

〈Original article〉

해산로티퍼 (*Brachionus plicatilis*)를 이용한 브롬화난연제 (BDE-47, BDE-209)의 생태독성평가

최 훈 · 이주욱 · 박윤호 · 이인석¹ · 허 승 · 황운기*

국립수산과학원 서해수산연구소 해양생태위해평가센터,

¹국립수산과학원 어장환경과

Ecotoxic Evaluations of BDE-47 and BDE-209 using Rotifer (*Brachionus plicatilis*)

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

Marine Ecological Risk Assessment Center, West Sea Fisheries Research Institute,
National Institute of Fisheries Science (NIFS), Incheon 22383, Republic of Korea

¹Marine Environment Research Division, National Institute of Fisheries Science (NIFS),
Busan 46083, Republic of Korea

Abstract - The toxic assessment of the PBDEs (BDE-47, BDE-209) has been comprehensively investigated by using the rates of survival and population growth in the marine rotifer, *Brachionus plicatilis*. Chiefly, the survival rate was determined after a measurement of 24 hours of exposure to the BDE-47 (2,2',4,4'-Tetrabromodiphenyl ether) and the BDE-209 (2,2',4,4'-Decabromodiphenyl ether) was performed. The BDE-47 reduced survival rate in dose-dependent manner and a significant reduction were noted to have occurred at a concentration of greater than 3.9 mg L⁻¹, but the BDE-209 had no effect which was subsequently observed in this study. The population growth rate (*r*) was determined after 72 hours of exposure to toxicants in the study. It was observed that the *r* value in the controls (absence PBDEs) was greater than 0.5, and that it decreased as the dose-dependent manner as recorded. The survival rate when exposed to BDE-47 and BDE-209, EC₅₀ value was 13 mg L⁻¹ and >1,000 mg L⁻¹, and population growth rate was 3.67 mg L⁻¹ and 862.75 mg L⁻¹, respectively. Therefore, the BDE-47 is considered to be 76-235 times more harmful than the BDE-209 as noted. In this study, the ecotoxicological bioassay using a noted survival rate and population growth rate of *B. plicatilis* can be used as a baseline data for the continued establishment of the environmental quality standard of the incidences of the BDE-47 and BDE-209 in a marine environment.

Keywords : PBDEs, BDE-47, BDE-209, rotifer, *Brachionus plicatilis*

* Corresponding author: Un-Ki Hwang, Tel. 032-745-0680,
Fax. 032-745-0686, E-mail. vngil@korea.kr

서 론

잔류성유기오염물질(POPs)인 PBDEs(Polybrominated diphenyl ethers)는 벤젠고리 내 브롬의 원자 수와 위치에 따라 구별되는 209종의 동족체를 가지고 있다. PBDEs는 높은 끓는점과 낮은 물 용해도, 다양한 물질에 대해 저항성을 가지고 있을 뿐만 아니라 화학적으로도 매우 안정되어 있다. 또한, 다른 난연제와 달리 Polymer와 반응하지 않고 혼합이 가능하기 때문에 석유, 직물, 건축 자재, 플라스틱, 전자 회로 및 기타 재료에서 브롬화난연제(BFR; Brominated flame retardant)로 널리 사용되고 있다(Rahman *et al.* 2001; de Wit 2002; McDonald 2002). 하지만 이와 같은 특성으로 인해, 자연환경에서 잘 분해되지 않아 환경오염을 야기할 뿐만 아니라(Danish 1999; Hassanin *et al.* 2004), 수생 및 야생 생물의 지방에 쉽게 축적될 수 있어, 먹이연쇄에 의해 인간건강에도 악영향을 미칠 수 있다(Darnerud *et al.* 2001).

Nylund *et al.*(1992)에 의하면 북유럽 발틱해의 퇴적물 내 PBDEs농도가 1973년 이후 급격히 증가되었으며, 1977년부터 1987년까지 북해에서 잡힌 어류의 체내에서도 PBDEs가 급격히 증가한 것으로 나타났다(de Bore *et al.* 1998). 또한, 일본 동경만에서도 1980년대 이후 PBDEs의 농도는 계속적으로 증가되고 있으며(Minh *et al.* 2007), 우리나라에서는 2004~2005년 마산만의 표층퇴적물 내에서 22개의 PBDE 이성질체가 검출된 바 있다(We *et al.* 2010). 국내 연안 양식 생물 내 PBDE 잔류 농도 중 BDE-209와 BDE-47의 분포율은 약 40%와 10%로 두 종이 가장 많이 잔류하는 것으로 나타났으며, 국내 연안 퇴적물에서도 분포율이 약 70%와 2% 정도로 나타났다(Baek *et al.* 2012).

