J. ENVIRON. TOXICOL.
Vol. 24, No. 4, 341～350 (2009)

TBTCl의 저질 및 체내 축적에 따른 대복 *Gomphina veneriformis* 소화선의 조직학적 반응

박정준※, 박정채[1], 김성수, 조현서[2], 이연규[2], 이정식[3]

국립수산과학원 환경연구과, [1]야마구치대학교 연합수의학연구과,
[2]전남대학교 해양기술학부, [3]전남대학교 수산생명의학과

Histological Response of Digestive Gland of *Gomphina veneriformis* with TBTCl Accumulation in Sediment and Soft Tissue

Jung Jun Park※, Jeong Chae Park[1], Seong-Soo Kim, Hyeon Seo Cho[2], Yeon Gyu Lee[2] and Jung Sick Lee[3]

Marine Environment Research Division, NFRDI, Busan 619-705, Korea
[1]The United Graduate School of Veterinary Science, Yamaguchi University, Yamaguchi 753-8511, Japan
[2]Faculty of Marine Technology, Chonnam National University, Yeosu 550-749, Korea
[3]Department of Aqualife Medicine, Chonnam National University, Yeosu 550-749, Korea

ABSTRACT

This study involves a relationship between butyltins concentrations and histopathological changes of the digestive gland in the equilateral venus, *Gomphina veneriformis* exposed to TBTCl of 0.4, 0.6 and 0.8 μg/L for 36 weeks. In the sediment, total butyltin (∑BT) concentration was detected ND～7.54 (0.4 μg/L), ND～9.76 (0.6 μg/L), 1.22～13.13 μg/L (0.8 μg/L), respectively. Especially, TBT level in 0.8 μg/L group was the highest for 36 weeks. In the soft tissue, total butyltin (∑BT) concentration of the exposure group was 10.14～12.75 (control), 479.29～1,286.56 (0.4 μg/L), 563.32～2,154.82 (0.6 μg/L) and 1,317.70～2,132.60 μg/L (0.8 μg/L), respectively. Ratio of TBT to ∑BT of the tissue of 0.8 μg/L kept the lowest level for 36 weeks. The ∑BT concentrations of sediment were correlated with ∑BT concentrations in the tissue. In the exposure groups, necrosis and atrophy of columnar epithelial cell and collapse of epithelial layer in the digestive tubule. And there was a reduction in stain affinity of basophilic cell. Such histological degenerations was more severe in digestive tubule of 0.8 μg/L group.

Key words : TBTCl, *Gomphina veneriformis*, accumulation, digestive gland

※ To whom correspondence should be addressed.
Tel: +82-51-720-2542, Fax: +82-51-720-2515
E-mail: jjpark@nfrdi.go.kr

서 론

해양생태계에서 유입된 유해화학물질은 수서생물에 영향을 줄 뿐만 아니라 먹이 사슬을 통하여 최종적으로는 오염된 생물들을 섭취한 인간에게 축적되어 치명적인 결과를 초래하게 된다. 특히 이들은 저농도에서도 독성이 나타나는데, 만성적으로 생물체의 내분비계 등에 영향을 주게 되어 그 피해를 인지하는 데 오랜 시간이 걸린다. 또한 생물체의 여러 가지 구조 및 기능적인 장애가 과연 화학적인 요인에 의한 것인지를 증명하기 어렵기 때문에 지속적인 관찰이 필요하다.

내분비계장애물질(endocrine disrupting chemicals: EDCs)은 동물의 체내로 유입되어 마치 호르몬처럼 작용하여 생물체 본래의 조절기작을 방해하는 유해화학물질로서 다이옥신, 폴리염화비페닐(PCB), 유기주석화합물(organotin compounds) 등이 이에 포함된다. 이 중에서 tributyltin(TBT)은 monobutyltin(MBT)과 dibutyltin(DBT)보다 독성이 강한 것으로 알려져 있다(Stewart and Thompson, 1994; Evans *et al.*, 1995).

이매패류들은 해수여과 기능을 통하여 여과섭식을 수행한다. 따라서 오염물질이 체내에 쉽게 축적되지만 해독과 체외방출이 낮기 때문에 해양환경의 오염상태를 알아보기 위한 지표종으로 유용하다(Siah *et al.*, 2003). 이매패류의 체내로 들어온 중금속은 metallothionein, glutathione, 저분자 cytisolic metal-binding ligands, metal-containing granules 등과 결합하여 무독화되지만 TBT 같은 유기주석화합물은 저농도에서도 독성이 나타난다(Mason and Jenkins, 1995; Kim *et al.*, 2004). 소화선(digestive gland)은 다수의 관(tubule)들이 위와 연결된 구조를 하고 있으며, 이들의 주 기능은 세포내 소화이다(Gosling, 2003). 여러 연구자들은 이매패류의 기관계 중에서 TBT가 가장 많이 축적되는 기관계는 소화선이라고 보고하였다(Morrison, 1993; Pekkarinen, 1996; Shim *et al.*, 1998; Gomez-Ariza *et al.*, 2000).

해수에서 TBT의 반감기는 수 일에서 수 주 정도인 반면, 해양퇴적물에서는 수 개월에서 수십 년 이상이기 때문에 해수에서 TBT의 공급원이 차단된다 하더라도 TBT를 함유한 해양저질이 오염원의 제공지로 작용하여 주변에 서식하는 수서생물들에게 지속적으로 영향을 줄 수 있다(de Mora *et al.*, 1989; Adelman *et al.*, 1990).

1970년대부터 지금까지 많은 연구자들은 환경평가 측면에서 세계 주요 산업단지의 저질과 서식생물 체내의 유기주석화합물의 농도를 분석 보고하였다. 우리나라에서도 Hwang *et al.* (1999)과 Shim *et al.* (1999)에 의해서 진해만의 유기주석화합물 농도가 보고되었는데, MBT는 40～1,100 ng/g, DBT는 10～1,100 ng/g, TBT는 4～800 ng/g로 나타났다.

