

<Review paper>

## 알루미늄이 수생동물에 미치는 독성에 관한 소고

박찬진\* · 김대한 · 한상호 · 계명찬\*

한양대학교 자연과학대학 생명과학과

### Toxic Effects of Aluminium on Freshwater Animals: Review

Chan Jin Park\*, Dae Han Kim, Sang Ho Han and Myung Chan Gye\*

Department of Life Science, College of Natural Sciences, Hanyang University, Seoul 133-791, Korea

**Abstract - Aluminum flows into the river from the abandoned mine leachate, industrial wastewater, and sewage and is responsible for acute toxicity in aquatic organisms. Recently, the number of reports have indicated the increased toxicity in a variety of aquatic organisms' due to the aluminum toxicity. In this study, we reviewed the toxicity of aluminum on aquatic invertebrates, fishes and amphibians and suggested the guideline for management of aluminum residues in aquatic environment and strategies for aluminum toxicity evaluation. In aquatic animals aluminum complexes evoke gill dysfunction primarily, the cytotoxicity, genotoxicity, oxidative stress, disruption of endocrine function, reproductive success, metabolism and homeostasis. Notably, at environmentally relevant concentration, aluminum complex can alter the hormone levels in fish in acidic condition. Further, since the solubility of aluminum is higher in the acidic and basic conditions, thus it is likely that the toxic effects of aluminum may not only occur in acidic water near the abandoned mines but also in lakes and rivers, where pH is raised by algal bloom.**

**Key words : aluminium, aquatic animals, toxicity, endocrine disruption, gill disfunction**

## 서 론

알루미늄(aluminium)은 지표면의 약 8%를 구성하는 3번째로 풍부한 원소이며, 전 세계적으로 산업활동 및 일상생활에 널리 사용되고 있지만 비교적 최근에 그 독성효과가 보고되고 있다(Rengel 2004; Zhu *et al.* 2013). 알루미늄은 중금속으로 분류되는 비소(arsenic), 카드뮴(cadmium), 크롬(chromium), 구리(copper), 납(lead), 수은(mercury), 니켈(nickel), 아연(zinc) 등과 달리 음용수 기준(guideline 또는 standard)조차 설정되어 있지 않음

며, 한계치(suggested limit)에 그치고 있다(WHO 2011). 중금속들의 인체 및 생태독성에 관한 연구는 활발하게 이뤄져 왔지만 알루미늄에 대해서는 체계적인 독성평가가 부족한 실정이며, 다양한 생물에서의 배출, 분포, 대사, 농축, 독성 등에 관한 연구자료의 축적이 필요한 상태이다. 하천수에서 음용수에 이르기까지 다양한 농도로 검출되는 알루미늄이 사람뿐만 아니라 수생태계에 미치는 영향을 추측하기에는 현재까지 충분한 연구가 이루어지지 않았다. 최근에 들어 다양한 수생생물을 이용한 알루미늄의 급성, 내분비계, 유전, 세포, 생식 독성에 관한 보고가 증가하고 있으며, 현재까지 보고된 사례들을 통해 수서무척추동물부터 양서류와 같은 수생고등척추동물에 알루미늄이 미치는 영향을 정리함으로써 향후 알루미늄 생태독성연구의 방향을 설정하기 위한 기초자료

\*Corresponding author: Chan Jin Park, Myung Chan Gye,  
Tel. 02-2220-0958, Fax. 02-2298-9646, E-mail. cjpark85@hanyang.ac.kr,  
mcgye@hanyang.ac.kr

로 활용하고자 한다. 본 소고에서는 현재까지 수생동물 을 대상으로 독성평가가 수행된 바 있는 염화알루미늄 (aluminium chloride;  $AlCl_3$ ), 황산알루미늄 (aluminium sulfate;  $Al_2(SO_4)_3$ ), 불화알루미늄 (aluminium fluoride;  $AlF_3$ ), 질산알루미늄 (aluminium nitrate;  $Al(NO_3)_3$ ) 등의 알루미늄 화합물을 대상으로 연구결과들을 정리하였다.

### 국내외 알루미늄 화합물의 오염실태

광산에 의한 알루미늄 오염 사례로써 미국 캘리포니아 Keswick Reservoir로 유입되는 Spring Creek은 철광산에 인접하였으며, 이 하천에서 검출된 용존 알루미늄 농도는  $2,830 \mu g L^{-1}$ 로 확인되었다(Taylor *et al.* 2012). 알루미늄은 낮은 pH에서 더 쉽게 이온화되기 때문에 수계의 pH 감소는 침전물 또는 입자형태의 알루미늄 화합물로부터 알루미늄이 이온화될 수 있게 한다. 이와 관련하여 스웨덴의 Tyresta National Park에서는 산성화된 호수의 pH 조절을 위해 석회를 1978년부터 1991년까지 석회를 살포하였는데 Trehörningen Lake에서 마지막 석회 살포 후 1992~1994년에 검출된 알루미늄의 농도는  $7.8 \mu g L^{-1}$ 이었지만 점차 pH가 5.5~6.0 수준에 도달한 2006~2007년에 검출된 알루미늄의 농도는  $65 \mu g L^{-1}$ 까지 상승하였으며, 식물성플랑크톤(phytoplankton)이 동시에 급감하였다(Wällstedt *et al.* 2009). 펄프산업(pulp industry) 또한 주요 알루미늄 오염으로 지목받고 있다. 펄프공장 폐수가 유입되고 있는 중국의 Taiping River에서 검출된 용존 알루미늄 농도는 2008년 3~5월에  $154 \pm 126 \mu g L^{-1}$ , 2009년 3~5월에  $264 \pm 346 \mu g L^{-1}$ , 2010년 3~5월에  $261 \pm 136 \mu g L^{-1}$ , 2010년 6~7월에  $237 \pm 67 \mu g L^{-1}$ 로 측정되었으며, 이는 인근 수계에서 측정된 평균 용존 알루미늄 농도( $72 \mu g L^{-1}$ )보다 약 3배 높았다(Wang *et al.* 2013). 수계에서 검출되는 용존 알루미늄의 농도는 계절에 따라 변하는데 남아프리카의 Umdloti Reservoir에서는 봄, 여름, 가을에 각각  $0.157 \pm 0.0006 mg L^{-1}$ ,  $0.037 \pm 0.003 mg L^{-1}$ ,  $1.875 \pm 0.0001 mg L^{-1}$  농도의 용존 알루미늄이 검출되었으며, 이 호수로부터 물이 유입되는 Umdloti River에서 봄, 여름, 가을에 각각  $0.054 \pm 0.001 mg L^{-1}$ ,  $0.046 \pm 0.004 mg L^{-1}$ ,  $0.930 \pm 0.0001 mg L^{-1}$  농도의 용존 알루미늄이 검출되었다. 이 지역에서 가을에 발생하는 용존 알루미늄의 증가는 건조기에 수량감소 때문이다(Olaniran *et al.* 2014). 이와 같이 인위적, 자연적인 원인에 의해 발생한 수계 내 알루미늄 오염은 다른 금속이온들과 마찬가지로 수생생물에게 농축

된다. 남아프리카의 Olifants River에서 산업 또는 생활 폐수에 오염된 지점에서 검출된 알루미늄 농도는  $64 mg L^{-1}$ 였으며, 주변의 육상식물 뿌리(root)에서  $11,111 mg kg^{-1}$ , 줄기(shoot)에서  $640 mg kg^{-1}$ 의 알루미늄이 검출되었다. 또한, 동일 수계 내에서 광산 및 생활폐수에 의해 오염된 지점의 경우 검출된 알루미늄 농도는  $6.36 mg L^{-1}$ 였으며, 주변 식물을 분석한 결과 뿌리에서  $47,996 mg kg^{-1}$ , 줄기에서  $3,961 mg kg^{-1}$ 의 알루미늄이 검출되었다(Genthe *et al.* 2013). 물에서 검출된 알루미늄의 농도가 낮은 지역에서도 높은 수준의 생물농축이 발생한 결과는 오염배출원의 특성에 따른 알루미늄 화합물 형태의 차이 및 함께 배출되는 다른 화학물질의 영향에 의해 생물에 농축되는 정도에 차이가 발생할 수 있음을 의미한다.

국내에는 알루미늄을 생산, 정제시설이 없지만, 알루미늄 오염실태는 주로 폐광산을 대상으로 조사되었다. 우리나라 금속광산은 전국에 1,000개 이상이 분포하지만, 대부분이 1980년대 이후에 폐광되었다(Jung *et al.* 2004). 그러나 최근에 다수의 폐광산 침출수로 인한 광산하류 수계 및 토양오염이 보고되었으며, 이에 따른 수계의 금속이온 및 화합물에 의한 오염은 중요한 환경문제로 대두되었다(Choi *et al.* 2004). 국내 폐광산 인근의 알루미늄 오염에 관한 보고로 2006년에 울진 폐광산 인근의 알루미늄 검출사례가 있다. 폐광산 및 광미를 매립한 지역으로부터 각종 중금속과 더불어 알루미늄이 수계로 유입되고 있었다. 울진 폐광산과 근접한 계곡에서 2월, 5월, 7월에 각각  $0, 56.5, 140 \mu g L^{-1}$ 의 알루미늄이 검출되었으며, 광미를 매립된 지점에서 2월, 5월, 7월에 각각  $15,940, 10,500, 21,260 \mu g L^{-1}$ 의 알루미늄이 검출되었다. 또한 광미 매립지로부터 이어지는 계곡부에서 2월, 5월, 7월에 각각  $373, 124, 240 \mu g L^{-1}$ 의 알루미늄이 검출되었다(Lee and Choi 2008). 따라서 광미 매립지에서는 강우가 없는 시기에도 지속적으로 알루미늄이 유출되며, 폐광산 유래의 알루미늄은 강우가 집중되는 여름에 주로 유출되는 것을 보여준다. 또한, 남아프리카의 Olifants River 사례로 볼 때, 알루미늄 검출량이 유사한 울진 폐광산 인근의 식물에도 알루미늄이 과잉축적되었을 것으로 판단된다. 산지 계곡에 서식하는 다양한 수생생물은 폐광산에서 유래한 알루미늄에 직접적으로 노출되며, 이에 따른 개체 및 개체군의 건강성이 심각하게 손상될 것으로 예상된다. 서울특별시에서 일반인이 접근할 수 있는 음용수(drinking water)에 대한 알루미늄 농도분석 결과 WHO에서 제안하는 음용수 한계치( $0.9 mg L^{-1}$ )를 초과한 곳은 없었지만 일부 지역에서  $0.2 mg L^{-1}$  이상의

알루미늄이 검출되었다(WHO 2010; Kim *et al.* 2013).