BDE-47은 휘발성과 수용성 때문에 어류 및 동물의 조직 내에서 지질에 빠르게 축적되는 것으로 알려져 있다(Darnerud 2003; Lema *et al.* 2007; Chen and Hale 2010; Usenko *et al.* 2011; Viganò *et al.* 2011). BDE-209의 경우는 포유류에서 매우 낮은 독성을 갖는 것으로 알려져 있으나(Hardy 2002; Hardy *et al.* 2002, 2009), 잠재적으로 발암 효과를 가질 수 있는 것으로 밝혀진 바 있다(Du *et al.* 2008).

하지만, BDE-47과 BDE-209에 대한 연구의 대부분은 수

질 및 퇴적물과 같은 해양환경과 생물체내의 농축수준을 나타내고 있어, 어느 수준의 농도에서 생물영향이 나타나는지 판단하기는 매우 어렵다. 따라서 본 연구에서는 어류치 어기의 먹이생물로 폭넓게 활용되어 산업적으로 매우 유용한 해산로티퍼(*B. plicatilis*)의 생존율과 개체군 성장률을 이용하여 독성평가를 실시하여, 반수영향농도(50% Effective Concentration; EC₅₀), 무영향농도(No Observed Effective Concentration; NOEC)와 최소영향농도(Lowest Observed Effective Concentration; LOEC)를 산출하였다. 향후 이러한 연구의 결과는 해양환경내에서 PBDEs(BDE-47, BDE-209 등)와 같은 오염물질의 환경기준을 설정하는 데 유용한 기초자료로 활용될 것으로 판단된다.

재료 및 방법

1. 시험생물

시험생물 해산로티퍼(*Brachiuonus plicatilis*)는 서해수산연구소 해양생태위해평가센터 항온실에서 3개월 이상 계대 배양된 개체 중 포란 중인 성체(amic female)를 분리하고 neonate를 부화시켜 사용하였다. 시험에 사용된 neonate는 부화한 지 2h 이내로, 운동성이 활발한 개체만을 선별적으로 사용하였으며, 배양액은 자연해수를 0.45 µm membrane filter로 여과한 후에 멸균하여 사용하였고, 먹이 생물로 *Chlorella vulgaris*를 하루에 한 번 공급하였다.

2. 시험용액 조성

본 시험에 사용된 BDE-47(2,2',4,4'-Tetrabromodiphenyl ether)과 BDE-209(2,2',4,4'-Decabromodiphenyl ether)의 농도 범위와 기본정보는 Table 1과 같다. 시험에 사용된 독성물질은 DMSO(Dimethylsulfoxide, Sigma-aldrich, USA)를 carrier solution으로 사용하여 100,000 mg L⁻¹의 stock solution을 제작한 뒤, 멸균된 자연해수로 희석하여 사용하였다. 시험용액에 사용된 DMSO의 최대 농도는 1%로 *B. plicatilis*의 NOEC 이하의 농도로 사용하였으며(Gallardo *et al.* 1997), 생존율

Table 1. Information on metal toxicants used in this study

Toxicants	Target concentration (mg L ⁻¹)	Formula	CAS no.	Manufacturer
BDE-47 (2,2',4,4'-Tetrabromodiphenyl ether)	0-125	C ₁₂ H ₆ Br ₄ O	5436-43-1	Chiron AS
BDE-209 (2,2',4,4'-Decabromodiphenyl ether)	0-1,000	C ₁₂ Br ₁₀ O	1163-19-5	Tokyo Chemical Industry Co. Ltd

및 개체군 성장률 시험의 농도 구간은 사전 예비실험을 바탕으로 설정하였다.

3. 생존율 및 개체군 성장률

생존율은 24 well plate에 시험용액을 농도별로 1 mL씩 4반복 실시하였다. 부화한 지 2 h 이내의 *B. plicatilis*의 neonate를 well당 5개체씩 넣고 25 ± 1.0°C에서 24 h 암 배양한 뒤, 현미경을 이용하여 생존한 개체수를 계수하고 생존율을 계산하였다. *B. plicatilis*의 생존여부는 개체의 운동성 또는 섬모와 저작기의 활성 유무에 따라 판단하였고, 대조구 대비 생존율이 90% 이상일 경우 유의미한 시험결과로 사용하였다.