따라서 본 연구의 목적은 우리나라의 주요 산업단지와 가장 멀리 떨어져 있는 주문진에 서식하는 백합과 이매패류인 대복, *Gomphina veneriformis*을 TBTCl에 만성적으로 노출시켜 유기주석화합물의 축적을 분석하고, 유해화합물이 가장 많이 축적되는 소화선의 조직병리학적인 변화를 관찰하여 이들의 상관성을 알아보고자 하였다.

재료 및 방법

1. 재 료

본 연구에 사용된 대복, *Gomphina veneriformis*은 동해안 주문진 연안(37°54′27.23″N, 128°49′38.95″)에서 채집한 각장 30.00～35.00 mm의 성체로서 개체수는 125개체였다.

2. 방 법

1) 실험조건

채집한 개체들은 실험실로 운반하여 실험 수조에 약 2주 동안 순치시켰다. 본 실험에서 사용한 수조는 30 L의 지수형 순환여과식 사각 유리수조로서 사육수의 양은 실험 수조마다 25 L씩 일정하게 유지하였다. 수조의 내부는 실험종의 서식환경과 비슷한 저질 환경을 제공하고자 채집지역의 모래를 두께 10 cm 정도 깔아 주었다. 실험기간은 2005년 10월부터 2006년 7월까지 36주 동안 시행하였다.

실험에 오염원으로 사용된 tributyltin chloride (TBTCl; $[CH_3(CH_2)_3]_3SnCl$, Sigma)는 acetone (CH_3COCH_3, Junsei)으로 10,000 mg/L 농도인 stock solution을 만든 다음 dimethyl sulfoxide(DMSO; $(CH_3)_2SO$, Junsei)를 이용하여 100 mg/L 농도인 substock solution을 만들었다. TBTCl 노출실험에

노출구의 농도를 정하기 위해 TBTCl을 인위적으로 노출시키지 않은 수조를 대조구로 하였다. 두 차례에 걸친 예비실험을 통하여 LC_9 (20.0 μg/L)의 1/25 농도인 0.8 μg/L를 가장 높은 노출구로 설정하였고, 그보다 낮은 0.6과 0.4 μg/L를 추가 노출구로 설정하였다.

2) 저질의 입도 분석

입도 분석은 습시료(10 g)를 먼저 염산(HCl)과 과산화수소수(H_2O_2)를 첨가하여 탄산칼슘과 유기물 성분을 제거한 후 63 μm 표준체를 사용하여 모래 이상의 입자와 펄(mud)을 구분하였다. 모래 이상의 입자들은 표준체 분석법, 펄은 X-선 자동입도 분석기인 Sedigraph 5100을 사용하여 각 1ø 간격으로 입도를 구분하고, 각 입도별 무게 백분율을 구하였다.

3) 유기주석화합물 분석

36주 동안 저질과 생체 시료 분석은 4, 12, 20, 28, 36주에 2회 반복으로 분석하였으며, 해양환경공정시험법(해양수산부, 2005)과 일본 내분비계장애물질 분석 잠정 매뉴얼(環境廳水質保全局水質管理課, 1998)에 따라 분석하였다.

(1) 분석 시료 전처리

약 5 g (wet wt.)의 저질 시료는 내부표준물질(tripenthyltin chloride), 염산, 에탄올과 초산 에틸 혼합액(1 : 1)을 첨가한 후 진탕/초음파 추출하고, 10% 염화나트륨 수용액으로 에탄올을 제거하여 다시 헥산으로 추출하였다. 이후 무수황산나트륨을 이용하여 탈수하고, 회전식 감압농축장치를 이용하여 농축하였으며, 헥산을 이용하여 반복 감압농축으로 초산성분을 추출하였다. 이 용액들은 초산-에테르-헥산(1 : 25 : 75)을 이용하여 florisil 칼럼을 통과시키고, 다시 초산을 제거한 후, 브롬화 프로필마그네슘으로 1시간 동안 유도체화반응을 시켜주었다. 이후 2 N 염산 1 mL를 첨가시켜서 반응을 정지시키고, 헥산층을 물과 분리하여 실리카겔 칼럼으로 정제시킨 후, 내부표준물질을 가하고, 질소가스를 이용하여 최종 농축 후 GC-MSD로 측정하였다.

체내 축적을 알아보기 위하여 약 2 g (wet wt.)의 생물 시료에 내부표준물질, 0.1% 트로폴론/벤젠과 에탄올을 이용하여 조제한 1 N HBr을 가하고, 초음파 추출을 한 후 원심분리하여 상등액을 삼각플라스크에 취하였다. 상기의 과정을 다시 반복하여 상등액을 합하였다. 이 상등액에 2 M NaBr를 첨가한 후 벤젠을 분취하여, 회전식 감압농축장치를 이용하여 농축한 다음 지방을 제거하기 위해 메탄올과 핵산 혼합액(4 : 6)을 첨가하여 농축액과 혼합하였다. 이후 원심분리에 의해서 분리된 농축액은 메탄올층만 취하였다. 이 과정을 다시 반복하여 합해진 메탄올을 벤젠으로 용매치환 후 브롬화 프로필마그네슘으로 1시간 동안 유도체화 반응을 시켜주었다. 이후 약 1시간 후에 포화염화암모늄 용액을 첨가하여 반응을 정지시키고, 원심분리하여 벤젠층을 분취하였고, 회전식 감압농축장치를 이용하여 농축한 후 florisil과 실리카겔을 채운 컬럼에 통과시켜 정제하였다. 이후 내부표준물질을 첨가하고, 질소가스로 최종 농축하여 GC-MSD로 측정하였다.

(2) 분석조건

전처리가 끝난 저질시료에서 유기주석화합물을 검출하기 위하여 분석기기로 GC-MSD (Shimazu, Model GC/MS-QP2010)를 이용하였다. 컬럼은 30 mm × 0.32 mm × 0.25 μm로 100% dimethylpolysiloxane으로 충전된 DB-1 컬럼(J & W, USA)을 사용하였고, 시료 주입방법은 splitless mode로 하였다. 검출방법은 특정 질량의 이온만을 선택하여 검출하는 방법인 SIM을 이용하였다.

