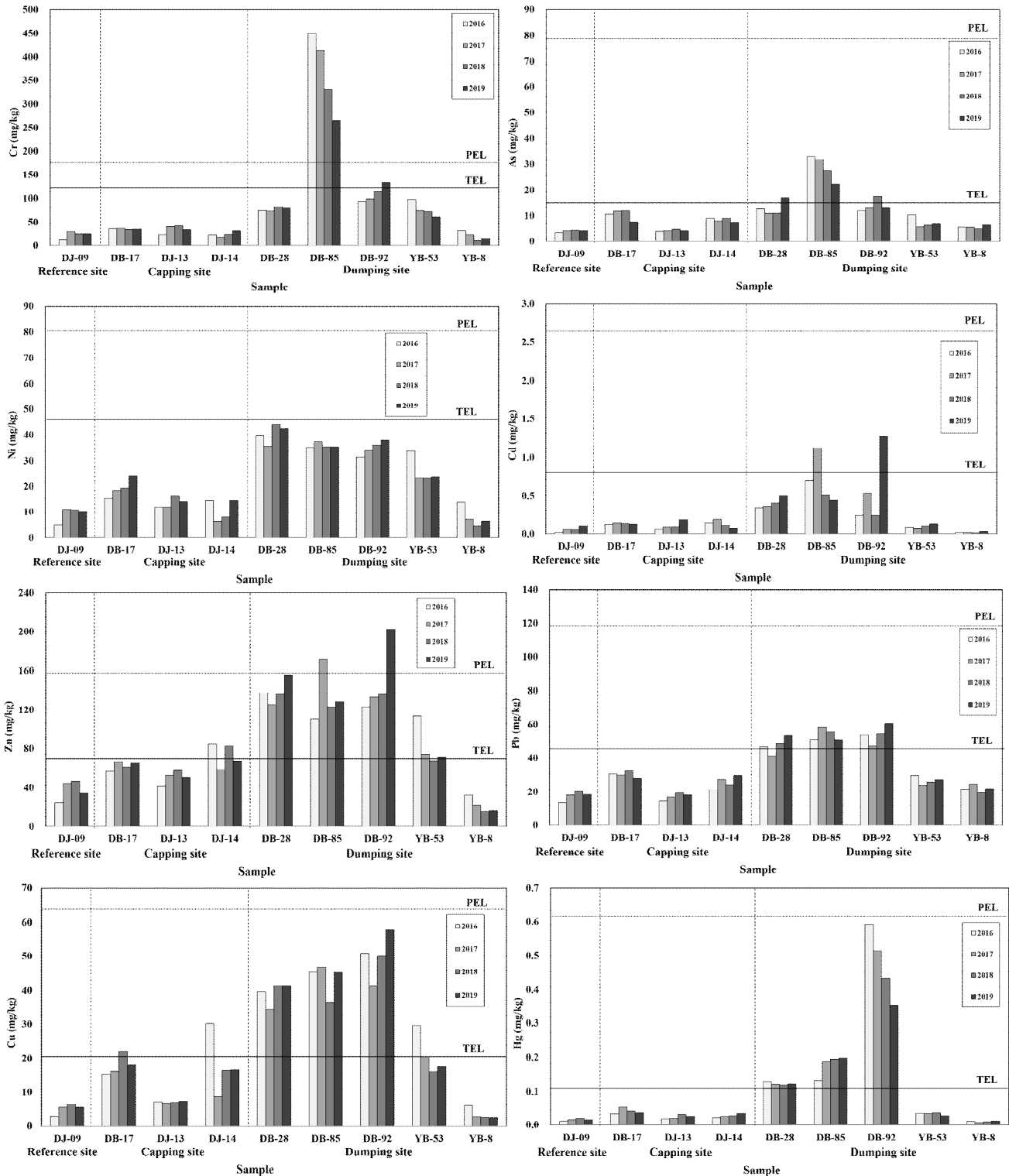


Fig. 4. The concentration of heavy metals (Cr, As, Ni, Cd, Cu, Pb, Zn and Hg) in sediment (2016–2019). The bold and dashed lines indicate threshold effects level and probable effect level, respectively.