개체군 성장률은 24 well plate에 시험용액을 농도별로 1 mL씩 4반복으로 분주하였다. 먹이 생물인 *C. vulgaris*는 원심분리 후 시험용액을 첨가하여 well당 2 × 10⁶ cell mL⁻¹로 공급하였으며, 부화한 지 2 h 이내의 neonate를 well당 5개체씩 넣은 뒤 암상태의 25 ± 1.0°C에서 72 h 동안 배양하였다 (Hwang *et al.* 2016). 72 h 이후, 3% 포르말린으로 *B. plicatilis*를 고정하고 현미경으로 모든 개체수를 계수하여, 개체군 성장률은 $r = (\ln N_d - \ln N_0) / d$ (r = 개체군 성장률, N_d = 날짜 d 에서의 개체수, N_0 = 초기 개체수, d = 배양일)을 이용하여 계산하였다. 대조구 개체군 성장률이 0.5 이상일 경우 적합한 실험 결과로 사용하였으며 생존율 및 개체군 성장률 시험조건은 Table 2와 같다.

4. 통계분석

대조군과 실험군의 유의성 검정은 SigmaPlot software (SigmaPlot 2001, SPSS Inc., USA)의 Student's t-test로 비교하였으며 p 가 0.05 이하인 것을 유의한 것으로 판단하였다. 생존율 및 개체군 성장률 (r)에 대한 EC₅₀와 95% 신뢰구간 (95% Confidence Limit; 95% CI)은 Toxicalc 프로그램 (Toxicalc 5.0, Tidepool scientific software, USA)의 probit 통

계법을 이용하여 분석하였다. NOEC 및 LOEC도 Toxicalc 프로그램의 Dunnett's test를 이용하여 분석하였다.

결 과

BDE-47과 BDE-209에 24 h 동안 노출된 *B. plicatilis*의 생존율의 변화는 Fig. 1에 나타내었다. BDE-47에 노출된 *B. plicatilis*의 생존율의 경우는 3.9 mg L⁻¹에서부터 3.9%로 대조구 대비 유의적으로 감소하여 ($p < 0.05$), 최고농도 125 mg L⁻¹까지 지속적으로 감소하였다. BDE-209의 경우 최고농도인 1,000 mg L⁻¹까지 감소없이 100%의 생존율을 유지하였다.

BDE-47과 BDE-209에 72 h 동안 노출된 *B. plicatilis*의 개체군 성장률의 변화는 Fig. 2에 나타내었다. BDE-47에 노출된 *B. plicatilis*의 개체군 생존율의 경우는 2.0 mg L⁻¹에서 0.37로 유의하게 감소하기 시작하여 ($p < 0.05$), 15.6 mg L⁻¹에서 개체군의 성장이 관찰되지 않았다. BDE-209의 경우 125 mg L⁻¹에서 개체군 성장률이 감소하기 시작하여, 1,000 mg L⁻¹에서 0.27로 유의적으로 감소하였다. 결과적으로 BDE-47에서는 생존율과 개체군 성장률에 영향을 농도 의존적인 변화를 보여주지만, BDE-209에서는 개체군 성장률에서만 농도 의존적인 경향을 나타낸다.

BDE-47과 BDE-209에 노출된 *B. plicatilis*의 생존율 및 개체군 성장률의 EC₅₀, NOEC와 LOEC값은 Table 3과 같다. BDE-47의 경우 생존율 시험결과 EC₅₀, NOEC와 LOEC

Table 2. Summary of test conditions

Class	Condition
Culture type	Static non-renewal
Parameter	Survival rate (24 h) and population growth rate (72 h)
Temperature	25 ± 1.0 (°C)
Salinity	30 ± 0.5 (‰)
Photoperiod	Darkness
Test volume	1 mL
Solution	Filtered (0.45 µm) and sterilized seawater
Feed organism	<i>Chlorella vulgaris</i> (2,000,000 cell mL ⁻¹)
Validity	>90% survival rate, >0.5 population growth rate