4) 조직학적 분석

대조구를 포함한 각 노출구의 수조에서 매주 5개체를 무작위로 채집하여 조직학적 분석에 이용하였다. 채집된 재료는 각장, 각고, 전중량, 육중량을 측정하였고, 해부하여 소화선을 절취하였다.

광학현미경 표본제작을 위해 절취한 시료들은 Drury and Wallington (1980)의 방법에 따라 aqueous Bouin's fluid에 12시간 동안 고정하였고, 24시간 동안 수세하였다. 그 후 ethanol을 이용한 단계별 탈수 후 paraplast (McCormick, USA)에 포매(embedding)하였다. 포매된 시료는 microtome (RM2235, Leica, Germany)을 이용하여 4～5 μm 두께로 연속 절편하여 조직표본을 만들었다. 제작된 조직표본은 H-E 이중염색과 Masson 삼중염색을 시행한 후 광학현미경으로 관찰하였다.

5) 통계처리

각 노출구들의 저질과 체내 ∑BT (total butyltins)

Table 1. Sediment composition of experiment aquarium

Sediment (Size)	Gravel (≥2 mm)	Sand (2 mm ~ 63 μm)	Mud (63 μm ≥)
Composition (%)	1.13	98.87	0.00

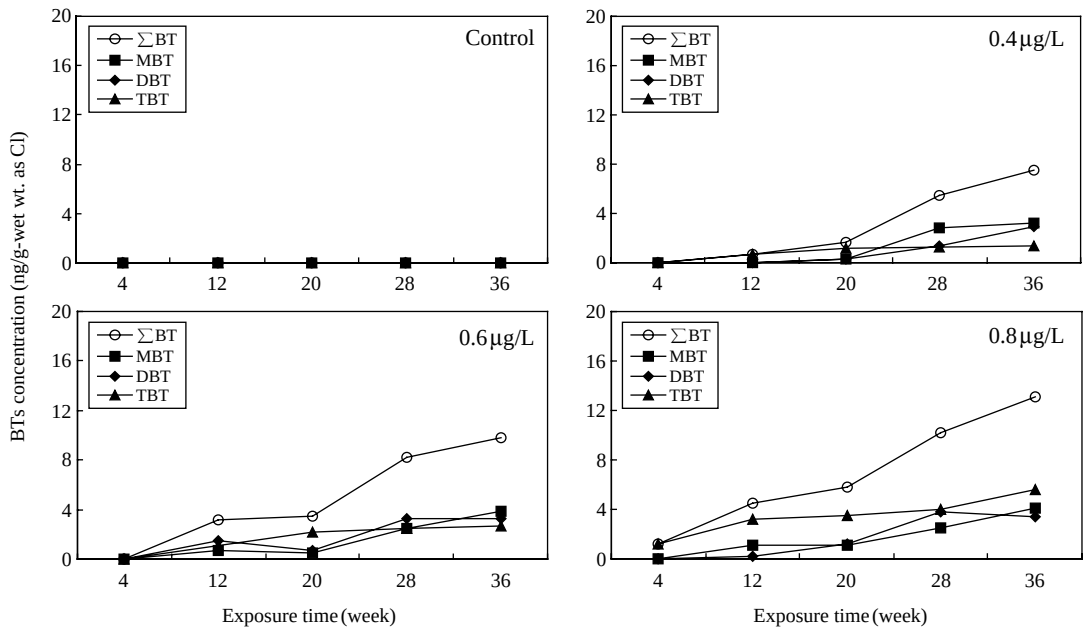

Fig. 1. Butyltins concentration of sediment exposed to TBTCl for 36 weeks.

의 상관분석을 시행하기 위해 SPSS 통계 프로그램을 이용하여 단순 선형회귀분석(simple linear regression)을 시행하였다.

결 과

1. 저질의 입도 구성

실험에 사용된 실험생물의 서식지역에서 저질은 대부분 모래로 구성되어 있었다(Table 1).

2. 유기주석화합물 농도

1) 저 질

노출기간 동안 대조구에서는 유기주석화합물이 검출되지 않았으나, 0.4, 0.6, 0.8 μg/L의 노출구에서는 저질의 ∑BT의 농도가 각각 ND ~ 7.54, ND ~ 9.76, 1.22 ~ 13.13 μg/L으로 나타났다. 모든 노출구에서 유기주석화합물들은 노출기간과 노출농도에 의존적으로 높게 나타났다. 0.4와 0.6 μg/L의 노출구들은 노출 20주까지만 MBT와 DBT에 비해 TBT의 농도가 높게 나타났지만, 0.8 μg/L 노출구에서는 노출기간 동안 TBT의 농도가 가장 높게 나타났다(Fig. 1).

2) 생 물

TBTCl 노출기간 동안 대복 대조구의 ∑BT의 농도는 10.14 ~ 21.75 ng/g로 검출되었으며, 0.4, 0.6, 0.8 μg/L 노출구들에서 ∑BT의 농도는 각각 479.29 ~ 1,286.56, 563.32 ~ 2,154.82, 1,317.70 ~ 2,132.60 ng/g으로 나타났다. 그러나 대조구에서는 노출기간 동안 TBT의 농도가 가장 높았던 반면, 0.4 μg/L의 노출구는 20주까지, 0.6 μg/L의 노출구는 28주까지 TBT의 농도가 가장 높았으며, 0.8 μg/L의 노출구는 노출기간 동안 MBT > DBT > TBT 순으로 농도가 높게 나타났다. 특히 0.8 μg/L의 노출구에서는 36주