## 수생동물에서 알루미늄 화합물의 독성

### 1. 염화알루미늄 (Aluminium chloride; $AlCl_3$ )의 독성

#### 1) 절지동물 (Arthropoda)

Mexico에 있는 Aguascalientes주의 San Pedro River을 따라 38개 지점을 지정하여 2005, 2006년에 갈수기와 우기에 강물을 채취하여 atomic absorption 방법으로 알루미늄 농도를 측정된 결과, 2005년 갈수기의 알루미늄 농도는  $0.06 \sim 62.6 \text{ mg L}^{-1}$ , 우기의 알루미늄 농도는  $0.1 \sim 5.85 \text{ mg L}^{-1}$ , 2006년 갈수기의 알루미늄 농도는  $0.18 \sim 9.05 \text{ mg L}^{-1}$ , 우기의 알루미늄 농도는  $0.16 \sim 7.858 \text{ mg L}^{-1}$ 로 측정되었다. 현장 측정결과를 기반으로 갯 부화한 윤충 (rotifer; *Lecane quadridentata*)에 염화알루미늄을  $0.0008 \sim 0.5 \text{ mg L}^{-1}$  농도로 48시간 동안 처리한 결과, LC50  $0.1572 \text{ mg L}^{-1}$ , NOEC  $0.001 \text{ mg L}^{-1}$ , LOEC  $0.01 \text{ mg L}^{-1}$ 를 도출하였다(Guzman *et al.* 2010). 이는 현존 알루미늄의 농도 범위에서 윤충류 생존율이 영향을 받을 수 있음을 의미하며, 특히 갈수기에 증가하는 알루미늄의 농도는 윤충류 서식을 불가능하게 할 수 있는 수준으로 먹이사슬 교란 유발 가능성을 암시한다. 곤충강 (Insecta) 노린재목 (Hemiptera)에 속하는 lesser water boatman (*Corixa punctata*) 성충을 대상으로 한 연구에서 pH 3.0에서  $5 \text{ mg L}^{-1}$ 의 염화알루미늄을 20시간 동안 처리한 결과  $Na^+$  유입이 감소되는 것이 확인되었다(Witters *et al.* 1984). 이러한 결과는 물속에서 호흡하지 않는 곤충의 경우에도 알루미늄 노출에 의해 체내 이온항상성 (ionic homeostasis) 유지에 장애가 발생함을 의미한다.

#### 2) 어류 (Fish)

부화 후 6~8개월이 경과한 제브라피쉬 (*Danio rerio*)에 pH 5.8과 6.8에서 치사량 수준의 염화알루미늄  $50 \mu\text{g L}^{-1}$ 을 96시간 동안 처리한 결과 pH 6.8에서는 독성이 관찰되지 않았지만 pH 5.8에서 이동성 (locomotor activity), 이동거리 (distance traveled), 최대속도 (maximum speed), 절대선회각 (absolute turn angle) 등이 각각 25%, 14.1%, 24%, 12.7% 감소하였고 뇌조직의 acetylcholinesterase (AChE) 활성이 증가하였다(Senger *et al.* 2011). AChE는 시냅스말단에서 분비되는 신경전달물질 acetylcholine을 acetate와 choline으로 가수분해하는 효소로 독성물질에 의한 신경기능교란 바이오마커로써 사용된다(McGleenon *et al.* 1999). 따라서 염화알루미늄 처리에 따른 제브라피

쉬의 행동학적 변화는 신경계교란에 따른 것으로 사료된다. 어류 세포를 이용한 연구로 제브라피쉬 섬유아세포 (ZF4)에 염화알루미늄을  $100 \mu\text{M}$  농도로 24시간 동안 처리한 결과 약 90%의 세포가 사멸하였고,  $50 \mu\text{M}$ 에서는 DNA 단일나선 손상 (DNA single strand break)이 증가하였다(Pereira *et al.* 2013). 제브라피쉬 치어에 염화알루미늄에 급성독성을 실험결과, 48 h LC50은  $7.92 \text{ mg L}^{-1}$ 로 나타났다(Griffitt *et al.* 2008). 난황전구단백질인 vitellogenin (VTG)은 암컷의 간에서 에스트로젠 (estrogen)에 의해 유도되어 혈액을 통해 난소로 이동하여 난자로 축적된다. 따라서 수컷에서는 에스트로젠성 내분비계 교란 물질의 영향을 받으면 유도되는 생체지표로 이용된다(Kendall *et al.* 1996). 무지개송어 (*Oncorhynchus mykiss*)의 간세포 (hepatocytes)에 17-beta estradiol ( $E_2$ )를  $2 \mu\text{M}$  농도로 처리하고, 이와 함께 염화알루미늄을 0, 1, 10, 20, 30, 60,  $100 \mu\text{M}$  농도로 5일간 처리 시 알루미늄 농도 의존적으로 VTG 단백질 발현의 감소가 확인되었다(Mugiya and Tanahashi 1998). 유사한 연구로서, 동일한 어종의 간세포에 0, 1, 10, 50,  $100 \mu\text{M}$  농도로 5일간 처리한 결과 VTG mRNA 발현량이 농도 의존적으로 감소하였으며, VTG 단백질 발현량은 대조군에 비해  $50 \mu\text{M}$ 에서 48% ( $p < 0.05$ ),  $100 \mu\text{M}$ 에서 20% ( $p < 0.01$ ) 감소하였다. 또한,  $10 \mu\text{M}$ 의 염화알루미늄을 3일간 처리한 뒤 다시 대조군 배양액으로 교체 후 7일간 VTG 단백질 발현량을 관찰한 결과, 대조군과 비슷한 수준으로 회복되었다(Hwang *et al.* 2000). 이는 알루미늄이 어류에서 여성호르몬성 내분비계교란효과를 유발할 수 있음을 보여준다. 대서양 연어 (*Salmo salar*)에  $50 \mu\text{g L}^{-1}$  염화알루미늄을 20일간 처리한 결과 유영능력이 감소하였고, 36일간 처리실험에서는 12일 경과시점부터 사료소비 감소와 체중량이 감소하였다. 시간 경과에 따라 사료소비는 정상수준으로 회복되었지만 체중량은 회복되지 않았다(Brodeur *et al.* 2001). 유사한 보고로서 약산성 조건에서 알루미늄에 노출된 무지개송어 또한 식욕이 감소하지만 12일후 사료 소비량이 정상 수준으로 회복되었다(Wilson *et al.* 1994, 1996; Wilson 1996). 대서양 연어에 담수와 해수조건에서  $30 \pm 7 \mu\text{g L}^{-1}$  염화알루미늄을 처리한 후 24시간 경과 시 담수조건에서 개체 내  $Cl^-$ 가 감소하였다. 또한,  $21 \sim 31 \mu\text{g L}^{-1}$  처리 후 60시간 경과 시 혈당이 증가하였다(Nilsen *et al.* 2010). 염화알루미늄에 의한 이온항상성 장애 및 혈당변화는 유사한 연구들에서도 보고된 바 있다(Waring *et al.* 1996; Allin and Wilson 1999, 2000; Kroglund *et al.* 2001; Monette and McCormick 2008). 대서양 연어에  $8 \pm 3 \mu\text{g mL}^{-1}$  염화알루미늄을 처리한 결과 아가미에 알루미

높이 축적되지 않았지만,  $15 \pm 9$ ,  $30 \pm 7 \mu\text{g mL}^{-1}$ 로 3일간 처리 후 아가미에 축적된 알루미늄 농도는 133,  $124 \mu\text{g g}^{-1}$ 으로 확인되었다. 또한, 동일 농도로 9일간 처리한 실험군에서  $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ -ATPase 활성이 감소하였다(Nilsen *et al.* 2010). 이는 알루미늄에 의한 아가미 기능의 장애가 혈액 삼투압조절의 장애를 유발함을 의미한다(Camargo *et al.* 2009).

### 3) 양서류 (Amphibia)

European common frog (*Rana temporaria*) 유생에 pH 4.4 조건에서  $0.8 \text{ mg L}^{-1}$ ,  $1.6 \text{ mg L}^{-1}$  염화알루미늄 처리 시 체중이 감소하였고, 모든 pH 구간에서 변태가 지연되었다.  $0.8 \text{ mg L}^{-1}$  염화알루미늄 처리 시 앞다리발생 단계까지만 도달하였으며,  $1.6 \text{ mg L}^{-1}$ 에서는 변태단계까지 도달하지 못하였다. 이는 알루미늄이 유생의 성장저해와 발달지연을 유발하고, 사망률을 증가시키기 때문으로 보고하였다(Cummins *et al.* 1986). 이는 수환경으로 유입되는 알루미늄이 양서류의 개체감소를 유발할 수 있음을 시사한다. *Rana cameranoi* 유생에  $0.2 \text{ mg L}^{-1}$  염화알루미늄을 처리한 결과, 배아독성과 기형발생, 다수정(polyspermy)을 증가시켜 수정억제효과가 있음을 보고하였다. 이러한 결과는 수환경에 잠재되어 있는 알루미늄이 양서류의 번식 및 초기발생에 악영향을 미칠 수 있음을 의미한다(Erdogan *et al.* 2001). 양서강 유미목의 Smooth newt (*Triturus vulgaris*)와 Palmate newt (*Triturus helveticus*)의 유생에 pH 4.5 조건에서  $0.222 \text{ mg L}^{-1}$  염화알루미늄을 6주간 처리하면 유생의 성장이 저해되었다(Brady *et al.* 1995). 이는 무미류(Anura) 및 유미류(Urodela) 모두 알루미늄이 성장저해 효과를 유발함을 보여준다. 이상의 기준에 보고된 염화알루미늄의 수생동물에 대한 독성효과를 Table 1에 요약하였다.