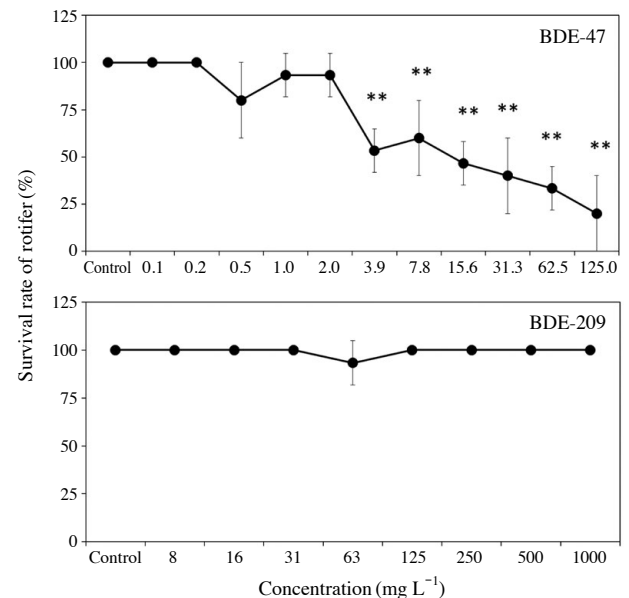
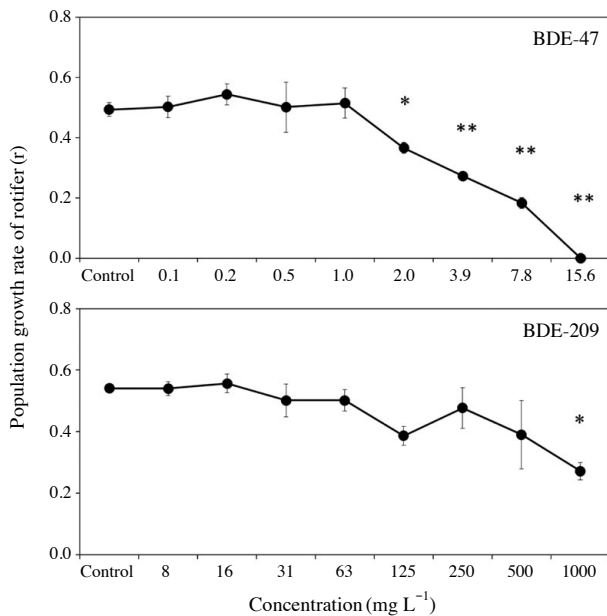


Fig. 1. Survival rate of *B. plicatilis* exposed to BDE-47 and BDE-209 for 24 h (* $p < 0.05$).

Table 3. Toxicity evaluation using survival rates (SR) and population growth rate (PGR) in the *B. plicatilis* exposed to the BDE-47 and BDE-209

Toxicants	Endpoint	Test duration (d)	NOEC (mg L ⁻¹)	LOEC (mg L ⁻¹)	EC ₅₀ (mg L ⁻¹)	95% CI (mg L ⁻¹)
BDE-47 (2,2',4,4'-Tetrabromodiphenyl ether)	SR	1	1.95	3.90	13.00	9.37
	PGR	3	0.98	1.95	3.67	0.33
BDE-209 (2,2',4,4'-Decabromodiphenyl ether)	SR	1	>1,000	>1,000	>1,000	-
	PGR	3	62.50	125.00	862.75	155.52

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

**Fig. 2.** Population growth rate of *B. plicatilis* exposed to BDE-47 and BDE-209 for 72 h (* $p < 0.05$).

값이 각각 13 mg L⁻¹, 1.95 mg L⁻¹, 3.9 mg L⁻¹로 나타났으며, 개체군 성장률 시험결과 EC₅₀, NOEC와 LOEC값이 각각 3.67 mg L⁻¹, 0.9 mg L⁻¹, 1.95 mg L⁻¹로 나타났다. 하지만, BDE-209에서는 개체군 성장률에서만 유의하게 감소하여 EC₅₀, NOEC와 LOEC값이 각각 862.75 mg L⁻¹, 62.5 mg L⁻¹, 125 mg L⁻¹로 나타났으며, 생존율에서는 시험최고농도 1,000 mg L⁻¹ 내에서도 영향을 미치지 않는 것으로 나타났다. 본 시험결과 개체군 성장률이 생존율보다 약 3.5배 민감한 것으로 나타났으며, BDE-47은 BDE-209에 비하여 76~235배 이상 유해성이 있을 수 있다고 판단된다.