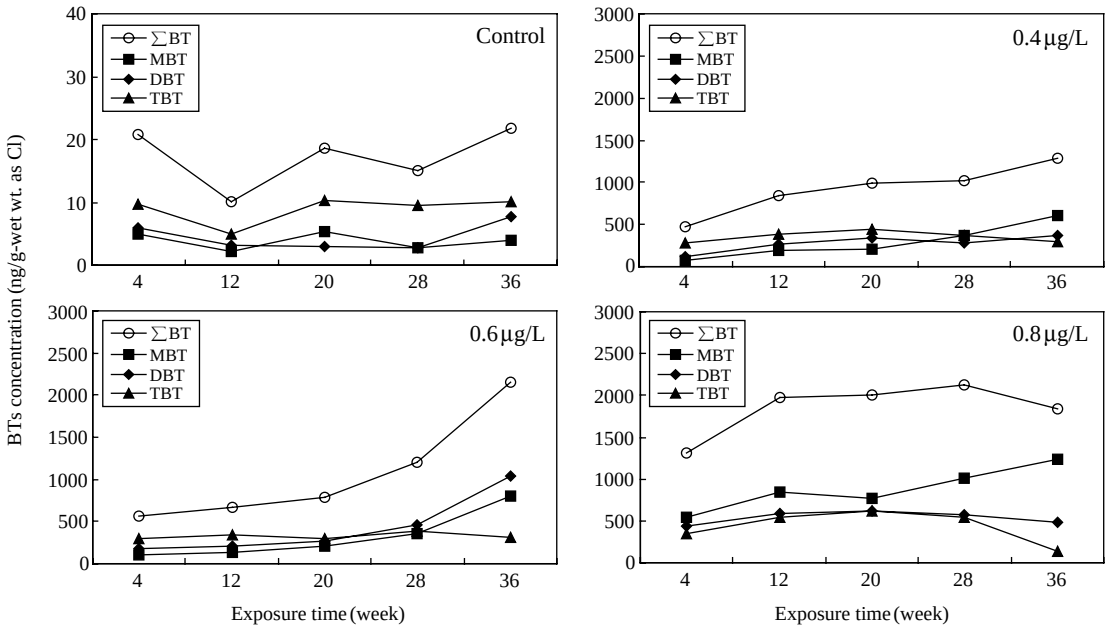

Fig. 2. Butyltins concentration in the soft tissue of the equilateral venus, *Gomphina veneriformis* exposed to TBTCl for 36 weeks.

에 ∑BT의 농도가 28주째에 비해 13.5%가 감소하였다(Fig. 2).

TBTCl 노출 4주째 0.4, 0.6, 0.8 μg/L 노출구들에서 ∑BT에 대한 TBT의 비율은 각각 59.13, 52.31, 26.31%를 나타냈지만, 이후 계속 감소하였다. 특히 0.8 μg/L 노출구는 증가한 후 20주 이후부터 감소하여 노출 28주에는 25.43%를 나타났다. 36주에 0.4, 0.6, 0.8 μg/L 노출구들에서 ∑BT에 대한 TBT의 비율은 각각 23.29, 12.28, 7.43%로 나타났다(Fig. 3).

저질의 ∑BT의 농도와 체내 ∑BT의 농도의 상관관계는 모든 노출구들이 저질의 농도가 높아질수록 체내의 ∑BT의 농도가 높게 나타났지만 0.8 μg/L 노출구의 회귀계수는 38.81 (R^2=0.333)로서 노출구 중에서 가장 낮게 나타났다(Fig. 4).

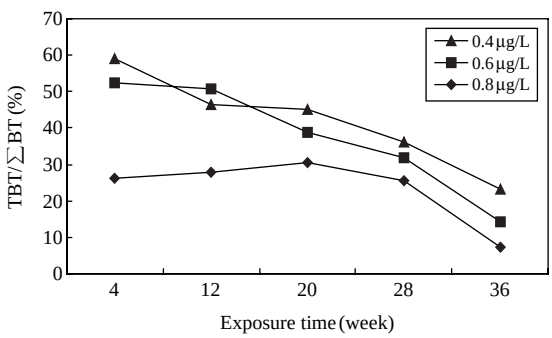

Fig. 3. Concentration ratio between TBT and ∑BT in the soft tissue of the equilateral venus, *Gomphina veneriformis* exposed to TBTCl for 36 weeks.

3. 소화선의 조직학적 변화

대복 소화선은 다수의 세관들이 타원형의 관 구조로 되어있으며, 크기가 다양하였다. 소화선세관(digestive tubule)들 사이에는 간질조직과 교원섬유로 구성된 결합조직이 존재하였다. 소화선세관은 일부 호염기성 세포들과 대부분 원주형 상피세포들로 구성되어 있었다. 이들 상피세포의 핵은 원형으로 세포의 기저부에 존재하고 있었다(Fig. 5A). 0.4, 0.6, 0.8 μg/L 노출구들에서 소화선의 조직병리학적 변화는 각각 20주, 12주, 4주째부터 심화되었다. 특히 소화선세관의 내강에서 소화물질들이 가득 차 있는 증상은 0.6과 0.8 μg/L의 노출구에서만 관찰

되었다(Table 2). 0.4 μg/L에 노출된 대복의 소화선세관 상피세포들은 원주형에서 입방형 또는 편평형으로 위축되었으며, 호염기성 세포들은 염색성이 감소하였다. 소화선세관들이 인접한 부분에서는 부분적으로 상피세포의 응축이 관찰되었다. 또한 내강은 대조구에 비해 크게 확장되었으며, 내강 안에는 소수의 과립물질들이 관찰되었다(Fig. 5B). 0.6 μg/L의 노출구에서는 상피세포의 변형과 함께 상피세포의 괴사로 인하여 부분적인 상피층의 파괴가 관찰되었다(Fig. 5C). 가장 높은 노출구인 0.8 μg/L에 노출된 대복의 소화선세관은 내강의 팽창과 세관 주변의 결체조직들의 파괴가 관찰되었다. 또한 세관 상피세포들은 대부분 소실되었으며, 남아있는 소수의 상피세포들은 편평형으로 변형되었다(Fig. 5D).