폐기물 배출해역 퇴적물의 생물학적 독성평가 연구

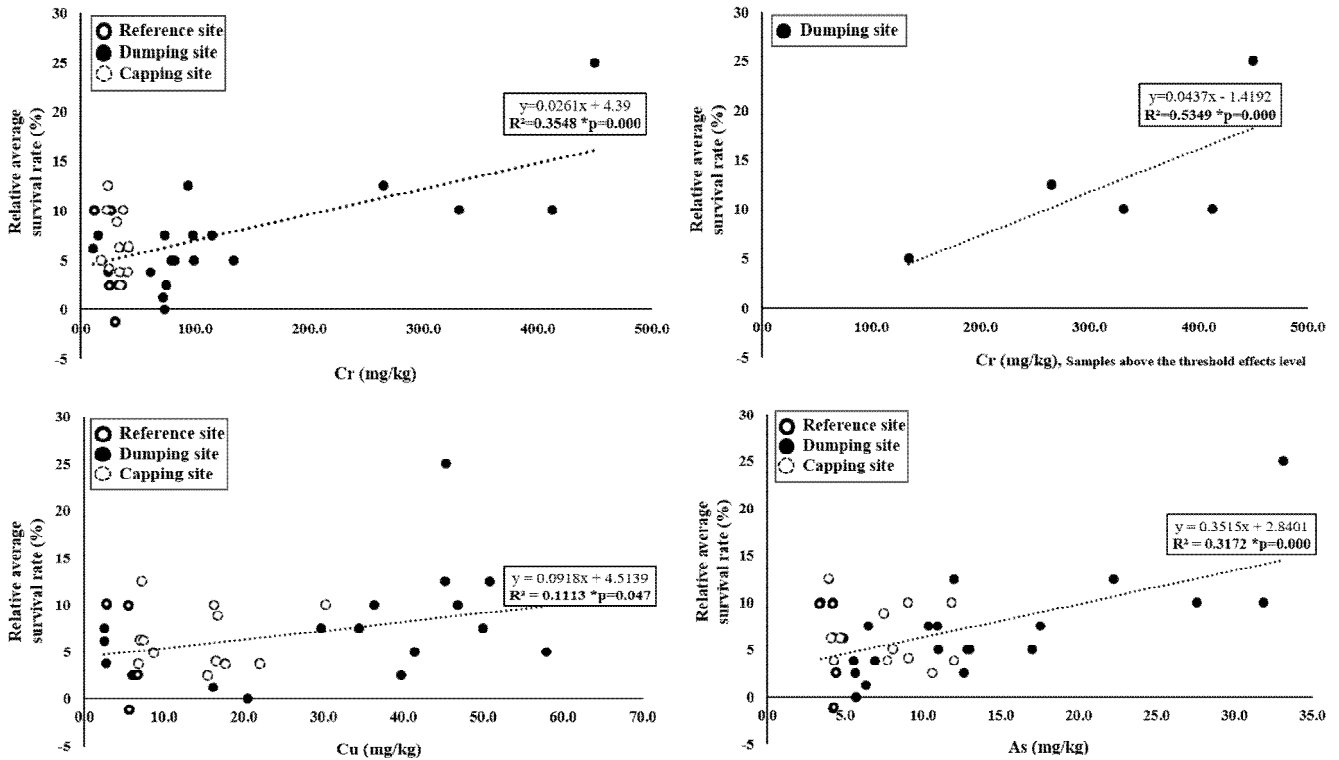


Fig. 5. The linear regression equation between relative average survival rate of *Monocorophium acherusicum* and the concentration of heavy metal samples (2016~2019) and the asterisk (*) means statistical significance of the regression coefficient.

4. 고 찰

동해병, 서해병 및 동해정 해역의 준설토 피복지역, 자연적 회복지역(휴식년지역), 대조지역 표층퇴적물을 대상으로 해양에 서식하며 분류학적으로 서로 다른 생물군에 속하는 두 종의 생물, 저서성단각류(*M. acherusicum*)와 발광박테리아(*V. fischeri*)에 미치는 독성영향을 t-test를 통해 평가한 결과 발광박테리아 독성시험에서는 대조구와 유의한 차이가 없었지만, 저서성단각류의 독성시험에서는 총 12개의 시료에서 대조구와 유의한 차이를 나타내었다. Kang et al.(2011)은 도축, 식품, 분뇨, 하수 및 축분 등의 시료에 대한 *V. fischeri*와 *M. acherusicum*의 비교독성시험 결과, *V. fischeri* 보다 *M. acherusicum*의 독성이 높게 나타난다고 보고한 바 있고, 시험생물의 중금속 민감도에 대한 선행연구에서도 *M. acherusicum*의 4일간 급성독성시험 LC50이 0.7 mg/L(Cd), 0.25 mg/L(Cu), 0.026 mg/L(Hg)이고, *V. fischeri*의 30분 발광저해시험 EC50이 22 mg/L(Cd), 36.0 mg/L(Cu), 0.8 mg/L(Hg)로 나타나 *M. acherusicum*의 민감도가 더 높은 것으로 보고한 바 있다(Cho et al., 2004; Lee et al., 2004; Lee et al., 2008). 발광박테리아 독성시험 결과 대조구보다 시험구에서 더 높은 발광량을 나타내었는데, Jarque et al.(2016)의 연구에 의하면 퇴적물 용출시 입자결합