## 2. 황산알루미늄 (Aluminium sulfate; $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3$ )의 독성

### 1) 절지동물 (Arthropoda)

패충강(Ostracoda)에 속하는 *Stenocypris major*에 대한 알루미늄의 급성독성은 96 h LC50  $3.01 \text{ mg L}^{-1}$ 로 확인되었다. 이는 동일한 실험에서 확인된 구리( $25.20 \mu\text{g L}^{-1}$ ), 카드뮴( $13.15 \mu\text{g L}^{-1}$ ), 아연( $1,189.83 \mu\text{g L}^{-1}$ ), 납( $526.19 \mu\text{g L}^{-1}$ ), 철( $278.90 \mu\text{g L}^{-1}$ ), 망간( $510.24 \mu\text{g L}^{-1}$ ) 등의 LC50값보다는 높지만 니켈에 대한 LC50값( $19,743.75 \mu\text{g L}^{-1}$ )보다 6배 낮은 것이다. 그러나 알루미늄의 생물농축성은 니켈보다 높았다(Shuhaimi-Othman *et al.* 2011a). 동일 연구자의 연구로서 곤충강 파리목(Diptera)

에 속하는 자바깔따구(*Chironomus javanus*)의 경우 알루미늄에 대한 96 h LC50은  $1.43 \text{ mg L}^{-1}$ 로서, 니켈( $5.32 \text{ mg L}^{-1}$ ), 아연( $5.57 \text{ mg L}^{-1}$ ), 망간( $5.27 \text{ mg L}^{-1}$ )보다 더 강한 독성을 갖는 것이 확인되었다. 특히하게도 자바깔따구에서 알루미늄의 생물농축성은 다른 7종의 금속이온보다 강하게 나타났다(Shuhaimi-Othman *et al.* 2011b).

### 2) 연체동물 (Mollusca)

복족강(Gastropoda)에 속하는 Malaysian Trumpet Snail (*Melanoides tuberculata*)에서 알루미늄의 급성독성은 96 h LC50  $68.23 \mu\text{g L}^{-1}$ 로 확인되어 패충강의 *S. major*와 곤충강의 *C. javanus*보다 알루미늄 저항성이 낮았지만 생물농축성은 다른 금속들보다 매우 낮았다(Shuhaimi-Othman *et al.* 2012a).

### 3) 어류 (Fish)

경골어강(Osteichthyes)에 속하는 Seluang fish (*Rasbora sumatrana*)와 guppy (*Poecilia reticulata*) 2종에 황산알루미늄의 급성독성을 분석한 결과, *R. sumatrana*와 *P. reticulata* 각각에 대한 96 h LC50은  $1.53 \text{ mg L}^{-1}$ ,  $6.76 \text{ mg L}^{-1}$ 로 나타났다(Shuhaimi-Othman *et al.* 2013). Australian Spotted Gudgeon (*Mogurnda mogurnda*)의 갓 부화한 치어(hatched sac-fry)를 이용한 급성독성실험에서 pH 5.0에서 0, 250, 500, 750, 1000, 2000, 3000, 4000  $\mu\text{g L}^{-1}$  황산알루미늄을 4일간 처리한 결과, 96 h LC50은 0.3~0.5  $\text{mg L}^{-1}$ 로 나타났다(Camilleri *et al.* 2003). 갓 부화한 금붕어(*Carassius auratus gibelio*) 치어(fry)를 이용한 급성독성 연구에서 pH 5.25에서  $50 \text{ mg L}^{-1}$  황산알루미늄을 3일간 처리 시 아가미덮개 움직임이 감소하였다. 또한, pH 5.75에서  $150 \text{ mg L}^{-1}$  황산알루미늄 처리 시 아가미덮개 움직임 감소와 함께 비유형 개체가 증가하였다. 동일 연구에서 pH 4.75 조건에서  $300 \text{ mg L}^{-1}$ 의 황산알루미늄을 7일간 처리시 치어 생존율이 유의하게 감소하였고, 난황(yolk) 소비를 감소시켜 난황주머니(yolk sac)의 길이가 증가하였다(Taghizadeh *et al.* 2013). *Prochilus lineatus*에서 20 g 내외의 개체들에 pH 5.2에서  $438.0 \pm 36.3 \mu\text{g L}^{-1}$  황산알루미늄을 4일간 처리 시 헤모글로빈수치가 증가하였으며, 혈중 헤모글로빈(Hemoglobin)농도, 적혈구 용적(hematocrit), 적혈구(erythrocyte)수 증가 및 혈액삼투압의 감소와 아가미에서  $\text{Na}^+/\text{K}^+$ -ATPase 활성이 감소하였다. 이는 아가미 기능이상으로 인해 혈액삼투압 조절장애가 발생했음을 의미한다(Camargo *et al.* 2009). 이는 금붕어에서 나타난 아가미덮개 움직임 감소와 더불어 아가미에서 이온교환 장애가 어류의 생존을 직접 위협하는 급성독성효과임을 의미한다. 알루미늄에 의한

**Table 1.** Toxicological effects of Aluminium chloride on aquatic animals

Taxa	Species	Exposure / Stage / duration	Effects	References
Rotifera	<i>Lecane quadridentata</i>	Various concentration, Aquatic exposure / Asexual eggs / 48 h	LC50 0.1572 mg L <sup>-1</sup> ; NOEC 0.001 mg L <sup>-1</sup> ; LOEC 0.01 mg L <sup>-1</sup>	Guzman <i>et al.</i> 2009
Insecta	<i>Corixa punctata</i>	5 mg L <sup>-1</sup> (pH 3), Aquatic exposure / Imago / 20 h	Decrease of Na <sup>+</sup> -influx	Witters <i>et al.</i> 1984
Fish	<i>Danio rerio</i>	Various concentration, Aquatic exposure / Female / 48 h	LC50 7.92 mg L <sup>-1</sup>	Griffitt <i>et al.</i> 2008
		50 µg L <sup>-1</sup> (pH 5.8, 6.8), Aquatic exposure / 6~8 month-old / 24 h and 96 h	Increase of AchE activity (after 96 h of AlCl <sub>3</sub> exposure at pH 5.8) Impaired locomotor activity (25%)	Senger <i>et al.</i> 2011
		5 µM, Culture / Fibroblasts / 1 day	Increased number of DNA double-strand breaks	Pereira <i>et al.</i> 2013
		30 µM, Culture / Fibroblasts / 1 day	Increase of cytotoxicity (20%)	
		50 µM, Culture / Fibroblasts / 1 day	Increase of DNA breakage	
	<i>Oncorhynchus mykiss</i>	50 µM, culture / Hepatocyte / 5 days	Decrease of E <sub>2</sub> -induced vitellogenin protein level	Hwang <i>et al.</i> 2000
		10 µM, culture / Hepatocyte / 5 days	Decrease of E <sub>2</sub> -induced vitellogenin protein level	
		60 µM, culture / Hepatocyte / 5 days	Decrease of E <sub>2</sub> -induced vitellogenin protein level	Mugiya and Tanahashi 1998
	<i>Salmo salar</i>	28~64 µg (pH 5.4~6.3), Aquatic exposure / Smolts / 5 days	Decrease of T3, Gill Na <sup>+</sup> , K <sup>+</sup> -ATPase activity	Monette <i>et al.</i> 2008
		50 µg L <sup>-1</sup> (pH 6.6), Aquatic exposure / 395 ± 132 g and 33.4 ± 3.1 cm / 36 days	Decrease of weight loss, food consumption	Brodeur <i>et al.</i> 2001
8 ± 3 µg mL <sup>-1</sup> (pH 6.9), Aquatic exposure / Smolts / 3 and 9 days		No change in gill Al concentration	Nilsen <i>et al.</i> 2010	
15 ± 9 µg mL <sup>-1</sup> (pH 5.9), Aquatic exposure / Smolts / 3 and 9 days		Increase of gill Al accumulation at 3 (48 ± 0.2 µg g <sup>-1</sup> ) and 9 days (30 ± 2.5 µg g <sup>-1</sup> ) after exposure		
30 ± 7 µg mL <sup>-1</sup> (pH 5.6), Aquatic exposure / Smolts / 3 and 9 days		Increase of gill Al accumulation Decrease of gill Na <sup>+</sup> , K <sup>+</sup> -ATPase activity Increase of plasma glucose		
Amphibia	<i>Rana cameranoi</i>	1.5 mM (200 mg L <sup>-1</sup> ; pH 7.8), Culture / Eggs / 36 h	Duration of potential change induced by fertilization was significantly reduced Increase of the risk of polyspermy	Erdogan <i>et al.</i> 2001
		<i>Rana temporaria</i>	0.8 and 1.6 mg L <sup>-1</sup> (pH 4.4), Aquatic exposure / Tadpoles / 12 days	Reduce growth, slow development and increase mortality
	<i>Triturus vulgaris</i>	0.222 mg L <sup>-1</sup> (pH 7), Aquatic exposure / Eggs (stage 35~42) / 6 weeks	Decrease of growth rate	Brady <i>et al.</i> 1995

LC50, median lethal concentration; LOEC, lowest observed effect concentration; NOEC, no observed effect concentration; AchE, acetylcholinesterase; E<sub>2</sub>, 17-beta estradiol