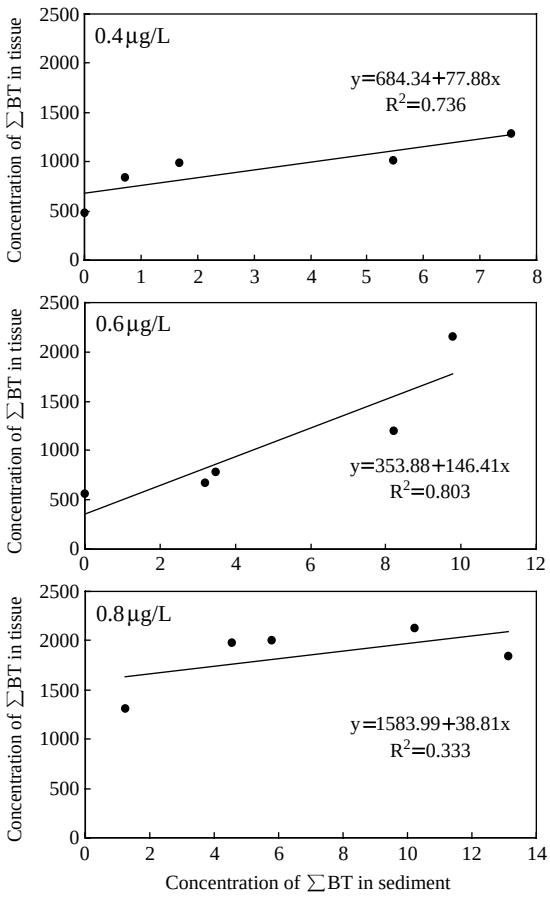

Fig. 4. Correlation ∑BT concentration between in sediment and in the soft tissue of the equilateral venus, *Gomphina veneriformis* exposed to TBTCl for 36 weeks.

고 찰

오염물질이 생물에 미치는 잠재적 영향을 예측하고 평가하기 위한 가장 중요한 단계는 생물 체내 농도수준과 생물에 미치는 독성효과 사이의 관계를 규명하는 것이다. 생물체는 오염물질과 접촉하였을 때 화학적인지로 인한 생물학적 반응이 시작되기 때문에 환경오염을 평가하는 데 있어서 가장 민감한 지표 가운데 하나이다(Hebel *et al.*, 1997). 또한 세포 반응은 환경변화의 지표로서 신속하고 민감하게 나타나기 때문에 세포를 구성하는 과립들과 조직의 손상 등은 생화학적 또는 세포생물학적 수준에서 오염원의 독성영향이 평가되고 있다(Depledge and Hopkin, 1995).

본 실험에서는 노출 28주 이후 0.4 μg/L의 노출구 저질에서는 MBT의 농도가 가장 높게 나타났으며, 0.6과 0.8 μg/L의 저질에서는 각각 DBT와 TBT

Table 2. Quantitative scoring of histopathological change on digestive gland of the equilateral venus, *Gomphina veneriformis* exposed to TBTCl for 36 weeks

Histopathological changes	0.4 μg/L					0.6 μg/L					0.8 μg/L				
	4W	12W	20W	28W	36W	4W	12W	20W	28W	36W	4W	12W	20W	28W	36W
Increase of hemocyte in connective tissue	++	+++	−	−	−	+++	+++	−	−	−	+++	+++	−	−	++
Filled up digestive substance in digestive tubule	−	−	−	−	−	−	−	−	++	+++	−	+	++	+++	+++
Change of epithelial cell in the digestive tubule	−	−	+	+	++	+	+	+	++	++	++	++	+++	+++	+++
Collapse of digestive tubule	−	−	−	−	−	−	−	−	−	+	−	−	+	++	+++

*Score values=−, none; +, mild; ++, moderate; +++, severe.

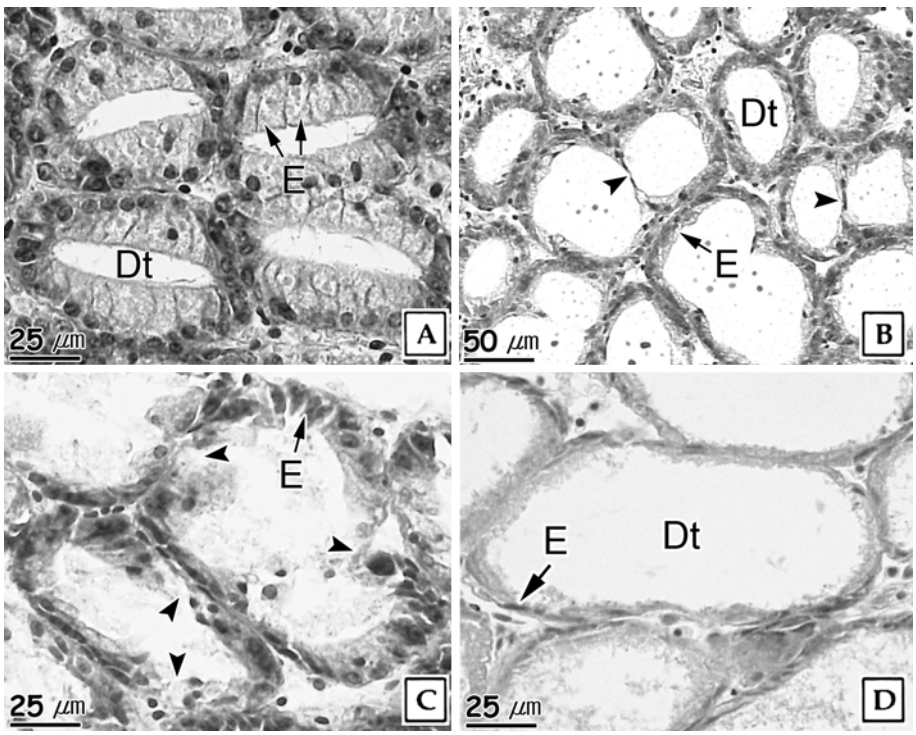

Fig. 5. Histological changes of the digestive gland of the equi ateral venus, *Gomphina veneriformis* exposed to TBTCl for 36 weeks. A: Control, showing the digestive tubule (Dt) c mposed of columnar epithelial cells (E). B: 0.4 μg/L, showing the necrosis (arrowhead) and atrophy of the epithelial ell. C: 0.6 μg/L, showing the partially destruction (arrowhead) of the digestive tubule. D: 0.8 μg/L, note the disappearance of the tubule epithelial layer.