독성물질의 부재와 비극성 화합물의 불충분한 추출로 인하여 총퇴적물의 독성이 가려질 수 있으며, 용출액 속 다량의 유기물, 이온화된 원소, 영양염 등이 용출되어 시험구의 발광량을 높이는데 영향을 미친 것으로 추정된다(Kuwahar et al., 2018). 동해병·정 및 서해병 폐기물 배출해역에 투기된 물질 중에도 분뇨, 하폐수슬러지, 수산화알루미늄 가공잔재물(적토) 등이 전체 배출량에 있어 많은 비율을 차지하고 있었고, 이 물질들 내에 함유된 중금속 및 기타 유해물질들로 인해 본 연구에서도 *M. acherusicum*에서 민감한 반응을 보인 것으로 판단된다.

저서성단각류에서 나타난 독성영향의 원인 탐색을 위해 퇴적물 내 중금속 함량(Cr, As, Ni, Cu, Zn, Cd, Pb, Hg)과 비교분석 해 본 결과, 동해병 시료에서 다른 해역 시료에 비해 해양환경기준을 초과하는 중금속 항목이 많았으며 DB-85 정점의 Cr은 매년 관리기준(PEL: probable effect levels)을 초과하였고, Ni을 제외한 대부분의 중금속이 주의기준(TEL: threshold effect levels)을 초과하였다. 주의기준과 관리기준 사이의 농도는 부정적인 생태영향이 발생할 가능성이 있는 범위, 관리기준 이상의 농도는 부정적인 생태영향이 발생할 개연성이 매우 높은 범위를 나타낸다(Ra et al., 2013). 동해병 DB-85, DB-92 정점은 폐기물 집중 배출로

오염이 심화되어 해양배출이 금지(휴식년시행)된 해역이며, DB-85는 과거 크롬 등의 중금속 함량이 높은 수산화알루미늄 가공잔재물(적토)이 집중 투기된 지역으로 현재는 복원 우선구역으로 지정되어 관리되고 있다(MOF, 2019). 반면 인위적인 정화·복원을 위해 준설토를 피복한 DB-17 정점의 경우 피복 전인 2009년과 비교하면 모든 중금속 항목이 해양환경기준 이하로 감소하였으며, 자연적 회복을 유도하는 다른 동해병 정점들에 비해 낮은 수준의 농도를 나타내고 있어 피복으로 인한 오염차단 효과가 있는 것으로 판단된다(MOF, 2019). 중금속 항목들과 저서성단각류 독성영향의 회귀분석 결과 $Cr(R^2 = 0.355, p = 0.000)$ 에서 가장 큰 기여도가 나타났고, Cr 주의기준을 초과한 시료만을 대상으로 분석한 결과에서는 53%의 높은 설명력을 나타내었다($n = 5, R^2 = 0.534, p = 0.000$). 열새우과에 속하는 *Gammarus* sp.의 1일 생존시험 및 무척추동물인 *Lecane quadridentata*의 2일 생존시험 자료에서도 LC50이 각 6, 5 mg/L로 Cr에 대한 높은 민감도가 보고된 바 있고(Perez and Martinez, 2001; Rehwoldt et al., 1973), 퇴적물 및 수중에 포함된 Cr이 다모류의 생식력에 영향을 미치는 것으로도 알려져 있다(Lee and Park, 2016; Oshida et al., 1981). 또한, Cd의 경우 0.3 mg/L 이상, Cu의 경우 0.1 mg/L 이상만으로도 *M. acherusicum*의 생존에 부정적 영향을 미칠 수 있는 것으로 나타났다(Lee et al., 2005).