산화스트레스 유발연구로서 200 g 내외의 성체 잉어 (*Cyprinus carpio*)에  $0.05 \text{ mg L}^{-1}$  황산알루미늄을 처리 후 12시간 경과 시 림프구(lymphocytes)의 과산화물제거효소(superoxide dismutase; SOD) 활성이 감소하였고, 카탈라아제(catalase; CAT)활성은 증가하였다. 또한, 2일 경과 시 림프구의 지질과산화(lipid peroxidation)가 증가하였으며, 3일 경과 시 림프구 내에 산화단백질이 유의적으로 증가하였다(García-Medina *et al.* 2010). 이와 유사한 연구로서 Twospot Astyanax (*Astyanax bimaculatus*) 암컷에 pH 5.3에서  $0.6 \text{ mg L}^{-1}$  황산알루미늄을 4일간 처리 시 난소와 혈중 총단백질양이 감소하고 혈중 갑상선호르몬 triiodothyronine (T3) 농도와 지질과산화(lipid peroxidation)가 증가하였다(Vieira *et al.* 2013). 어류에서 황산알루미늄의 산화스트레스 유발원인을 파악하기 위한 연구로 2.3 g의 초어(Grass carp; *Ctenopharyngodon idella*) 치어에 pH 7.5~8.0에서  $1 \text{ mg L}^{-1}$  황산알루미늄 처리 후 24시간 경과 시 뇌조직에서 카탈라아제(catalase; CAT) 활성이 감소하고 도파민(dopamine) 농도가 증가하였다. 도파민 변형물로서 부신수질에서 분비되고 교감신경계 신경전달물질로 작용하는 노르아드레날린(noradrenaline)은 증가하는 반면 아드레날린(adrenaline)은 감소하였다. 또한, 48시간 경과 시 뇌조직 지질과산화(lipid peroxidation) 및 과산화물제거효소(superoxide dismutase; SOD) 활성이 증가하였다(Fernández-Dávila *et al.* 2012). 도파민과 노르아드레날린은 산소분자와 반응하여 활성산소(reactive oxygen species; ROS)를 생성한다(Verstraeten *et al.* 2008). 따라서 어류에서 황산알루미늄 노출은 신경전달물질 분비 이상 및 이에 따른 산화스트레스를 증가시킬 수 있다. 황산알루미늄에 의한 유전독성(genotoxicity) 및 세포독성(cytotoxicity) 연구로 200 g 내외의 성체 잉어(*Cyprinus carpio*)에  $0.05 \text{ mg L}^{-1}$  황산알루미늄을 처리 후 1일 경과 시 comet assay로 분석한 림프구 DNA 손상이 증가하였다. 또한, 림프구들의 세포분열주기 분석결과  $0.05 \text{ mg L}^{-1}$  황산알루미늄 처리 후 12시간 경과 시 림프구에서 세포자살(apoptosis)을 의미하는 sub-G1기의 증가하였고,  $0.05 \text{ mg L}^{-1}$  황산알루미늄 처리 후 3일 경과 시 terminal deoxynucleotidyl transferase-mediated dUTP nick end labeling (TUNEL) 시험으로 분석한 세포사(apoptosis)가 증가하였다(García-Medina *et al.* 2011). 이는 수환경의 알루미늄이 수생생물의 DNA 파괴 및 이로 인한 세포독성을 유발할 수 있음을 보여준다. 황산알루미늄의 내분비계교란효과 분석사례로 암컷 나일틸라피아(Nile tilapia; *Oreochromis niloticus*)에서 pH 7.1에서  $0.6 \pm 0.1 \text{ } \mu\text{g mL}^{-1}$  황산알루미늄을 4일간 처리

시 생식소 지질(gonad lipids)은 증가하고 간 지질(liver lipids)은 감소하였다. pH 5.7에서 낮은 농도인  $0.5 \pm 0.1 \text{ } \mu\text{g mL}^{-1}$  황산알루미늄을 처리 시 생식소 지질 증가 및 간 지질 감소 뿐 아니라 남성호르몬 전구체인  $17\alpha$ -hydroxyprogesterone ( $17\alpha$ -OHP)의 혈중농도가 감소하였다. 이는 황산알루미늄에 의해 간 지질의 생식소 이동이 저해될 뿐 아니라 호르몬 대사장애를 유발함을 의미한다(Correia *et al.* 2010). 스테로이드 대사에 관여하는 효소들에 알루미늄이 영향을 미쳤을 것으로 추측하고 있지만 구체적인 기작 규명을 위해서는 연구가 더 진행되어야 할 것이다. 알루미늄의 스트레스 유발 및 호르몬 교란효과 관련 연구로서 체중 200~500 g의 갈색송어(Brown trout; *Salmo trutta*) 미성숙 암컷에 pH 5.0에서  $12.5 \text{ } \mu\text{g L}^{-1}$  황산알루미늄을 10일 이상 처리 시 혈중 스트레스 반응 호르몬인 코티솔(cortisol)과 포도당(glucose) 농도, 혈중 갑상선호르몬 thyroxine (T4), triiodothyronine (T3) 농도가 증가하였다(Waring *et al.* 1996). 이는 알루미늄 노출이 어류의 호르몬체계 및 대사를 변형시킬 수 있음을 의미한다. 황산알루미늄의 생식독성 및 스트레스 유발 효과와 관련된 연구로서 145일 동안 다양한 실험 조건(control; pH 4.75; pH 4.75+Al ( $0.2 \text{ mg L}^{-1}$ ); pH 5.25; pH 5.25+Al ( $0.2 \text{ mg L}^{-1}$ ))에 북유럽산 흰송어(European cisco; *Coregonus albula*)를 노출시켰을 때, 암컷의 산란율은 각 실험군에서 81%, 36%, 14%, 61%, 25%로 나타났고, 수컷 정소퇴화가 관찰되었다. pH가 낮고, 알루미늄 농도가 높을수록 개체폐사율이 증가하고 성장율은 감소하였다. pH 4.75에서  $0.2 \text{ mg L}^{-1}$  황산알루미늄 처리 시 혈액 내 포도당 농도가 상승하였다(Vuorinen *et al.* 2003), 이는 외부 스트레스에 반응하여 부신피질호르몬인 코르티코이드(corticoid)가 증가한 데 따른 2차반응이다(Mazeaud *et al.* 1977; Wendelaar 1997). 한편 pH 4.75에서  $0.2 \text{ mg L}^{-1}$  황산알루미늄 처리 시 아가미엽(gill lamellar)에서 이온의 손실이 발생하고, 아가미세엽상피(gill filament epithelium)가 비정상적으로 비후되었다(Laurent and Perry 1991). 흰송어의 근연종인 연어, 갈색송어, 무지개송어, 강송어에서 알루미늄 처리는 식욕을 감퇴시켰다(Tam *et al.* 1988; Mount *et al.* 1988a, b; Wilson *et al.* 1994). 위의 연구결과들을 종합해 볼 때, 약산성(pH 5.0~6.0) 조건에서  $1 \text{ mg L}^{-1}$  내외의 황산알루미늄은 급성독성, 내분비계교란, 대사교란, 행동이상을 유발하는 것으로 판단된다. 또한, 보다 낮은 농도( $0.1 \sim 1.0 \text{ mg L}^{-1}$ )에서도 약산성조건에서 황산알루미늄은 어류에 산화스트레스 유발 및 이에 따른 생리학적, 조직학적 변화를 유발할 수 있음을 알 수 있다.

**Table 2.** Toxicological effects of Aluminium sulfate on aquatic animals

Taxa	Species	Exposure / Stage / duration	Effects	References
Insecta	<i>Chironomus javanus</i>	0.32 ~ 3.2 mg L <sup>-1</sup> , Aquatic exposure / larvae (approximately 1.0 cm body length) / 96 h	24 h LC50 15.85 mg L <sup>-1</sup> 48 h LC50 10.53 mg L <sup>-1</sup> 72 h LC50 2.68 mg L <sup>-1</sup> 96 h LC50 1.43 mg L <sup>-1</sup>	Shuhaimi-Othman <i>et al.</i> 2011b
Ostracoda	<i>Stenocypris major</i>	1000 ~ 18000 µg L <sup>-1</sup> (pH 6.51) / Adult / 96 h	96 h LC50 3.01 mg L <sup>-1</sup>	Shuhaimi-Othman <i>et al.</i> 2011a
Gastropoda	<i>Melanoides tuberculata</i>	0.14 ~ 45.59 mg L <sup>-1</sup> , Aquatic exposure / Adult (mean wet weight 22.5 ± 1.6 mg) / 96 h	96 h LC50 68.23 mg L <sup>-1</sup>	Shuhaimi-Othman <i>et al.</i> 2012a
Fish	<i>Astyanax bimaculatus</i>	0.6 ± 0.02 mg L <sup>-1</sup> (pH 5.3), Aquatic exposure / Female / 4 days	Decrease of liver lipid, total protein concentration in ovary and plasma Increase of plasma T3 and lipid peroxidation	Vieira <i>et al.</i> 2013
	<i>Carassius auratus gibelio</i>	50, 150 mg L <sup>-1</sup> (pH 5.25, 5.75), Aquatic exposure / Fry / 3 days	Decrease of gill cover movements in newly hatched yolk sac fry	Taghizadeh <i>et al.</i> 2013
		150 mg L <sup>-1</sup> (pH 5.75), Aquatic exposure / Fry / 3 days	Increased number of non-swimming fry	
		300, 600 mg L <sup>-1</sup> (pH 4.75), Aquatic exposure / Fry / 7 days	Decrease of survival rates in newly hatched yolk sac fry Increase of yolk sac length in fry	
		50, 100 mg L <sup>-1</sup> (pH 6.5), Aquatic exposure / Fry / 10 days	Decrease of survival rates in yolk sac fry	
	<i>Coregonus albula</i>	0.2 mg L <sup>-1</sup> (pH 4.75, 5.25), Aquatic exposure / Mature / 145 days	Decrease of spawning rate in female Abnormality in testis in male Decrease of growth rate Increase of blood glucose level	Vuorinen <i>et al.</i> 2003
	<i>Ctenopharyngodon idella</i>	0.1 mg L <sup>-1</sup> (pH 7.5 ~ 8.0), Aquatic exposure / Average weight of 2.3 g / 12, 24, 48, 72 and 96 h	Increase of lipid peroxidation, SOD activity, dopamine level, noradrenaline level Decrease of catalase activity, adrenaline level	Fernández-Dávila <i>et al.</i> 2012
	<i>Cyprinus carpio</i>	0.05, 120, 239 mg L <sup>-1</sup> (pH 7.5 ~ 8.0), Aquatic exposure / 18.39 ± 0.31 cm in length and weighing 201.71 ± 7.8 g / 4 days	Increased mucus production, lipid peroxidation, catalase activity Decrease of SOD activity	García-Medina <i>et al.</i> 2010
		0.05, 120, 239 mg L <sup>-1</sup> (pH 7.5 ~ 8.0), Aquatic exposure / 201 ± 71 g and 18.39 ± 0.31 cm / 4 days	Increase DNA breakage, oxidative DNA damage Reduction in cells in G1/G0 stage and a rise in cells in sub-G1 stage	García-Medina <i>et al.</i> 2011
	<i>Mogurnda mogurnda</i>	0 ~ 4000 µg L <sup>-1</sup> (pH 5.0 ± 0.2) Aquatic exposure / hatched sac-fry (< 10 h old) / 96h	96 h LC50 0.3 ~ 0.5 mg L <sup>-1</sup> Decrease of liver lipids	Camilleri <i>et al.</i> 2003
	<i>Oreochromis niloticus</i>	0.6 ± 0.1 µg mL <sup>-1</sup> (pH 7.1), Aquatic exposure / Female / 4 days	Increase of gonad lipids	Correia <i>et al.</i> 2010
		0.5 ± 0.1 µg mL <sup>-1</sup> (pH 5.7), Aquatic exposure / Female / 4 days	Increase of gonads lipids Decrease of liver lipids Decrease of plasma 17α-hydroxyprogesterone concentration	