의 농도가 가장 높게 나타났다. 특히 0.8 μg/L 노출구에서는 노출기간 동안 TBT의 농도가 가장 높았다.

저질의 상태에 따라서도 MBT, DBT, TBT의 농도가 차이를 나타내었는데, 프랑스 Arcachon 하구의 사질 (직경 0.02～2 mm) 지역에서는 각각 2,720, 2,030, 3,340 μg/L로 검출되었으며, 실트질 (직경 0.004～0.06 mm) 지역에서는 각각 2,460, 530, 600 μg/L로 MBT는 차이가 없었으나, DBT와 TBT는 실트질에서 더 낮게 검출되었다 (Amouroux *et al.*, 2000). 본 실험에서도 ∑BT에 대한 MBT, DBT, TBT의 비율이 0.4 μg/L의 경우 각각 42.7%, 38.9%, 18.6%이고, 0.6 μg/L의 경우 각각 39.9%, 33.3%, 26.9%이었으며, 0.8 μg/L에서는 각각 31.6%, 25.6%, 42.8%로 나타났다.

일반적으로 이매패류는 여과섭식을 하기 때문에 다른 수서생물에 비해 오염원들이 쉽게 축적된다 (Salazar, 1989). 따라서 이매패류의 소화선은 아가미와 함께 환경오염을 측정하는 데 중요한 지표기관으로 여겨지기 때문에 오염원의 체내 축적 정도를 조사하는 경우에 많이 사용되고 있다 (Moore and Allen, 2002; Marigomez *et al.*, 2004).

TBTO (tributyltin oxide) 농도 0.24와 2.6 μg/L에 45일 동안 노출시킨 5종의 이매패류 (*Crassostrea gigas, Mytilus edulis, Ostrea edulis, Venerupis decussata, V. semidecussata*)들은 노출 농도가 증가함에 따라 체내 TBT 농도 또한 증가하였으며, 굴, *C. gigas*의 체내에서 TBT가 가장 많이 검출되었다 (Thain, 1986). 또한 진주담치, *M. edulis*를 TBT 농도 0.5 μg/L에서 47일 동안 노출시킨 결과, 0.0045 μg/L의 농도의 TBT가 체내에서 검출되었다 (Laughlin *et al.*, 1986).

Gomez-Ariza *et al.* (1999)은 이매패류에서 유기주석화합물의 최고 농도 이후 감소하는 시기를 안

정상태(steady state)라고 하였다. 진주담치를 0.025와 0.049 μg/L 농도의 TBT에 노출한 실험에서는 14일 이전에 안정상태가 나타났고, TBTCl 농도 0.069～0.74 μg/L에 45일 동안 노출한 실험에서는 매우 낮은 농도에서 안정상태가 나타났다(Laughlin and French, 1988). 담수산 이매패류인 *Dreissena polymorpha*의 경우 TBTCl 농도 0.08 μg/L인 현장 이식실험에서 35일 이후에 안정상태가 나타났으며(van Slooten and Tarradellas, 1994), *Mya arenaria*를 2.7 μg/L의 TBTCl 농도에 노출시킨 결과 28일 이후 안정상태가 나타났다(Kure and Depledge, 1994). *Mytilus galloprovincialis*의 경우 TBT 농도 0.45 μg/L인 지역의 이식실험과 0.08과 0.2 μg/L인 농도의 실내 노출실험에서 안정상태는 60일 이후였으며(Salazar *et al.*, 1987; Salazar and Salazar, 1995), 140일 동안 TBTCl에 노출된 *Venerupis decussata*의 경우에는 모든 노출구에서 40일에 가장 높은 체내 축적농도가 검출된 후 TBT 농도가 감소하였다(Gomez-Ariza *et al.*, 1999). Guolan and Yong (1995)은 유수식 방법으로 진주담치의 TBT 노출실험 결과 안정상태 농도는 0.5 μg/L 이하에서 나타났다. 본 실험에서는 0.6과 0.8 μg/L 노출구의 개체들이 28주 이후부터 TBT가 분해되어 농도가 감소하였는데, 이로써 대복의 안정상태는 28주(196일) 이후인 것으로 생각되어진다. Gomez-Ariza *et al.* (1999)은 안정상태가 서로 다르게 나타나는 이유가 실험종의 차이와 지수식 혹은 유수식 노출방식의 차이에 비롯된 것이라고 설명하였다.

Strand and Asmund (2003)는 서부 Greenland의 항구 6개 지점에서 복족류와 이매패류를 채집하여 그들의 TBT 체내 축적농도를 조사한 결과, 이매패류 중에서 조간대에 서식하는 진주담치가 가장 높은 TBT 농도를 보였지만, 조간대에 서식하지 않는 *Chlamys islandica*와 *Nuculana pernula*의 체내에서는 TBT 농도가 낮게 검출되었다. 중국 Bohai sea의 해안을 따라 5지역 공장지대에 서식하는 복족류와 이매패류 20종에 대한 ∑BT 측정 결과, 우럭, *M. arenaria*는 높은 ∑BT 농도(993.9 μg/L)를 보였고(Yang *et al.*, 2006a), 복족류와 이매패류 113개체 중에서 101개체의 체내에서 부틸계 화합물이 검출되었으며, 부틸계 화합물중에서 TBT의 농도가 가장 높게 나타났다(Yang *et al.*, 2006b). Harino *et al.* (2005)은 영국의 Mersey 강 하구에서 채집한 우럭과 진주담치 모두 소화선에서 TBT 농도가 가장 높게 나타났으며, 부착성인 진주담치보다 잠입성인 우럭에서 TBT 농도가 더 높았다. 이러한 결과를 종합해 볼 때, 서식환경에 따라 체내 축적 농도가 다르게 나타나며, 같은 지역에 서식하더라도 크기와 종에 따라 오염원의 체내 축적 농도는 다르게 나타난다.