고 찰

본 연구는 *B. plicatilis*의 사망 및 개체군 성장률을 이용하

여 PBDEs의 급성 독성을 평가하였으며 특히, PBDEs의 여러 이성질체 중에서 수용해도가 낮고 상대적으로 위해성이 잘 알려져 있지 않는 BDE-47과 BDE-209의 독성 영향을 평가하였다. 본 연구 결과를 통하여, BDE-47과 BDE-209의 독성 영향 정도를 비교해보면 BDE-209에 노출된 *B. plicatilis*의 생존율의 경우 EC₅₀값이 1,000 mg L⁻¹를 초과하며, 개체군 성장률의 경우는 농도 의존적인 반응을 보이지만, EC₅₀값이 862.75 mg L⁻¹로 매우 높은 값을 나타내, 상대적으로 독성이 매우 낮은 것으로 나타났다. 하지만, BDE-47은 생존율과 개체군 성장률에서 모두 농도 의존적으로 감소했으며, EC₅₀값이 각각 13.0 mg L⁻¹, 3.67 mg L⁻¹로 BDE-209와 비교하여 매우 높은 독성을 나타냈다. OECD와 US-EPA의 생태독성 공식시험종인 *Skeletonema costatum*의 72 h 개체군 성장률 시험결과에서도 BDE-47은 EC₅₀값이 70 µg L⁻¹로 나타났으며 (Kallqvist *et al.* 2006), zebrafish (*Danio rerio*)의 96 h 사망률의 경우 EC₅₀값이 20,300 µg L⁻¹로 나타났고 (Chan and Chan 2012), 어류 *Fundulus heteroclitus*에서는 EC₅₀값이 100 µg L⁻¹으로 나타났다. 또한, 갑각류 *Palaemonetes pugio*에서는 유충과 성충단계에서 EC₅₀값이 각각 23.6 µg L⁻¹, 78.07 µg L⁻¹으로 (Key *et al.* 2008, 2009), 대부분의 해양생물에게 독성을 나타내는 것으로 알려져 있다. BDE-209의 경우 어류, *Microgadus tomcod*의 간 중량과 조직 내 지질함량을 이용한 49 d 만성독성시험과 어류 (*Carassius auratus*)의 항산화효소 (Superoxide dismutase, catalase, glutathione, glutathione, peroxidase, malondialdehyde)를 이용한 21 d 만성독성시험에서 농도 의존적 반응을 보였지만 EC₅₀가 산출되지 않았다 (Lebeuf *et al.* 2006; Feng *et al.* 2013). 이러한 결과로 인해, BDE-47과 BDE-209의 EC₅₀값은 시험생물 및 시험법에 따라 차이가 있지만 전체적으로 BDE-47은 BDE-209에 비하여 독성 영향이 큰 것으로 나타나, 해양생태계 내에서 위해성이 클 것으로 판단된다.

BDE-47과 BDE-209의 독성 영향의 차이는 생물체내에 흡수되는 특성에 따라 달라진다. BDE-209의 경우는 여과 섭식하는 패류의 체내에 작은 입자상으로 흡수되어, 내장에 잔

존하여 높은 체내 축적률을 나타내지만(Moon *et al.* 2007), BDE-47의 경우 생물체내로 흡수되면 지질과 빠르게 흡착하게 되어(Lema *et al.* 2007; Viganò *et al.* 2011), 다른 PBDEs 보다 흡수율이 훨씬 높다(Stapleton *et al.* 2009). 이는 BDE-209와 같이 상위 브롬화 PBDE로 갈수록 더 많은 브롬 원자가 물리적 장애물로서 작용하여, 생물체내에서 독성으로 발현되기 더 어렵기 때문이다(Moon *et al.* 2007).