U.S. EPA의 폐수 및 배출수에 대한 독성원인확인평가(TIE, Toxicity Identification Evaluation) 단계 중 최종 3단계(TIE 3)인 독성 원인확증 단계에서는 독성원인물질 탐색(TIE 1, 2)과정에서 판단한 독성원인 의심물질을 모두 제거하고, 단일 의심물질을 재첨가하여 독성시험을 반복 수행 후, 독성결과와 의심물질 농도 간의 연관성을 분석하도록 권고하고 있다(Mount, 1988; Mount, 1989; Norberg et al., 1991). 하지만, 담수 및 해수의 경우 중금속을 EDTA 혹은 이온수지교환을 통하여 대체로 제거가 가능하지만, 퇴적물의 경우에는 중금속의 완전한 제거 및 첨가가 불가능하다(Lee et al., 2016; You et al., 2015; Choe et al., 2003). 본 연구에서는 EPA 지침처럼 독성원인확증 시험을 통해 Cr이 독성원인물질이라는 명확한 근거를 입증하지는 못하였으나, 국내외 관리기준을 크게 상회하는 Cr의 노출수준을 고려할 때, DB-85 정점의 경우 Cr의 높은 함량이 *M. acherusicum*의 독성영향 원인 중 하나로 작용했을 것으로 추정된다. 한편, 원인추정을 위해 적용한 단순선형회귀분석에서 오염도가 서로 다른 해역의 표본들을 모두 포함하여 분석함으로써 결정계수가 상대적으로 낮게 나타나는 것으로 추정되므로 향후 연구에서는 해역별로 구분하여 평가할 수 있도록 모니터링을 통한 표본의 추가 확보가 필요하다. 또한, 중금속 외에 입도, 유기물질, 유기화합물질 함량의 영향도 추가하

여 독성원인을 추정해 볼 필요가 있을 것으로 판단된다.

본 연구에서는 해양환경공정시험기준(해양폐기물편, 2020)상의 해양폐기물배출기준으로 저서성단각류의 독성을 평가할 경우 ‘독성없음’으로 판정되는 퇴적물 상태가, 대조구와의 통계적 유의성 검증, 중금속 독성 민감도 및 독성원인 추정을 통해 평가할 경우에는 독성영향이 수용 가능한 수준이라고 판단하기 어려운 것으로 나타났다. 따라서, 다양한 노출경로(총 퇴적물, 부유퇴적물, 용출수, 상층수 등), 다양한 서식생물(단각류, 저서성 조류, 이매패류), 노출기간(급·만성)을 고려한 중민감도분포 곡선을 활용하여 정량적 위해성평가를 실시하고 이에 근거한 준거치가 도출되어야 하며 이를 바탕으로 향후 배출허용기준의 개정 검토도 필요할 것으로 생각된다. 또한, 향후 폐기물 배출해역의 정화 및 복원사업 수행 시 사업 효과 평가에 활용할 수 있도록 배출해역 퇴적물의 이화학적 모니터링과 함께 생물학적 독성 모니터링도 지속되어야 할 것으로 판단된다.

사 사

본 연구는 해양수산부 “폐기물 해양배출 종합관리시스템 구축사업(20212200D18-01)”의 일부로 수행되었습니다. 현장 조사에 많은 도움을 주신 해양과학기술원 온누리호 승조원 분들께 감사드립니다.

References

- [1] ASTM(1999), Conducting 10-day static sediment toxicity tests with marine and estuarine amphipods, American Society for Testing and Materials, Philadelphia USA, 1367-99(E), p. 27.
- [2] Cho, J. C., K. J. Park, H. S. Ihm, J. E. Park, S. Y. Kim, I. Kang, K. H. Lee, D. Jahng, D. H. Lee, and S. J. Kim(2004), A novel continuous toxicity test system using a luminously modified freshwater bacterium, Biosens Bioelectron, Vol. 20, No. 1, pp. 338-344.
- [3] Choe, S. H., I. S. Lee, M. S. Byeon, J. H. Park, and K. S. Shin(2003), Bioassay on Aquatic Indicators (*Daphnia magna*, *Vibrio fischeri*) of Wastewater (II), National Institute of Environmental Research, p. 208.
- [4] ISO(2007), Water quality - Determination of the inhibitory effect of water samples on the light emission of *Vibrio fischeri* (Luminescent bacteria test), International Organization for Standardization, 11348-3:2007(E), p. 21.
- [5] Jarque, S., P. Masner, J. Klánová, R. Prokeš, and L. Bláha (2016), Bioluminescent *Vibrio fischeri* assays in the assessment