유해화학물질들은 이매패류의 외투막, 아가미, 신장, 발 그리고 소화선에 주로 축적되며(Morrison, 1993; Pekkarinen, 1996), 이들 오염원들은 직·간접적으로 기관계 구조의 변화를 일으켜 생리학적 불균형을 초래한다(Watling and Watling, 1982; Gregory *et al.*, 1999; Otludil *et al.*, 2004). 10일 동안 TBT 농도 0.9 μg/L에 노출된 *Venerupis decussata*의 경우 체내에 존재하는 ∑BT 중에서 TBT의 농도가 가장 높게 나타났으며, 특히 아가미와 소화선에서 부틸계 화합물이 많이 검출되었다(Gomez-Ariza *et al.*, 2000). 우럭의 경우에도 아가미와 소화선에서 가장 높았으며, 진주담치는 아가미와 내장낭의 혼합 조직에서 가장 높았다(Harino *et al.*, 2005; Yang *et al.*, 2006a). 또한 우리나라 진해만에서 채집한 굴에서도 아가미 혹은 소화선에서 TBT의 농도가 가장 높게 나타났다(Shim *et al.*, 1998).

다양한 수중 오염원에 의한 소화선세관의 조직병리학적인 증상들은 여러 연구자들에 의해서 보고되어졌다. 노르웨이의 구리 오염지역에 서식하는 진주담치의 소화선세관은 팽창된 내강의 비율이 소화선세관의 66.6%를 차지하였고(Zorita *et al.*, 2006), 0.08 mg/L의 농도의 구리, 아연, 카드뮴에 노출된 *Mytilus galloprovincialis*의 소화선세관 상피세포들은 섬모가 모두 탈락되었다. EDCs 물질중 하나인 nonlyphenol에 112일 동안 노출된 *Dreissena polymorpha*의 소화선세관은 내강이 확장되고, 상피세포의 변형과 호염기성 과립의 감소가 관찰되었다(Quinn *et al.*, 2004). Endosulfan에 노출된 *Planorbarius corneus*의 경우에도 내강의 변형, 상피세포의 변형 및 괴사 그리고 세관 주변의 결합조직층의 파괴가 관찰되었다(Otludil *et al.*, 2004). 본 연구에서는 0.4 μg/L의 경우 노출기간 동안 소화선세관의 내강내에 소화물질들이 관찰되지 않았지만 0.6 μg/L의 경우에는 28주 이후부터, 0.8 μg/L의 경우에는 노출 4주 이후부터 관찰되었다. 이들 물질들은 소화선세관의 상피세포가 파괴됨에 따라 유출된 물

질들로서 상피세포들의 기능이 상실된 것으로 생각된다.

본 연구에서 노출 마지막 주에 0.8 μg/L의 농도에서 ∑BT의 농도가 감소하는 이유는 유기주석화합물들이 주로 축적되는 소화선세관의 상피층이 붕괴되었기 때문이며, 저질과 체내 ∑BT의 회귀계수 값이 MBT와 DBT보다 낮게 계산된 이유 또한 36주에 유기주석화합물의 농도가 감소했기 때문이라고 생각된다. 따라서 소화선세관의 상피세포가 파괴됨에 따라 체내 ∑BT의 감소가 나타난 것으로 생각된다.

감사의 글

이 논문은 2006년 전남대학교 수산과학연구소 innovation 06사업에 의해 수행된 연구로서 연구 지원에 감사드립니다.

참 고 문 헌

해양수산부. 해양환경공정시험방법, 2005; 127-130.

環境廳水質保全局水質管理課. 外因性內分泌攪亂化學物質調查暫定 マニュアル (水質, 底質, 水生生物), 1998; X1-X7.

Adelman D, Hinha KR and Pilson MEQ. Biogeochemistry of butyltins in an enclosed marine ecosystem, Envrion Sci Technol 1990; 24: 1027-1032.

Amouroux D, Tessier E and Donard OFX. Volatilization of organotin compounds from estuarine and coastal environments, Environ Sci Technol 2000; 34: 988-995.

de Mora SJ, King NG and Miller MC. Tributyltin and total tin in marine sediments; profiles and apparent rate of TBT degradation, Envrion Technol Lett 1989; 10: 901-908.

Depledge MH and Hopkin SP. Methods to assess effects on brackish, estuarine and near-coastal water organnisms, In: Methods to Assess the Effects of Chemicals on Ecosystems, Linthurst RA, Bourdeau P and Tardiff RG eds, Wiley Chichester UK, 1995; 125-149.

Drury RAB and Wallington EA. 1980. Carleton's histological technique, Oxford University Press Oxford, 1980; 1-520.

Evans SM, Leksono T and Mckinnell PD. Tributyltin pollution: A diminshing problem following legislation limiting the use of TBT based anti-fouling paints, Mar Poll Bull 1995; 30: 14-21.

Gomez-Ariza JL, Giraldez I and Morales E. Temporal fluctuations of tributyltin in the bivalve *Venerupis decussata* at five stations in southwest Spain, Envion Pollut 2000; 108: 279-290.

Gomez-Ariza JL, Morales E and Giraldez I. Uptake and elimination of tributyltin in clams, *Venerupis decussata*, Mar Environ Res 1999; 47: 399-413.

Gosling EM. Morphology of bivalves, In: Bivalves Molluscs; Biology, Ecology and Culture, Blackwell Malden, 2003; 7-43.

Gregory MA, George RC, Marshall DJ, Anandraj A and Mcclurg PT. The effects of mercury exposure on the surface morphology of gill filaments in *Perna perna* (Mollusca: Bivalvia), Mar Pollut Bull 1999; 39: 116-121.

Guolan H and Yong W. Effects of tributyltin chrolide on marine bivalve mussels, Water Res 1995; 29: 1877-1884.

Harino H, O'Hara SCM, Burt GR, Chesman BS and Langston WJ. Distribution of organotin compounds in tissue of mussels *Mytilus edulis* and clams *Mya arenaria*, Chemosphere 2005; 58: 877-881.