본 연구에서 사용된 *B. plicatilis*의 생존율과 개체군 성장률에 대한 BDE-47과 BDE-209의 독성민감성은 대부분 mg L^{-1} 단위의 노출농도에서 발생했으며, 이는 표층퇴적물의 전세계 PBDEs의 농도범위인 $\text{ND} \sim 95.6 \text{ ng g}^{-1}$ 보다 높은 수준으로 나타났다(We *et al.* 2010). 또한, 2011년 실시한 국내 해역별(동해, 남해, 서해) 연안 퇴적물과 양식생물에서의 PBDEs 모니터링의 경우, 동해, 남해, 서해의 퇴적물에서 각각 4.38, 3.43, $0.67 \text{ ng g}^{-1} \text{ dw}$, 두족류(멍게)와 이매패류(굴, 담치, 바지락)로 구성된 양식생물에서 0.17, 0.14, $0.11 \text{ ng g}^{-1} \text{ ww}$ 으로 나타난 바 있다(Baek *et al.* 2012). 본 연구 결과인 BDE-47의 LOEC값인 $1.95 \sim 3.9 \text{ mg L}^{-1}$ 과 BDE-209의 LOEC값인 $862.75 \sim > 1,000 \text{ mg L}^{-1}$ 값은 연안 퇴적물 및 양식생물 내 BDE-47과 BDE-209 농도에 비해 높게 나타나지만, PBDEs는 옥타놀-물 분배 계수(log Kow)가 높아 지용성이고 소수성인 특성을 가져 지방세포에 축적되고, 동시에 난분해성으로 인하여 먹이사슬을 따라 이동하면서 생물에게 농축되어 나타날 수 있기 때문에 최상위 포식자인 인간의 보건의에도 악영향을 미칠 수 있다(Hong *et al.* 2006). 또한 BDE-47과 BDE-209는 미량일지라도 생물의 생리·생화학적인 변동을 유발하는 것으로 알려져 있으며, 양서류 *Xenopus laevis*인 올챙이의 경우는 $1,000 \text{ ng L}^{-1}$ 의 낮은 농도에서도 변태를 지연하며 갑상선 수용체 mRNA 발현의 저감을 유도하여 갑상선 시스템을 파괴하는 것으로 알려져 있다(Qin *et al.* 2010). 또한, BDE-47에 노출된 수컷 zebrafish (*D. rerio*)의 생식기능과 수정률의 감소가 보고된 바 있으며(Huang *et al.* 2015), 요각류 *Tigriopus japonicas*의 탈피과정을 조절하는 내분비 호르몬의 분비저해를 유발하는 것으로 알려져 있다(Han *et al.* 2015). 또한, BDE-209에 노출된 금붕어(*Carassius auratus*)의 간에서 산화 스트레스를 유발하며(Feng *et al.* 2013), 지렁이, *Eisenia fetida*에서 SOD, GST 및 CAT의 활성이 유도되어 심각한 산화스트레스를 유발하는 데 중요한 역할을 한다는 것이 알려진 바 있다(Xie *et al.* 2011). 이러한 연구 결과를 바탕으로, 향후 PBDEs가 해양생태계에 서식하는 생물의 생리·생화학적인 작용에 미치는 악영향을 판단하기 위한 만성독성 연구가 필요할 것으로 판단된다.

본 연구에서는 1차 소비자인 *B. plicatilis*의 사망률과 개체

군 성장률을 종말 점으로 하여 PBDEs(BDE-47, BDE-209)가 개체 혹은 개체군 단계의 영향을 판단하였지만, 향후에는 해양생태계 내에서 다양한 영양단계 내에서 존재하는 생물에 대한 molecular 및 protein 단계에 대한 영향을 조사할 필요가 있을 것으로 판단되며, 본 연구를 통하여 도출된 독성치는 BDE-47 및 BDE-209와 같은 PBDEs의 해양환경 기준을 설정하기 위한 귀중한 자료로 활용될 것으로 판단된다.

적 요

해산로티퍼, *B. plicatilis*의 생존율과 개체군 성장률을 이용하여 PBDEs(BDE-47, BDE-209)의 생태독성평가를 수행하였다. 생존율의 경우 BDE-47은 3.9 mg L^{-1} 이상의 농도에서 유의하게 감소하여 농도의존성을 나타냈으나, BDE-209의 경우는 큰 변화를 나타내지 않았다. 개체군 성장률의 경우는 BDE-47과 BDE-209에서 각각 농도의존적으로 감소하였다. 본 시험결과 EC_{50} 값은 생존율의 경우 각각 13 mg L^{-1} 과 $1,000 \text{ mg L}^{-1}$ 이었고 개체군 성장률은 각각 3.67 mg L^{-1} 과 862.75 mg L^{-1} 로 나타나 BDE-47이 BDE-209에 비해 76~235배 더 독성이 강한 것으로 나타났다. 또한 BDE-47과 BDE-209에 대한 생존율의 LOEC값은 각각 3.90 mg L^{-1} , $> 1,000 \text{ mg L}^{-1}$ 으로 나타났으며, 개체군 성장률의 LOEC값은 각각 1.95 mg L^{-1} , 125 mg L^{-1} 로 나타났다. 본 연구를 통하여 도출된 LOEC값은 연안환경에서의 BDE-47과 BDE-209농도가 이를 초과하는 경우 *B. plicatilis*와 같은 동물성 플랑크톤에 악영향을 미칠 것으로 판단된다. 또한 NOEC와 EC_{50} 값은 BDE-47 및 BDE-209와 같은 독성 물질의 환경 기준을 수립하기 위한 귀중한 자료로 활용될 수 있을 것이다.