Table 2. Continued

Taxa	Species.5	Exposure / Stage / duration	Effects	References
Fish	<i>Poecilia reticulata</i>	0.1, 1.0, 3.2, 8.7, 18 mg L <sup>-1</sup> (pH 6.50±0.1), Aquatic exposure / Adult / 96 h	96 h LC50 6.76 mg L <sup>-1</sup>	Shuhaimi-Othman <i>et al.</i> 2013
	<i>Prochilus lineatus</i>	438.0±36.3 µg L <sup>-1</sup> (pH 5.2), Aquatic exposure / 20.07±6.08 g and 12.23±1.23 cm / 4 days	Increase of hemoglobin content Decrease of plasma osmolarity and Na <sup>+</sup> /K <sup>+</sup> -ATPase activity	Camargo <i>et al.</i> 2009
	<i>Rasbora sumatrana</i>	0.1, 1.0, 3.2, 8.7, 18 mg L <sup>-1</sup> (pH 6.50±0.0.1), Aquatic exposure / Adult / 96 h	96 h LC50 1.53 mg L <sup>-1</sup>	Shuhaimi-Othman <i>et al.</i> 2013
	<i>Salmo trutta</i>	12.5 µg L <sup>-1</sup> (pH 5.0), Aquatic exposure / Immature female / 5 days	Increase of cortisol, glucose, T4, T3 levels	Waring <i>et al.</i> 1996
Amphibia	<i>Duttaphrynus melanostictus</i>	1.35~13.5 mg L <sup>-1</sup> (pH 5.0), Aquatic exposure / Tadpoles (approximately 2.0~2.5 mm body length) / 96 h	96 h LC50 1.9 mg L <sup>-1</sup>	Shuhaimi-Othman <i>et al.</i> 2012b

LC50, median lethal concentration; SOD, superoxide dismutase; T4, thyroxine; T3, triiodothyronine

#### 4) 양서류 (Amphibia)

몸길이 2.0~2.5 mm 범위의 Asian common toads (*Duttaphrynus melanostictus*) 유생에 pH 5.0에서 1.35, 2.1, 5.6, 10.0, 13.5 mg L<sup>-1</sup> 황산알루미늄을 처리 시 96 h LC50 은 1.9 mg L<sup>-1</sup>으로 확인되었다(Shuhaimi-Othman *et al.* 2012b). 이는 양서류도 어류와 마찬가지로 약산성 (pH 5.0~6.0) 조건에서 1 mg L<sup>-1</sup> 내외의 황산알루미늄에 의해 생존율이 감소할 수 있음을 의미한다. 또한, 보다 낮은 농도(0.1~1.0 mg L<sup>-1</sup>)의 황산알루미늄에 의해 어류에서 보고된 산화스트레스 유발 및 이에 따른 생리학, 조직학적 변화를 유발할 수 있을 것으로 예상된다. 이상의 기준에 보고된 황산알루미늄의 수생동물에 대한 독성효과를 Table 2에 요약하였다.

### 3. 불화알루미늄 (Aluminium fluoride; AlF<sub>3</sub>)의 독성

#### 1) 절지동물 (Arthropoda)

단각목 (Amphipoda) 옆새우아목 (Gammaridea)의 *Gammarus pulex* 유충에 pH 4.9에서 0.23~0.27 mg L<sup>-1</sup> 불화알루미늄을 처리한 결과 개체 생존율이 감소하였다 (McCahon *et al.* 1989). 곤충강 잠자리목 (Odonata)의 Lake Emerald (*Somatochlora cingulata*) 유충에 pH 3.6, 4.2 조건에서 10~30 mg L<sup>-1</sup> 불화알루미늄을 처리 시 산소소비가 감소하였다 (Correa *et al.* 1985). 하루살이목 (Ephemeroptera)의 *Baetis rhodani* 유충에 pH 5에서 0.35 mg L<sup>-1</sup> 불화알루미늄을 처리한 결과 아가미 점액분비가 감소하였고, pH 4.7에서 0.78 mg L<sup>-1</sup> 불화알루미늄을 24

시간 처리한 결과 수면 위로 표류하였다 (Weatherley *et al.* 1988). 하루살이목의 *Ephemera danica*, *Heptagenia sulfurea*, *Heptagenia fuscogrisea* 유충에 0.5, 2 mg L<sup>-1</sup> 각각 불화알루미늄을 처리한 결과 삼투압조절과 이온수송에 이상, 호흡증가를 유발하였다 (Herrmann and Andersson 1987). 이상의 결과들에서 약산성조건에서 0.2 mg L<sup>-1</sup> 이상의 불화알루미늄은 수생절지동물의 생존에 매우 위협적인 것으로 사료된다.

#### 2) 어류 (Fish)

경골어강의 갈색송어 치어에 0.04~0.16, 0.49 mg L<sup>-1</sup> 불화알루미늄을 처리한 결과 칼슘유출이 증가하고 유입은 감소하였다 (Sayer *et al.* 1991). 북미곤들매기 (Brook trout; *Salvelinus fontinalis*) 치어에 불화알루미늄을 0.11~1 mg L<sup>-1</sup>로 11일간 처리하면 Na<sup>+</sup> 유입이 감소하는 반면 Na<sup>+</sup> 유출이 증가하였다 (Booth *et al.* 1988). 대서양 연어 치어에 5일 동안 pH 5, 5.5에서 0.2 mg L<sup>-1</sup> 불화알루미늄을 처리하고, pH 4.5, 6.1에서 0.075 mg L<sup>-1</sup> 불화알루미늄을 처리한 결과 저산소증 (hypoxia)이 증가하였다 (Neville *et al.* 1985). 무지개송어 성체에 pH 5에서 0.2 mg L<sup>-1</sup> 불화알루미늄을 3.5시간 동안 처리 시 아가미를 통한 이온유출이 증가하였다 (Witters *et al.* 1986). 또한, pH 5에서 0.2 mg L<sup>-1</sup> 불화알루미늄을 3일간 처리 시 아가미에서 삼투압조절과 산, 염기 조절에 중요한 Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>-ATPase와 탄산탈수효소 (carbonic anhydrase) 활성이 감소하였고 치어에서도 동일하게 관찰되었다 (Staurnes *et al.* 1984). 이상의 결과들은 불화알루미늄 노출이 어류에서 아가미



**Table 3.** Toxicological effects of Aluminium fluoride on aquatic animals

Taxa	Species	Exposure / Stage / duration	Effects	References
Arthropoda	<i>Baetis rhodani</i>	0.35 mg L <sup>-1</sup> (pH 5.0), Aquatic exposure / Nymph / Unknown	No mucus was seen on mayfly gills	McCahon <i>et al.</i> 1987
		0.23~0.27 mg L <sup>-1</sup> (pH 4.9), Aquatic exposure / Nymph / Unknown	Showed increased drift	Weatherley <i>et al.</i> 1988
	<i>Ephemera danica</i>	0.5 and 2 mg L <sup>-1</sup> (pH 4.0 and 4.8), Aquatic exposure / Nymph / 10 days	Increased respiration caused by impaired osmoregulation and ion transport	Herrmann and Andersson 1987
	<i>Gammarus pulex</i>	0.7 mg L <sup>-1</sup> (pH 4.7), Aquatic exposure / Nymph / 24 h	Increase of mortality	McCahon <i>et al.</i> 1989
	<i>Heptagenia fuscogrisea</i>	0.5 and 2 mg L <sup>-1</sup> (pH 4.0 and 4.8), Aquatic exposure / Nymph / 11 days	Increased respiration caused by impaired osmoregulation and ion transport	Herrmann and Andersson 1987
	<i>Heptagenia sulfurea</i>	0.5 and 2 mg L <sup>-1</sup> (pH 4.0 and 4.8), Aquatic exposure / Nymph / 12 days	Increased respiration caused by impaired osmoregulation and ion transport	
	<i>Somatochlora cingulata</i>	10~30 mg L <sup>-1</sup> (pH 4.2 and 3.6), Aquatic exposure / Nymph / Unknown	Decrease of oxygen consumption	Correa <i>et al.</i> 1985
Fish	<i>Salmo gairdneri</i>	0.2 mg L <sup>-1</sup> (pH 5.0), Aquatic exposure / Fry / 3 days	Reduced Na <sup>+</sup> , K <sup>+</sup> -ATPase and carbonic anhydrase activities	Staurnes <i>et al.</i> 1984
		0.075 mg L <sup>-1</sup> (pH 6.1), Aquatic exposure / Fry / 5 days	Increase of hypoxia	Neville <i>et al.</i> 1985
		0.075 mg L <sup>-1</sup> (pH 4.5), Aquatic exposure / Fry / 5 days	Increase of hypoxia	
		0.2 mg L <sup>-1</sup> (pH 5.0, 5.5), Aquatic exposure / Fry / 5 days	Increase of hypoxia	
		0.35 mg L <sup>-1</sup> (pH 4.1), Aquatic exposure / Adult / 3.5 h	Lost ions through the gills	Witters <i>et al.</i> 1986
	<i>Salmo salar</i>	0.2 mg L <sup>-1</sup> (pH 5.0), Aquatic exposure / Fry / 3 days	Reduced Na <sup>+</sup> , K <sup>+</sup> -ATPase and carbonic anhydrase activities	Staurnes <i>et al.</i> 1984
	<i>Salmo trutta</i>	0.04~0.16 or 0.49 mg L <sup>-1</sup> (pH 5.8~6.6), Aquatic exposure / Fry / Unknown	Increase of net efflux of Ca <sup>2+</sup> and decrease of Ca <sup>2+</sup> influx	Sayer <i>et al.</i> 1991
	<i>Salvelinus fontinalis</i>	0.11~1.00 mg L <sup>-1</sup> (pH 4.4~5.2), Aquatic exposure / Fry / 11 days	Reduced Na <sup>+</sup> influx as well as stimulated its efflux	Booth <i>et al.</i> 1988

기능 장애와 호흡곤란을 일으키며 이온항상성 유지를 방해함을 보여준다. 이상의 기준에 보고된 불화알루미늄의 수생동물에 대한 독성효과를 Table 3에 요약하였다.