- of seasonal and spatial patterns in toxicity of contaminated river sediments, *Frontiers in microbiology*, No. 1738.
- [6] Lee, J. S. and K. T. Lee(2005), Delayed Mortality of Benthic Amphipods *Monocorophium acherusicum* Exposed to Various Pollutants in Seawater, *Environmental health and toxicology*, Vol. 20, No. 2, pp. 133-141.
- [7] Lee, J. S., S. M. Lee, and K. S. Park(2008), Development of Sediment Toxicity Test Protocols using Korean Indigenous Marine Benthic Amphipods, *Journal of the Korean Society of Oceanography*, Vol. 13, No. 2, pp. 147-155.
- [8] Lee, J. A. and D. K. Park(2016), Toxic Effects of Metal Plating Wastewater on *Daphnia magna* and *Euglena agilis*, *Korean Journal of Environmental Biology*, Vol. 34, No. 2, pp. 116-123.
- [9] Lee, K. T., J. S. Lee, D. H. Kim, C. K. Kim, K. H. Park, S. G. Kang, and G. S. Park(2005), Influence of temperature on the survival, growth and sensitivity of benthic amphipods, *Mandibulophoxus mai* and *Monocorophium acherusicum*, *Journal of the Korean Society for Marine Environment & Energy*, Vol. 8, No. 1, pp. 9-16.
- [10] Lee, W. M., J. S. Kim, I. H. Kim, S. K. Kim, and Y. H. Yoon(2014), Toxic Interactions of Perfluorinated Compounds (PFCs) with Heavy Metals Using *Vibrio fischeri*, *Journal of Korean Society of Environmental Engineers*, Vol. 36, No. 2, pp. 119-126.
- [11] Martin, N., R. V. Wilhelm, and G. Helmut(1995), Evaluation of the luminescent bacteria bioassay for the estimation of the toxicological potential of effluent water samples comparison with data from chemical analyses, *Environment International*, Vol. 21, No. 1, pp. 33-37.
- [12] MOF(2015), Establishment of a comprehensive management system for marine discharge of waste (XI), Final report, Ministry of oceans and fisheries, p. 752.
- [13] MOF(2016), Establishment of a comprehensive management system for marine discharge of waste (13), Final report, Ministry of oceans and fisheries, p. 668.
- [14] MOF(2019), Establishment of a comprehensive management system for marine discharge of waste (16), Final report, Ministry of oceans and fisheries, p. 432.
- [15] MOF(2020), Korean Standard Method for Marine Environment, Article 7 Korean Standard Method for marine discharge of waste, Ministry of oceans and fisheries, 2020-143, 20200904, p. 102.
- [16] Mount, D. I.(1988), Methods for Aquatic Toxicity Identification Evaluations: Phase III: Toxicity Confirmation Procedures, US Environmental Protection Agency, Vol. 88, No. 2, p. 26.
- [17] Mount, D. I.(1989), Methods for aquatic toxicity identification evaluations: Phase II toxicity identification procedures, US Environmental Protection Agency, Vol. 88, No. 2, p. 31.
- [18] Norberg, T. J., D. Mount, E. Durhan, G. T. Ankley, and L. Burkhard(1991), Methods for aquatic toxicity identification evaluations. Phase I. Toxicity characterization procedures, US Environmental Protection Agency, No. PB-92-100072/XAB, p. 36.
- [19] Oshida, P. S., L. S. Word, and A. J. Mearns(1981), Effects of hexavalent and trivalent chromium on *Neanthes arenaceodentata* (Polychaeta), *Marine Environment Research*, Vol. 5, No. 1, pp. 41-49.
- [20] Park, G. S., S. M. Lee, T. J. Han, and J. S. Lee(2008), Establishment of standard methods for marine ecotoxicological test, *Journal of the Korean Society of Oceanography*, Vol. 13, No. 2, pp. 106-111.
- [21] Prato E., C. Scardicchio, and F. Biandolino(2008), Effects of temperature on the acute toxicity of cadmium to *Corophium insidiosum*, *Environmental monitoring and assessment*, Vol. 136, pp. 161-166.
- [22] Ra, K., J. K. Kim, E. S. Kim, K. T. Kim, J. M. Lee, and E. Y. Kim(2013), Vertical profiles and assessment of trace metals in sediment cores from outer sea of Lake Shihwa, Korea, *Journal of the Korean Society for Marine Environment & Energy*, Vol. 16, No. 2, pp. 71-81.
- [23] Rehwoldt, R., L. Lasko, C. Shaw, and E. Wirhowski(1973), The Acute Toxicity of Some Heavy Metal Ions Toward Benthic Organisms, *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*, Vol. 10, pp. 291-294.
- [24] Serat, W. F., F. E. Budinger, and P. K. Mueller(1965), Evaluation of biological effects of air pollutants by the use of luminescent bacteria, *Journal of bacteriology*, Vol. 90, No. 3, pp. 832-833.
- [25] USEPA(1994), Methods for assessing the toxicity of sediment-associated contaminants with estuarine and marine amphipods, United States Environmental Protection Agency, EPA600/R-94/025, p. 140.

Received : 2021. 10. 29.

Revised : 2021. 11. 30.

Accepted : 2022. 02. 25.