사 사

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

REFERENCES

- Baek SH, IS Lee, HS Kim, MK Choi, DW Hwang, SY Kim and HG Choi. 2012. Distribution of persistent organic pollutants (POPs) in sediment and organism collected from various culturing grounds, Korea. *The Sea* 17:262-269.
- Chan WK and KM Chan. 2012. Disruption of the hypothalamic-

- pituitary-thyroid axis in zebrafish embryo-larvae following waterborne exposure to BDE-47, TBBPA and BPA. *Aquat. Toxicol.* 108:106–111.
- Chen D and RC Hale. 2010. A global review of polybrominated diphenyl ether flame retardant contamination in birds. *Environ. Int.* 36:800–811.
- Danish EPA. 1999. Brominated flame retardants: substance flow analysis and assessment of alternatives.
- Darnerud PO. 2003. Toxic effects of brominated flame retardants in man and in wildlife. *Environ. Int.* 29:841–853.
- Darnerud PO, GS Eriksen, T Jóhannesson, PB Larsen and M Viluksela. 2001. Polybrominated diphenyl ethers: occurrence, dietary exposure, and toxicology. *Environ. Health Perspect.* 109(S1):49.
- De Boer J, PG Wester, HJC Klamer, WE Lewis and JP Boon. 1998. Do flame retardants threaten ocean life. *Nature* 394: 28–29.
- De Wit CA. 2002. An overview of brominated flame retardants in the environment. *Chemosphere* 46:583–624.
- Du HY, L Zhu, Z Chen, Y Li and ZH Duan. 2008. The progress of study on the toxicological effects of deca-brominated diphenyl ether. *J. Toxicol.* 22:50–52.
- Feng M, RJ Qu, C Wang, L Wang and Z Wang. 2013. Comparative antioxidant status in freshwater fish *Carassius auratus* exposed to six current-use brominated flame retardants: A combined experimental and theoretical study. *Aquat. Toxicol.* 140:314–323.
- Gallardo WG, Y Tomita, A Hagiwara, K Soyano and TW Snell. 1997. Effect of dimethyl sulfoxide (DMSO), sodium hydroxide (NaOH), acetone and ethanol on the population growth, mictic female production, and body size of the rotifer *Brachionus plicatilis* Muller. *Bull. Fac. Fish. Nagasaki Univ.* 78:15–22.
- Hardy ML. 2002. The toxicology of the three commercial polybrominated diphenyl ether (ether) flame retardants. *Chemosphere* 46:757–777.
- Hardy ML, M Banasik and T Stedeford. 2009. Toxicology and human health assessment of decabromodiphenyl ether. *Crit. Rev. Toxicol.* 39(S3):1–44.
- Hardy ML, R Schroeder, J Biesecker and O Manor. 2002. Prenatal oral (gavage) developmental toxicity study of decabromodiphenyl ether in rats. *Int. J. Toxicol.* 21:83–91.
- Hassanin A, K Breivik, SN Meijer, E Steinnes, GO Thomas and KC Jones. 2004. PBDEs in European background soils: levels and factors controlling their distribution. *Environ. Sci. Technol.* 38:738–745.
- Huang Y, G Zhu, L Peng, W Ni, X Wang, J Zhang and K Wu. 2015. Effect of 2,2',4,4'-tetrabromodiphenyl ether (BDE-47) on sexual behaviors and reproductive function in male zebrafish (*Danio rerio*). *Ecotox. Environ. Safe.* 111:102–108.
- Hwang UK, HM Ryu, S Heo, SJ Chang, KW Lee and JW Lee. 2016. Effect of heavy metals on the survival and population growth rates of Marine Rotifer, *Brachionus plicatilis*. *Korea J. Environ. Biol.* 34:353–360.