Hebel DK, Jones MB and Depledge MH. Responses of crustaceans to contaminant exposure: a holistic approach, Estuar Csttl Shelf Sci 1997; 44: 177-184.

Hwang HM, Oh JR, Kahng SH and Lee KW. Tributyltin compounds in mussels, oysters and sediments of Chinhae bay, Korea Mar Environ Res 1999; 47: 61-70.

Kim CK, Kim DH, Lee JS and Lee KT. Influence of heavy metals, ammonia and organotin compounds on the survival of arkshell clams, *Scapharca broughtonii*, Korean J Mal 2004; 20: 93-105.

Kure LK and Depledge MH. Accumulation of organotin in *Littorina littorea* and *Mya arenaria* from Danish coastal water, Environ Pollut 1994; 84: 149-157.

Laughlin Jr RB and French W. Concentration dependence of bis (tributyltin) oxide accumulation in the mussel, *Mytilus edulis*, Environ Toxicol Chem 1988; 7: 1021-1026.

Laughlin Jr RB, French W and Guard HE. Accumulation of bis (tributyltin) oxide by the marine mussel *Mytilus edulis*, Environ Sci Techol 1986; 20: 884-890.

Marigomez I, Soto M, Orbea A, Cancio I and Cajaraville MP. Elsevier Oceanography Series No 70, In: Oceanography and Marine Environment in the Basque Country, Borja A and Collins M eds, Elsevier Amsterdam, 2004; 335-364.

Mason AZ and Jenkins KD. Metal detoxification in aquatic organisms. In: Metal Speciation and Bioavailability on Aquatic Systems, Tessier A and Turner DR eds, John Wiley & Sons New York, 1995; 479-608.

Moore MN and Allen JI. A computational model of the digestive gland epithelial cell of the marine mussel and its simulated responses to aromatic hydrocarbons, Mar Environ Res 2002; 54: 579-584.

Morrison CM. Histology and cell ultrastructure of the mantle and mantle lobes of the Estern oyster, *Crassostrea virginica* Gmelin: A summary atlas, Amer Malac Bull 1993; 10(1): 1-24.

Otludil B, Cengiz EI, Yildirim MZ, Unver O and Ünlü E. The effects of endosulfan on the great ramshorn snail, *Planorbariua corneus* (Gastropoda, Pulmonata): a histopathological study, Chemosphere 2004; 56: 707-716.

Pekkarinen M. Scanning electron microscopy, whole-mount histology, and histochemistry of two *Anodontine glochidia* (Bivalvia: Unionidae), J Zool 1996; 74(11): 1964-1973.

Quinn B, Gagné F, Costello M, McKenzie C, Wilson J and Mothersill C. The endocrine disrupting effect of municipal effluent on the zebra mussel (*Dreissena polymorpha*), Aquat Toxicol 2004; 66: 279-292.

Salazar MH. Mortality, growth and bioaccumulation in mussels exposed to TBT: difference between the laboratory and the field, Oceans '89. Proceedings, 2, 1989; 530-536.

Salazar MH and Salazar SM. In-situ bioassays using transplanted mussels: I. Estimating chemical exposure and bioeffects with bioaccumulation and growth. In: Environmental Toxicology and Risk Assessment. 3rd volume, ASTM STP 1218, Hughes JS, Biddinger GR and Mones E eds, American Society for Testing and Materials Philadelphia 1995; 216-241.

Salazar SM, Davidson BM, Salazar MH, Stang PM and Meyers-Schulte KJ. Effects of tributyltin on marine organisms: Field assessment of a new site-specific bioassay system. In: Oceans 87, Vol 4. Proceedings International Organotin Symposium. Marine Technology Society, Washington, DC, 1987; 1461-1470.

Shim WJ, Oh JR, Kahng SH, Shim JH and Lee SH. Accumulation of tributyl- and triphenyltin compounds in Pacific oyster, *Crassostrea gigas*, from the Chinhae bay system, Korea, Arch Environ Contam Toxicol 1998; 35: 41-47.

Shim WJ, Oh JR, Kahng SH, Shim JH and Lee SH. Horizontal distribution of butyltins in surface sediments from an enclosed bay system, Korea Environ Pollut 1999; 106: 351-357.

Siah A, Pellerin J, Amiard J-C, Pelletier E and Viglino L. Delayed gametogenesis and progesterone levels in softshell clams (*Mya arenaria*) in relation to in situ contamination to organotins and heavy metals in the St. Lawrence River (Canada), Comp Biochem Physiol C 2003; 135: 145-156.

Stewart C and Thompson JAJ. Extensive butyltin contamination in southwestern coastal British Columbia, Canada, Mar Pollut Bull 1994; 28: 601-606.

Strand J and Asmund G. Tributyltin accumulation and effects in marine molluscs from West Greenland, Environ Pollut 2003; 123: 31-37.

Thain JE. Toxicity of TBT to bivalves: effects on reproduction, growth and survival, Oceans 1986; 18: 1306-1313.

van Slooten KB and Tarradllas J. Accumulation, depuration and growth effects of tributyltin in the freshwater bivalve *Dreissena polymorpha* under field conditions, Environ Toxicol Chem 1994; 13: 755-762.

Watling HR and Watling RJ. Comparative effects of metals on the filtering rate of brown mussel, *Perna perna*, Bull Environ Contam Toxicol 1982; 29: 651-657.

Yang R, Zhou Q and Jiang G. Butyltin accumulation in the marine clam *Mya arenaria*: An evaluatio of its suitability for monitoring butyltin pollution, Chemosphere 2006a; 63: 1-8.

Yang R, Zhou Q, Liu J and Jiang G. Butyltins compounds in molluscs from Chinese Bohai coastal waters, Food Chem 2006b; 97: 637-643.

Zorita I, Oritiz-Zarragoitia M, Soto M and Cajaraville MP. Biomarkers in mussels from a coper site gradient (Visnes, Norway): An integrated biochemical, histochemical and histological study, Aquat Toxicol 2006; 78S: S109-S116.