**4. 질산알루미늄 Aluminium nitrate; Al(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>의 독성**

1) 어류 (Fish)

경골어강의 유럽산 로치 (*Rutilus rutilus*), 대서양 연어 (*Atlantic salmon*), 연준모치 (*Phoxinus phoxinus*), 유럽

산 퍼치 (*Perca fluviatilis*) 각각에 대해 pH 5.17에서 402 ± 6 µg L<sup>-1</sup> 질산알루미늄을 처리한 결과, 모든 종에서 유영능력이 저하되었다. 유럽산 로치에 대한 LT50 (반수치 사시간; median lethal time)은 97 h였으며, 모든 개체는 300 h에 폐사하였다. 대서양 연어에 대한 LT50은 85 h였으며, 모든 개체는 300 h에 폐사하였다. 연준모치에 대한 LT50은 331 h였으며, 모든 개체는 800 h에 폐사하였고 유럽산 퍼치에 대한 LT50은 350 h였으며, 모든 개체는 900 h에 폐사하였다 (Poléo *et al.* 1997). 이처럼 담수어류 4종으로 진행된 실험에서 pH와 알루미늄 농도는 변화

**Table 4.** Toxicological effects of Aluminium nitrate on aquatic animals

Taxa	Species	Exposure / Stage / duration	Effects	References
Fish	<i>Perca jtuviatilis</i>	402 ± 6 µg L <sup>-1</sup> (pH 5.17), Aquatic exposure / 9.7 ± 5.5 g and 100 ± 14 mm / Between 11 and 44 days	Rapid decline in activity (after few hours, not moving), LT50 (50% lethal time) : 350 h	Poléo <i>et al.</i> 1997
	<i>Phoxinus phoxinus</i>	402 ± 6 µg L <sup>-1</sup> (pH 5.17), Aquatic exposure / 2.4 ± 1.4 g and 65 ± 10 mm / Between 11 and 43 days	Rapid decline in activity (after few hours, not moving), LT50 : 331 h	
	<i>Rutilus rutilus</i>	402 ± 6 µg L <sup>-1</sup> (pH 5.17), Aquatic exposure / fry (1.1 ± 0.6 g and 53 ± 10 mm) and mature (14.9 ± 6.5 g and 118 ± 18 mm) / Between 11 and 42 days	Rapid decline in activity (after few hours, not moving), LT50 : 97 h	
	<i>Salmon salar</i>	402 ± 6 µg L <sup>-1</sup> (pH 5.17), Aquatic exposure / 4.0 ± 1.2 g and 74 ± 12 mm / Between 11 and 42 days	Rapid decline in activity (after few hours, not moving), LT50 : 85 h	

LT50, median lethal time

를 주지 않았고 단지 시간에 따른 실험결과를 도출한 특징을 갖는다. 이러한 결과로부터 동일한 질산알루미늄에 대한 저항성은 유럽산 퍼치가 가장 높고 대서양 연어가 가장 낮음을 알 수 있다. 이상의 기준에 보고된 질산알루미늄의 수생동물에 대한 독성효과를 Table 4에 요약하였다.

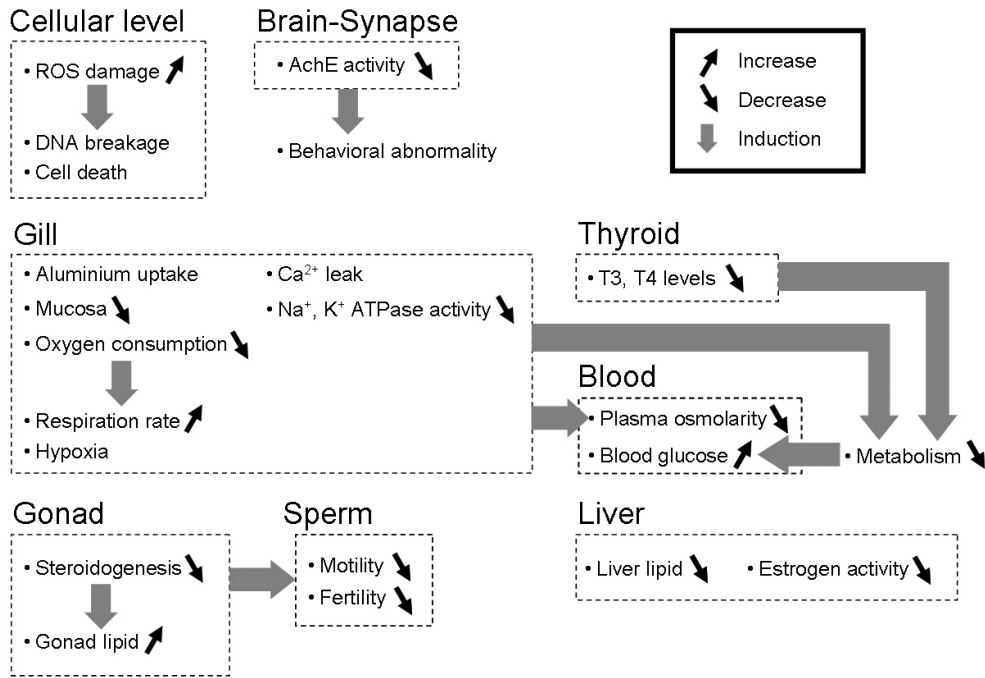
### 알루미늄의 거동

자연상태에서 수반토석(gibbsite; Al(OH)<sub>3</sub>)과 저반아이트(jurbanite; AlSO<sub>4</sub>(OH)<sub>5</sub>H<sub>2</sub>O)와 같은 토양 미네랄은 수계로 유입되는 1차적인 알루미늄 유입원이다(Driscoll and Schecher 1990; Campbell *et al.* 1992; Kram *et al.* 1995). 알루미늄의 용해도는 pH, 온도, 용존유기탄소(dissolved organic carbon; DOC), 기질농도 등의 영향을 받는다. 특히, pH와 DOC는 알루미늄 거동에 가장 중요한 요인이다(Campbell and Stokes 1985; Hutchinson and Sprague 1987; Schindler 1988; Kullberg *et al.* 1993; Driscoll and Postek 1996). 수계 내에서 DOC는 알루미늄과 결합할 수 있으며, 알루미늄-유기물 복합체가 형성되면 알루미늄 단분자의 농도는 감소하게 된다(Farag *et al.* 1993; Parent *et al.* 1996). 알루미늄은 중성 pH 범위(pH 6.0~8.0)에서는 불용성 형태로 존재한다. 알루미늄의 용해도는 산성(pH < 6) 또는 염기성(pH > 8) 범위에서 증가한다. 낮은 pH 조건에서 용존 알루미늄은 대부분 Al<sup>3+</sup> 형태로 존재하며, 높은 pH 조건에서는 Al(OH)<sup>2+</sup>와

같은 수용성 수산화물 형태로 존재한다(Driscoll and Schecher 1990; Witters *et al.* 1996). 따라서 총 알루미늄 농도가 동일하더라도 수계의 pH 조건에 따라 용존 알루미늄 농도는 변할 수 있다.

### 알루미늄 생물독성 평가전략

다양한 형태의 알루미늄화합물이 수생동물의 아가미 기능을 교란함으로써 생존력을 감소시키는 급성 독성효과를 가지며 세포독성, 유전독성, 산화스트레스 유발, 내분비계교란, 생식교란, 대사교란, 항상성교란 등의 영향을 미치는 것으로 확인되었다(Fig. 1). 환경에 잔류하는 수준의 저농도 알루미늄의 독성 유발 사례로서 산성조건에 알루미늄화합물은 어류의 내분비교란, 양서류의 성장 저해 등이 보고되었으므로 알루미늄화합물의 생태독성 평가를 위해서는 처리용액의 pH, 생물배양 온도, 시험동물의 수, 수조의 크기, 시험 기간 등에 대한 정확한 표준화가 충족되어야 한다. 또한 시험용액 내 용존 알루미늄 농도와 pH를 반복적으로 측정하여 함께 제시하여야 할 것이다. 폐광산의 갭내 지하수와 적재된 폐석 더미로부터 나오는 침출수인 산성광산배수는 pH가 낮고 다량의 금속이온과 황산이온을 포함하고 있기 때문에 폐탄광 인근 하천은 강한 산성(pH 3~6)을 나타내는 경우가 많고 알루미늄을 포함한 다량의 금속을 포함하여 수생태계에 심각한 악영향을 미치는 것으로 알려져 있다(Kim and Kim 2002; Kim *et al.* 2003; Kim *et al.* 2005). 반면에



**Fig. 1.** Schematic diagram of aluminium toxicity in aquatic animals. Aluminium complexes evoke gill disfunction primarily, the cytotoxicity, genotoxicity, oxidative stress, disruption of endocrine function, reproductive dysfunction, metabolism and homeostasis.

호소에서 조류(algae)가 증식함에 따라 수중의 이산화탄소(CO<sub>2</sub>)가 소모되어 이로 인해 수중 pH가 상승하는 사례가 보고되고 있으며, 팔당호에서는 2008년에 평균 pH가 8.12로 측정되었지만 조류발생으로 인해 pH가 9.3까지 증가한 사례가 있다(Ryu *et al.* 2000; Kim *et al.* 2009). 알루미늄의 용해도는 염기성 조건에서도 증가하기 때문에 산성 및 염기성 환경이 다양하게 나타나는 수계의 특성을 반영하기 위해서는 기존에 보고된 산성조건에서의 독성평가와 함께 염기성 조건에서의 독성평가 또한 수행되어야 할 것이다.

알루미늄의 독성평가에 사용되는 모델생물은 수계에 서식하는 다양한 분류군의 생물들을 사용할 수 있다. 분류군에 따라 알루미늄에 대한 내성이 다를 뿐 아니라, 동일분류군 내에서도 종에 따라 알루미늄에 대한 내성이 다를 수 있음을 확인하였다. 따라서 알루미늄에 대한 독성평가가 수행 시 가능한 다양한 수생동물 분류군을 검토해야 하며, 한 분류군 내에서도 민감도 비교평가가 이뤄져야 할 것이다. 전 세계적으로 통용되는 표준시험법이 확립된 실험종을 대상으로 연구하는 경우 산출된 독성값의 수평비교가 가능하다는 이점이 있지만, 생물지리학적 관점에서 자생하는 새로운 시험종을 사용하여 표준시험법에 따라 독성시험을 수행하는 것 역시 큰 의미를 가질 것이다. 현재까지는 다양한 알루미늄 화합물의 독성에

대한 수평비교 및 중간 독성민감도의 수평비교가 체계적으로 이뤄지지 않았다. 또한, 국내에서 수계 및 토양의 금속오염 조사 시 알루미늄을 분석 대상에 포함시키지 않는 경우가 많으며, 생물체에 대한 독성평가가 체계적으로 이뤄지지 않고 있으므로 빠른 시일 내에 국내 알루미늄 오염현황 및 자생수생동물에 대한 생태독성 연구가 체계적으로 수행되어야 할 것이다.