- Källqvist T, M Grung and KE Tollefsen. 2006. Chronic toxicity of 2,4,2',4'-tetra-bromodiphenyl ether on the marine alga *Skeletonema costatum* and the crustacean *Daphnia magna*. *Environ. Toxicol. Chem.* 25:1657–1662.
- Key PB, J Hoguet, WK Chung, JJ Venturella, PL Pennington and MH Fulton. 2009. Lethal and sublethal effects of simvastatin, irgarol, and PBDE-47 on the estuarine fish, *Fundulus heteroclitus*. *J. Environ. Sci. Health Part B* 44:379–382.
- Key PB, WK Chung, J Hoguet, B Shaddrix and M Fulton. 2008. Toxicity and physiological effects of brominated flame retardant PBDE-47 on two life stages of grass shrimp, *Palaeomonetes pugio*. *Sci. Total Environ.* 399:28–32.
- Lebeuf M, CM Couillard, B Légaré and S Trottier. 2006. Effects of De-BDE and PCB-126 on hepatic concentrations of PBDEs and methoxy-PBDEs in Atlantic tomcod. *Environ. Sci. Technol.* 40:3211–3216.
- Lema SC, I Schultz, N Scholz, J Incardona and P Swanson. 2007. Neural defects and cardiac arrhythmia in fish larvae following embryonic exposure to 2,2',4,4'-tetrabromodiphenyl ether (PBDE-47). *Aquat. Toxicol.* 82:296–307.
- McDonald TA. 2002. A perspective on the potential health risks of PBDEs. *Chemosphere* 46:745–755.
- Mhadhbi L, J Fumega and R Beiras. 2012. Toxicological effects of three polybromodiphenyl ethers (BDE-47, BDE-99 and BDE-154) on growth of marine algae *Isochrysis galbana*. *Water Air Soil Pollut.* 223:4007–4016.
- Minh NH, T Isobe, D Ueno, K Matsumoto, M Mine, N Kajiwara, S Takahashi and S Tanabe. 2007. Spatial distribution and vertical profile of polybrominated diphenyl ethers and hexabromocyclododecanes in sediment core from Tokyo Bay, Japan. *Environ. Pollut.* 148:409–417.
- Moon HB, K Kannan, M Choi and HG Choi. 2007. Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in marine sediments from industrialized bays of Korea. *Mar. Pollut. Bull.* 54:1402–1412.
- Nylund K, L Asplund, B Janssen, P Jonsson, K Litzen and U Sellström. 1992. Analysis of some polyhalogenated organic pollutants in sediment and sewage sludge. *Chemosphere* 24:1721–1730.
- Qin X, X Xia, Z Yang, S Yan, Y Zhao, R Wei, Y Li, M Tian, X Zhao, Z Qin and X Xu. 2010. Thyroid disruption by technical decabromodiphenyl ether (DE-83R) at low concentra-

- tions in *Xenopus laevis*. J. Environ. Sci. 22:744–751.
- Rahman F, KH Langford, MD Scrimshaw and JN Lester. 2001. Polybrominated diphenyl ether (PBDE) flame retardants. Sci. Total Environ. 275:1–17.
- Usenko CY, EM Robinson, S Usenko, BW Brooks and ED Bruce. 2011. PBDE developmental effects on embryonic zebrafish. Environ. Toxicol. Chem. 30:1865–1872.
- Viganò L, C Roscioli and L Guzzella. 2011. Decabromodiphenyl ether (BDE-209) enters the food web of the River Po and is metabolically debrominated in resident cyprinid fishes. Sci. Total Environ. 409:4966–4972.
- We SU, CH Yoon and BY Min. 2010. Spatial distribution and residual consistency assessment of PBDEs in the surface sediment of the Masan Bay. Environmental Engineering Research 32:427–436.
- Xie X, Y Wu, M Zhu, YK Zhang and X Wang. 2011. Hydroxyl radical generation and oxidative stress in earthworms (*Eisenia fetida*) exposed to decabromodiphenyl ether (BDE-209). Ecotoxicology 20:993–999.

Received: 22 February 2018

Revised: 2 March 2018

Revision accepted: 2 March 2018