### 적 요

알루미늄은 폐광산 침출수, 산업폐수, 생활하수 등을 통해 수계로 유입되어 수생생물에 농축되고 독성을 유발할 수 있다. 최근 다양한 수생생물에서 알루미늄의 독성에 관한 보고가 증가하고 있지만 오염현황 및 생태독성에 대한 연구가 많이 이뤄지지 않았다. 본 소고에서는 수서무척추동물, 어류, 양서류에서 알루미늄의 독성자료를 고찰함으로써 잔류량 가이드라인 설정의 필요성과 알루미늄의 수생태독성 분석전략을 제안하고자 하였다. 다양한 형태의 알루미늄화합물이 수생동물에서 1차적으로 아가미기능을 방해하여 생존을 위협하고 세포독성, 유전독성, 산화적스트레스, 내분비계교란, 생식교란, 대사교란, 항상성교란 등의 독성효과가 있는 것으로 확인되

었다. 특히, 산성조건에서 환경잔류농도 수준의 알루미늄 화합물은 어류에서 호르몬농도 변화를 유발하였다. 알루미늄은 산성 및 염기성 조건에서 용해도가 증가하기 때문에 국내의 폐광산 인근의 산성 수계 뿐 아니라 조류 대발생에 의해 pH가 상승하는 호수나 강에서도 알루미늄의 독성효과가 나타날 것으로 사료된다.

## 사 사

본 연구는 환경부 차세대에코이노베이션 환경기술개발사업(2014년) 지원으로 수행되었음.

## REFERENCES

- Allin CJ and RW Wilson. 1999. Behavioural and metabolic effects of chronic exposure to sublethal aluminum in acidic soft water in juvenile rainbow trout (*Oncorhynchus mykiss*). *Can. J. Fish. Aquat. Sci.* 56:670-678.
- Allin CJ and RW Wilson. 2000. Effects of pre-acclimation to aluminium on the physiology and swimming behaviour of juvenile rainbow trout (*Oncorhynchus mykiss*) during a pulsed exposure. *Aquat. Toxicol.* 51:213-224.
- Booth CE, DG McDonald, BP Simons and CM Wood. 1988. Effects of Aluminum and Low pH on Net Ion Fluxes and Ion Balance in the Brook Trout (*Salvelinus fontinalis*). *Can. J. Fish. Aquat. Sci.* 45:1563-1574.
- Brady LD and RA Griffiths. 1995. Effects of pH and aluminium on the growth and feeding behaviour of smooth and palmate newt larvae. *Ecotoxicology* 4:299-306.
- Brodeur JC, F Okland, B Finstad, DG Dixon and RS Scott McKinley. 2001. Effects of subchronic exposure to aluminium in acidic water on bioenergetics of Atlantic salmon (*Salmo salar*). *Ecotoxicol. Environ. Saf.* 49:226-234.
- Camargo MM, MN Fernandes and CB Martinez. 2009. How aluminium exposure promotes osmoregulatory disturbances in the neotropical freshwater fish *Prochilus lineatus*. *Aquat. Toxicol.* 94:40-46.
- Camilleri C, SJ Markich, BN Noller, CJ Turley, G Parker and DRA Van. 2003. Silica reduces the toxicity of aluminium to a tropical freshwater fish (*Mogurnda mogurnda*). *Chemosphere* 50:355-364.
- Campbell PGC, HJ Hansen, B Dubreuil and WO Nelson. 1992. Geochemistry of Quebec North Shore salmon rivers during snowmelt: organic acid pulse and aluminum mobilization. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.* 49:1938-1952.
- Campbell PGC and PM Stokes. 1985. Acidification and toxicity of metals to aquatic biota. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.* 42:2034-2049.
- Choi SG, SG Park, PK Lee and CS Kim. 2004. An overview of geoenvironmental implications of mineral deposits in Korea. *Econ. Environ. Geol.* 37:1-19.
- Correa M, RA Coler and CM Yin. 1985. Changes in oxygen consumption and nitrogen metabolism in the dragonfly *Somatochlora cingulata* exposed to aluminum in acid waters. *Hydrobiologia* 121:151-156.
- Correia TG, AM Narcizo, A Bianchini and RG Moreira. 2010. Aluminum as an endocrine disruptor in female Nile tilapia (*Oreochromis niloticus*). *Comp. Biochem. Physiol. C Toxicol. Pharmacol.* 151:461-466.
- Cummins CP. 1986. Effects of aluminium and low pH on growth and development in *Rana temporaria* tadpoles. *Oecologia* 69:248-252.
- Driscoll CT and KM Postek. 1996. The chemistry of aluminum in surface waters. pp. 363-418. In the environmental chemistry of aluminum (Sposito G ed.). CRC Press. London.
- Driscoll CT and WD Schecher. 1990. The chemistry of aluminum in the environment. *J. Environ. Perspect. Health* 12:28-49.
- Erdogan S, G Lououlu, KT Ozgunen and T Ozgunen. 2001. Effects of Cd<sup>2+</sup>, Zn<sup>2+</sup>, Li<sup>+</sup> and Al<sup>3+</sup> on the Fertilization-Induced Membrane Potential Changes in the Egg of the Frog *Rana cameranoi*. *Turk. J. Biol.* 25:277-289.
- Farag AM, DF Woodward, EE Little, B Steadman and FA Vertucci. 1993. The effects of low pH and elevated aluminum on Yellowstone cutthroat trout (*Oncorhynchus clarki bouvieri*). *Environ. Toxicol. Chem.* 12:719-731.
- Fernández-Dávila ML, AC Razo-Estrada, S García-Medina, LM Gómez-Oliván, MJ Piñón-López, RG Ibarra and M Galar-Martínez. 2012. Aluminum-induced oxidative stress and neurotoxicity in grass carp (*Cyprinidae-Ctenopharingodon idella*). *Ecotoxicol. Environ. Saf.* 76:87-92.
- García-Medina S, AC Razo-Estrada, LM Gómez-Oliván, A Amaya-Chávez, E Madrigal-Bujaidar and M Galar-Martínez. 2010. Aluminum-induced oxidative stress in lymphocytes of common carp (*Cyprinus carpio*). *Fish Physiol. Biochem.* 36:875-882.
- García-Medina S, C Razo-Estrada, M Galar-Martínez, E Cortéz-Barberena, LM Gómez-Oliván, I Alvarez-González and E Madrigal-Bujaidar. 2011. Genotoxic and cytotoxic effects induced by aluminum in the lymphocytes of the common carp (*Cyprinus carpio*). *Comp. Biochem. Physiol. C Toxicol. Pharmacol.* 153:113-118.
- Genthe B, WJ Le Roux, K Schachtschneider, PJ Oberholster, NH Aneck-Hahn and J Chamier. 2013. Health risk impli-

- cations from simultaneous exposure to multiple environmental contaminants. *Ecotoxicol. Environ. Saf.* 93:171-179.
- Griffitt RJ, J Luo, J Gao, JC Bonzongo and DS Barber. 2008. Effects of particle composition and species on toxicity of metallic nanomaterials in aquatic organisms. *Environ. Toxicol. Chem.* 27:1772-1778.
- Guzmán FT, FJ González and RR Martínez. 2010. Implementing *Lecane quadridentata* acute toxicity tests to assess the toxic effects of selected metals (Al, Fe and Zn). *Ecotoxicol. Environ. Saf.* 73:287-295.
- Herrmann J and KG Andersson. 1987. Aluminium Impact on Respiration of Lotic Mayflies at Low pH. *Acidic. Precipitation.* 703-709.
- Hutchinson NJ and JB Sprague. 1987. Reduced lethality of Al, Zn and Cu mixtures to American flagfish by complexation with humic substances in acidified soft waters. *Environ. Toxicol. Chem.* 6:755-765.
- Hwang UG, N Kagawa and Y Mugiya. 2000. Aluminium and cadmium inhibit vitellogenin and its mRNA induction by estradiol-17 beta in the primary culture of hepatocytes in the rainbow trout *Oncorhynchus mykiss*. *Gen. Comp. Endocrinol.* 119:69-76.
- Jung MC, MY Jung and YW Choi. 2004. Environmental assessment of heavy metals around abandoned metalliferous mine in Korea. *Econ. Environ. Geol.* 37:21-33.
- Kendall RJ and RL Dickerson. 1996. Principles and processes for evaluating endocrine disruption in wildlife. *Environ. Toxicol. Chem.* 25:1253-1254.
- Kim HJ, JE Yang, YS Ok, JY Lee, BK Park, SH Kong and SH Jun. 2005. Assessment of water pollution by discharge of abandoned mines. *J. Soil Groundw. Environ.* 10:25-36.
- Kim JJ and SJ Kim. 2002. Variations in geochemical characteristics of the acid mine drainages due to mineralwater interactions in Donghae mine area in Taebaek, Korea. *J. Econ. Env. Geol.* 35:55-66.
- Kim JJ, SJ Kim and YY Kim. 2003. Mineralogy of evaporation residues and geochemistry of acid mine drainage in the Donghae mine area. *J. Econ. Env. Geol.* 36:103-109.
- Kim JK, SH Lee, HH Bang and SO Hwang. 2009. Characteristics of Algae Occurrence in Lake Paldang. *J. Kor. Soc. Environ. Eng.* 31:325-331.
- Kim KH, JP Susaya, CG Park, JH Uhm and J Hur. 2013. Comprehensive monitoring of drinking well water quality in Seoul metropolitan city, Korea. *Environ. Monit. Assess.* 185:6353-6378.
- Kram P, J Hruska, C Driscoll and CE Johnson. 1995. Biogeochemistry of aluminum in a forest catchment in the Czech Republic impacted by atmospheric inputs of strong acids. *Water Air Soil Pollut.* 85:1831-1836.
- Kroglund F, HC Teien, BO Rosseland, B Albu and ECHE Lucassen. 2001. Water Quality Dependent Recovery from Aluminum Stress in Atlantic *Salmon Smolt*. *Water Air Soil Pollut.* 130:911-916.
- Kullberg A, KH Bishop, A Hargeby, M Jansson and RC Peterson. 1993. The ecological significance of dissolved organic carbon in acidified waters. *Ambio* 22:331-337.
- Laurent P and SF Perry. 1991. Environmental effects on fish gill morphology. *Physiol. Zool.* 64:4-25.
- Lee IG and SH Choi. 2008. Characteristics of stream and soil contamination from the tailing disposal and waste rocks at the abandoned Uljin Mine. *Econ. Environ. Geol.* 41:63-79.
- Mazeaud MM, F Mazeaud and EM Donaldson. 1977. Primary and secondary effects of stress in fish: some new data with a general review. *T. Am. Fish. Soc.* 106:201-212.
- McCahon CP and D Pascoe. 1989. Short-term experimental acidification of a Welsh stream: toxicity of different forms of aluminium at low pH to fish and invertebrates. *Arch. Environ. Contam. Toxicol.* 18:233-242.
- McGleenon BM, KB Dynan and AP Passmore. 1999. Acetylcholinesterase inhibitors in Alzheimer's disease. *Brit. J. Clin. Pharmacol.* 48:471-480.
- Monette MY and SD McCormick. 2008. Impacts of short-term acid and aluminum exposure on Atlantic salmon (*Salmo salar*) physiology: a direct comparison of parr and smolts. *Aquat. Toxicol.* 86:216-226.
- Mount DR, CG Ingersoll, DD Gulley, JD Fernandez, TW LaPoint and HL Bergman. 1988b. Effect of long-term exposure to acid, aluminum and low calcium on adult brook trout (*Salvelinus fontinalis*). 1. Survival, growth, fecundity and progeny survival. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.* 45:1623-1632.
- Mount DR, JR Hockett and WA Gern. 1988a. Effect of long-term exposure to acid, aluminum and low calcium on adult brook trout (*Salvelinus fontinalis*). 2. Vitellogenesis and osmoregulation. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.* 45:1633-1642.
- Mugiya Y and A Tanahashi. 1998. Inhibitory effects of aluminium on vitellogenin induction by estradiol-17 beta in the primary culture of hepatocytes in the rainbow trout *Oncorhynchus mykiss*. *Gen. Comp. Endocrinol.* 109:37-43.
- Neville CM. 1985. Physiological response of juvenile rainbow trout, *Salmo gairdneri*, to acid and aluminium-prediction of field. *Can. J. Fish Aquat Sci.* 42:2004-2019.
- Nilsen TO, LO Ebbesson, OG Kverneland, F Kroglund, B Finstad and SO Stefansson. 2010. Effects of acidic water and aluminum exposure on gill Na(+), K(+)-ATPase alpha-subunit isoforms, enzyme activity, physiology and return rates in Atlantic salmon (*Salmo salar* L.). *Aquat. Toxicol.* 97:250-259.

- Olaniran AO, K Naicker and B Pillay. 2014. Assessment of physico-chemical qualities and heavy metal concentrations of Umgeni and Umdloti Rivers in Durban, South Africa. *Environ. Monit. Assess.* 186:2629-2639.
- Parent L, MR Twiss and PGC Campbell. 1996. Influences of natural dissolved organic matter on the interaction of aluminum with the microalga *Chlorella*: a test of the free-ion model of trace metal toxicity. *Environ. Sci. Technol.* 30: 1713-1720.
- Pereira S, I Cavalie, V Camilleri, R Gilbin and C Adam-Guillermi. 2013. Comparative genotoxicity of aluminium and cadmium in embryonic zebrafish cells. *Mutat. Res.* 750:19-26.
- Poléo AB, K ØStbye, SA Øxnevad, RA Andersen, E Heibo and LA Vøllestad. 1997. Toxicity of acid aluminium-rich water to seven freshwater fish species: a comparative laboratory study. *Environ. Pollut.* 96:129-139.
- Rengel Z. 2004. Aluminum cycling in the soil-plant-animal-human continuum. *Biometals* 17:669-689.
- Ryu DC, EY Bae, SG Kim, HJ Son, MJ Song and YJ Kim. 2000. Application of sulfuric acid for improving coagulation efficiency on the down stream of Nakdong River. *J. Kor. Soc. Environ. Eng.* 22:2059-2065.
- Sayer MD, JP Reader and R Morris. 1991. Effects of six trace metals on calcium fluxes in brown trout (*Salmo trutta* L.) in soft water. *J. Comp. Physiol. B* 161:537-542.
- Schindler DW. 1988. Effect of acid rain on freshwater ecosystems. *Science* 239:149-157.
- Senger MR, KJ Seibt, GC Ghisleni, RD Dias, MR Bogo and CD Bonan. 2011. Aluminum exposure alters behavioral parameters and increases acetylcholinesterase activity in zebrafish (*Danio rerio*) brain. *Cell. Biol. Toxicol.* 27:199-205.
- Shuhaimi-Othman M, N Yakub, NA Ramle and A Abas. 2011a. Toxicity of Metals to a Freshwater Ostracod *Stenocypris major*. *J. Toxicol.* 2011:136104.
- Shuhaimi-Othman M, N Yakub, NA Ramle and A Abas. 2013. Comparative toxicity of eight metals on freshwater fish. *Toxicol. Ind. Health.* Epub ahead of print.
- Shuhaimi-Othman M, N Yakub, NS Umirah and A Abas. 2011b. Toxicity of eight metals to Malaysian freshwater midge larvae *Chironomus javanus* (Diptera, Chironomidae). *Toxicol. Ind. Health.* 27:879-886.
- Shuhaimi-Othman M, R Nur-Amalina and Y Nadzifah. 2012a. Toxicity of metals to a freshwater snail, *Melanoides tuberculata*. *ScientificWorldJournal* 2012:125785.
- Shuhaimi-Othman M, Y Nadzifah, R Nur-Amalina and NS Umirah. 2012b. Deriving freshwater quality criteria for iron, lead, nickel, and zinc for protection of aquatic life in Malaysia. *Scientific World Journal* 2012:861576.
- Staurnes M, T Sigholt and OB Reite. 1984. Reduced carbonic anhydrase and Na - K-ATPase activity in gills of salmonids exposed to aluminium-containing acid water. *Experientia* 40:226-227.
- Taghizadeh V, MR Imanpoor, M Hosseinzadeh and H Azarin. 2013. Effects of acidic water in combination with aluminum on swimming behavior and survival of yolk-sac larval in Goldfish (*Carassius auratus gibelio*). *Springerplus* 2:190.
- Tam WH, JN Fryer, I Ali, MR Allaire and B Valentin. 1988. Growth inhibition, gluconeogenesis, and morphometric studies of the pituitary and interrenal cells of acid-stressed brook trout (*Salvelinus fontinalis*). *Can. J. Fish. Aquat. Sci.* 45:1197-1211.
- Taylor HE, RC Antweiler, DA Roth, CN Alpers and P Dileanis. 2012. Selected trace elements in the Sacramento River, California: occurrence and distribution. *Arch. Environ. Contam. Toxicol.* 62:557-569.
- Verstraeten SV, L Aimo and PI Oteiza. 2008. Aluminum and lead: molecular mechanisms of brain toxicity. *Arch. Toxicol.* 82:789-802.
- Vieira VA, TG Correia and RG Moreira. 2013. Effects of aluminum on the energetic substrates in neotropical freshwater *Astyanax bimaculatus* (Teleostei: Characidae) females. *Comp. Biochem. Physiol. C Toxicol. Pharmacol.* 157:1-8.
- Vuorinen PJ, M Keinänen, S Peuranen and C Tigerstedt. 2003. Reproduction, blood and plasma parameters and gill histology of vendace (*Coregonus albula* L.) in long-term exposure to acidity and aluminum. *Ecotoxicol. Environ. Saf.* 54:255-276.
- Wällstedt T, F Edberg and H Borg. 2009. Long-term water chemical trends in two Swedish lakes after termination of liming. *Sci. Total. Environ.* 407:3554-3562.
- Wang D, Y He, J Liang, P Liu and P Zhuang. 2013. Distribution and source analysis of aluminum in rivers near Xi'an City, China. *Environ. Monit. Assess.* 185:1041-1053.
- Waring CP, JA Brown, JE Collins and P Prunet. 1996. Plasma prolactin, cortisol, and thyroid responses of the brown trout (*Salmo trutta*) exposed to lethal and sublethal aluminium in acidic soft waters. *Gen. Comp. Endocrinol.* 102:377-385.
- Weatherley NS, SJ Ormerod, SP Thomas and RW Edwards. 1988. The response of macroinvertebrates to experimental episodes of low pH with different forms of aluminium, during a natural spate. *Hydrobiologia* 169:225-232.
- Wendelaar B. 1997. The stress response in fish. *Physiol. Rev.* 77:591-625.
- WHO. 2010. Aluminium in drinking-water (Background document for preparation of WHO Guidelines for drinking water

- quality). Geneva, Switzerland: World Health Organization Publications.
- WHO. 2011. Guidelines for drinking water quality. 4th edn. Geneva, Switzerland: World Health Organization Publications. Available at: [http://www.who.int/water\\_sanitation\\_health/publications/2011/dwq\\_guidelines/en/](http://www.who.int/water_sanitation_health/publications/2011/dwq_guidelines/en/)
- Wilson RW, CM Wood and DF Houlihan. 1996. Growth and protein turnover during acclimation to acid and aluminum in juvenile rainbow trout (*Oncorhynchus mykiss*). Can. J. Fish. Aquat. Sci. 53:802-811.
- Wilson RW, HL Bergman and CM Wood. 1994. Metabolic costs and physiological consequences of acclimation to aluminum in juvenile rainbow trout (*Oncorhynchus mykiss*). I. Acclimation specificity, resting physiology, feeding and growth. Can. J. Fish. Aquat. Sci. 51:527-535.
- Wilson RW. 1996. Physiological and metabolic costs of acclimation to chronic sublethal acid and aluminium exposure in rainbow trout. pp. 143-167. Toxicology of Aquatic Pollution. Physiological, molecular and cellular approaches (Taylor EW ed.). Cambridge University Publisher, New York.
- Witters H, JHD Vangenechten, S Van Puymbroeck and OLJ Vanderborcht. 1984. Interference of aluminium and pH on the Na-Influx in an aquatic insect *Corixa punctata* (Illig.). Environ. Contam. Toxicol. 32:575-579
- Witters HE. 1986. Acute acid exposure of rainbow trout *Salmo gairdneri* Richardson; effects of aluminium and calcium on ion balance and haematology. Aquat. Toxicol. 8:197-210.
- Zhu YZ, DW Liu, ZY Liu and YF Li. 2013. Impact of aluminum exposure on the immune system: a mini review. Environ. Toxicol. Pharmacol. 35:82-87.

Received: 13 November 2014

Revised: 3 December 2014

Revision accepted: 4 December 2014